



UNIVERSITÉ DE SAÏDA - Dr MOULAY TAHAR

جامعة سعيدة – د. مولاي الطاهر

Faculté des Sciences et Technologie

العلوم والتكنولوجيا

Département de Science de la matière

قسم علوم المادة

MEMOIRE

Elaboré en vue de l'obtention du diplôme de master en Physique

Spécialité : Physique des Rayonnements

Intitulé :

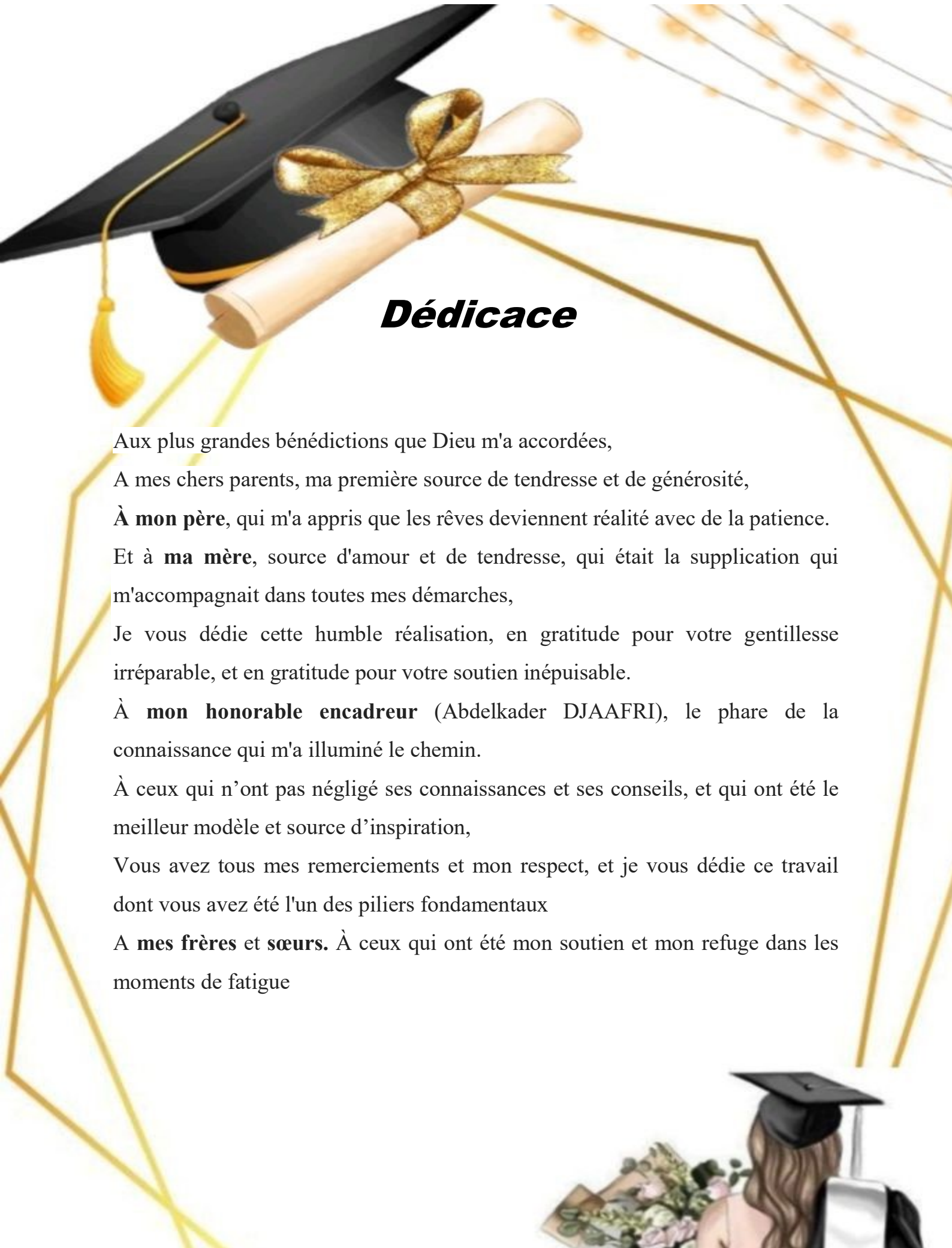
Etude des dommages induits par irradiation dans le titane

Présenté par :

ALLALI Ahlem

Soutenu le 16/06/2025, devant le jury composé de :

Pr. KOUIDRI Smain	Université de Saïda - Dr MOULAY Tahar	Président
Dr. DJAAFRI Abdelkader	Université de Saïda - Dr MOULAY Tahar	Encadrant
Dr. SAADAOUI Fatiha	Université de Saïda - Dr MOULAY Tahar	Examineur



Dédicace

Aux plus grandes bénédictions que Dieu m'a accordées,

A mes chers parents, ma première source de tendresse et de générosité,

À mon père, qui m'a appris que les rêves deviennent réalité avec de la patience.

Et à **ma mère**, source d'amour et de tendresse, qui était la supplication qui m'accompagnait dans toutes mes démarches,

Je vous dédie cette humble réalisation, en gratitude pour votre gentillesse irréparable, et en gratitude pour votre soutien inépuisable.

À mon honorable encadreur (Abdelkader DJAAFRI), le phare de la connaissance qui m'a illuminé le chemin.

À ceux qui n'ont pas négligé ses connaissances et ses conseils, et qui ont été le meilleur modèle et source d'inspiration,

Vous avez tous mes remerciements et mon respect, et je vous dédie ce travail dont vous avez été l'un des piliers fondamentaux

A mes frères et sœurs. À ceux qui ont été mon soutien et mon refuge dans les moments de fatigue

Remerciements



Nous remercions en premier lieu Dieu tout puissant de nous avoir accordé la puissance et la volonté pour terminer ce travail. Après, je tiens à remercier Monsieur **Abdelkader DJAAFRI** pour l'encadrement qu'il m'a assuré et ses précieux et judicieux conseils qu'il n'a cessé de me prodiguer tout au long de ce projet, sa confiance témoignée, sans oublier sa qualité humaine. Il trouve ici ma gratitude et ma reconnaissance profonde.

J'adresse mes sincères remerciements à monsieur le président de jury Pr. **Smain KOUIDRI** et au membre de jury Dr. **Fatiha SAADAoui** pour l'honneur qu'ils me font en acceptant de juger ce travail.

Je tiens également à remercier tous ceux qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.



Liste des abréviations

Ti	titane
BCA	Binary Collision Approximation
MD	Molecular Dynamics
PKA	Primary Knock-on Atom
HCP	Héxagonale compacte
L	Système du laboratoire
CM	Centre de Masse
ZBL	Ziegler-Biersack-Littmark
LSS	Lindhard-Scharff -Schiott
RCS	Replacement Collision Sequences
KP	Kinchin-Pease
NRT	Norgett-Robinson-Torrens
arc-dpa	Athermal Recombination-Corrected Displacement per Atom
ACP	Analyse en Composantes Principales
MET	Microscopie Electronique en Transmission
SAP	Spectroscopie d'Annihilation de Positrons
DRX	Diffraction des Rayons X
APT	Atom Probe Tomography
DFT	Density Functional Theory
TRIM	Transport of Ions in Matter
SRIM	Stopping and Range of Ions in Matter
uma	Unité de masse atomique

Liste des notations et des symboles

Symbole	Signification	Symbole	Signification
m_e	Masse au repos de l'électron	θ_1	Angle de diffusion du projectile après le choc
e	Charge élémentaire	θ_2	Angle de diffusion de l'atome cible après le choc
N_a	Nombre d'avogadro	ϑ	Angle de diffusion dans le référentiel (CM)
h	Constante de Planck	r	Distance interatomique
$\hbar$	Constante de Planck réduite	E_0	Energie initiale du projectile
a_B	Rayon de Bohr	E_1	Energie du projectile après le choc
m_1	Masse du projectile	E_2	Energie de l'atome cible après le choc
m_2	Masse de l'atome cible	v_B	Vitesse de Bohr
Z_1	Numéro atomique du projectile	E_{dam}	Energie disponible pour le déplacement atomique
Z_2	Numéro atomique de l'atome cible	N_{PF}	Nombre de paires de Frenkel
K	Constante de Biltzman	v_0	Vitesse initiale du projectile
C	Vitesse de la lumière dans le vide	v_1	Vitesse du projectile après le choc
E_d	Energie seuil de déplacement	v_2	Vitesse de l'atome cible après le choc
E_c	Energie de coupure	A_i	Poids atomique
E_{th}	Energie de liaison de déplacement	Q	Energie inélastique perdue
E_r	Energie de liaison de remplacement	V	Potential d'interaction atomique
I	Potential moyen d'excitation	E_l	Energie de formation d'une lacune
a, b, c α, β, γ	Paramètres du réseau hcp	β	Rapport entre la vitesse de la particule et la vitesse de la lumière
a_{ZBL}	Rayon d'écran du potentiel ZBL	$(-dE/dx)$	Pouvoir d'arrêt total du milieu
a_M	Rayon d'écran de Molière	S	Pouvoir d'arrêt atomique
k_B	Constante de Boltzmann	$(-dE/dx)_N$	Pouvoir d'arrêt nucléaire du milieu
ε_0	Permittivité du vide	$(-dE/dx)_e$	Pouvoir d'arrêt électronique du milieu
T_D	Température de Debye	ρ	Densité du milieu cible
σ	Section efficace de diffusion	A	Rapport entre la masse de la cible et la masse du projectile
E_i	Energie de formation d'un auto-interstitiel	E_F	Energie de formation d'un défaut de Frenkel
E_S	Energie de formation d'un défaut de Scottky	n_F	Concentration des défauts de Frenkel

Liste des tableaux

Chapitre 3		
Tableau 3.1	Paramètres utilisés dans la simulation de l'irradiation du titane.....	58
Tableau 3.2	Nombre de paires de Frenkel calculé à partir des trois modèles KP, NRT, arc-dpa et de Marlowe	60

Liste des figures

Chapitre 1		
Figure 1.1	Représentation schématique d'un cristal parfait.....	11
Figure 1.2	Représentation (à deux dimensions) d'une lacune	12
Figure 1.3	Migration d'une lacune par déplacements successifs d'atomes.....	13
Figure 1.4	Représentation (à deux dimensions) d'un auto-interstitiel.....	14
Figure 1.5	Représentation schématique d'un défaut de Frenkel	15
Figure 1.6	Représentation schématique d'un défaut de Schottky.....	16
Figure 1.7	Représentation schématique d'un défaut extrinsèque par substitution.....	17
Figure 1.8	Représentation schématique d'un défaut extrinsèque par insertion.....	17
Figure 1.9	Représentation schématique d'une dislocation coin.....	18
Figure 1.10	Représentation schématique d'une dislocation vis.....	18
Figure 1.11	Dislocations (lignes sombres) vues au microscope électronique en transmission dans un alliage de titane	19
Figure 1.12	Diagramme schématique montrant le joint de grain.....	20
Figure 1.13	Représentation schématique d'un joint de phases.....	20
Figure 1.14	Diagramme schématique d'un joint de macle avec les positions d'atomes l'entourant	21
Figure 1.15	Diagramme schématique d'une paroi d'antiphase.....	21
Figure 1.16	Pores formés à l'interface métal/oxyde.....	22
Figure 1.17	Gonflement du matériau suite à son irradiation.....	24
Chapitre 2		
Figure 2.1	Représentation schématique de la cascade de déplacements.....	31
Figure 2.2	Schéma d'un atome en mouvement à travers un canal au sein d'un réseau cristallin	32
Figure 2.3	Schéma d'une séquence de remplacements.....	33

Liste des figures

Figure 2.4	Représentation schématique d'une collision binaire dans le référentiel du laboratoire	34
Figure 2.5	Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.....	37
Figure 2.6	Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire	38
Figure 2.7	Nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade en fonction de l'énergie du primaire d'après le modèle de Kinchin-Pease	46

Chapitre 3

Figure 3.1	Structures hexagonale compacte (α) et cubique centrée (β) du titane...	56
Figure 3.2	Potentiels d'interaction atomique entre deux atomes de titane.....	57
Figure 3.3	Nombre de paires de Frenkel calculé à partir du modèle arc-dpa et de Marlowe	60
Figure 3.4	Fonction de distribution des paires de Frenkel pour le titane irradié.....	61
Figure 3.5	Atomes en mouvement dans le titane irradié pour différentes énergies du primaire	62
Figure 3.6	Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de l'énergie du primaire	64
Figure 3.7	Nombre de séquences de remplacements dans le titane pour différentes températures du cristal	65
Figure 3.8	Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de leur longueur pour différentes énergies du primaire	65
Figure 3.9	Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de leur longueur pour différentes températures du cristal	66
Figure 3.10	Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 10 keV	67

Liste des figures

Figure 3.11	Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 15 keV	68
Figure 3.12	Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 20 keV	68
Figure 3.13	Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 25 keV	69
Figure 3.14	Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 30 keV	69
Figure 3.15	Distributions de volumes pour les énergies du primaire 10, 15 et 20 keV	70
Figure 3.16	Distributions de volumes pour les énergies du primaire 25 et 30 keV....	71
Figure 3.17	Nombre d'amas et leurs tailles en fonction de l'énergie du primaire.....	72

دراسة التلف الناجم عن الإشعاع في التيتانيوم

الملخص

لدراسة تشكل العيوب في التيتانيوم الناتجة عن تعرضه للإشعاع، قمنا بمحاكاة تسلسلات الإزاحة الذرية باستخدام البرنامج مارلو الذي يعتمد على نموذج تقريب التصادمات الثنائية. تم توليد تسلسلات ناتجة عن ذرات إبتدائية ذات طاقة حركية تتراوح بين 5 و 30 إلكترونفولت مع إجراء 1000 محاكاة لكل طاقة. تم وصف التفاعلات بين ذرات التيتانيوم المتصادمة باستخدام جهد زيجلر-بيرسك-ليتمارك في حين تم نمذجة الإهتزازات الحرارية لذرات الشبكة عبر نموذج ديبياي. تم حساب الطاقة المفقودة في تأيين و إثارة الذرات باستخدام نموذج أون-روبنسون. لتقييم حجم المنطقة المتضررة، استخدمت طريقة تحليل المكونات الرئيسية. سمحت المحاكاة بتحليل التطور الزمني لتسلسلات الإزاحة ، التوزيع الفضائي للعيوب المتبقية و حساسيتها لدرجة الحرارة، حجم المكان المتضرر جراء الإشعاع بالإضافة إلى عدد و كبر تجمعات الفجوات. كشفت النتائج أنه مع نصف قطر إعادة التركيب بقيمة 2.50a فإن غالبية الذرات المزاحة للشبكة لا تتجو من عملية إعادة التركيب و أن 12% منها تشكل عيوباً دائمة. تلعب سلسلات الإستبدال و درجة الحرارة دوراً محدوداً للغاية في تشكل العيوب. يظهر توزيع أحجام المناطق المتضررة إنحرافاً كبيراً عن توزيع غوس. يتموضع 49% من الفجوات في شكل تجمعات.

الكلمات المفتاحية

تيتانيوم، إشعاع، تقريب التصادمات الثنائية، عيوب، تجمعات فجوية

Study of irradiation-induced damage in titanium

Abstract

To study the formation of defects in irradiated titanium, we simulated displacement cascades using the Marlowe code, which is based on the binary collision approximation model. Cascades initiated by primaries with kinetic energies ranging from 5 to 30 keV were generated, with 1000 simulations per energy. Interactions between colliding titanium atoms were described using the Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) potential, while the thermal vibrations of lattice atoms were modeled via the Debye model. Inelastic energy losses related to electronic excitation and ionization were calculated using the Oen-Robinson model. Principal component analysis was employed to evaluate the damaged zone volume. The simulations enabled analysis of the temporal evolution of cascades, the spatial distribution of residual defects and their sensitivity to temperature, the damaged region volume, as well as the number and size of vacancy clusters.

The results reveal that, with a recombination radius of $2.50a$, the majority of displaced atoms do not survive recombination, and 12% of them form permanent defects. Replacement collision sequences and temperature play a very limited role in defect formation. The distribution of cascade volumes exhibits strong variability, significantly deviating from a normal distribution. Approximately 49% of vacancies are clustered.

Keywords:

Titanium, irradiation, binary collision approximation, defects, vacancy clusters

Etude des dommages induits par irradiation dans le titane

Résumé

Afin d'étudier la formation de défauts dans le titane irradié, nous avons simulé des cascades de déplacements à l'aide du code Marlowe qui est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Des cascades initiées par des primaires d'énergie cinétique variant de 5 à 30 keV (par pas de 5 keV) ont été générées, avec 1000 simulations par énergie. Les interactions entre atomes de titane en collision ont été décrites par le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL), tandis que les vibrations thermiques des atomes du réseau ont été modélisées via le modèle de Debye. Les pertes d'énergie inélastiques, liées à l'excitation électronique et à l'ionisation, ont été calculées selon le modèle d'Oen-Robinson. L'analyse en composantes principales a été utilisée pour évaluer le volume de la zone endommagée. Les simulations ont permis d'analyser l'évolution temporelle des cascades, la distribution spatiale des défauts résiduels et leur sensibilité à la température, le volume de la région endommagée, ainsi que le nombre et la taille des amas lacunaires. Les résultats révèlent qu'avec un rayon de recombinaison de $2,50a$, la majorité d'atomes déplacés ne survivant pas à la recombinaison et que 12% d'eux forment des défauts permanents. Les séquences de remplacements et la température jouent un rôle très limité dans la formation des défauts. La répartition des volumes des cascades présente une forte variabilité, s'écartant significativement d'une distribution normale. Environ 49 % des lacunes sont regroupées en amas.

Mots clés

Titane, irradiation, approximation des collisions binaires, défauts, amas de lacunes

Tables des matières

Introduction générale.....	1
Références bibliographiques.....	6

Chapitre1 – Imperfections dans les solides

1.1 Introduction.....	11
1.2 Défauts ponctuels.....	12
1.2.1 Lacunes.....	12
1.2.2 Auto-interstitiels.....	13
1.2.3 Défauts de Frenkel	14
1.2.4 Défauts de Schottky	15
1.2.5 Défauts extrinsèques.....	16
1.3 Défauts linéaires.....	17
1.4 Défauts superficielles (bidimensionnels).....	19
1.4.1 Joints de grains et joints de phases.....	19
1.4.2 Joints de macle.....	20
1.4.3 Parois d’antiphase.....	21
1.5 Défauts volumiques (tridimensionnels).	21
1.5.1 Pores.....	22
1.5.2 Inclusions.....	22
1.5.3 Précipités.....	22
1.6 Défauts radiatifs.....	23
Références bibliographiques.....	25

Chapitre 2 – Modèle de simulation

2.1 Introduction.....	29
-----------------------	----

2.2	Approximation des collisions binaires.....	30
2.3	Cascades de déplacements.....	30
2.3.1	Mécanisme d'une cascade de déplacements.....	30
2.3.2	Canalisation.....	32
2.3.3	Séquences de remplacements.....	33
2.3.4	Analyse d'une collision binaire.....	34
2.3.4.1	Angle de diffusion.....	34
2.3.4.2	Energies des atomes après collision.....	36
2.3.4.3	Energie transférée à l'atome cible	36
2.3.4.4	Angle de diffusion et dépendance au potentiel d'interaction....	37
2.3.4.5	Trajectoires asymptotiques et coordonnées d'intersection.....	38
2.4	Potentils d'interactions atomiques.....	39
2.4.1	Potentiel de Molière.....	39
2.4.2	Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark.....	40
2.5	Mécanisme de dissipation énergétique.....	41
2.5.1	Pertes d'énergie élastiques.....	41
2.5.2	Pertes d'énergies inélastiques.....	43
2.5.3	Pertes d'énergie totale.....	44
2.6	Modèles de calcul du nombre de défauts de Frenkel.....	45
2.6.1	Modèle de Kinchin-Pease.....	45
2.6.2	Modèle de Norgett-Robinson-Torrens.....	47
2.6.3	Modèle arc-dpa.....	47
	Références bibliographiques.....	49
Chapitre 3 – Résultats et discussion		
3.1	Introduction.....	54

Table des matières

3.2 Paramètres de simulation.....	55
3.3 Ajustement du rayon de recombinaison.....	59
3.4 Distribution des paires de Frenkel.....	61
3.5 Atomes en mouvement.....	62
3.6 Séquences de remplacements.....	63
3.7 Distribution spatiale des défauts.....	66
3.8 Distribution des volumes.....	70
3.9 Amas lacunaires.....	72
Références bibliographiques.....	74
Conclusion générale	77

Introduction générale

L'irradiation désigne l'exposition d'une matière aux rayonnements qu'il s'agisse de particules lourdes chargées (proton, alpha,...), électrons, neutrons ou rayonnement électromagnétique. Le résultat de l'interaction du rayonnement avec la matière dépend des propriétés du rayonnement (énergie, masse, charge,...) et des propriétés du milieu irradié (densité, numéro atomique, poids atomique,...). En général, le processus d'irradiation est accompagné d'un transfert d'énergie aux constituants de la matière (les atomes qui sont composés eux-mêmes d'électrons et de noyaux). Si les particules irradiantes sont assez énergétiques, elles causent des déplacements atomiques dans le milieu menant à des défauts ponctuels (atomes interstitiels et lacunes) qui par diffusion et agglomération se développent en des défauts étendus (dislocations et cavités). Ces défauts qui sont à l'échelle atomique altèrent les propriétés physiques, chimiques et mécaniques des matériaux telles que la conductivité thermique et électrique, la résistance à la corrosion, le durcissement, la fragilisation, le gonflement, etc.

Les matériaux utilisés dans les domaines spatial et nucléaire sont sujets à des environnements radiatifs extrêmes. Dans l'espace, les composants électroniques des satellites et engins spatiaux subissent l'impact de particules énergétiques provenant de vent solaire et de rayonnement cosmique, engendrant du bruit électronique, des erreurs de calcul ou des défaillances. Dans les réacteurs nucléaires, les structures internes sont exposées à des flux de neutrons produits par les réactions nucléaires. Les dommages causés par l'irradiation compromettent la fiabilité et la durée de vie des dispositifs. Comprendre les mécanismes de dommages (production, agrégation et évolution des défauts) est donc crucial pour prédire la longévité des composants, optimiser leurs performances et concevoir des matériaux résistants aux radiations intenses. Cette recherche revêt aussi une importance pour des applications médicales ou l'implantation ionique, soulignant l'enjeu interdisciplinaire de l'étude des effets d'irradiation [1-5].

Le titane est un élément chimique de symbole Ti, de numéro atomique $Z=22$ et de masse atomique $W=47.867u$ [6]. Le titane est un métal de transition, léger et résistant, caractérisé par un aspect blanc métallique. Il appartient au groupe 4 du tableau périodique appelé groupe du titane avec le zirconium, le hafnium et le rutherfordium. Il peut se présenter de manière pure ou sous forme d'alliage. Il a une densité d'environ $4,506 \text{ g/cm}^3$ ce qui le rend presque deux fois moins lourd que l'acier ($7,86 \text{ g/cm}^3$) [7]. Sa température de fusion est de 1943 K [8 - 10] et d'ébullition culmine à 3560.15 K [11]. Ce qui permet son utilisation à des

températures élevées sans déformation. En dessous de 882 C, il cristallise dans un réseau hexagonale compacte (hcp) avec des constantes de réseau $a=b=2.9508\text{\AA}$, $c=4.6855\text{\AA}$, $\alpha=\beta=90^\circ$ et $\gamma=120^\circ$. Au-dessus de cette température Il a une structure cubique centrée avec paramètre de maille $a = 3.32\text{\AA}$ [12]. Ce matériau possède également une excellente résistance à la corrosion même dans les environnements marins ou acides. C'est pour cette raison qu'il est utilisé dans la fabrication d'équipements résistants aux agents corrosifs.

Le titane est un métal aux propriétés remarquables, qui en font de lui un matériau prisé dans une multitude d'applications à travers divers domaines [13]. Dans l'aérospatiale, le titane joue un rôle essentiel en raison de ses propriétés uniques (légèreté et robustesse) qui répondent aux exigences strictes des missions spatiales. Son rapport résistance/poids élevé permet de concevoir des composants légers sans compromettre leur solidité même à des températures extrêmes, allant de -50°C à 400°C , ce qui est crucial pour la performance, la durabilité et la sécurité des engins spatiaux soumis à des contraintes extrêmes. Il entre dans la fabrication des coques de moteurs de fusée, les pales de turbine et les structures d'avion, les réservoirs de gaz de propulsion pour les satellites et les composants critiques tels que les trains d'atterrissage et les fixations [14-17].

Dans le domaine nucléaire, le titane est employé dans les tuyauteries et pompes pour transporter des fluides corrosifs (eau salée, acides) dans les circuits de refroidissement, dans les coques ou composants proches des réacteurs dans les sous-marins et navires nucléaires, dans les conteneurs de stockage pour le stockage à long terme de déchets ou de combustible usé [18].

Dans le secteur médical, le titane est convoité pour sa biocompatibilité. Il peut être intégré sans risque dans le corps humain. Il est couramment employé pour des implants, des prothèses dentaires et des instruments chirurgicaux. Sa capacité à favoriser l'intégration osseuse réduit les risques de rejet et accélère la cicatrisation.

Les travaux portant sur l'irradiation du titane ont commencé par des simulations des cascades de déplacements dans ce matériau à 100K en utilisant la dynamique moléculaire. L'étude examine les effets de la structure cristalline et de l'énergie d'irradiation sur les défauts ponctuels produits. Les résultats montrent que la direction d'incidence du primaire n'a pas d'effet notable et que les séquences de remplacement ne contribuent que de manière

mineure à l'état final des dommages. L'efficacité de la production de paires de Frenkel diminue avec l'augmentation de l'énergie du primaire [19].

Voskoboinikov a utilisé la dynamique moléculaire pour étudier la formation de dommages induits par l'irradiation du titane par des primaires d'énergies allant de 5 à 20 keV à des températures de 100, 300, 600 et 900 K. Le nombre de défauts ponctuels, la fraction de lacunes et la fraction d'interstitiels dans les amas formés et la morphologie de la région endommagée ont été évalués en fonction de l'énergie du primaire et de la température. Il a été établi que le nombre moyen de paires de Frenkel correspond à $\approx 0,3$ NRT si l'énergie de déplacement seuil est sélectionnée dans la plage de 28 à 40 eV. À des énergies de primaires élevées et à basses températures, les cascades ont tendance à se diviser en sous-cascades allongées, tandis qu'à faibles énergies de primaires et à hautes températures, les cascades équiaxes dominent. Les fractions de lacunes et d'interstitiels dans les amas montrent une faible dépendance à la température, ce qui indique indirectement que les amas de lacunes et d'interstitiels créés dans les cascades sont stables dans la plage de température considérée [20–22].

La dynamique moléculaire (MD pour Molecular Dynamics), l'approximation des collisions binaires (BCA pour Binary Collision Approximation) et la méthode de Monte-Carlo sont trois approches de simulation utilisées en physique pour modéliser l'interaction des particules avec la matière à l'échelle atomique. La MD se base sur la résolution des équations newtoniennes du mouvement pour un ensemble d'atomes avec une fonction d'énergie potentielle prédéfinie. Bien que cette méthode donne des résultats fiables mais le coût de calcul est élevé et nécessite des supercalculateurs pour les systèmes de taille importante. La méthode de Monte Carlo est une approche probabiliste qui simule le transport des particules à travers la matière en suivant individuellement chaque particule. La BCA est une méthode de simulation largement utilisée en physique des matériaux pour étudier la création de défauts cristallins, rétrodiffusion, pulvérisation ionique et profondeur moyenne de pénétration des ions implantés. Elle modélise les interactions particule-matière par des séries de collisions binaires indépendantes. Nous avons choisi la méthode de la BCA pour simuler l'irradiation du titane, car elle est rapide et permet d'analyser efficacement les interactions entre les particules et la matière à haute énergie. De plus, elle permet d'accumuler une grande quantité de statistiques en un temps de simulation relativement court [23 – 27].

Cette étude vise à déterminer l'effet de l'irradiation sur le titane lorsqu'il est utilisé dans des environnements de rayonnements intenses. Pour parvenir à cette fin, nous avons simulé des cascades de déplacements à l'aide du programme Marlowe qui est basé sur le modèle de l'approximation binaire. Nous avons examiné avec soin le nombre de défauts ponctuels formés (paires de Frenkel), leur configuration spatiale, le volume de la région altérée par l'irradiation et finalement l'agrégation des lacunes en amas.

Ce manuscrit qui explore l'impact de l'irradiation sur le titane est structuré en trois chapitres. Le premier chapitre porte sur les différents types de défauts présents dans les matériaux cristallins, incluant les défauts ponctuels, linéaires, surfaciques et volumiques, ainsi que ceux spécifiquement induits par irradiation. Dans le deuxième chapitre, nous donnons une présentation détaillée du modèle de l'approximation des collisions binaires. Ceci inclut une revue des relations mathématiques dérivées des lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion, essentielles pour l'analyse des collisions atomiques. Nous présentons, aussi, les modèles théoriques existants pour estimer les pertes d'énergie nucléaire et électronique, et pour déterminer le nombre de défauts ponctuels induits. Dans le dernier chapitre, nous présentons les résultats obtenus par simulations numériques des cascades de déplacements dans le titane. Ces résultats comprennent l'analyse du nombre de défauts de Frenkel produits, leur fonction de distribution, la distribution des volumes des cascades de déplacements, ainsi que le nombre et la taille des amas de lacunes en fonction de l'énergie du primaire. Le manuscrit se conclut par une synthèse générale des principaux résultats et une discussion des perspectives de recherche futures.

Références bibliographiques

- [1] H.L. Olesen, *"Radiation effects on electronic systems"*, Ed. Plenum Press New-York, 1966.
- [2] R.D. Schrimpf, D.M. Fleetwood, *"Radiation Effects and Soft Errors in Integrated Circuits and Electronic Devices"*, Ed. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004.
- [3] R. Durand, *"Modélisation des effets de dose dans les circuits intégrés en environnement spatial"*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, France, 2007.
- [4] 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.
- [5] Y. Adda, J.P. Mustelier, Y. Quéré, *"Comportement de l'uranium sous irradiation"*, A Conf. 28/P/62 Genève, Rapport CEA-R 2671, 1964.
- [6] T. Prohaska, J. Irrgeher, J. Benefield, J. K. Böhlke, L. A. Chesson, T. B. Coplen, T. Ding, P. J. H. Dunn, M. Gröning, N. E. Holden, H. A. J. Meijer, H. Moossen, A. Possolo, Y. Takahashi, J. Vogl, T. Walczyk, J. Wang, M. E. Wieser, S. Yoneda, X. Zhu, J. Meija. "Standard Atomic Weights of the Elements 2021 (IUPAC Technical Report)", *Pure and Applied Chemistry*, **94**, 573 (2022).
DOI : 10.1515/pac-2019-0603
- [7] C. L. Yaws. *"The Yaws Handbook of Physical Properties for Hydrocarbons and Chemicals"*, Houston, TX: Gulf Publishing Company, 2005.
- [8] David R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press Inc, 90^e édition, 2009.
- [9] R. E. Bedford, G. Bonnier, H. Maas, and F. Pavese. *"Recommended Values of Temperature on the International Temperature Scale of 1990 for a Selected Set of Secondary Reference Points"*, *Metrologia*, **33**, 133 (1996).
DOI : 10.1088/0026-1394/33/2/3
- [10] J. V. Nicholas, D. R. White, *"Temperature in Measurement of the Thermodynamic Properties of Single Phases"*, Edited by A. R. H. Goodwin, W. A. Wakeham, and K. N. Marsh. Amsterdam: Elsevier Science, 2003.
- [11] Carl L. Yaws, *"The Yaws Handbook of Physical Properties for Hydrocarbons and Chemicals"*, Houston, TX: Gulf Publishing Company, 2005.
- [12] R. R. Pawar, V. T. Deshpande, *"The anisotropy of the thermal expansion of α -titanium"*, *Acta Crystallographica A*, **24**, 316 (1968).
DOI : 10.1107/S0567739468000525

[13] C. Veiga, J.P. Davim, A.J.R. Loureiro, "*Properties and applications of titanium alloys: A brief review*", Rev. Adv. Mater. Sci. **32**, 133 (2012).

[14] C. Leyens, M. Peters, "*Titanium and Titanium Alloys : Fundamentals and Applications*", Edition Wiley-VCH, 2003.

DOI : 10.1002/3527602119

[15] S. Madhulika, V. Jayakumar, U. Yadu, M. Sathishkumar, S. M. Muthu, G. Preeti, N. Akash, "*Additive manufacturing of Titanium alloy for aerospace applications: Insights into the process, microstructure, and mechanical properties* ", Applied Materials Today, **41** (2024).

DOI : 10.1016/j.apmt.2024.102481

[16] R.R. Boyer, "*An overview on the use of titanium in the aerospace industry*", Materials Science and Engineering: A, **213**, 103 (1995).

DOI : 10.1016/0921-5093(96)10233-1

[17] V. N. Moiseyev, "*Titanium Alloys : Russian Aircraft and Aerospace Applications*", Edition CRC Press Taylor & Francis Group, 2006.

DOI : 10.1201/9781420037678

[18] F. Hua, K. Mon, P. Pasupathi, G. Gordon, D. Shoesmith, "*A Review of Corrosion of Titanium Grade 7 and Other Titanium Alloys in Nuclear Waste Repository Environments*", Corrosion, **61**, 987 (2005).

DOI : 10.5006/1.3280899

[19] S. J. Wooding, D. J. Bacon, W. J. Phythian, "*A computer simulation study of displacement cascades in α -titanium*", Philosophical Magazine A, **72**, 1261 (1995).

DOI: 10.1080/01418619508236254

[20] R. E. Voskoboinikov, "*A Study of Primary Damage Formation in Collision Cascades in Titanium*", Inorganic Materials : Applied Research, **13**, 1736 (2022).

DOI : 10.1134/s2075113322060314

[21] R. E. Voskoboinikov, "*MD Simulations of Collision Cascades in α -Ti. Cluster Statistics and Governing Mechanisms of Point Defect Cluster Formation*", Physics of Metals and Metallography, Theory of Metals, **124**, 751 (2023).

DOI: 10.1134/S0031918X23601154

[22] R. E. Voskoboinikov, "*MD Simulations of Collision Cascades in α -Ti. The Residual Number of Radiation Defects, Cascade Relaxation Time, and Displacement Cascade Region Morphology*", Physics of Metals and Metallography, **124**, 743 (2023).

DOI : 10.1134/S0031918X2360121X

[23] C.P. Race, *"The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics"*, Doctoral Thesis, Imperial College London UK, Edition Springer-Verlag, Berlin 2010.

DOI : 10.1007/978-3-642-15439-3

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

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

[25] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *"Preferential ejection of high-energy sputtered Cu atoms in keV atom – Cu(110) collisions"*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **164-165**, 785 (2000).

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

[26] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *"Primary damage in tungsten using the binary collision approximation, molecular dynamic simulations and the density functional theory"*, *Physica Scripta*, **T167**, 014018 (2016).

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

[27] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *"Comparison of molecular dynamics and binary collision approximation simulations for atom displacement analysis"*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **297**, 23 (2013).

DOI : 10.1016/j.nimb.2012.12.014

Chapitre 1 : Imperfections dans les solides

1.1 Introduction

Dans une structure cristalline idéale, tous les atomes sont rangés de manière périodique sans aucune imperfection (figure 1.1). Lorsqu'il y a des irrégularités dans cette structure, on parle alors de défauts ou d'imperfections. Dans la réalité, les défauts sont toujours présents. Ils causent des distorsions locales et influent sensiblement les propriétés physiques et mécaniques des solides. Parmi les propriétés altérées on cite : la conductivité électrique, la luminescence, la résistance, la plasticité et la couleur des cristaux (comme c'est le cas pour la coloration des pierres précieuses).

Les matériaux cristallins rencontrés dans la nature, tels que les métaux et les alliages métalliques, se présentent sous une forme polycristalline qui est un agrégat de plusieurs de petits cristaux de taille et d'orientation variables.

L'analyse des défauts cristallins joue un rôle central dans la conception et l'optimisation des matériaux, en particulier dans des secteurs stratégiques tels que les industries aérospatiale et nucléaire. Cette connaissance est indispensable pour renforcer la fiabilité et la durabilité des composants soumis à des environnements hostiles, comme ceux existant dans l'espace et au cœur des installations nucléaires, où les contraintes thermiques, mécaniques et radiologiques sont maximales.

Les défauts cristallins sont classés, d'après des indices purement géométriques, en plusieurs catégories : défauts ponctuels, défauts linéaires, défauts surfaciques et défauts volumiques [1-2].

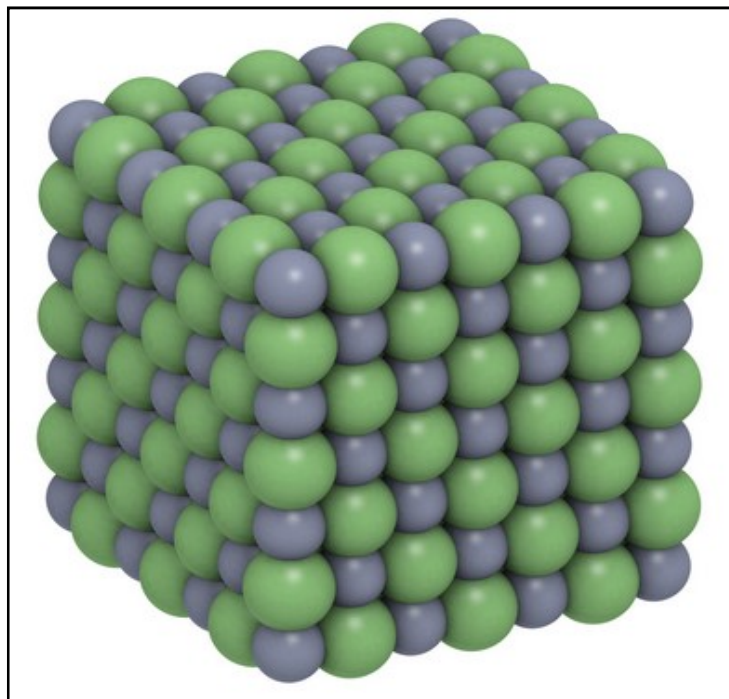


Figure 1.1. Représentation schématisée d'un cristal parfait.

1.2 Défauts ponctuels

Ces imperfections sont des anomalies qui affectent un volume très limité autour d'un nœud du réseau cristallin. Les dimensions des défauts ne dépassent pas dans toutes les trois dimensions une ou quelques distances interatomiques. Ils jouent un rôle important dans les propriétés physiques, chimiques et mécaniques du matériau. Leur présence peut altérer la conductivité thermique, électrique et les mécanismes de diffusion dans le solide [3, 4].

Aux défauts ponctuels on rapporte les lacunes, les auto-interstitiels, les atomes des impuretés, les défauts de Frenkel et les défauts de Schottky.

1.2.1. Lacunes

Une lacune est un défaut qui correspond à l'absence d'un atome sur un site normalement occupé du réseau cristallin (figure 1.2). Elle provoque des distorsions locales dans le cristal. Elles proviennent de l'agitation thermique ou des perturbations externes comme l'irradiation ou la déformation mécanique. Leur présence est intrinsèque à l'état solide, même à l'équilibre thermodynamique.

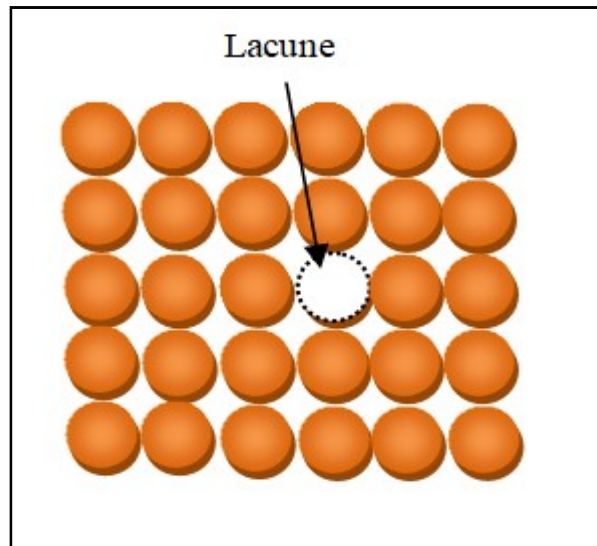


Figure 1.2. Représentation (à deux dimensions) d'une lacune.

Le nombre de lacunes dans un cristal, en équilibre thermique, est principalement déterminé par la formule d'Arrhenius, qui dépend de la température (et augmente avec elle) et de l'énergie de formation des lacunes. Voici la relation fondamentale [4 - 6]:

$$n = Ne^{-\frac{E_l}{kT}} \quad (1.1)$$

où N est le nombre de sites atomiques dans le cristal (généralement par m^3), K est la constante de Boltzman, T est la température du cristal et E_l est l'énergie de formation d'une lacune qui est de l'ordre de 1 eV dans les métaux.

Les lacunes sont essentielles à la diffusion par saut de site. Un atome voisin à la lacune saute dans le site vacant déplaçant ainsi la lacune en sens inverse (figure 1.3) [6, 7].

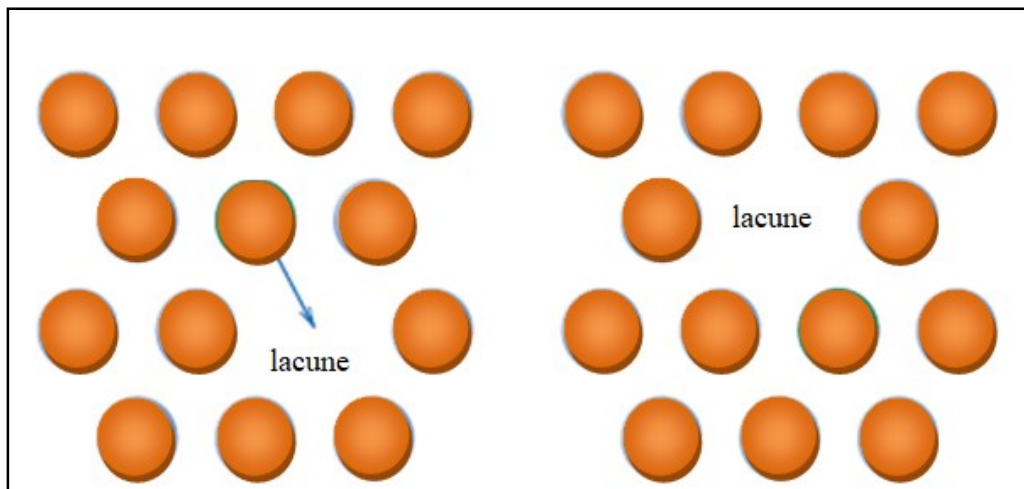


Figure 1.3. Migration d'une lacune par déplacements successifs d'atomes.

Les lacunes réduisent, généralement, la conductivité thermique dans la plupart des matériaux. Sous irradiation, les lacunes migrent et se regroupent en cavités, causant un gonflement du matériau. Les lacunes influencent les propriétés optiques de certains matériaux via la création de centres colorés.

1.2.2. Auto-interstitiels

Ce sont des atomes de la même espèce que les atomes du cristal mais qui se logent dans des positions interstitielles, c'est-à-dire des espaces normalement vides entre les nœuds réguliers du cristal (figure 1.4).

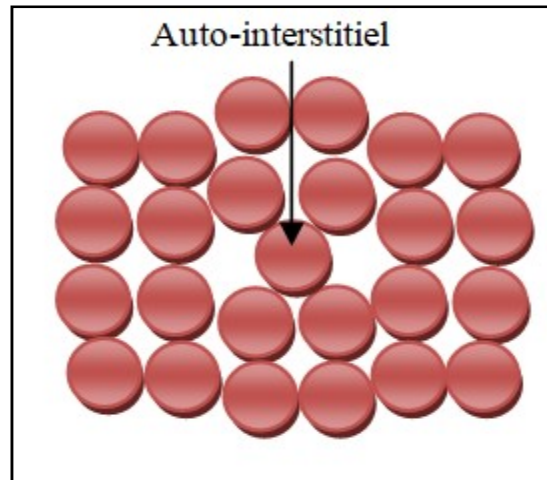


Figure 1.4. Représentation (à deux dimensions) d'un auto-interstitiel.

La présence des atomes interstitiels cause des distorsions locales fortes dues à la présence d'atomes additionnels dans une zone déjà dense. Ces perturbations provoquent le déplacement des atomes adjacents et la déformation de la géométrie du réseau.

Le nombre d'auto-interstitiels dans un cristal monoatomique à l'équilibre thermodynamique est déterminé par une relation similaire à celle des lacunes [4] :

$$n = N e^{-\frac{E_i}{kT}} \quad (1.2)$$

où N est le nombre total de sites atomiques du réseau cristallin et E_i est l'énergie de formation d'un auto-interstitiel qui est de l'ordre de 7 eV dans les métaux [8].

1.2.3. Défauts de Frenkel

Le défaut de Frenkel est une imperfection ponctuelle dans un cristal qui se produit lorsque un atome ou un ion se déplace de sa position normale à un emplacement interstitiel dans le réseau créant une lacune dans sa position d'origine. Une paire lacune-interstitiel appelée paire de Frenkel est ainsi créée (figure 1.5).

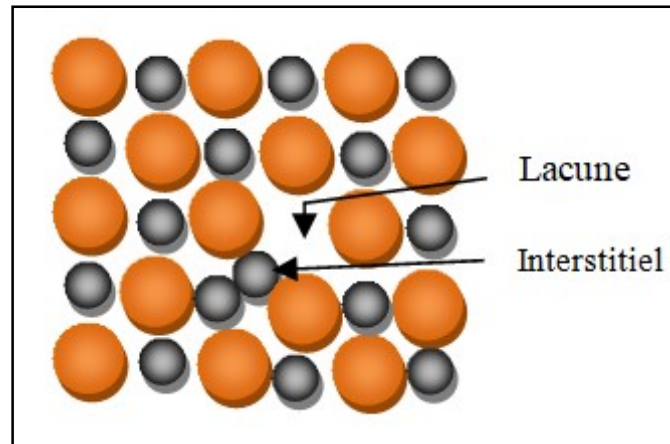


Figure 1.5. Représentation schématique d'un défaut de Frenkel.

Les défauts de Frenkel sont particulièrement observés dans les solides ioniques où les ions présentent une grande différence de taille comme c'est le cas, par exemple, dans le bromure d'argent (AgBr). La taille petite de l'ion Ag^+ facilite son mouvement pour occuper des positions interstitielles, alors que l'ion Br^- de grande taille reste à sa place.

Les défauts de Frenkel ne changent pas la densité ou le poids du cristal car il s'agit d'une redistribution des ions sans perte d'atomes. Cependant, ils peuvent influencer les propriétés physiques du matériau, notamment en augmentant sa conductivité ionique, car les ions interstitiels sont plus mobiles. Ce mécanisme a une importance cruciale dans les applications électrochimiques [6, 9, 10].

La concentration des défauts de Frenkel (n_F) à l'équilibre thermique est déterminée par une relation thermodynamique de type Arrhenius [4, 10] :

$$n_F = \sqrt{N N_i} e^{-\frac{E_F}{2K}} \quad (1.2)$$

où N est le nombre de sites réguliers, N_i est le nombre de sites interstitiels disponibles et E_F est l'énergie de formation d'un défaut de Frenkel.

1.2.4. Défauts de Schottky

Le défaut de Schottky est un type de défaut ponctuel relié à l'apparition simultanée de paires de lacunes cation-anion dans un cristal ionique (figure 1.6). De telles lacunes se créent suite au déplacement des ions de leurs emplacements dans le réseau, souvent pour chercher à atteindre la surface. Avec ce type de défauts, le cristal garde sa neutralité électrique et sa stoechiométrie.

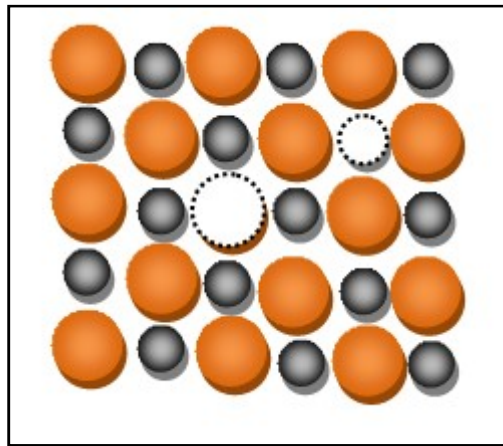


Figure 1.6. Représentation schématique d'un défaut de Schottky.

Les défauts de Schottky réduisent la densité du cristal, puisque le nombre d'atomes décroît sans grande modification du volume. Ils favorisent la conductivité ionique du matériau car ils facilitent la mobilité des ions sous l'application d'un champ électrique. Ils sont présents dans les composés ioniques comme le chlorure de sodium (NaCl), le chlorure de césium (CsCl), et le bromure de potassium (KBr) [6, 9, 10].

La concentration des défauts de Schottky (n_S) est gouvernée par la loi suivante [10]:

$$n_S = N e^{-\frac{E_S}{2KT}} \quad (1.3)$$

où N est le nombre total de sites cristallins et E_S est l'énergie de formation d'un défaut de Schottky.

1.2.5. Défauts extrinsèques

Ce sont des imperfections qui résultent de l'introduction d'atomes de nature chimique différente de ceux du cristal. Si l'atome étranger introduit remplace un atome du réseau on parle alors d'atome de substitution (figure 1.7). Cela se produit lorsque l'atome introduit a une taille comparable à l'atome remplacé du cristal. Un autre cas de défaut extrinsèque se manifeste lorsque l'atome étranger s'insère dans les espaces vides entre les atomes du cristal (figure 1.8). Ces atomes interstitiels ont, en général, une taille plus petite que celle des atomes du réseau [6].

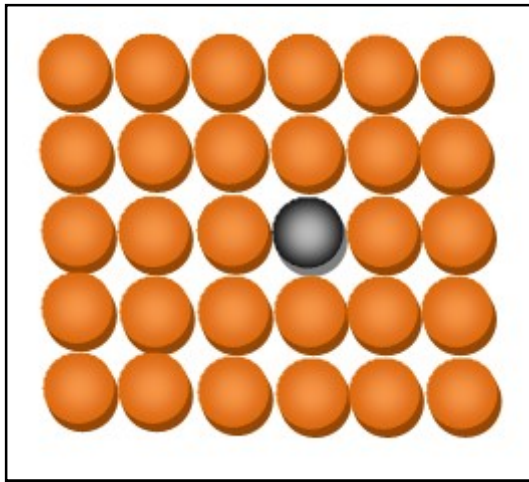


Figure 1.7. Représentation schématique d'un défaut extrinsèque par substitution.

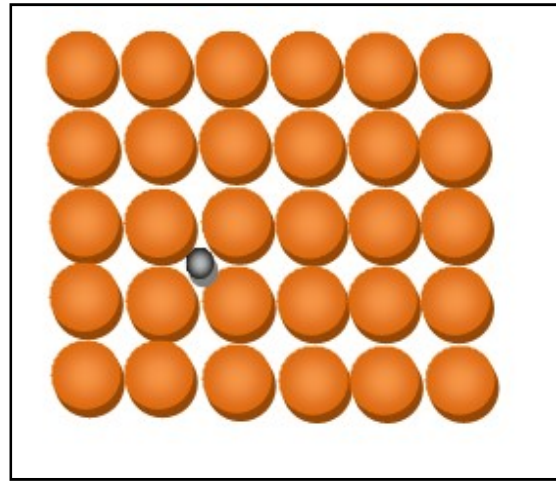


Figure 1.8. Représentation schématique d'un défaut extrinsèque par insertion.

Les défauts extrinsèques sont parfois introduits volontairement et de façon contrôlée sous forme d'impuretés pour améliorer les propriétés électriques et optiques des matériaux. C'est le cas dans la fabrication de semi-conducteurs, où des éléments comme le phosphore ou le bore sont introduits dans le silicium pour créer des régions de type n (majoritaire en électrons) et de type p (avec un déficit en électrons).

L'introduction de défauts extrinsèques substitutionnelles peut, également, modifier la couleur des cristaux. On peut citer à titre d'exemple le corindon (Al_2O_3) qui devient rouge (rubis) suite à l'introduction du chrome ou bleu (saphir) suite au dopage avec du fer et du titane.

1.3. Défauts linéaires

Les dislocations linéaires sont des défauts cristallins unidimensionnels correspondant à une discontinuité dans la structure périodique du cristal. Elles se manifestent sous forme de déplacement d'atomes le long d'une ligne spécifique (figure 1.9). Elles sont caractérisées par leur ligne d'imperfections (ligne de dislocation) et par le vecteur de glissement appelé vecteur de Burgers qui donne l'amplitude et la direction de la déformation engendrée. Elles jouent un rôle clé dans la déformation plastique des matériaux.

On distingue principalement trois types de dislocations : la dislocation coin qui se produit lorsqu'une portion du cristal glisse le long d'un plan cristallographique, créant une ligne de dislocation perpendiculaire au vecteur de glissement. Ce type de défauts qui est souvent associé aux cristaux cubiques se distingue par la facilité de son déplacement et est responsable de certains phénomènes mécaniques, comme la déformation plastique.

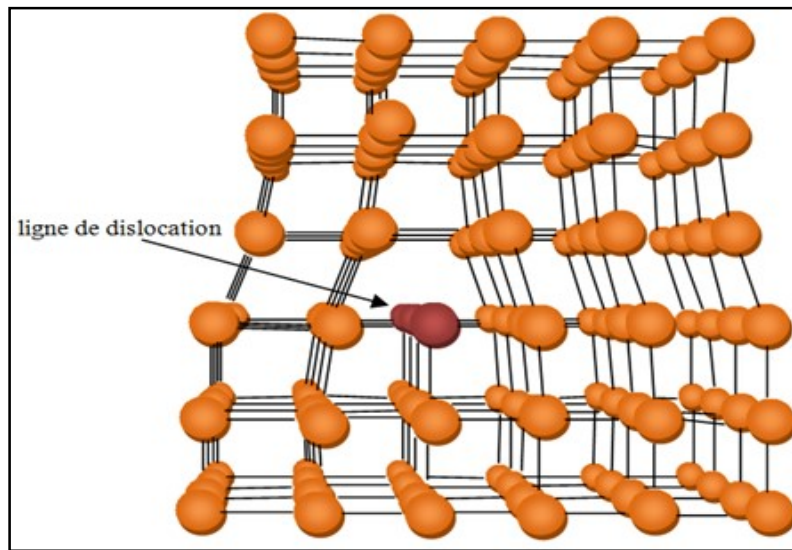


Figure 1.9. Représentation schématique d'une dislocation coin.

La dislocation vis dans laquelle le mouvement se fait parallèlement au plan de glissement (le vecteur de Burgers est parallèle à la ligne de dislocation) (figure 1.10). Elle peut être vue comme une torsion ou distorsion hélicoïdale des plans cristallins. Elle engendre des cisaillements et modifie la structure cristalline.

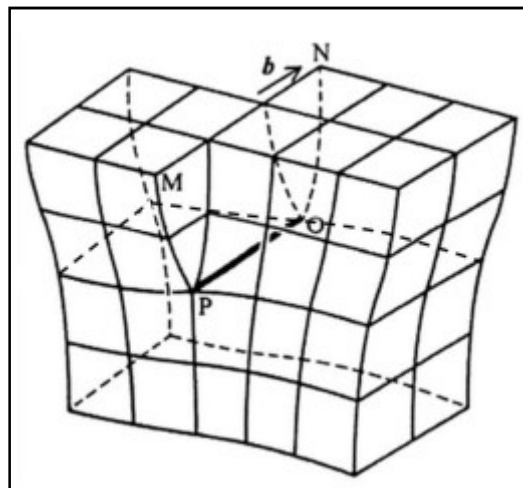


Figure 1.10. Représentation schématique d'une dislocation vis.

Les dislocations vis combinées aux dislocations coin forment souvent des dislocations appelées mixtes dans les matériaux réels (figure 1.11). Dans ces dislocations, la ligne de dislocation forme un angle quelconque avec le vecteur de Burgers.

Imperfections dans les solides

Les dislocations influencent les propriétés mécaniques des matériaux. Elles permettent la déformation plastique ce qui signifie que les matériaux peuvent se déformer sans rompre sous l'effet de contraintes mécaniques [6, 11, 12].

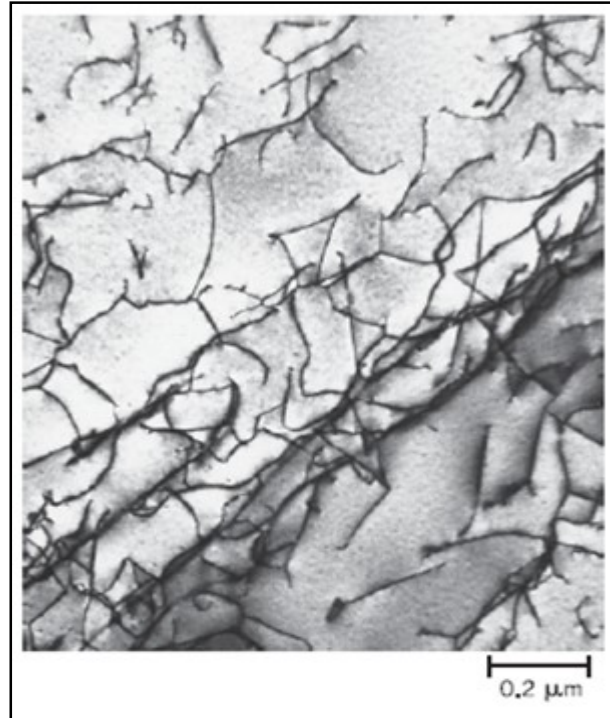


Figure 1.11. Dislocations (lignes sombres) vues au microscope électronique en transmission dans un alliage de titane [4].

1.4. Défauts superficiels (bidimensionnels)

Les défauts surfaciques ou plans sont des irrégularités à deux dimensions. Les matériaux réels sont polycristallins, c'est-à-dire composés de plusieurs cristaux, appelés grains, disposés aléatoirement les uns par rapport aux autres. Les défauts surfaciques se réfèrent aux surfaces de séparation entre ces grains.

1.4.1. Joints de grains et joints de phases

Les joints de grains se rapportent à la surface de raccordement de deux cristaux (ou grains) adjacents de même nature (figure 1.12). Cette interface peut résulter d'une opération de rotation ou de translation rigide d'un réseau cristallin par rapport à l'autre. Les atomes des cristaux sont éparpillés de part et d'autre de la surface d'accolement créant une région de transition caractérisée par une structure perturbée.

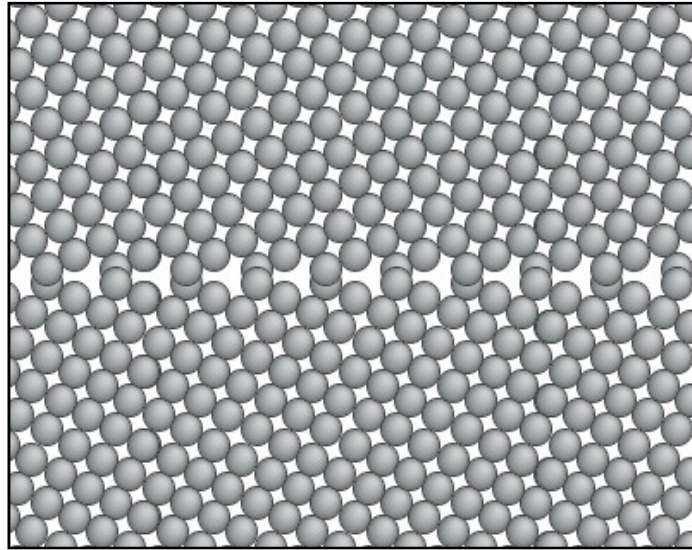


Figure 1.12. Diagramme schématique montrant le joint de grain.

Lorsque les grains sont de nature différente alors la zone d'interface entre deux phases cristallines est dite joint de phase (figure 1.13) [4, 11, 13].

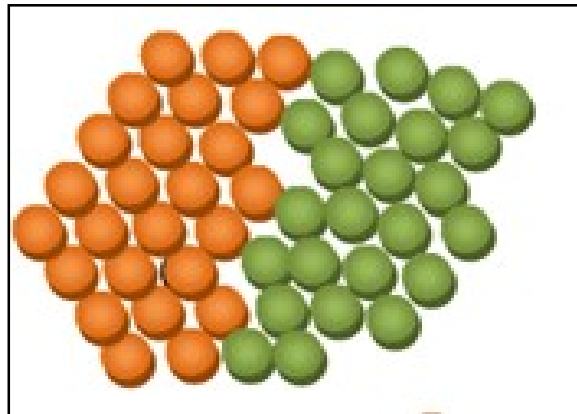


Figure 1.13. Représentation schématique d'un joint de phases.

1.4.2 Joints de macle

Le joint de macle connu sous le nom de crystal twin en anglais, correspond à une interface entre deux régions d'un même cristal (ou de deux cristaux identiques) présentant une orientation symétrique l'une par rapport à l'autre, selon un plan ou un axe de symétrie spécifique (figure 1.14). Ce type de défauts résulte généralement d'un processus appelé maclage qui se produit lors de la croissance des cristaux ou à la suite d'une déformation mécanique où un cristal se fracture en deux orientations liées par un plan de symétrie [8, 10].

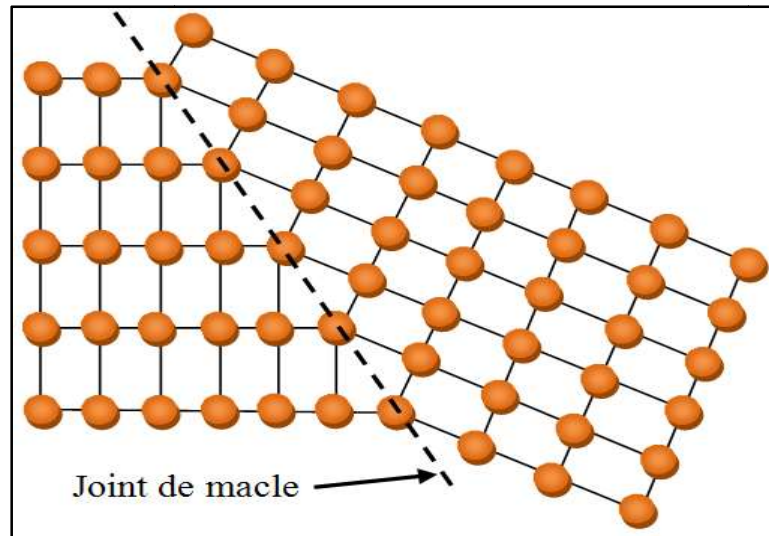


Figure 1.14. Diagramme schématique d'un joint de macle avec les positions d'atomes l'entourant [8].

1.4.3 Parois d'antiphase

Les défauts d'antiphase se produisent dans les cristaux ordonnés, comme les alliages intermétalliques. Ils se réfèrent à une discontinuité dans l'ordre atomique du cristal, où une région du matériau est décalée par rapport à une autre adjacente selon un vecteur de translation spécifique, brisant ainsi la symétrie (figure 1.15) [8].

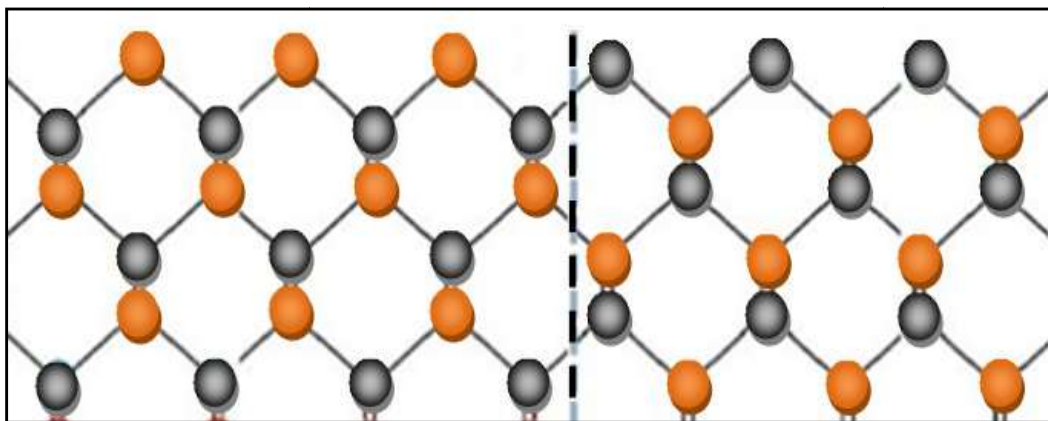


Figure 1.15. Diagramme schématique d'une paroi d'antiphase.

1.5. Défauts volumiques (tridimensionnels)

Les défauts volumiques sont des perturbations qui affectent la structure cristalline et s'étendent sur trois dimensions. Ils peuvent inclure des éléments tels que les pores, les inclusions et les précipités [4, 11, 12, 14].

1.5.1. Pores

Le pore est une cavité fermée présente au sein d'un matériau. Cette cavité peut être vide ou remplie de gaz (figure 1.16). La formation des pores peut résulter de plusieurs mécanismes : le regroupement de lacunes existantes dans le cristal après diffusion, du gaz piégé suite aux procédés de fabrication ou bien la dégradation du matériau. Les pores peuvent être isolés ou interconnectés, et leur présence impacte significativement les propriétés mécaniques du matériau.

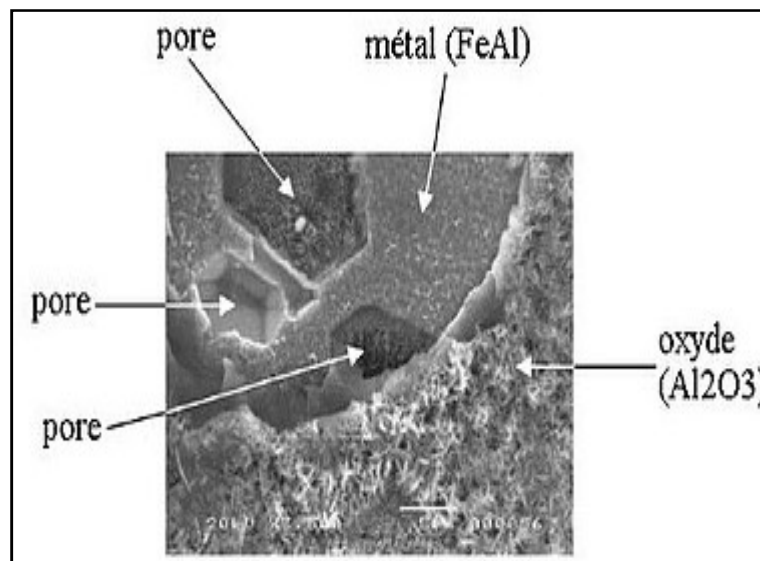


Figure 1.16. Pores formés à l'interface métal/oxyde.

1.5.2. Inclusions

Une inclusion est un défaut qui se présente sous forme d'une particule ou d'un corps étranger, piégé à l'intérieur d'un matériau. Les inclusions sont souvent considérées comme des impuretés, bien qu'elles puissent parfois être intentionnellement introduites pour modifier certaines propriétés du matériau. Elles résultent de réactions chimiques, de résidus de procédés de fabrication ou de contaminations externes. Elles diffèrent chimiquement et structuralement de la matrice hôte. Les inclusions influencent les propriétés mécaniques, physiques et chimiques du matériau, en fonction de leur nature, taille et distribution.

1.5.3. Précipités

Ce sont de petites particules de nature différente de celle du cristal introduites par des réactions à l'état solide. Bien que souvent insérées volontairement pour améliorer les propriétés mécaniques (augmenter la résistance des alliages), les précipités peuvent être

considérés comme des défauts lorsqu'ils dégradent les performances du matériau (fragilité, corrosion, etc.).

1.6 Défauts radiatifs

Les défauts ponctuels dus à l'irradiation des matériaux par des particules énergétiques tels que les neutrons, les protons, les électrons, ainsi que les ions s'appellent défauts radiatifs [4, 15-22].

Le passage des particules à travers le matériau provoque des processus complexes, parmi lesquels les plus importants sont :

- 1- collisions élastiques avec les noyaux du milieu
- 2- excitations et ionisations des atomes du milieu
- 3- réactions nucléaires de transmutation, modifiant la composition chimique du matériau et changeant sa structure. Ces réactions génèrent des isotopes radioactifs, provoquant ainsi une activation nucléaire du matériau, qui devient alors source d'émissions radioactives.

Ces processus sont en compétition et certains peuvent dominer sur les autres en fonction de la nature des particules irradiantes, de leur énergie ainsi que du caractère des liaisons des atomes et d'autres propriétés du matériau irradié. La production des défauts radiatifs est liée aux transferts d'énergie entre les particules irradiantes et les atomes du matériau suite aux collisions élastiques. Des défauts ponctuels incluant les lacunes et les interstitiels résultent des déplacements d'atomes et des paires de Frenkel sont formées. Ces défauts causent des distorsions locales et perturbent l'ordre du réseau. Les défauts ponctuels peuvent s'agréger et constituer des défauts étendus tels que les amas de lacunes évoluant en cavités ou les amas d'interstitiels formant des boucles de dislocations et des précipités. Ces défauts étendus altèrent significativement les propriétés mécaniques (durcissement, fragilisation) et dimensionnelles (gonflement) du matériau, compromettant sa durabilité dans des environnements extrêmes (réacteurs nucléaires, espace) (figure 1.17). Ils peuvent, également, modifier les propriétés de conduction électrique et thermique du matériau.

L'irradiation peut entraîner la dégradation des matériaux en rompant leurs liaisons chimiques, engendrant ainsi un affaiblissement structurel, un gonflement, une corrosion accrue ou une fissuration. Parallèlement, elle provoque la réticulation des polymères, améliorant leur rigidité ou leur résistance à l'eau. Enfin, elle risque de causer des claquages électriques ou des dommages irréversibles aux dispositifs électroniques exposés.

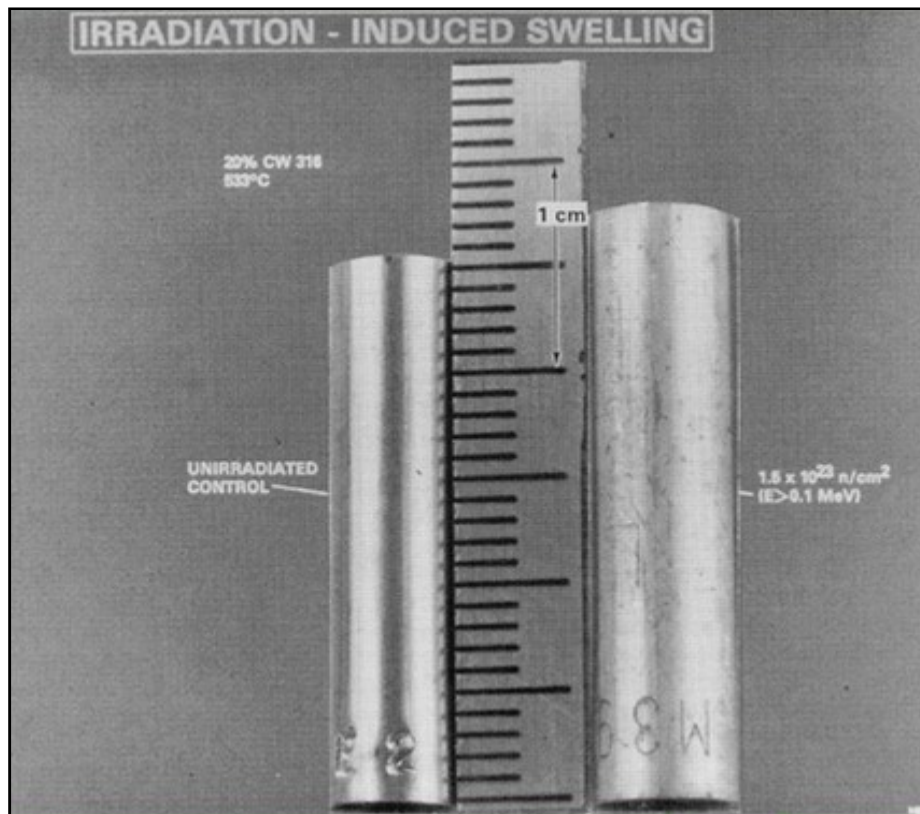


Figure 1.17. Gonflement du matériau suite à son irradiation [22].

Références bibliographiques

- [1] L. Priester, *"Joints de grains et plasticité cristalline"*, Edition Lavoisier-Hermes, 2012.
- [2] C. Ngô, H. Ngô, *"Introduction à la physique des semi-conducteurs"*, Edition Dunod, Paris, 2000.
- [3] J. L. Martin, J. Wagner, *"Dislocations et plasticité des cristaux"*, Edition Presses polytechniques et universitaires romandes, 1999.
- [4] W. D. Callister Jr, D. G. Rethwisch, *"Materials Science and Engineering : An Introduction"*, Edition Wiley, 10^{ème} édition, 2020.
- [5] P. Pavlov, A. Khakhlov, *"Physique du solide"*, Editions Mir Moscou, 1989.
- [6] J. P. Baïlon, J. M Dorlot, *"Des Matériaux"*, Edition Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [7] M. Gerl, J. P. Issi, *"Physique des Matériaux"*, Edition Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1997.
- [8] M. Dupeux, *"Aide-mémoire science des matériaux"*, Edition Dunod, Paris, 2008.
- [10] R. Collongues, *"Le solide cristallin"*, Presses Universitaires de France, 1973.
- [11] A. Djaafri, *"Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta2O5 par l'approximation des collisions binaires (BCA)"*, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.
- [12] D. Hull, D. J. Bacon, *"Introduction to dislocations"*, Edition Elsever, 2011.
- [13] P. Robert, *"Matériaux de l'électronique"*, Edition Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1999.
- [14] J. Besson, N. Billon, S. Cantournet, Y. Chastel, A. F. Gourgues-Lorenzon, J. M. Haudin, B. Monasse, L. Nazé, *"Matériaux pour l'ingénieur"*, Edition Presses de l'école des mines, Paris, France, 2010.
- [15] C. H. de Novion, *"Effets d'irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)"*, 26^e Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.
- [16] 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.
- [17] 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.
- [18] F. Onimus, *"Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique du Comportement des Alliages de Zirconium Irradiés"*, thèse de Doctorat, École Centrale des Arts et Manufactures, 2003.

[19] J. L. Boutard, "*Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides*", *Reflète de la physique* **38**, 17 (2014).

DOI : 10.1051/refdp/201438017

[20] J. Philibert, A. Vignes, Y. Bréchet, P. Combrade, "*Métallurgie, du minerai au matériau*", Edition Dunod, 2002.

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

[22] K. Whittle, "*Nuclear Materials Science*", Edition IOP Publishing Ltd, 2016.

DOI : 10.1088/978-0-7503-1104-5

Chapitre 2 : Modèle de simulation

2.1. Introduction

Lorsqu'un solide est irradié par des particules énergétiques (protons, neutrons, électrons, ions), l'énergie léguée aux atomes du réseau cristallin induit leur déplacement, entraînant des défauts ponctuels (lacunes et interstitiels). Ces imperfections qui sont initialement dispersées, migrent sous l'effet des contraintes locales ou l'agitation thermique, favorisant leur agrégation en défauts étendus tels que les cavités et les dislocations. Ces clusters altèrent sensiblement les propriétés physiques et mécaniques du matériau. Pour caractériser les défauts formés, plusieurs techniques expérimentales sont mises en œuvre : la microscopie électronique en transmission (MET) permet de scruter directement la structure atomique et d'identifier les amas tandis que la spectroscopie d'annihilation de positrons (SAP) détecte les lacunes et leurs agrégats. La diffraction des rayons X (DRX) et la diffusion des neutrons identifient les déformations du réseau liées aux défauts étendus, et la tomographie par sonde atomique (APT) reconstruit en 3D la position des atomes, cartographiant les amas avec une précision atomique et une analyse chimique. D'autres méthodes indirectes peuvent être utilisées, telles que l'analyse des modifications des propriétés mécaniques et physiques des matériaux irradiés (comme la mesure de la résistivité électrique) [1, 2].

Les techniques expérimentales pour observer les défauts ne permettent pas de fournir des informations détaillées sur l'évolution temporelle des cascades de déplacements, ni d'identifier tous les défauts ponctuels isolés avec précision. Pour analyser finement la dynamique spatiale et chronologique de ces phénomènes, le recours à la simulation numérique s'avère indispensable. Deux approches principales sont employées pour modéliser les interactions atomiques au sein d'une cascade : la dynamique moléculaire et l'approximation des collisions binaires. Dans ce contexte, nous présentons succinctement la première approche et consacrons un développement plus approfondi à la seconde, cette dernière constituant la méthode adoptée dans notre travail pour étudier les effets d'irradiation dans le titane vu qu'elle est rapide pour simuler les trajectoires des particules énergétiques à travers les solides et bien adaptée pour les hautes énergies.

La dynamique moléculaire simule l'évolution temporelle d'un système atomique en intégrant les équations de Newton, utilisant des potentiels interatomiques pour décrire les interactions. Elle offre une précision temporelle et spatiale, capturant les phénomènes collectifs, mais elle est coûteuse en temps de calcul, la restreignant à de petits systèmes ou courtes échelles de temps et à des basses énergies [3, 4].

2.2. Approximation des collisions binaires

Le modèle d'approximation des collisions binaires est une approche largement utilisée en physique pour modéliser l'interaction des particules énergétique avec les solides. La BCA permet l'étude plusieurs aspects de cette interaction notamment la production de défauts cristallins primaires, leur distribution spatiale, la rétrodiffusion, la pulvérisation et implantation ionique [5 - 9].

Ce modèle postule que chaque particule incidente subit des collisions successives avec des atomes cibles individuels qui sont au repos, sans considérer les effets collectifs ou les interactions multi-corps. Chaque collision est traitée comme un choc isolé entre deux corps, régit par les lois de la mécanique classique. Entre deux chocs, les atomes en collisions suivent des trajectoires rectilignes, et perdent de l'énergie par deux mécanismes : la perte d'énergie électronique due aux interactions avec les électrons du matériau produisant l'excitation et l'ionisation des atomes du milieu et la perte d'énergie par chocs élastiques nucléaire due aux collisions avec les noyaux atomiques. Donc les collisions élastiques responsables de la création des défauts ponctuels, l'angle de diffusion et le transfert d'énergie sont déterminés par le paramètre d'impact et l'angle de diffusion [10 - 14].

Des codes comme Marlowe et SRIM/TRIM en exploitent les principes de la méthode de l'approximation des collisions binaires. Bien que ce modèle constitue un compromis entre rapidité de calcul et précision acceptable pour des énergies élevées, il présente des limites à basse énergie (typiquement en dessous de ~ 1 keV), où les interactions simultanées entre plusieurs atomes deviennent prépondérantes, nécessitant alors des approches plus précises comme la dynamique moléculaire.

2.3. Cascade de déplacements

2.3.1. Mécanisme d'une cascade de déplacement

Lorsqu'une particule énergétique irradiante traverse un solide, elle transfère une partie de son énergie à un atome du réseau cristallin, appelé atome primaire (PKA pour Primary Knock-on Atome). Ce dernier, est projeté de sa position avec une énergie cinétique élevée, devenant un projectile secondaire. En traversant le matériau, le PKA entre en collision avec d'autres atomes du réseau le long de son parcours. Si l'énergie léguée lors de ces collisions excède l'énergie de seuil de déplacement (E_d , typiquement 10–50 eV), les atomes cibles sont à leur tour limogés, formant des atomes secondaires. Ce processus se propage en cascade, créant une chaîne de collisions atomiques appelée cascade de déplacements (figure 2.1) [15].

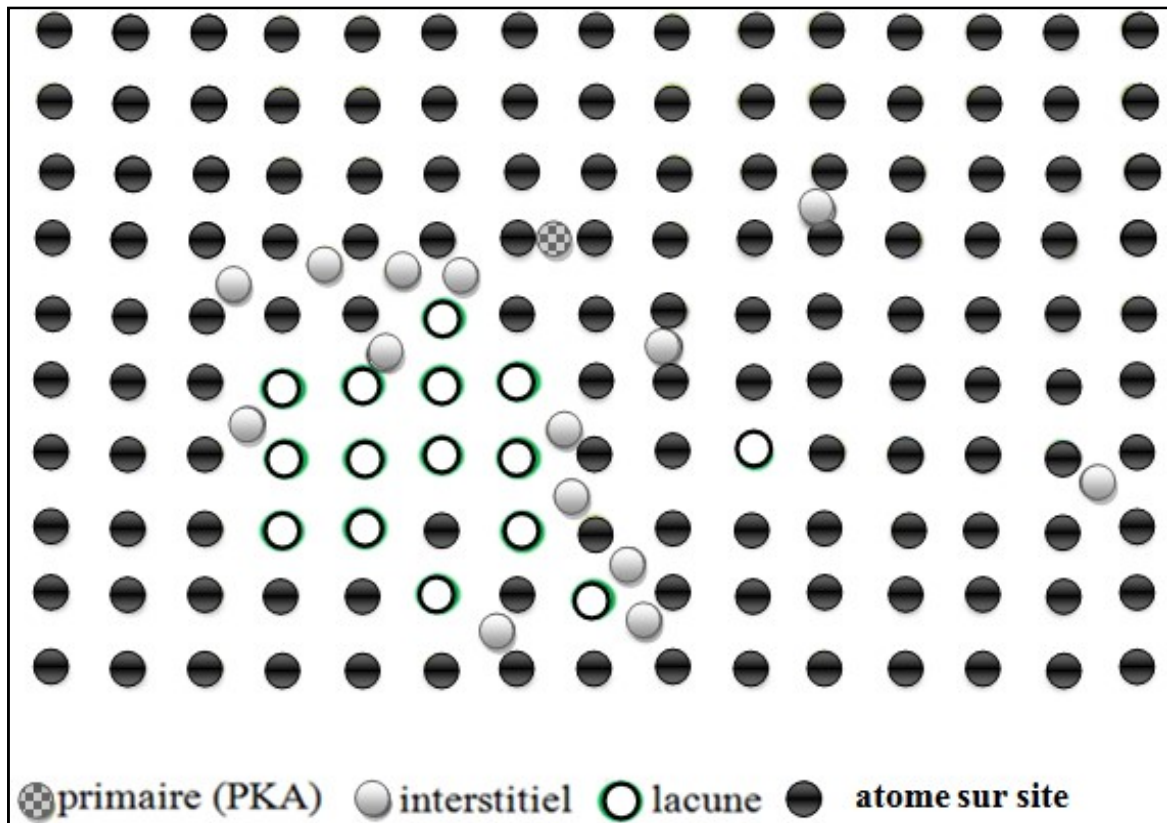


Figure 2.1. Représentation schématique de la cascade de déplacements.

La cascade de déplacement évolue en trois phases : une première phase qui est balistique comportant les collisions atomiques et produisant une région dense de défauts ponctuels (lacunes et interstitiels), une deuxième phase de thermalisation où l'énergie cinétique se dissipe en vibration du réseau conduisant à un échauffement localisé dit « thermal spike », et une troisième phase de refroidissement où le solide se réorganise sous l'effet de recombinaison entre les lacunes et les interstitiels qui sont adjacents. Les lacunes et les interstitiels qui sont éloignés les uns des autres forment les défauts permanents de Frenkel. Les défauts ponctuels peuvent également migrer et s'agglomérer en amas de lacunes ou d'interstitiels [15, 16].

La structure de la cascade de déplacements (la taille, le nombre de défauts induits) dépend de l'énergie du primaire et du matériau étudié. La taille de la cascade croît en fonction de l'énergie du primaire. À basses énergies, l'énergie du primaire se dissipe rapidement dans un volume restreint et la cascade est compacte. À hautes énergies, les atomes éjectés peuvent parcourir de longues distances avant d'achever leurs parcours par des collisions dans lesquelles le transfert d'énergie aux atomes cibles est important. Ce qui conduit à la création de sous-cascades.

Brinkman (1954) et Seeger (1962) ont suggéré un modèle conceptuel en deux zones pour décrire la cascade de déplacements : une zone centrale dense où les collisions ont expulsé un nombre important d'atomes de réseau créant les lacunes, et une enveloppe périphérique où les interstitiels prédominent [16].

Lors du développement d'une cascade de déplacements, plusieurs phénomènes peuvent avoir lieu notamment, la canalisation et les séquences de remplacements.

2.3.2. Canalisation

La canalisation est un phénomène observé lorsque des particules énergétiques traversent un solide en suivant des trajectoires privilégiées, guidées par la structure périodique du réseau cristallin. La particule pénétrant le solide avec un angle faible par rapport à un plan cristallin ou un axe cristallin, subit des forces de répulsion périodiques dues aux atomes alignés et se trouve confinée dans les canaux (espaces interatomiques) (figure 2.2). Elle aura donc une certaine stabilité directionnelle par rapport à l'axe ou au plan. La particule oscille dans le canal avec une trajectoire stable si son angle d'incidence est inférieur à un angle critique (dépendant de l'énergie de la particule, de sa charge, et des paramètres du cristal) [17].

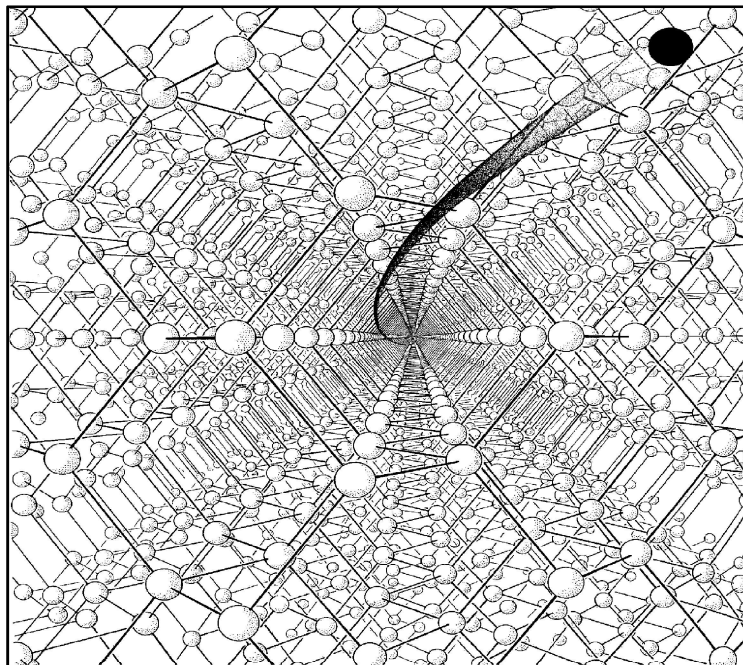


Figure 2.2. Schéma d'un atome en mouvement à travers un canal au sein d'un réseau cristallin [17].

En évitant les collisions avec les noyaux atomiques, la particule perd moins d'énergie (qui se trouve dissipée principalement par excitation et ionisation des atomes) et elle parcourt des distances plus longues avant de perdre son énergie. Ainsi la canalisation provoque moins de déplacements atomiques et donc de défauts ponctuels [17, 18].

2.3.3. Séquences de remplacements

Lors d'un processus de remplacement atomique, le projectile cède l'intégralité de son énergie cinétique à l'atome cible, entraînant son immobilisation dans le réseau cristallin à la position initiale de ce dernier. Ce mécanisme initie un phénomène de propagation en chaîne : le long d'un alignement atomique, le premier atome éjecté par le projectile devient lui-même un projectile secondaire, expulsant un atome voisin et occupant sa position. Cette réaction en cascade se répète de proche en proche, chaque atome délogé transmettant l'énergie reçue à son successeur. Lorsque la chaîne s'interrompt, l'atome final, devenu interstitiel, possède une énergie cinétique proche de celle du projectile initial (figure 2.3).

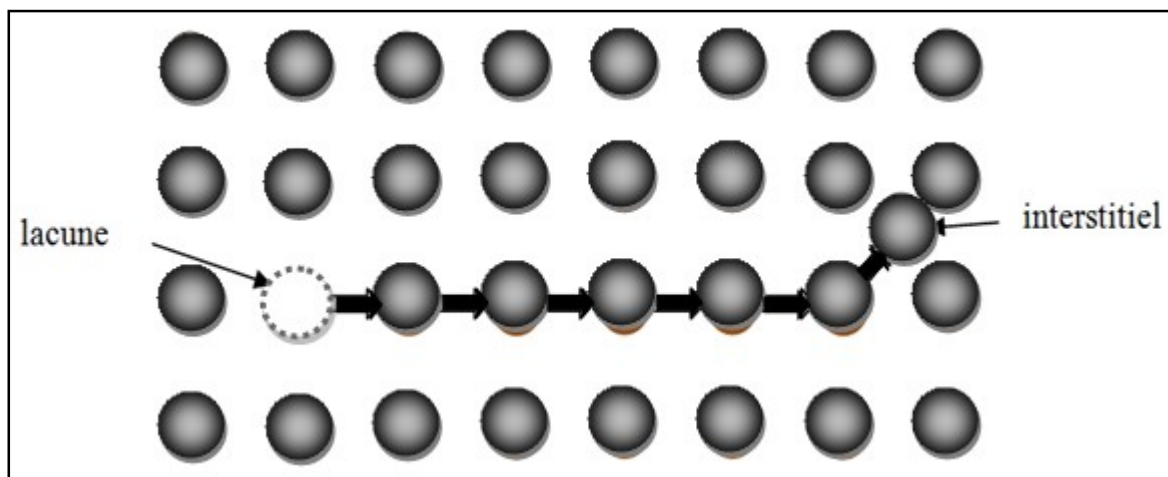


Figure 2.3. Schéma d'une séquence de remplacements.

Les séquences de remplacements RCS (pour Replacement collision sequences) jouent un rôle clé dans la génération de défauts ponctuels sous irradiation. En déplaçant des atomes sur de grandes distances par rapport à leurs sites originels, elles favorisent la formation de paires de Frenkel. Les modélisations théoriques révèlent que ces chaînes peuvent s'étendre sur plusieurs centaines d'angströms (équivalant à des dizaines de distances interatomiques) dans des cristaux à basse température. Toutefois, leur longueur diminue drastiquement avec l'élévation thermique car l'agitation thermique du réseau perturbe la cohérence directionnelle des transferts d'énergie, limitant, ainsi, la propagation ordonnée des remplacements [19].

2.3.4. Analyse d'une collision binaire

2.3.4.1. Angles de diffusion

Comme nous l'avons exposé précédemment, dans le cadre de l'approximation des collisions binaires, la cascade de déplacements est modélisée comme une succession d'interactions binaires entre un atome en déplacement et un atome initialement immobile. L'analyse d'une collision binaire implique l'usage des principes de la mécanique des chocs et de la diffusion d'une particule soumise à un champ de force central. Le calcul nécessite l'utilisation de deux référentiels distincts : le Référentiel du laboratoire (L) qui est le cadre naturel d'observation où la cible est immobile et le référentiel du centre de masse (CM) qui est un système où les calculs sont relativement simples à faire (puis transformés vers (L)).

Pour des énergies d'irradiation typiques (de l'ordre du keV) et des masses atomiques élevées, une description classique des collisions atomiques suffit grâce à la faible longueur d'onde de De Broglie des particules impliquées.

Désignons par (voir figure 2.4) :

m_1 : la masse du projectile qui a une vitesse initiale $\vec{v}_0$ dans (L)

m_2 : la masse de l'atome cible qui est immobile dans (L)

$\vec{v}_1$: la vitesse du projectile après collision dans (L)

$\vec{v}_2$: la vitesse de l'atome cible après collision dans (L)

Q : l'énergie inélastique dissipée lors des interactions avec les électrons atomiques (par excitation et ionisation)

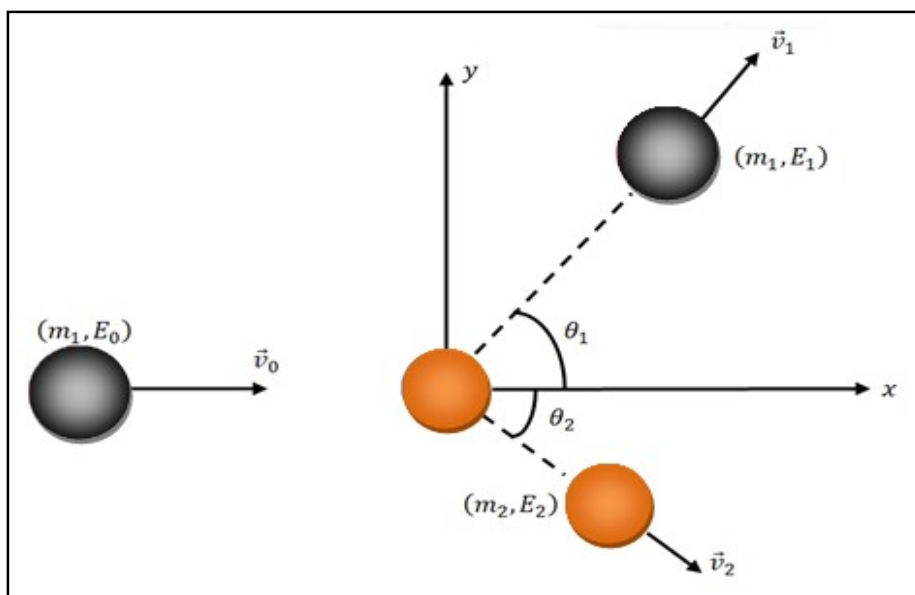


Figure 2.4. Représentation schématique d'une collision binaire dans le référentiel du laboratoire.

Les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement appliquées au système des deux atomes en collision dans (L) conduisent aux expressions suivantes [20] :

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

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

En projetant les vecteurs vitesse sur l'axe du mouvement (Ox) et l'axe qui est lui perpendiculaire (Oy), la relation (2.2) conduit aux expressions suivantes :

$$m_1v_0 = m_1v_1\cos\theta_1 + m_2v_2\cos\theta_2 \quad (2.3)$$

$$0 = m_1v_1\sin\theta_1 - m_2v_2\sin\theta_2 \quad (2.4)$$

Les angles θ_1 et θ_2 correspondent respectivement aux angles de déviation du projectile et de l'atome cible par rapport à la direction initiale du mouvement. Une analyse algébrique des relations fondamentales (2.1), (2.3) et (2.4) permet d'exprimer les angles de diffusion θ_1 et θ_2 dans le référentiel du laboratoire. Ces angles, caractéristiques de la collision entre le projectile et le cible, s'écrivent [15, 20] :

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

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

où :

E_0 et E_1 représentent respectivement l'énergie cinétique initiale et finale du projectile,

E_2 désigne l'énergie cinétique acquise par la cible après collision,

$A = \frac{m_2}{m_1}$ est le rapport des masses entre l'atome cible et le projectile.

Les angles θ_1 et θ_2 peuvent également s'exprimer en fonction de l'angle de diffusion dans le référentiel du centre de masse noté ϑ [20] :

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

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

avec :

- f un facteur de modulation dépendant de l'énergie inélastique transférée Q et de l'énergie relative E_r qui est l'énergie réduite du système et qui intègre le rapport masses et énergie initiale :

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

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

Le coefficient f joue un rôle clé : il quantifie l'écart à l'élasticité de la collision. Pour $Q = 0$, la collision est parfaitement élastique, et on retrouve $f = 1$, simplifiant les expressions.

2.3.4.2. Energies des atomes après collision

Les énergies cinétiques normalisées E_1/E_0 du projectile et E_2/E_0 de la cible s'expriment, à partir des relations (3.5) et (3.6), en fonction des angles de diffusion θ_1 et θ_2 dans le référentiel du laboratoire [20] :

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

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

En substituant les expressions des angles θ_1 et θ_2 données par (2.7) et (2.8) dans (2.11) et (2.12), on élimine leur dépendance explicite de ces angles pour obtenir des relations directement liées à l'angle de diffusion dans le (CM) :

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

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

2.3.4.3. Energie transférée à l'atome cible

L'énergie E_2 reçue par l'atome cible, notée T , suite à la collision binaire se réécrit en fonction de l'énergie relative [20] :

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

Le transfert d'énergie atteint son maximum dans le cas d'une collision parfaitement élastique ($Q = 0$), impliquant $f = 1$, et $\sin^2(\vartheta/2) = 1$ (soit $\vartheta = \pi$) [20] :

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

La relation (2.16) révèle un transfert d'énergie optimal vers la cible lorsque les masses des particules en collision sont égales $A = 1$. Si la masse de cible est faible par rapport à la masse du projectile $A \ll 1$, alors $T_{max} \approx 4AE_0$, ce qui souligne un transfert énergétique réduit. Si l'atome cible est lourde par comparaison avec le projectile $A \gg 1$, alors $T_{max} \approx 4E_0/A$, ce qui traduit une faible efficacité de transfert d'énergie.

2.3.4.4. Angle de diffusion et dépendance au potentiel d'interaction

L'angle de diffusion ϑ , qui est déterminante dans les énergies cinétiques après collision et les angles de déviation des atomes, est directement lié au potentiel d'interaction, $V(r)$ modélisant les forces entre le projectile et la cible. Cette relation s'exprime par l'équation intégrale [20]

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

où :

$g(r)$ est une fonction définie par :

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

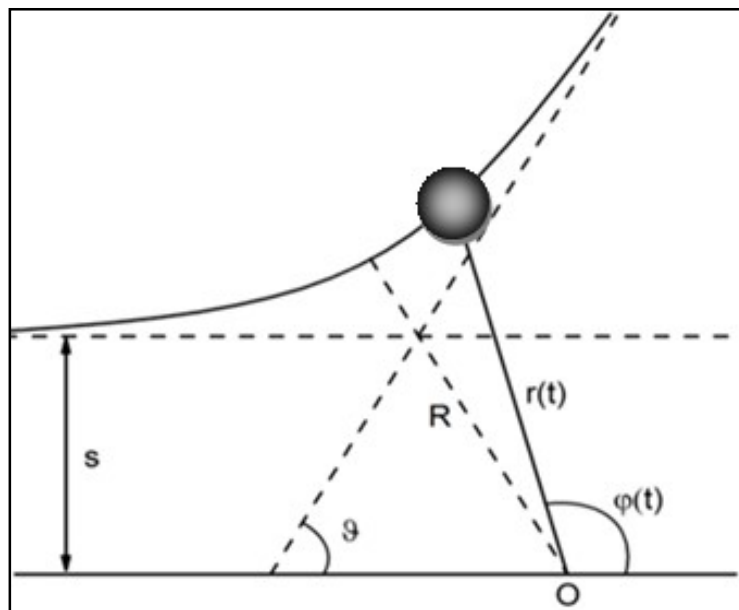


Figure 2.5. Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.

R dans l'expression (2.17) représente la distance minimale d'approche (figure 2.5), solution de l'équation $g(r) = 0$. La grandeur s est le paramètre d'impact, correspondant à la distance entre la trajectoire initiale du projectile et l'atome cible. Plus s est grand, plus l'interaction est faible, conduisant à une déviation minimale. Inversement, la tendance de s vers zéro maximise le transfert d'énergie.

2.3.4.5. Trajectoires asymptotiques et coordonnées d'intersection

Les asymptotes des trajectoires du projectile et de l'atome cible croisent l'axe des coordonnées (Ox) aux abscisses (figure. 2.6) [10, 20] :

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

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

où τ est appelé intégrale du temps est donnée par l'expression

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - \int_R^\infty dr \left[\frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{s^2}{r^2}}} \right]. \quad (2.21)$$

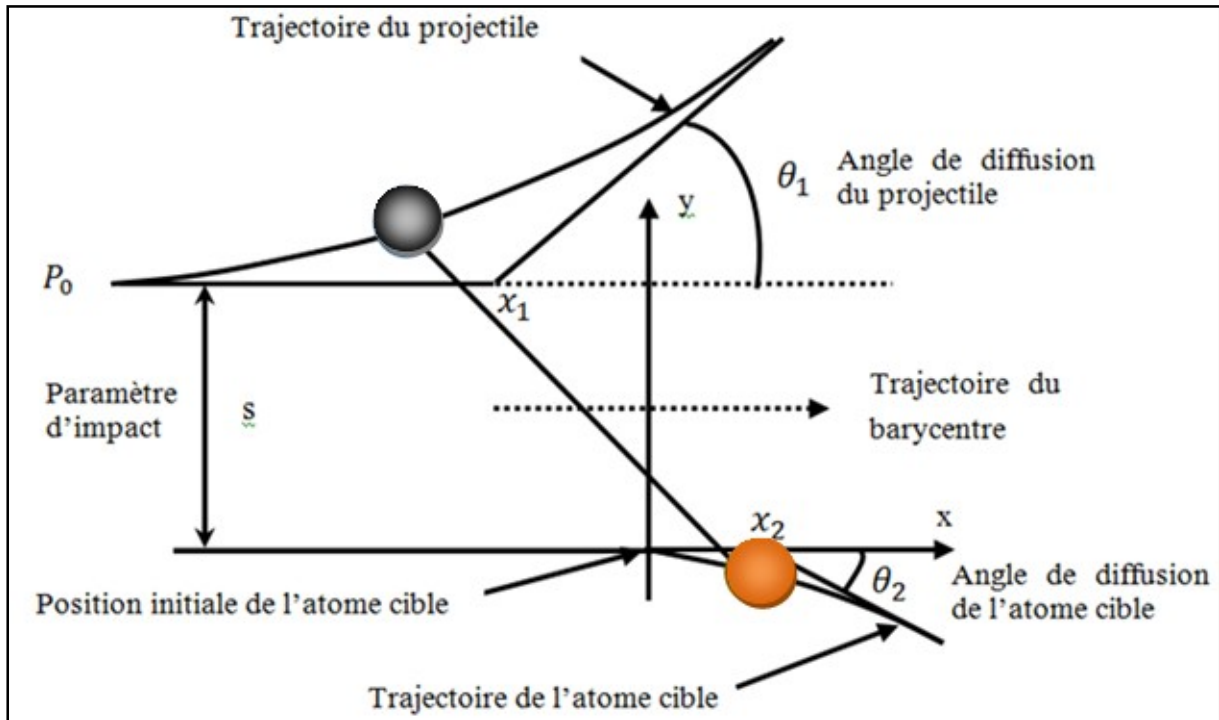


Figure 2.6. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

Les intégrales dans les expressions (2.17) et (2.21) peuvent être évaluées numériquement.

2.4. Potentiels d'interactions atomiques

Les collisions entre atomes sont gouvernées par les interactions complexes entre leurs nuages électroniques et leurs noyaux. Ces interactions sont décrites par un potentiel interatomique qui est une fonction qui dépend des charges nucléaires et des positions relatives des atomes. Ce potentiel demeure invariant face aux translations et rotations d'ensemble et il détermine fondamentalement la dynamique des collisions entre atomes en modélisant les forces attractives et répulsives à différentes distances interatomiques.

Il n'existe pas d'expression analytique unique pour le potentiel interatomique qui puisse couvrir l'ensemble des distances de séparation possibles entre deux atomes en interaction. Cette complexité a motivé des décennies de recherche multidisciplinaire, alliant théorie quantique, expérimentation et méthodes numériques. La littérature scientifique offre une multitude de potentiels que nous pouvons diviser principalement en deux catégories : des potentiels semi-empiriques, construits à partir des données expérimentales offrant un compromis entre simplicité et réalisme et les modèles théoriques (basés sur *ab initio* ou la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) [15].

Le choix d'un potentiel influence directement la fidélité des simulations : une modélisation trop simplifiée peut négliger des mécanismes physiques critiques, tandis qu'un modèle ultra-précis risque de rendre les calculs prohibitifs. Cet arbitrage entre précision et efficacité est particulièrement crucial pour les simulations de cascades de déplacements, où des milliers d'interactions doivent être évaluées. Dans ce contexte, les potentiels de paires restent largement utilisés, notamment dans le cadre du modèle de l'approximation des collisions binaires. Leur simplicité analytique permet de traiter efficacement les collisions successives lors des cascades, bien que leur validité soit limitée aux régimes où les effets à N-corps sont négligeables. Nous allons dans ce qui suit décrire les deux potentiels de paires les plus utilisés dans les simulations de l'irradiation des matériaux.

2.4.1. Potentiel de Molière

Le potentiel de Molière est un potentiel coulombien écranté, conçu pour modéliser la réduction de la répulsion coulombienne entre deux noyaux en interaction. Cette réduction est due à l'écrantage des charges positives des noyaux par les nuages électroniques environnants. Il est caractérisé par une somme de trois exponentielles. Son expression générale s'écrit [20]

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_M}\right), \quad (2.22)$$

où Z_1 et Z_2 représentent les numéros atomiques des deux atomes en interaction, e est la charge élémentaire, r est la distance interatomique, a_M est le rayon d'écran, et Φ est une fonction d'écrantage dont la forme

$$\Phi\left(\frac{r}{a_M}\right) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r/a_M)}, \quad (2.23)$$

sous la contrainte de normalisation :

$$\sum_{i=1}^3 c_i = \Phi(0) = 1. \quad (2.24)$$

Les coefficients $c_i = (0.35, 0.55, 0.1)$ et $d_i = (0.3, 1.2, 6.0)$ permettent de reproduire les effets d'écran à différentes échelles de distance.. Ainsi, le potentiel de Molière peut être explicitement écrit comme

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (2.25)$$

Le rayon d'écran a_M est généralement défini par le modèle de Firsov, reliant le rayon de Bohr a_B et les numéros atomiques Z_1 et Z_2 :

$$a_{\text{Firsov}} = \frac{0.88534 a_B}{\left(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2}\right)^{2/3}} \text{ (\AA)}. \quad (2.26)$$

2.4.2. Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark

Le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) est également un potentiel coulombien écranté. Il a été développé à partir d'un ajustement sur un large éventail de paires d'atomes (522 paires). Les calculs ont permis d'établir une expression analytique pour un potentiel de paires moyen, désigné comme potentiel universel. Sa fonction d'écran qui affine la description de l'écrantage à très courte distance est représentée par une somme de quatre exponentielles [15, 20] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{ZBL}}\right) = \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})} . \quad (2.27)$$

Les coefficients c_i et d_i ont pour valeurs $c_i = (0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175)$ et $d_i = (0.20162, 0.4029, 0.94229, 3.1998)$. La dépendance du rayon d'écran, a_{ZBL} , aux numéros atomiques des deux atomes en collision a pour expression

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} . \quad (2.28)$$

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

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})} . \quad (2.29)$$

2.5 Mécanismes de dissipation énergétique

Lorsqu'une particule énergétique traverse un milieu matériel, son énergie se dissipe graduellement via deux processus distincts : les collisions élastiques (ou nucléaires) et les collisions inélastiques (ou électroniques). La capacité d'un milieu à ralentir une particule est décrite la grandeur appelée pouvoir d'arrêt ou pouvoir de ralentissement qui peut prendre trois formes [15] :

- le pouvoir d'arrêt linéaire $\left(-\frac{dE}{dx}\right)$ qui représente la perte d'énergie moyenne par unité de longueur traversée (unité en MeV/cm). Cette grandeur macroscopique dépend à la fois des propriétés du projectile (charge, vitesse) et du milieu (composition, densité),
- le pouvoir d'arrêt atomique $S = \frac{1}{N} \left(-\frac{dE}{dx}\right)$ qui est obtenu en normalisant le pouvoir d'arrêt linéaire par la densité atomique N (nombre d'atomes par cm^3),
- le pouvoir d'arrêt massique $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_m = \frac{1}{\rho} \left(-\frac{dE}{dx}\right)$ qui est défini par rapport à la masse volumique ρ du milieu.

2.5.1. Pertes d'énergie élastiques

Ces pertes surviennent lors des collisions élastiques (nucléaires) entre le projectile et les noyaux atomiques du milieu. Ces interactions sont caractérisées par un transfert d'énergie cinétique sans modification des états internes des entités impliquées et elles dominent à faible énergie. Les collisions élastiques sont responsables de la formation des imperfections

ponctuels (lacunes ou interstitiels) dans le matériau. Le pouvoir d'arrêt nucléaire, qui quantifie l'énergie dissipée via ces interactions, s'exprime par [21]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT, \quad (2.30)$$

avec :

$\sigma(T)$: Section efficace différentielle de diffusion (en cm²)

T : Énergie transférée à l'atome cible (suffisante pour le déplacer de son site cristallin)

T_{min} et T_{max} : dénotent, respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale qui peuvent être reléguées à l'atome cible.

Le calcul du pouvoir d'arrêt nucléaire de (2.30) requiert la connaissance de l'expression du potentiel d'interaction atomique modélisant l'interaction entre les atomes en collision. Pour un potentiel coulombien ; $V(r) = (Z_1 Z_2 e^2)/r^2$ (valable pour interaction à haute énergie ou l'écrantage est négligé), le pouvoir d'arrêt nucléaire prend la forme [22] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right). \quad (2.31)$$

Des calculs utilisant le potentiel écranté ZBL mènent à l'expression suivante pour le pouvoir d'arrêt nucléaire [17] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{8.462 \times 10^{-15} Z_1 Z_2 m_1}{(m_1 + m_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} S_n(\epsilon), \quad (\text{eV}/(\text{atome}/\text{cm}^2)), \quad (2.32)$$

avec

$$S_n(\epsilon) = \begin{cases} \frac{\ln(1+1.1383 \epsilon)}{2 (\epsilon + 0.01321 \epsilon^{0.21226} + 0.19593 \epsilon^{0.5})} & \epsilon \leq 30 \text{ keV} \\ \frac{\ln \epsilon}{2 \epsilon} & \epsilon > 30 \text{ keV} \end{cases}. \quad (2.33)$$

L'énergie réduite est maintenant donnée par :

$$\epsilon = \frac{32.53 m_2}{Z_1 Z_2 (m_1 + m_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} E. \quad (2.34)$$

2.5.2. Pertes d'énergie inélastiques

Ces pertes résultent de l'interaction du projectile avec le nuage électronique des atomes du milieu. Les collisions inélastiques induisent une modification des états quantiques du milieu, se manifestant par l'excitation (élévation des électrons à des niveaux d'énergie supérieurs) ou l'ionisation (éjection complète d'électrons des atomes). Ce mécanisme est prépondérant à haute énergie.

Le pouvoir d'arrêt linéaire inélastique $(-dE/dx)_e$, associé aux collisions inélastiques, dépend à la fois des propriétés du projectile (charge, vitesse) et du milieu cible (numéro atomique, densité, potentiel moyen d'excitation). Son comportement varie selon la vitesse v du projectile comparée relativement à $V_B Z_1^{2/3}$ où Z_1 est le numéro atomique du projectile et V_B est la vitesse orbitale de Bohr donnée par $V_B = e^2/(4\pi\epsilon_0\hbar)$ avec e la charge élémentaire, ϵ_0 la permittivité du vide et $\hbar$ la constante de Planck réduite :

Domaine des hautes vitesses $v \gg V_B Z_1^{2/3}$: Dominé par les effets quantiques et relativistes, ce régime est décrit par la formule de Bethe-Bloch [23, 24]

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

avec :

m_e : la masse au repos de l'électron

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

N_a : le nombre d'Avogadro

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

C_K : une correction utilisée pour traduire le fait que les électrons de la couche K sont bien liés et qu'ils ne s'éjectent pas facilement

δ : une constante de correction de la densité de charge due au fait que le champ électrique du projectile polarise les atomes entourant sa trajectoire.

La formule de Bethe-Bloch offre une bonne approximation pour des énergies cinétiques variant de quelques MeV à plusieurs centaines de GeV. Cependant, à des énergies plus élevées (de l'ordre du TeV), la perte d'énergie due au rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) devient significative. Dans ce cas, la formule doit être complétée par des termes supplémentaires pour tenir compte de ces pertes radiatives importantes.

Domaine des basses vitesses $v \ll Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$: Deux modèles semi-classiques basés sur la théorie de l'approximation des collisions binaires sont connus ; le modèle de Lindhard-Scharff-Schiott (LSS) et le modèle de Firsov :

➤ Le modèle LSS dans lequel, le milieu est modélisé comme un gaz d'électrons libres. Les calculs dans ce modèle conduisent à l'expression suivante pour le pouvoir d'arrêt électronique [25] :

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

En termes d'énergie cinétique E du projectile, cela se simplifie en

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

où k est une constante. L'expression (2.33) indique que dans ce domaine de vitesses, la perte d'énergie du projectile augmente avec son énergie.

➤ Le modèle de Firsov dans lequel l'interaction est décrite comme la formation transitoire d'une quasi-molécule projectile-cible, avec échanges électroniques. Le pouvoir d'arrêt linéaire est donné par [26]

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

Domaine de vitesses intermédiaire $v \approx Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$: Aucun modèle analytique ne couvre entièrement cette transition. Une interpolation combine les résultats des régimes extrêmes [20]

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

où S_{BB} et S_{LS} désignent respectivement les pouvoirs d'arrêt de Bethe-Bloch et LSS.

2.5.3 Perte d'énergie totale

La dissipation totale d'énergie d'une particule dans un milieu résulte de la superposition des contributions électronique et nucléaire. Ainsi, le pouvoir d'arrêt total d'un milieu pour une particule est donné par :

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

Cette équation synthétise la contribution des deux mécanismes en compétition, dont l'importance relative dépend des caractéristiques du projectile et du milieu traversé. À haute énergie $E \gg E^* = m_1 [keV]$, c'est la perte inélastique (due aux collisions électroniques) qui domine, en raison de la densité électronique élevée et l'efficacité des interactions à longue portée avec le nuage électronique. À basse énergie $E < E^*$, c'est la perte élastique (due collisions aux nucléaires) prédomine, car la vitesse du projectile devient insuffisante pour exciter efficacement les électrons et les transferts d'impulsion aux noyaux sont significatifs. L'énergie de coupure ou l'énergie critique $E^* = m_1 [keV]$ (masse exprimée en keV) [14, 15] marque le seuil au dessus duquel les pertes inélastiques surpassent les pertes nucléaires. Par ce fait, il devient clair pourquoi les dommages cristallins sont accentués à basse énergie.

2.6. Modèles de calcul du nombre de défauts de Frenkel

L'évaluation quantitative des défauts ponctuels notamment les imperfections de Frenkel générés par une cascade de déplacements qui est déclenchée par l'impact d'une particule énergétique constitue un pilier central de la science des matériaux irradiés. Cette quantification est essentielle pour prédire la dégradation des propriétés mécaniques, thermiques ou électroniques des matériaux exposés à des environnements radiatifs (réacteurs nucléaires, espace, etc.).

Plusieurs formalismes, allant de l'approche analytique simplifiée aux simulations numériques avancées, ont été développés pour prédire le nombre de paires de Frenkel permanentes dans une cascade de déplacements. Nous décrivons dans ce qui suit les modèles les plus utilisés.

2.6.1. Modèle de Kinchin-Pease

Le modèle de Kinchin-Pease est une approche théorique utilisée pour estimer le nombre de déplacements permanents dans une cascade de déplacements. Développé dans les années 1950, ce modèle repose essentiellement sur trois hypothèses clés [15, 17] :

- Les collisions élastiques binaires entre les atomes sont modélisées comme des chocs de sphères dures

- L'existence d'une énergie seuil de déplacement E_d nécessaire pour déplacer un atome de sa position cristalline
- L'existence d'une énergie de coupure E^* au dessus de laquelle la perte d'énergie est purement inélastique et il n'y a aucun déplacement atomique produit et pour des énergies inférieures à E^* les collisions sont totalement élastiques

Selon ce formalisme, le nombre total de paires de Frenkel $N_{PF}(E)$ est proportionnel à l'énergie cinétique de l'atome primaire, E , selon la relation (voir figure 2.7) :

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

Bien que le modèle ne tienne pas compte des phénomènes clés comme la recombinaison dynamique des défauts, les effets thermiques ou les interactions électroniques, il reste une référence historique pour son élégance analytique et son adéquation aux systèmes simples à basse énergie. Aujourd'hui, il sert principalement de point de départ conceptuel pour des modèles plus sophistiqués comme le modèle NRT, qui intègrent des facteurs correctifs empiriques pour mieux coller aux observations expérimentales.

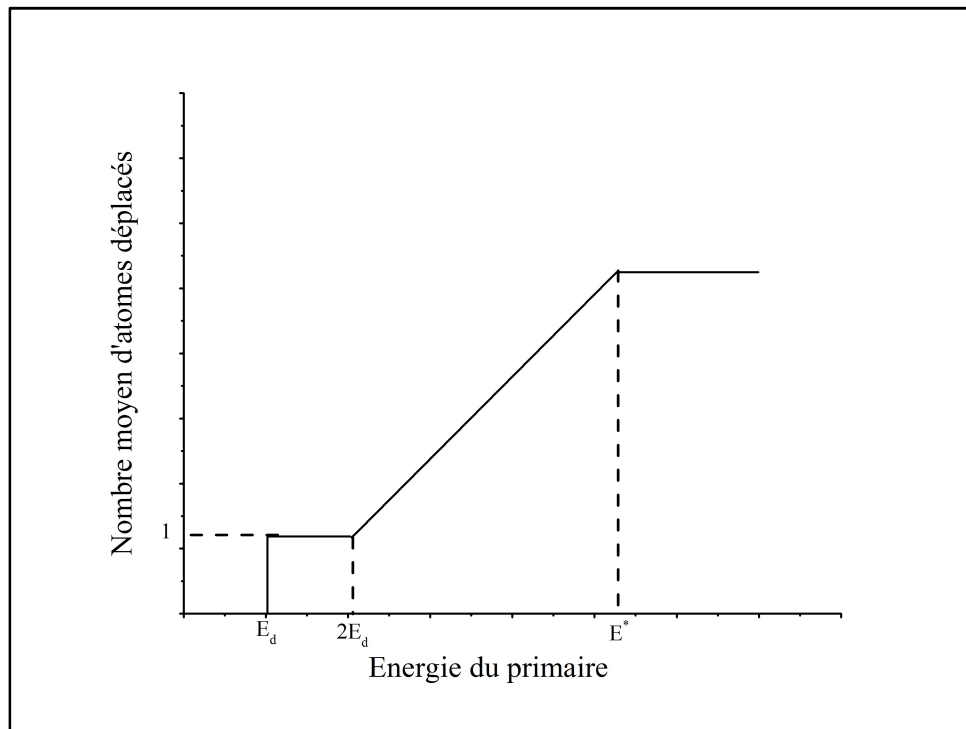


Figure 2.7. Nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade en fonction de l'énergie du primaire d'après le modèle de *Kinchin-Pease*.

2.6.2. Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

Le modèle de Norgett-Robinson-Torrens (NRT), développé dans les années 1970, est une amélioration significative du modèle de Kinchin-Pease et est devenu le standard international pour estimer le nombre de paires de Frenkel générées sous irradiation. Il prend en compte les pertes électroniques et contrairement au modèle de Kinchin-Pease, qui surestime les défauts en supposant une suite idéale de collisions binaires, il introduit un paramètre adimensionnel de 0.8 pour atténuer le nombre théorique de défauts [27 - 29] :

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

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

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

avec

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

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

Le modèle NRT, bien qu'il soit simple et reproduit mieux les données expérimentales il surestime, lui aussi, le nombre de déplacements stables et a été à cet effet sujet à des corrections.

2.6.3 Modèle arc-dpa

Le modèle *arc-dpa* (pour athermal recombination corrected displacements per atom) représente une avancée majeure pour prédire le nombre de paires de Frenkel stable dans les matériaux sous irradiation, en intégrant explicitement les phénomènes de recombinaison

athermique lors de la phase dynamique des cascades de déplacements. Contrairement aux modèles analytiques traditionnels KP et NRT, qui surestiment systématiquement les défauts, arc-dpa s'appuie sur des données de simulations de dynamique moléculaire pour ajuster un facteur de correction dépendant du matériau. Ce facteur, désigné par $\xi_{arc dpa}$, réduit le nombre de défauts prédits par le modèle NRT selon [30, 31] :

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

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

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

Les paramètres $b_{arc dpa}$ et $c_{arc dpa}$ sont tabulés [30] pour différents matériaux. Développé pour pallier les lacunes des approches analytiques, *arc-dpa* est utile pour étudier les dommages d'irradiation dans les réacteurs nucléaires et dans les matériaux spatiaux.

Références bibliographiques

- [1] M. Dupeux, "*Aide-mémoire science des matériaux*", Edition Dunod, Paris, 2008.
- [2] "*Les matériaux du nucléaire, modélisation et simulation des matériaux de structure*", Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, Edition du Moniteur, Paris, 2016.
- [3] J.M. Hernandez-Mangas, J. Arias, L. Bailon, M. Jaraiz, J. Barbolla, "*Improved binary collision approximation ion implant simulators*", *J. Appl. Phys.* **91**, 658 (2002).
DOI: 10.1063/1.1424052
- [4] D. Frenkel, B. Smit, "*Understanding Molecular Simulation : From Algorithm to Applications*", Academic Press, 2002.
- [5] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, "*Microstructure evolution of irradiated tungsten: Crystal effects in He and H implantation as modelled in the Binary Collision Approximation*", *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).
DOI : 10.1016/j.jnucmat.2010.06.004
- [6] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, "*Preferential ejection of high-energy sputtered Cu atoms in keV atom-Cu (110) collisions*", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
DOI : 10.1016/S0168-583X(99)01011-3
- [7] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, "*Comparison of molecular dynamics and binary collision approximation simulations for atom displacement analysis*", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).
DOI : 10.1016/j.nimb.2012.12.014
- [8] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, "*Primary damage in tungsten using the binary collision approximation, molecular dynamic simulation, and the density functional theory*", *Phys. Scr.* **2016** (T167), 014018 (2016).
DOI : 10.1088/0031-8949/T167/1/014018
- [9] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, "*Characteristics of flows of energetic atoms reflected from metal targets during ion bombardment*", *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
DOI : 10.1088/1742-6596/729/1/012005
- [10] M.T. Robinson, I. Torrens, "*Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation*", *Phys. Rev. B* **9**, 5008 (1974).
DOI : 10.1103/PhysRevB.9.5008
- [11] M.T. Robinson, "*Slowing-down time of energetic atoms in solids*", *Phys. Rev. B* **40**, 10717 (1989).

DOI : 10.1103/PhysRevB.40.10717

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

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

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

DOI : 10.1080/10420159708211552

[14] 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.

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

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

[17] G.S. Was, "*Fundamentals of Radiation Materials Science*", Edition Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.

[18] C. Cohen, "*Phénomène de canalisation*", Bulletin Minéralogie, 95-6, 670(1972).

DOI : 103406/bulmi.1972.6754

[19] J.R. Beeler, D.G. Besco, "*Range and Damage Effects of Tunnel Trajectories in a Wurtzite Structure*", *J. Appl. Phys.* **34**, 2873 (1963).

DOI : 10.1063/1.1729823

[20] W. Eckstein, "*Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*", Edition Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.

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

DOI : 10.1103/PhysRevB.6.813

[22] 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.

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

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

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

- [26] C.P. Race, “*The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*”, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin 2010.
- [27] M.J. Norgett, M.T. Robinson, I.M. Torrens, “*A proposed method of calculating displacement dose rates*”, *Nucl. Eng. Des.* **33**, 50 (1975).
DOI : 10.1016/0029-5493(75)90035-7
- [28] M.T. Robinson, “*Basic physics of radiation damage production*”, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).
DOI : 10.1016/0022-3115(94)90003-5
- [29] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, “*Displacement cross-sections of tantalum and tungsten irradiated with protons at energies up to 1 GeV*”, *J. Nucl. Mater.* **336**, 201 (2005).
DOI : 10.1016/j.jnucmat.2004.09.015
- [30] P. J. Griffin, “*Relationship between Metrics Used to Represent Displacement Damage in Materials*”, SANDIA REPORT, Sandia National Laboratories USA, 2014.
- [31] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, “*Evaluation of effective threshold displacement energies and other data required for the calculation of advanced atomic displacement cross-sections*”, *Nuclear Energy and Technology*, **3**, 169 (2017).
DOI : 10.1016/j.nucet.2017.08.007

Chapitre 3 : Résultats et discussion

3.1. Introduction

Dans cette partie, nous détaillons les résultats issus de la simulation de l'irradiation du titane, menée grâce au code Marlowe, dont le développement s'appuie sur la théorie de l'approximation des collisions binaires. Dans un premier temps, le modèle arc-dpa a été utilisé pour estimer le nombre de paires de Frenkel générées sous différentes énergies du primaire permettant ainsi d'ajuster le rayon de recombinaison dans Marlowe afin d'harmoniser les résultats semi-empiriques et numériques. Une fois ce paramètre ajusté, des cascades de déplacements ont été simulées pour recueillir suffisamment de statistiques pour analyser des grandeurs clés gouvernant la genèse des défauts cristallins : le nombre d'atomes déplacés (incluant leur taux de survie post-recombinaison), la distribution spatiale des lacunes et interstitiels dont la distance de séparation conditionne la stabilité des paires de Frenkel et leur contribution à la microstructure post-irradiation, une cartographie tridimensionnelle des dommages permet d'évaluer l'étendue de la région endommagée, révélant l'impact de l'irradiation sur la topologie du réseau. L'analyse s'est également étendue à la caractérisation des amas de défauts, en quantifiant leur nombre et leur taille en fonction de l'énergie cinétique du primaire, un aspect clé pour comprendre l'agrégation des défauts sous irradiation. Ces résultats, combinant modélisation théorique et simulations numériques, offrent une vision holistique des mécanismes d'endommagement dans le titane, depuis l'initiation des cascades jusqu'à la stabilisation des défauts, essentielle pour prédire le comportement du matériau sous irradiation pour des applications en contexte nucléaire et aérospatial.

Dans le cadre de cette étude, des cascades de déplacements atomiques ont été réalisées simulant l'irradiation interne du titane, où chaque cascade est initiée par un atome primaire du réseau cristallin, lancé avec une énergie cinétique précise. Pour chaque d'énergie du primaire, de nombreuses cascades ont été simulées afin de collecter des données statistiques suffisantes, indispensables pour étudier le comportement aléatoire des collisions atomiques. La direction initiale donnée du primaire a été sélectionnée de manière isotrope dans l'espace tridimensionnel. Les collisions entre atomes ont été modélisées via un potentiel de paires, intégrant une description dynamique des vibrations thermiques autour des positions d'équilibre à l'aide du modèle de Debye. Seules les interactions avec un paramètre d'impact inférieur ou égal à $s_{\max}$ ont été prises en compte, garantissant une évaluation cohérente des événements de collisions. Trois mécanismes distincts régissent la dynamique des cascades :

- un déplacement se produit lorsque l'énergie reléguée à un atome cible du réseau dépasse l'énergie de cohésion E_{th} du matériau l'intégrant ainsi à la cascade ;

- un redéplacement intervient si un atome interstitiel acquiert une énergie supérieure à E_b , reflétant la mobilité des défauts préexistants ;
- un remplacement survient lorsque le projectile s'immobilise en substitution d'un atome cible, nécessitant une énergie seuil E_r .

Par ailleurs, une énergie de coupure E_C a été définie pour prendre comme immobiles les atomes dont l'énergie cinétique devient inférieure à ce seuil, facilitant ainsi la simulation. Cette approche, combinant rigueur statistique et modélisation fine des interactions, permet de caractériser exhaustivement l'évolution des cascades de déplacements, depuis l'initiation jusqu'à la fin de la cascade, en passant par la formation et la recombinaison partielle des défauts cristallins.

3.2. Paramètres de simulation

Le titane, sujet de notre étude, est un métal de transition remarquable pour ses propriétés mécaniques et sa résistance à la corrosion, largement exploité dans les industries aérospatiale, médicale et chimique. Il a un numéro atomique $Z = 22$ et une masse atomique moyenne de $W=47,867$ uma [1]. Ce matériau polyvalent existe sous forme pure ou en alliage. Sa densité modérée d'environ $4,506$ g/cm³ [2] en fait un métal léger comparé à l'acier, tout en affichant une résistance mécanique exceptionnelle. Le titane présente des transitions de phase marquées : il fond à 1943 K [3–5] et atteint son point d'ébullition à $3560,15$ K [6], des températures extrêmes témoignant de sa stabilité thermique.

Son comportement cristallographique révèle une dualité structurale fascinante. En dessous de 882 °C (soit 1155 K), il adopte une structure hexagonale compacte (hcp), caractérisée par des paramètres de maille $a = b = 2,9508$ Å et $c = 4,6855$ Å, avec des angles $\alpha = \beta = 90^\circ$ et $\gamma = 120^\circ$, typique de la phase α . Au-delà de cette température critique, il subit une transition vers une structure cubique centrée (bcc), phase β , avec un paramètre de maille réduit à $a = 3,32$ Å [7]. Cette transformation structurale, réversible, influence profondément ses propriétés de ductilité et de résistance, un aspect crucial pour le traitement thermique des alliages de titane (voir figure 3.1).

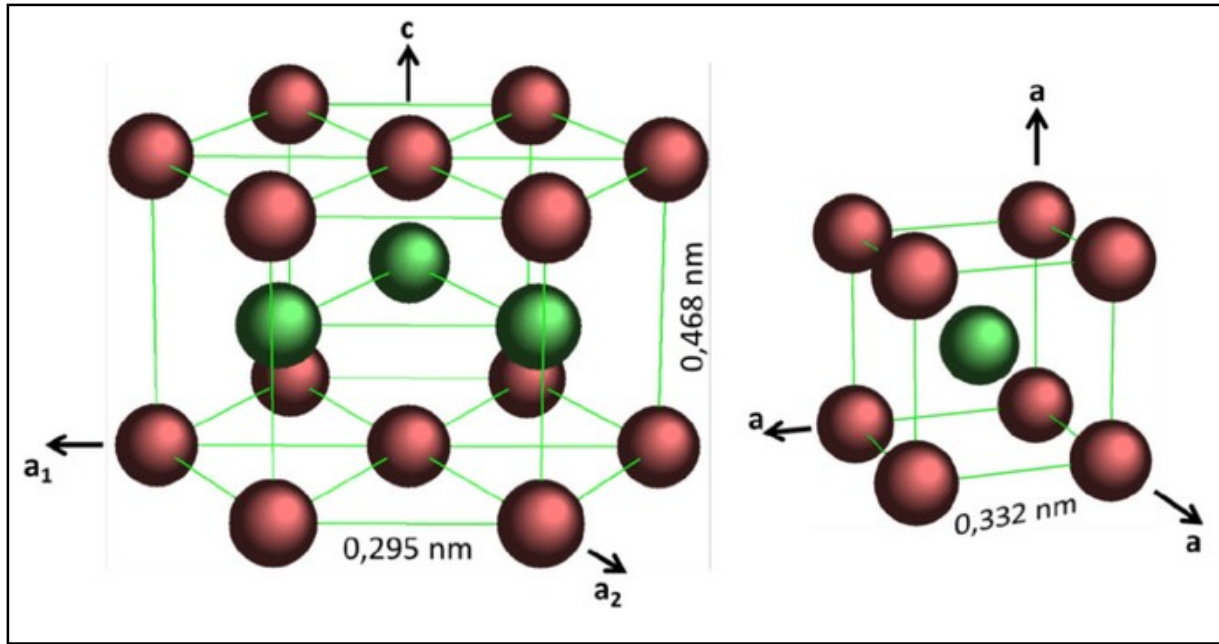


Figure 3.1. Structures hexagonale compacte (α) et cubique centrée (β) du titane [8].

Dans cette étude, nous avons simulé des cascades de déplacements dans un cristal de titane (à 100, 300 et 600 K), initiées par des primaires d'énergies cinétiques comprises entre 5 et 30 keV (par incréments de 5 keV). Pour chaque énergie, 1000 cascades ont été générées afin d'assurer une quantité suffisante de statistiques tout en optimisant le temps de calcul. Des tests comparatifs avec 5000 cascades indiquent que la variation du nombre de défauts ne dépasse 0.04%. Les interactions atomiques ont été modélisées à l'aide des deux potentiels de paires répulsifs les plus répandus en science des matériaux irradiés : le potentiel universel Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) et le potentiel de Molière. On intègre dans la simulation les trois types d'énergies de liaison: une énergie de déplacement égale à $E_{th} = 4.85$ eV [9, 10] qui est l'énergie de cohésion, une énergie de redéplacement $E_b = 0$ eV et une énergie de remplacement $E_r = 0.2$ eV. Une énergie de coupure $E_C = E_{th}$ a été appliquée pour limiter les calculs aux événements physiquement pertinents, avec un paramètre d'impact maximal $s_{max} = 0.71a$ (où a est le paramètre de maille), contrôlant le nombre de collisions. Les vibrations thermiques ont été incorporées via un modèle de Debye (avec une température de Debye $T_D = 380$ K [11]), crucial pour reproduire l'agitation atomique à température ambiante. Le modèle de Oen-Robinson a été utilisé pour évaluer les pertes d'énergies inélastiques. Le potentiel de Molière a la forme pour l'interaction Ti-Ti ($Z=22$ pour le titane) :

$$V(r) = \frac{6969.4306}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right] \quad (3.1)$$

avec un paramètre d'écran :

$$a_M = a_{Firsor} = \frac{0.88534 a_B}{(Z_{Ti}^{1/2} + Z_{Ti}^{1/2})^{2/3}} = 0.105328 \text{ \AA} \quad (3.2)$$

Le potentiel ZBL s'écrit pour l'interaction Ti-Ti :

$$V(r) = \frac{6969.4306}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r / a_{ZBL})}, \quad (3.3)$$

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

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_{Ti}^{0.23} + Z_{Ti}^{0.23}} = 0.115058 \text{ \AA} \quad (3.4)$$

La figure (3.2) illustre l'évolution des potentiels d'interaction atomique de ZBL et de Molière pour deux atomes de titane en fonction de leur distance de séparation.

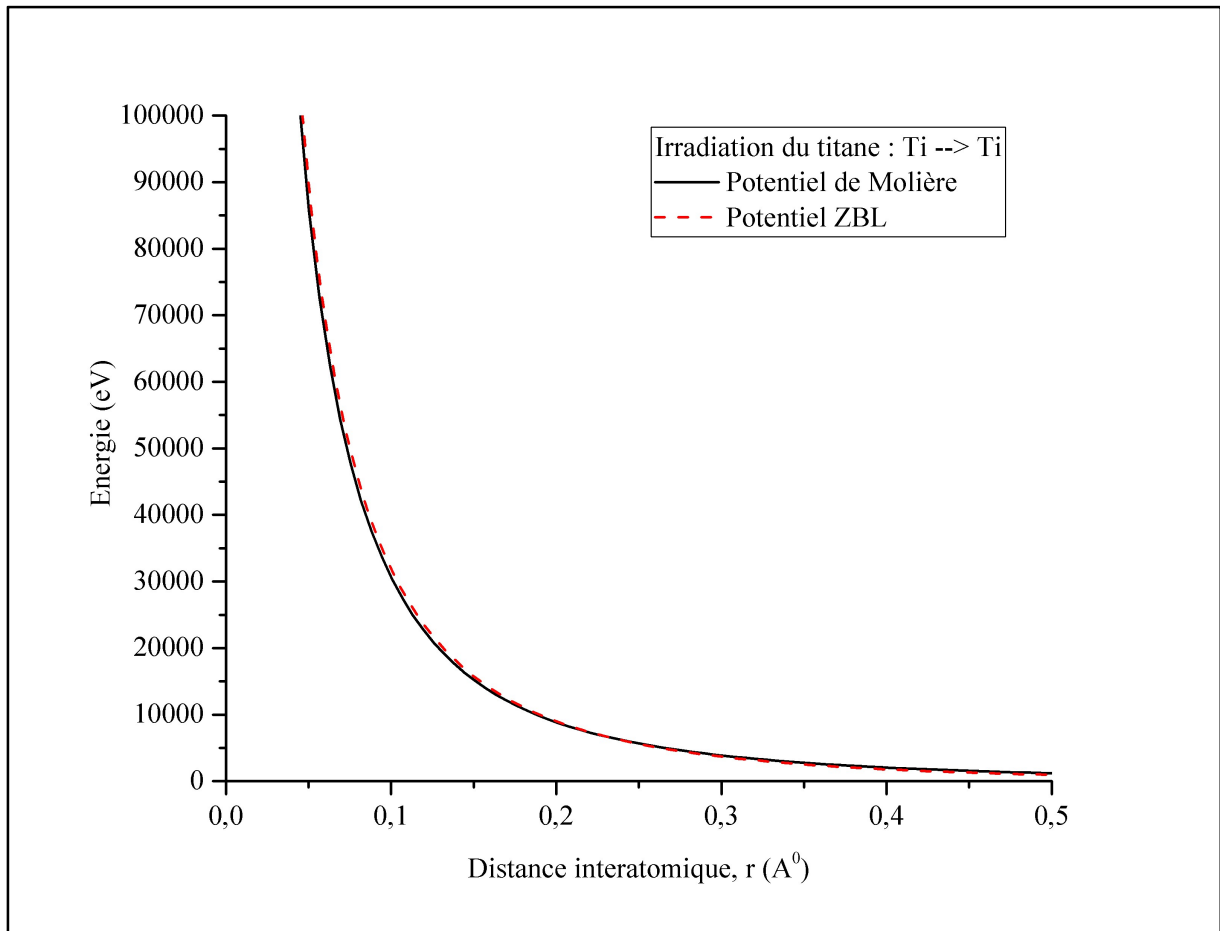


Figure 3.2. Potentiels d'interaction atomique entre deux atomes de titane.

On observe que ces deux modèles de potentiels manifestent une répulsion d'intensité similaire pour une même distance interatomique. De ce fait, nous avons choisi d'effectuer les simulations avec le potentiel universel ZBL.

Nous résumons dans le tableau 3.1 suivant, les paramètres utilisés dans Marlowe pour mener les simulations de l'irradiation du titane.

Tableau 3.1. Paramètres utilisés dans la simulation de l'irradiation du titane.

Elément	Titane (Ti)
Numéro atomique	$Z=22$
Poids atomique	$W=47,867$ uma
Température de Debye	$T_D = 380$ K à $T=298$ K
Température du cristal	100, 300, 600 K
Potentiel d'interaction atomique	Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL)
	Paramètre d'écran $a_{ZBL} = 0.115058$ Å
Structure cristalline	hcp
Paramètres de maille	$a = b = 2,9508$ Å, $c = 4,6855$ Å
	$\alpha = \beta = 90^\circ$ et $\gamma = 120^\circ$
Energie de déplacement	$E_{th} = 4.85$ eV
Energie de redéplacement	$E_b = 0$ eV
Energie de remplacement	$E_r = 0.2$ eV
Energie de coupure	$E_C = 4.85$ eV
Energie seuil de déplacement	$E_d = 30$ eV
paramètre d'impact maximal	$s_{max} = 0.71a$
Energies des primaires (keV)	5, 10, 15, 20, 25, 30
Nombre de cascades pour chaque énergie	1000
Paramètres du modèle arc-dpa	$b_{arc dpa} = -1$, $C_{arc dpa} = 0.83$
Rayon de recombinaison	$r_V = 2.50a$

3.3 Ajustement du rayon de recombinaison

Il est bien établi dans l'étude des dégâts induits par d'irradiation que les imperfections ponctuelles formées lors de la phase balistique de la cascade de déplacements ne subsistent pas tous à l'état résiduel. En effet, la stabilité des paires de Frenkel dépend étroitement de la distance de séparation entre les lacunes et les interstitiels : les atomes déplacés achevant leur parcours à faible distance des lacunes ont tendance à se recombinaison avec celles-ci. Ce processus de recombinaison réduit significativement le nombre d'imperfections permanentes par rapport au nombre initial de déplacements atomiques. Pour modéliser cet effet, le code Marlowe intègre dans ses calculs un paramètre appelé rayon de recombinaison (r_V). Selon cette approche, couramment employée en simulation basée sur le modèle d'approximation des collisions binaires [12, 13], une paire de Frenkel est supposée permanente uniquement si la distance lacune-interstitiel excède r_V . Dans le cas contraire, la recombinaison entraîne l'annihilation du défaut.

Afin de déterminer le rayon de recombinaison, une démarche en deux étapes a été adoptée. Dans un premier temps, le nombre de paires de Frenkel a été évalué pour des énergies du primaire comprises entre 5 et 30 keV, en s'appuyant sur les expressions (2.50) et (2.51) du modèle arc-dpa. Les valeurs des coefficients $b_{arc dpa}$ et $C_{arc dpa}$ et de l'énergie seuil de déplacement E_d nécessaires pour les calculs ont été obtenues de la table 3.1 [14]. Dans un second temps, nous avons essayé d'ajuster le rayon de recombinaison dans le code Marlowe afin de reproduire fidèlement les prédictions du modèle arc-dpa.

Le tableau 3.2 présente les résultats obtenus pour le nombre de paires de Frenkel à partir des modèles Kinchin-Pease, NRT, arc-dpa ainsi que ceux issus des simulations par Marlowe.

Tableau 3.2. Nombre de paires de Frenkel calculé à partir des trois modèles KP, NRT, arc-dpa et de Marlowe.

Nombre de paires de Frenkel dans le titane irradié								
Potentiel ZBL, T=300 K								
Energie du primaire (eV)	Modèle théorique			Code Marlowe				
				Rayon de recombinaison r_V				
	KP	NRT	arc-dpa	2.0a	2.25a	2.50a	2.75a	3.0a
5000	83	51	42	57	50	45	40	34
10000	167	98	81	109	95	85	75	64
15000	250	143	119	159	139	123	109	94
20000	333	187	155	207	180	160	141	122
25000	417	230	191	254	221	196	174	149
30000	500	272	226	299	261	231	204	175

Les résultats d'ajustement du rayon de recombinaison sont illustrés sur la figure 3.3.

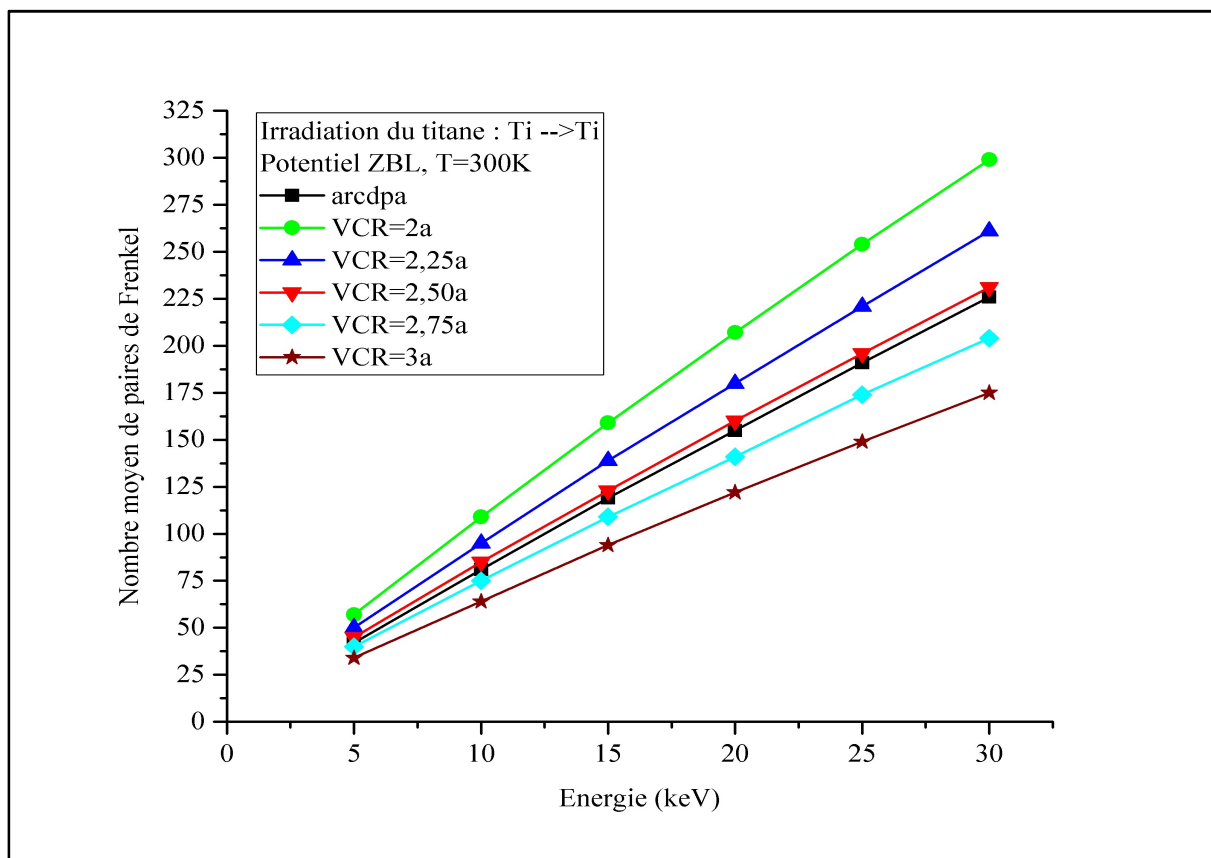


Figure 3.3. Nombre de paires de Frenkel calculé à partir du modèle arc-dpa et de Marlowe.

Comme en atteste la figure 3.3, une concordance remarquable entre les résultats de arc-dpa et de simulation est obtenue pour un rayon de recombinaison $r_V = 2.50a$.

3.4 Distribution des paires de Frenkel

Lorsqu'il ne reste plus d'atomes en mouvement dans la cascade, Marlowe structure les imperfections ponctuels (lacunes et interstitiels) en paires de Frenkel en classant systématiquement leurs distances de séparation selon un ordre croissant. Pour ce faire, l'algorithme identifie d'abord la paire lacune-interstitiel présentant la distance minimale au sein de la cascade, puis itère le processus pour les distances suivantes jusqu'à épuisement des défauts non appariés. Puis, une fonction de distribution est ensuite élaborée pour caractériser les paires de Frenkel. Cette fonction assigne à chaque distance r_{VI} le nombre cumulé de paires dont la distance relative excède r_{VI} . Elle offre ainsi une vision de la répartition des défauts, révélant par exemple la prédominance de couples proches ou, au contraire, l'existence de paires isolées à grande distance, éléments clés pour analyser l'impact structural de l'irradiation. La figure 3.4 présente la fonction de distribution dans le titane irradié pour des énergies du primaire entre 5 et 30 keV.

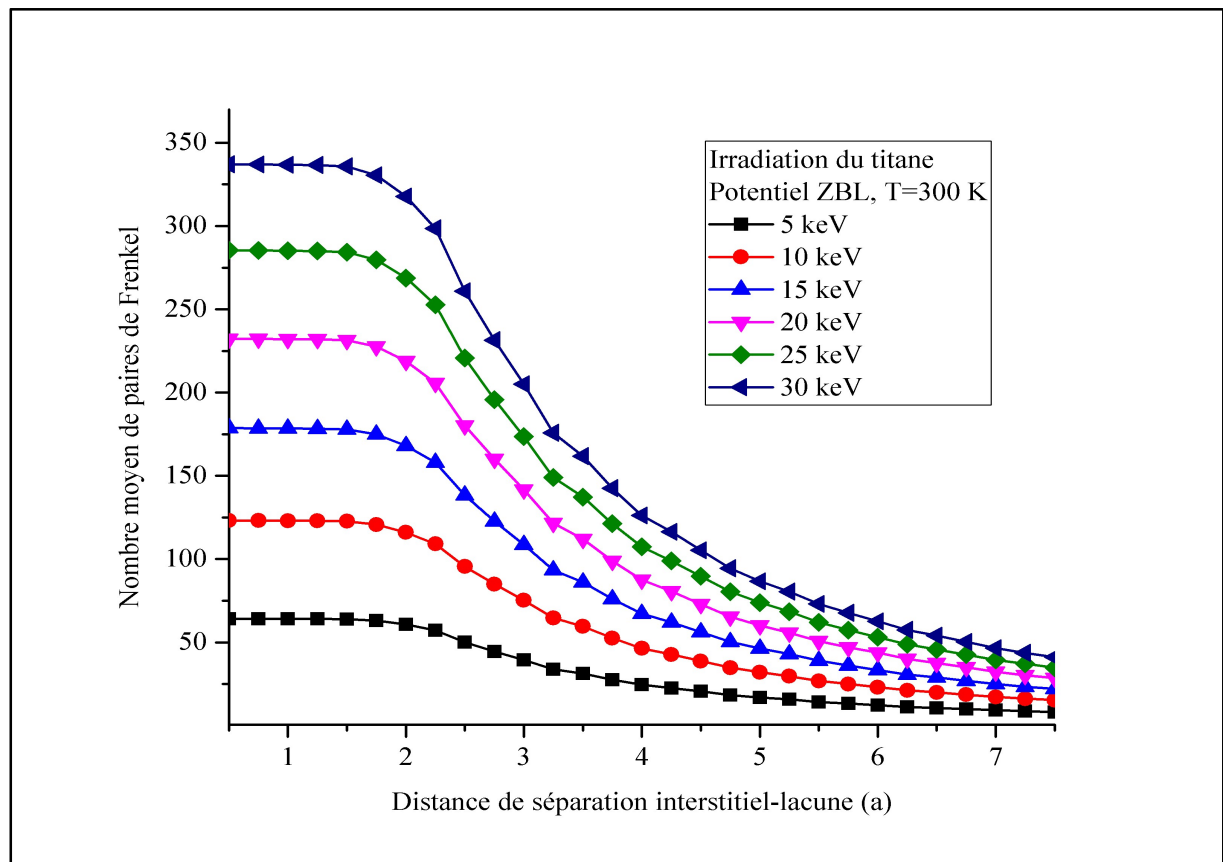


Figure 3.4. Fonction de distribution des paires de Frenkel pour le titane irradié.

Les résultats montrent qu'une augmentation de l'énergie du primaire induit davantage de déplacements atomiques et donc provoque plus de dommages dans le matériau. Parallèlement, l'étude révèle que toutes les courbes présentent une diminution du nombre de paires de Frenkel dès que la distance de séparation lacune-interstitiel excède $2a$, une valeur correspondant approximativement au double du paramètre de maille cristalline. Cette chute rapide traduit le fait que la majorité des atomes déplacés en positions interstitielles s'arrêtent à proximité de sites vacants favorisant ainsi le processus de recombinaison.

3.5. Atomes en mouvement

La figure 3.5 illustre la dynamique temporelle du nombre moyen d'atomes de titane irradié en mouvement, simulée avec le potentiel ZBL, pour des primaires d'énergie allant de 5 à 30 keV.

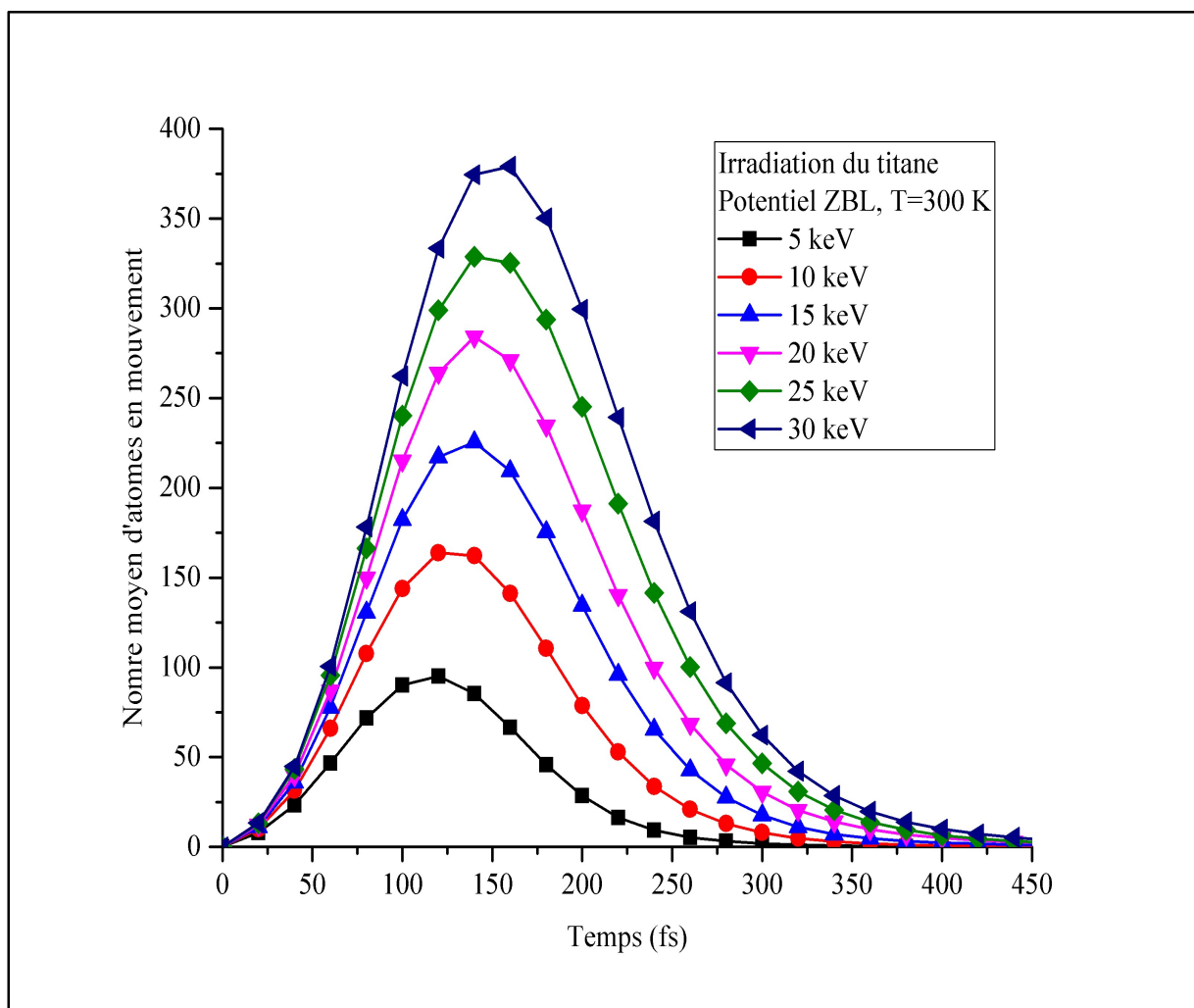


Figure 3.5. Atomes en mouvement dans le titane irradié pour différentes énergies du primaire.

Lorsqu'un primaire, doté d'une énergie cinétique initiale déterminée, pénètre le réseau cristallin, il provoque le déplacement d'atomes cibles, qui deviennent à leur tour des projectiles secondaires, amplifiant ainsi la cascade de collisions. Cette propagation dépend de deux mécanismes principaux de dissipation d'énergie : une partie est convertie en défauts structuraux via des collisions élastiques, tandis qu'une autre est absorbée par l'ionisation et l'excitation électronique lors de collisions inélastiques. Chaque déplacement atomique consomme 4,85 eV, contre seulement 0,2 eV pour un événement de remplacement, jusqu'à ce que l'énergie des atomes tombe en dessous du seuil critique E_C (énergie de coupure), les immobilisant. La courbe d'évolution montre une croissance rapide du nombre d'atomes mobiles durant les premières femtosecondes, atteignant un pic entre 125 et 150 fs. Cette phase ascendante reflète l'efficacité des projectiles énergétiques à générer des collisions en chaîne. Toutefois, l'atténuation progressive de l'énergie cinétique, causée par les pertes élastiques et inélastiques, entraîne un déclin au-delà de ce maximum, jusqu'à l'immobilisation complète des atomes, marquant la fin de la cascade. Les simulations de Marlowe soulignent que l'amplitude de la cascade dépend fortement de l'énergie initiale du primaire, avec un maximum d'atomes mobiles proportionnel à celle-ci. La durée totale du phénomène reste néanmoins ultracourte, de l'ordre du dixième de picoseconde, soulignant la rapidité des transferts d'énergie à l'échelle atomique.

3.6. Séquences de remplacements

Dans les matériaux cristallins dotés d'une structure périodique ordonnée, les séquences de remplacements atomiques peuvent représenter un mécanisme clé dans la génération de défauts stables. Ce processus, énergétiquement favorable à faible énergie, se propage préférentiellement le long des axes cristallographiques de faibles indices, où les interactions interatomiques facilitent les déplacements en chaîne. Une séquence de remplacements longue conduit à la formation d'un défaut interstitiel situé à une distance significative du site vacant initial. Cet éloignement spatial entre l'interstitiel et la lacune résultante crée une barrière géométrique et énergétique, réduisant ainsi la probabilité de recombinaison. Ainsi, cette dynamique particulière contribue à la stabilisation des défauts dans le réseau.

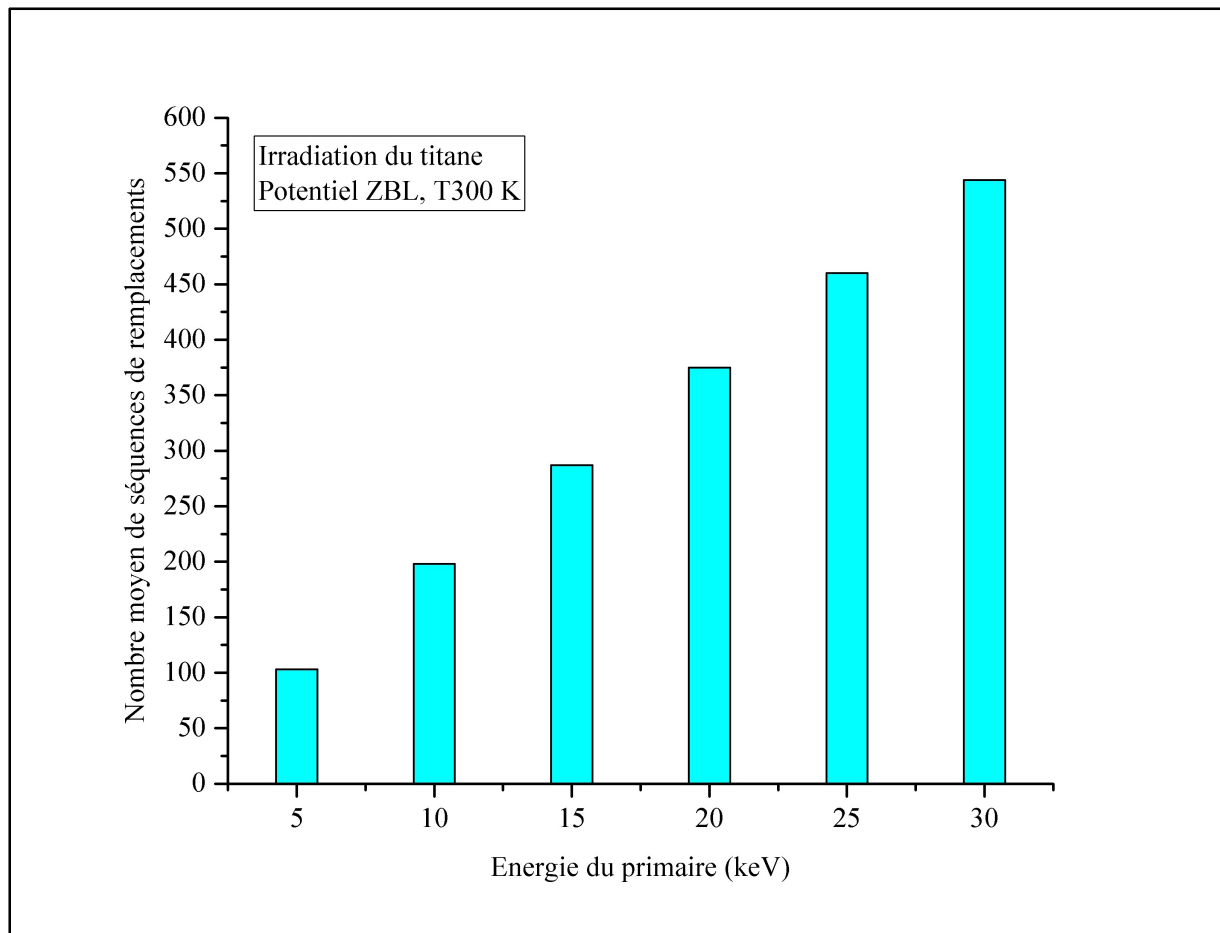


Figure 3.6. Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de l'énergie du primaire.

Nous avons analysé l'influence de la température du cristal et de l'énergie des primaires sur le nombre et la longueur des chaînes de remplacements dans le titane sous irradiation. Les résultats obtenus de la simulation, présentés dans les figures 3.6 à 3.9, révèlent une corrélation entre l'augmentation de l'énergie du primaire et la prolifération des séquences de remplacements. Lorsqu'on l'énergie de l'atome primaire est doublée, le nombre de remplacements augmente approximativement d'un facteur deux. Contrairement à cette sensibilité énergétique marquée, il semble que la température du matériau n'affecte que marginalement le nombre et la longueur de ces séquences de remplacements.

Une mise en évidence marquante réside dans la prédominance de chaînes de remplacement courtes : les séquences de 4 et 5 longueurs ne représentent respectivement que 1.24 % et 0.8 % de l'ensemble des séquences générées.

En corrélant ces observations avec la genèse des défauts cristallins dans le titane, nos résultats soulignent le rôle mineur des chaînes de remplacements dans les processus d'endommagement.

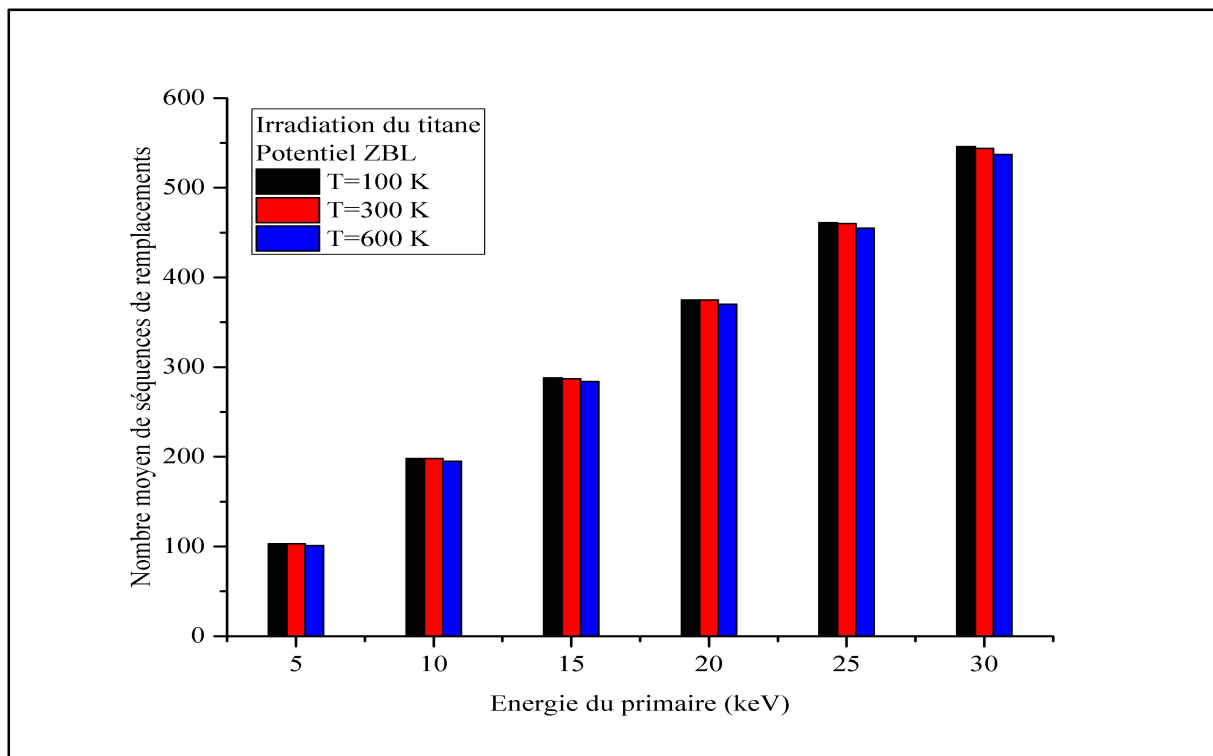


Figure 3.7. Nombre de séquences de remplacements dans le titane pour différentes températures du cristal.

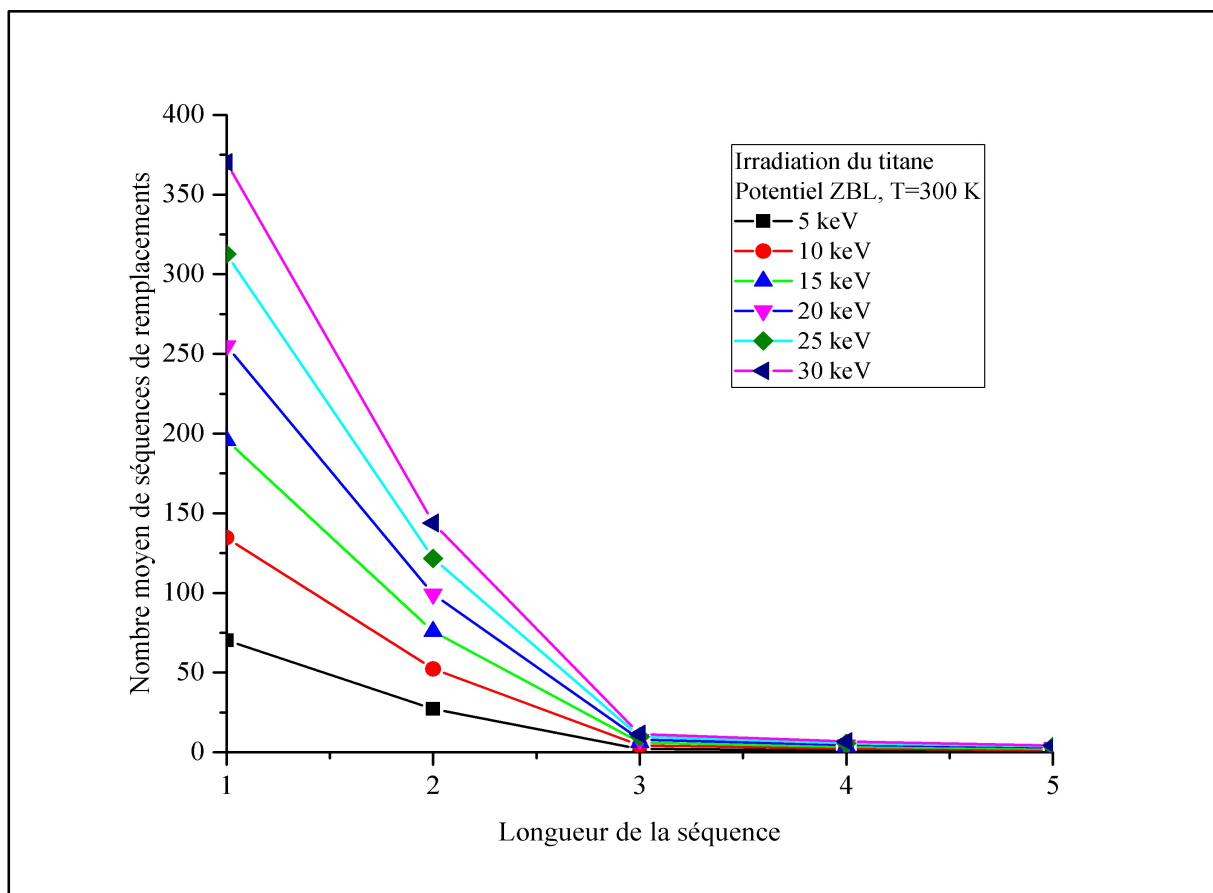


Figure 3.8. Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de leur longueur pour différentes énergies du primaire.

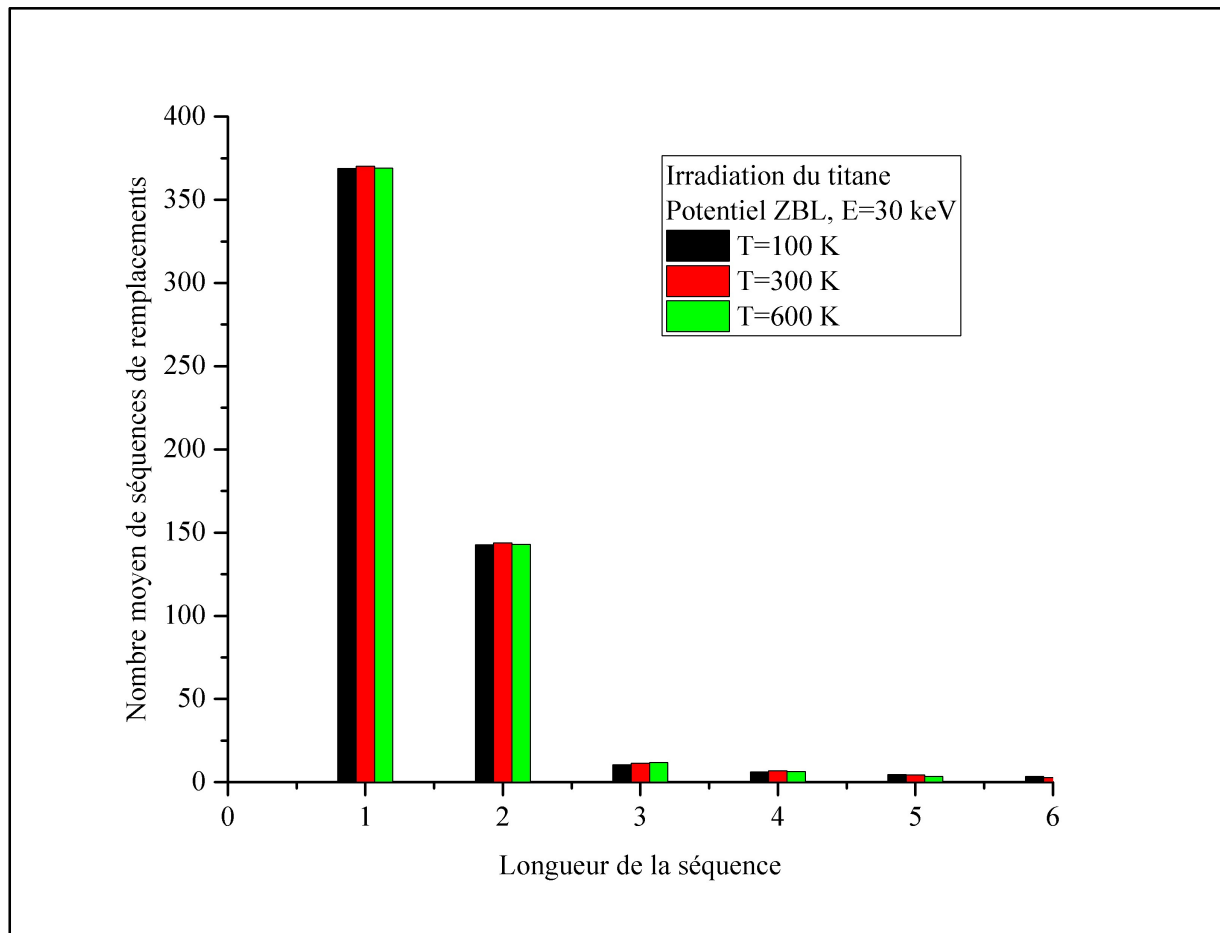


Figure 3.9. Nombre de séquences de remplacements dans le titane en fonction de leur longueur pour différentes températures du cristal.

3.7. Distribution spatiale des défauts

L'analyse des positions atomiques des lacunes et des interstitiels résiduels – correspondant aux défauts ponctuels stables – via les simulations Marlowe offre une vue précise de la configuration finale des dommages d'irradiation. Les figures de 3.10 à 3.14 illustrent une représentation visuelle tridimensionnelle de cinq cascades de déplacements dans le titane initiées par l'impact des primaires d'énergies cinétiques 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Ces configurations, mettent en évidence l'évolution morphologique des cascades en fonction de l'énergie incidente : chaque augmentation de l'énergie du primaire modifie significativement le nombre de défauts, leur répartition spatiale et la complexité structurale des zones

endommagées, illustrant ainsi la relation entre l'énergie transférée aux atomes du réseau et l'étendue des désordres cristallins induits.

La question fondamentale de la ségrégation spatiale entre lacunes et interstitiels au sein d'une cascade a fait l'objet d'une modélisation pionnière par Brinkman [17]. Ses travaux analytiques prédisent une organisation biphasée caractéristique : les lacunes tendent à se concentrer dans un cœur central dense, tandis que les interstitiels forment une couronne périphérique enveloppante. Ce modèle théorique trouve une confirmation grâce aux simulations des cascades de déplacements. En effet, les figures 3.10 à 3.14 révèlent une ségrégation spatiale entre les types de défauts (noyau en lacunes/enveloppe en interstitiels) qui vient confirmer les prédictions théoriques de Brinkman.

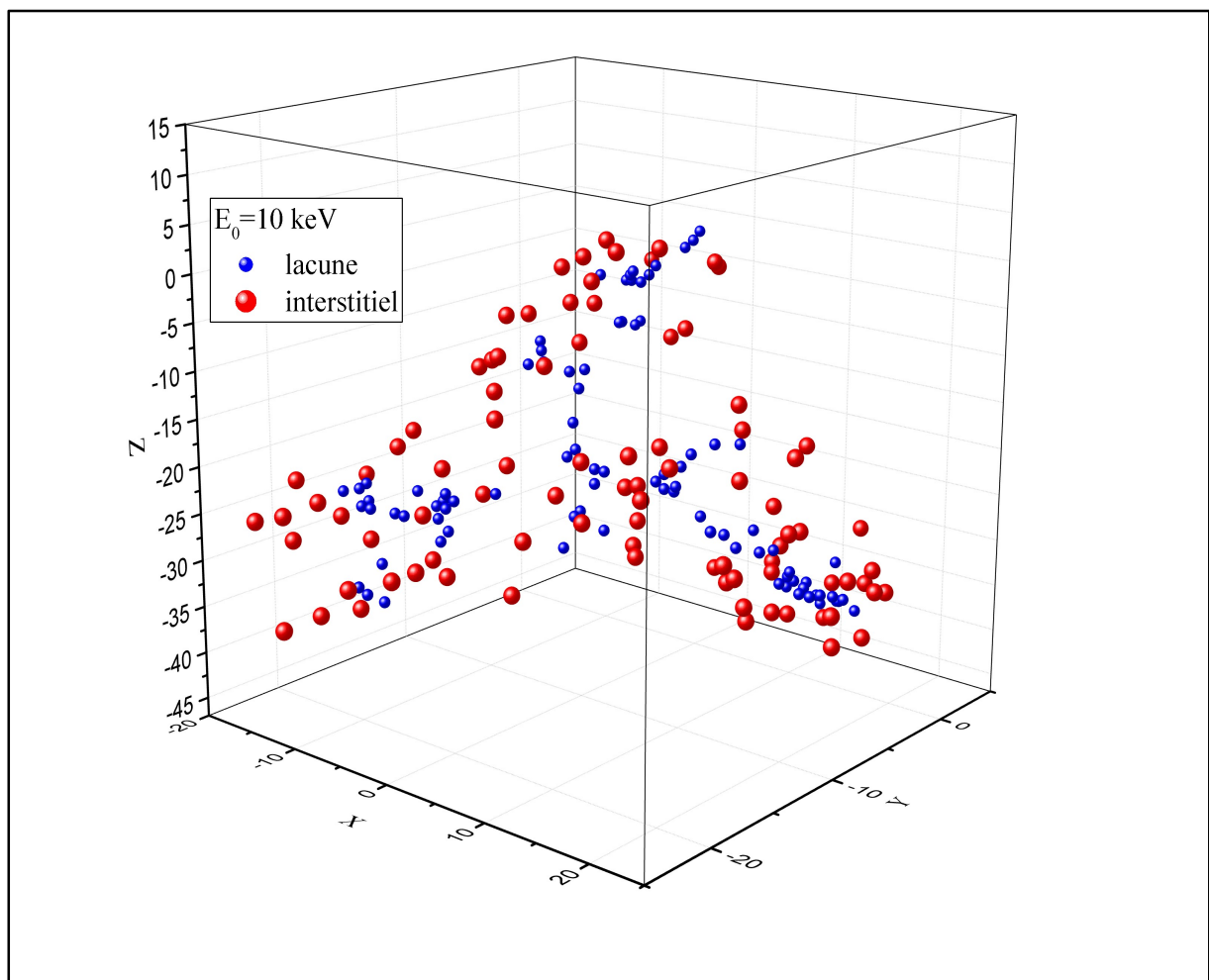


Figure 3.10. Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 10 keV.

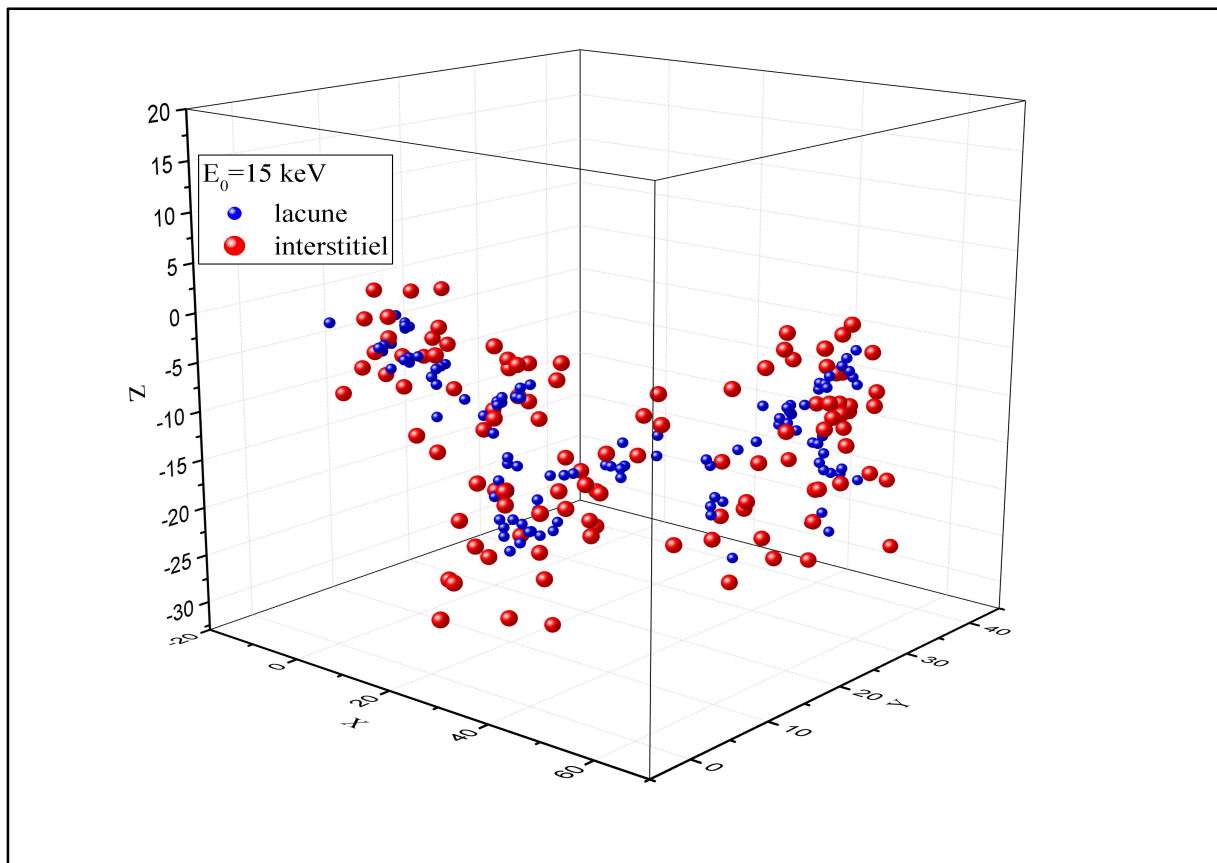


Figure 3.11. Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 15 keV.

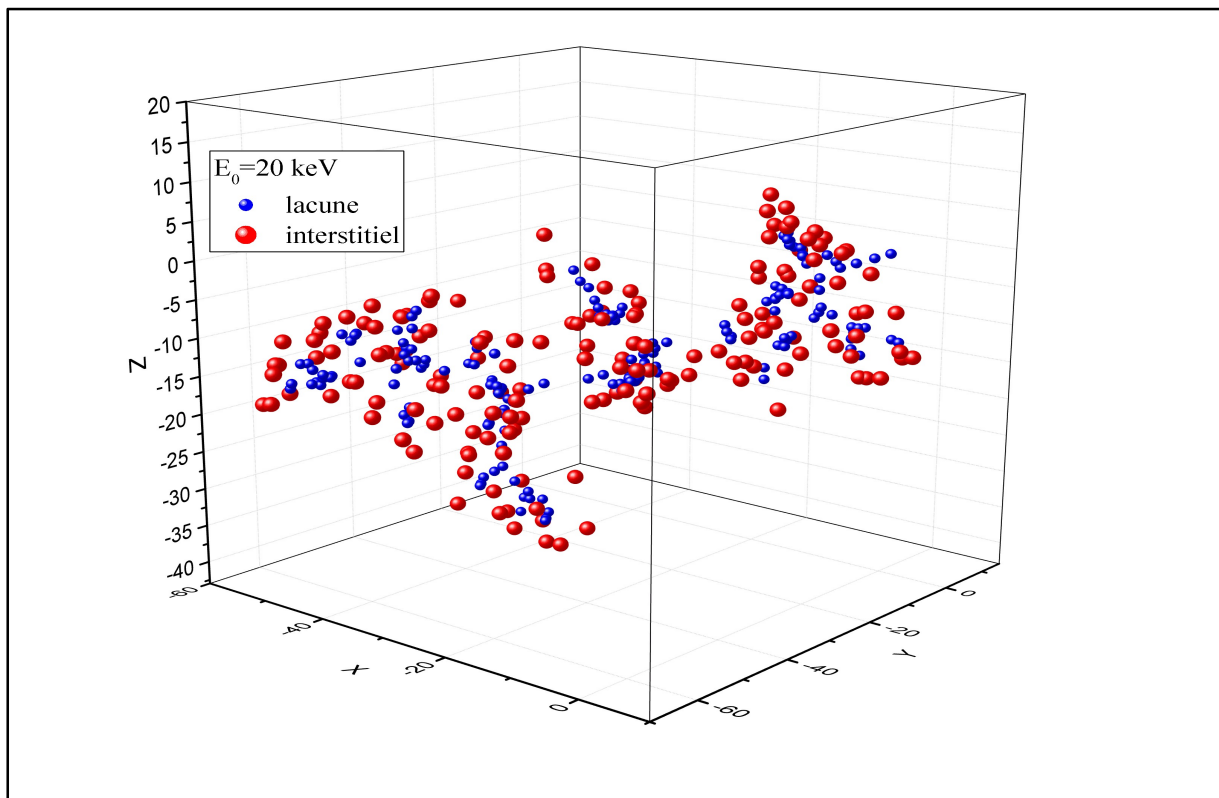


Figure 3.12. Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 20 keV.

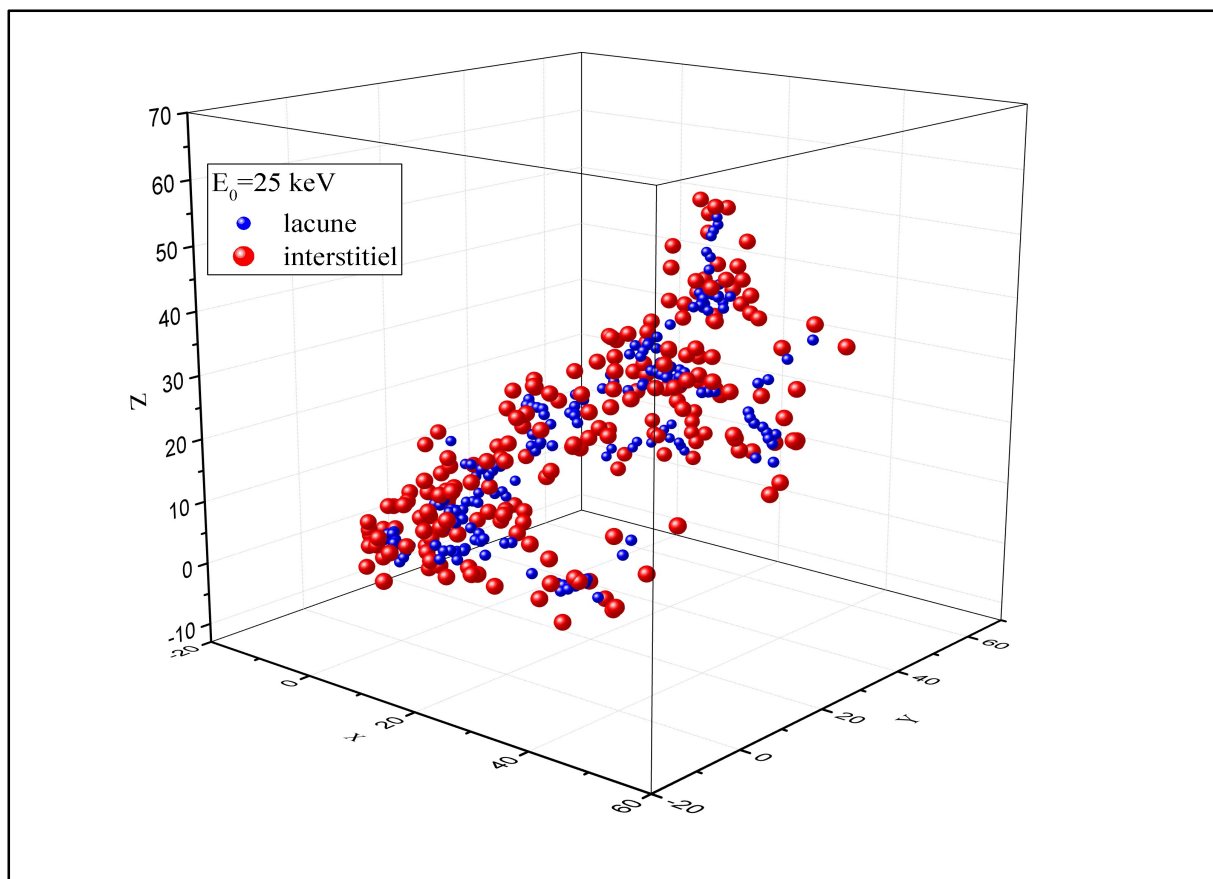


Figure 3.13. Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 25 keV

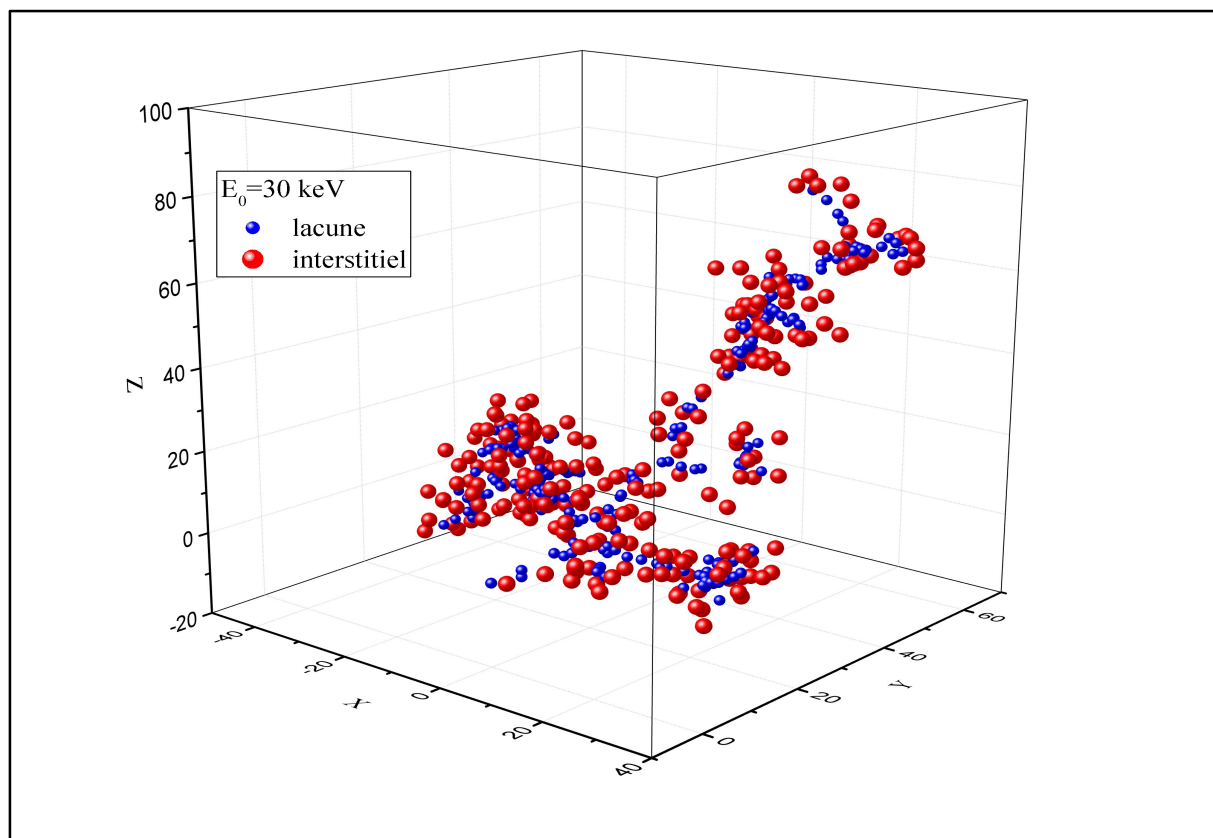


Figure 3.14. Cascade de déplacements dans le titane pour un primaire d'énergie 30 keV.

3.8. Distribution des volumes

Pour analyser l'étendue des dommages structuraux dans le titane irradié, nous avons exploité l'analyse en composantes principales (ACP) [15, 16] appliquée aux coordonnées spatiales des imperfections ponctuels (lacunes et interstitiels) générés lors de cascades de déplacements. Cette méthode statistique permet de modéliser chaque cascade par un ellipsoïde, dont les axes principaux reflètent la dispersion géométrique des défauts. Le volume de la région endommagée est alors estimé via le volume de l'ellipsoïde, offrant une mesure objective malgré la morphologie irrégulière et stochastique des cascades, intrinsèquement liée au caractère aléatoire des collisions atomiques.

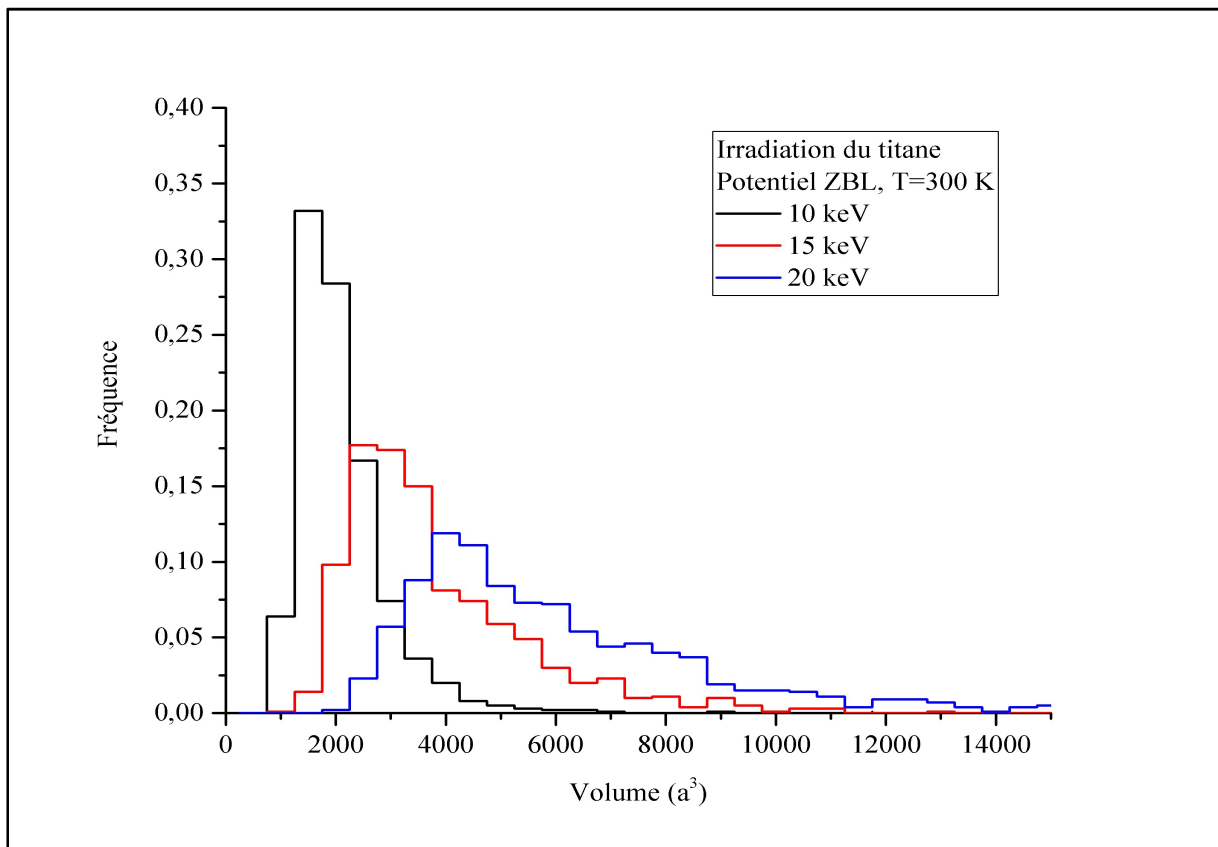


Figure 3.15. Distributions de volumes pour les énergies du primaire 10, 15 et 20 keV.

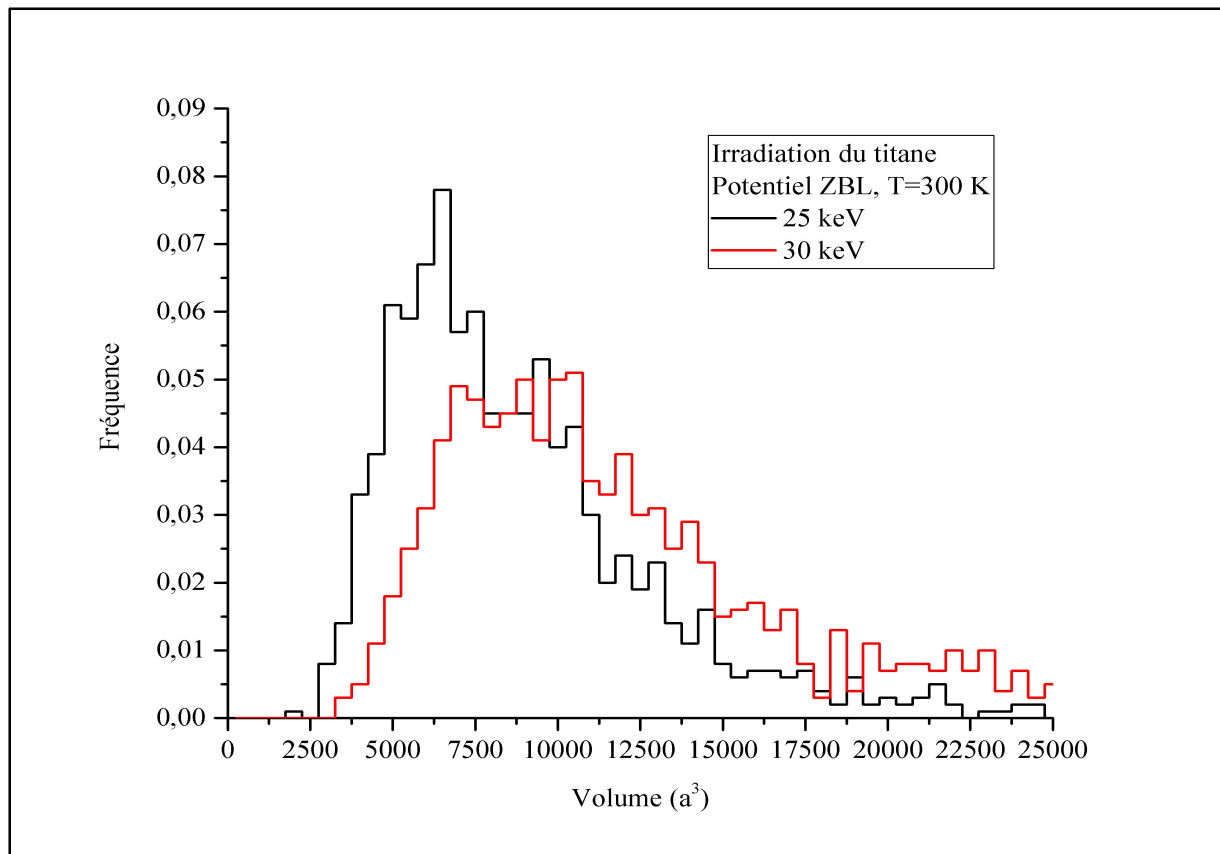


Figure 3.16. Distributions de volumes pour les énergies du primaire 25 et 30 keV.

L'analyse systématique de 1000 cascades pour les énergies du primaire allant de 10 à 30 keV (figures 3.15 et 3.16) révèle des distributions de volumes fortement asymétriques, s'écartant radicalement d'une loi normale. Ces distributions présentent toutes une queue étirée vers les grands volumes, soulignant une variabilité significative : certaines cascades, bien que générées sous des conditions initiales identiques (même énergie du primaire, même potentiel d'interaction atomique), produisent des configurations spatiales nettement plus étendues. Cette asymétrie, couplée à un écart marqué entre volumes moyens et modes, traduit l'hétérogénéité des processus collisionnels à l'échelle atomique. Par ailleurs, la dépendance énergétique est claire : l'augmentation de l'énergie du primaire de 10 à 30 keV induit systématiquement des cascades plus volumineuses. Ces résultats ont des implications critiques pour les applications en milieu irradiant (nucléaire, spatial) : l'étirement des distributions vers les volumes élevés suggère un risque non négligeable de dommages localisés extrêmes, pouvant compromettre la fiabilité des matériaux.

3.9. Amas lacunaires

L'irradiation d'un matériau conduit à la formation d'une région fortement désordonnée riche en défauts ponctuels, principalement des lacunes et des interstitiels. Après une phase de recombinaison partielle entre interstitiels et lacunes en proximité immédiate, les défauts résiduels de même type peuvent et s'agglomérer : les interstitiels forment des amas évoluant, généralement, en boucles de dislocations, tandis que les lacunes, particulièrement concentrées au cœur de la cascade, s'assemblent en cavités (ou pores) susceptibles de provoquer un gonflement du matériau [18, 19].

Dans nos simulations, une lacune est considérée comme appartenant à un amas si elle se situe à une distance inférieure ou égale à celle des deuxièmes proches voisins d'une autre lacune, la taille de l'amas étant définie par son nombre total de lacunes. La figure 3.17 illustre la variation du nombre d'amas de lacunes et de leurs tailles dans le titane en fonction de l'énergie cinétique du primaire.

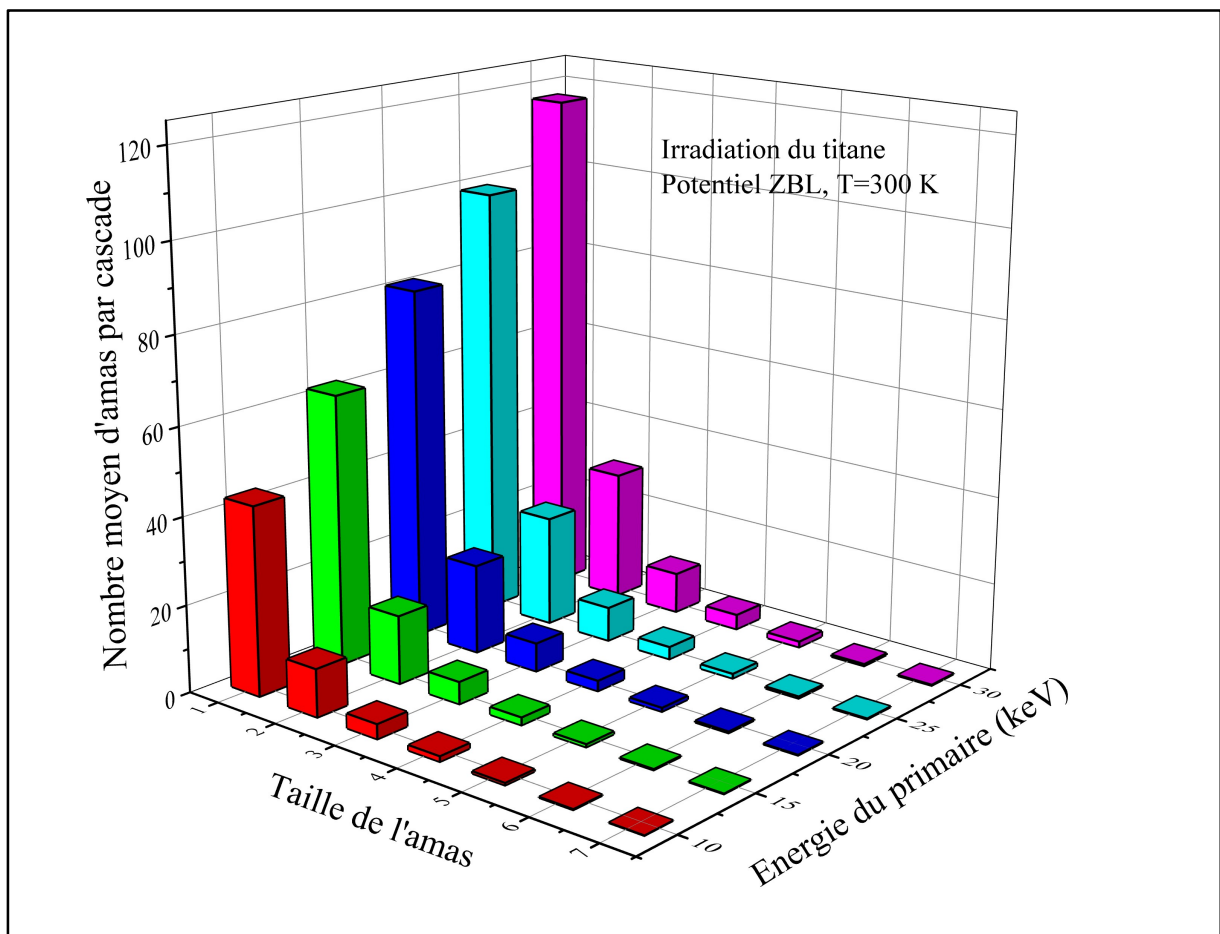


Figure 3.17. Nombre d'amas et leurs tailles en fonction de l'énergie du primaire.

L'analyse de cette figure révèle une augmentation marquée du nombre et de la taille des amas lacunaires avec l'énergie du primaire, atteignant un maximum de 17 lacunes dans des amas pour les énergies de primaire 20 et 25 keV. Fait notable, pour toutes les énergies du primaire, approximativement 49 % des lacunes générées et survivant à la recombinaison s'agrègent en amas.

Références bibliographiques

[1] T. Prohaska, J. Irrgeher, J. Benefield, J. K. Böhlke, L. A. Chesson, T. B. Coplen, T. Ding, P. J. H. Dunn, M. Gröning, N. E. Holden, H. A. J. Meijer, H. Moossen, A. Possolo, Y. Takahashi, J. Vogl, T. Walczyk, J. Wang, M. E. Wieser, S. Yoneda, X. Zhu, J. Meija. "*Standard Atomic Weights of the Elements 2021 (IUPAC Technical Report)*", *Pure and Applied Chemistry*, **94**, 573 (2022).

DOI : 10.1515/pac-2019-0603

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

[3] David R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press Inc, 90^e édition, 2009.

[4] R. E. Bedford, G. Bonnier, H. Maas, and F. Pavese. "*Recommended Values of Temperature on the International Temperature Scale of 1990 for a Selected Set of Secondary Reference Points*", *Metrologia*, **33**, 133 (1996).

DOI :10.1088/0026-1394/33/2/3

[5] J. V. Nicholas, D. R. White, "*Temperature in Measurement of the Thermodynamic Properties of Single Phases*", Edited by A. R. H. Goodwin, W. A. Wakeham, and K. N. Marsh. Amsterdam: Elsevier Science, 2003.

[6] Carl L. Yaws, "*The Yaws Handbook of Physical Properties for Hydrocarbons and Chemicals*", Houston, TX: Gulf Publishing Company, 2005.

[7] R. R. Pawar, V. T. Deshpande, "*The anisotropy of the thermal expansion of α -titanium*", *Acta Crystallographica A*, **24**, 316 (1968).

DOI : 10.1107/S0567739468000525

[8] B. Maxime, " *Étude du comportement de l'alliage de titane Ti6242S à haute température sous atmosphères complexes : applications aéronautiques*", Thèse de Doctorat, Université Bourgogne Franche-Comté, 2018.

[9] C. Kittel, "*Introduction to Solid State Physics*", 8th edition, Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, Inc, 2005.

[10] E. Kaxiras, "*Atomic and Electronic Structure of Solids*", Cambridge: Cambridge University Press, 2003.

[11] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, " *Thermal Conductivity of the Elements: A Comprehensive Review*", *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, **3**, supplement 1, I-1 to I-796 (1974).

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

DOI : 10.1016/j.jnucmat.2010.06.004

[13] G. Vizkelethy, S.M. Foiles, "*Determination of recombination radius in Si for binary collision approximation codes*", *Nucl. Instrum. Methods B* **371**, 111 (2016).

DOI : 10.1016/j.nimb.2015.08.088

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

DOI : 10.1016/j.nucet.2017.08.007

[15] W. Eckstein, "*Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.

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

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

[17] J.A. Brinkman, "*Production of Atomic Displacements by High-Energy Particles*", *American Journal of Physics*, **24**, 246 (1956).

DOI : 10.1119/1.1934201

[18] G.S. Was, "*Fundamentals of Radiation Materials Science*", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.

[19] F. Gao, D.J. Bacon, L.M. Howe, C.B. So, "*Temperature-dependence of defect creation and clustering by displacement cascades in α -zirconium*", *J. Nucl. Mater.* **294**, 288 (2001).

DOI : 10.1016/S0022-3115(01)00483-4

Conclusion générale

Conclusion générale

Ce travail vise à apporter une contribution à l'étude des mécanismes de génération des défauts cristallins dans les métaux de transition soumis à l'irradiation, en prenant le titane comme matériau modèle. Ce métal aux propriétés physiques et mécaniques remarquables, est largement utilisé dans diverses applications. Pour analyser son comportement sous irradiation intense, nous avons simulé des cascades de déplacements dans ce matériau à l'aide du programme Marlowe, fondé sur l'approximation des collisions binaires. Des primaires d'énergie cinétique variant de 5 à 30 keV ont initié ces cascades, avec 1000 simulations par énergie afin d'obtenir des résultats pertinents sur le nombre de défauts ponctuels, leur distribution spatiale, l'ampleur de région endommagées et la formation des amas de lacunes. Les interactions entre atomes de titane en collisions ont été modélisées via le potentiel ZBL, tandis que les vibrations thermiques des atomes du réseau ont été décrites par le modèle de Debye. Les pertes d'énergie inélastiques, dues à l'excitation et à l'ionisation des électrons, ont été estimées par le modèle d'Oen-Robinson.

Cette étude a permis de caractériser finement les mécanismes d'endommagement du titane sous irradiation à l'échelle atomique. L'ajustement du rayon de recombinaison à $2.50a$ a harmonisé les prédictions du modèle arc-dpa avec les résultats numériques. Les analyses révèlent que l'énergie du primaire joue un rôle crucial, influençant significativement le nombre d'atomes déplacés et l'étendue des dommages. La majorité des défauts initiaux subissent une recombinaison rapide en raison de la faible distance de séparation lacune-interstitiel. La dynamique des atomes en mouvement, culminant vers environ 150 fs, souligne la rapidité des transferts d'énergie et l'immobilisation progressive des défauts.

Bien que les séquences de remplacements soient observées, leur contribution à la formation de défauts stables dans le titane semble limitée. La distribution spatiale des défauts met en évidence une ségrégation, avec un cœur lacunaire et une enveloppe interstitielle, confirmant le modèle de Brinkman.

L'analyse des volumes des cascades révèle une hétérogénéité des dommages, avec des distributions asymétriques et une augmentation du volume endommagé avec l'énergie du primaire.

Enfin, la formation d'amas lacunaires, dont la taille et le nombre croissent avec l'énergie du primaire, représente une part importante des défauts résiduels. Ils atteignent jusqu'à 17 lacunes à 25 keV, et leur prévalence (49 % des lacunes agrégées) mettent en lumière les mécanismes d'agrégation post-irradiation.

Nos résultats ouvrent des perspectives scientifiques prometteuses, notamment en explorant davantage l'influence des défauts étendus sur l'évolution des propriétés

Conclusion générale

macroscopiques du matériau et sur la compréhension approfondie du vieillissement accéléré du titane dans des environnements extrêmes, tels que les réacteurs nucléaires et les applications spatiales. Des études ultérieures pourront explorer, via des simulations numériques et des expériences de caractérisation avancée (microscopie électronique en transmission, diffusion des neutrons), l'évolution dynamique de ces défauts. Cette approche multidisciplinaire permettrait d'optimiser la durabilité et l'efficacité des dispositifs à base de titane dans des conditions opérationnelles critiques.