

**République Algérienne Démocratique et Populaire Ministère de  
L'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
Université Ibn Khaldoun – Tiaret**



**Faculté des Sciences de la Matière  
Département de Physique**

**Mémoire**

**Présenté par :**

**ROUAI FATIHA**

**Pour obtenir le diplôme de**

**Master**

**Filière : Physique**

**Spécialité: Nano Physique**

**Thème :**

**Effet de Taux de Dopage du noyaux de Thorium (Th)  
sur les Propriétés Physiques d'une Matrice (KNbO<sub>3</sub>)**

**Soutenu le : 3 juillet 2022**

**Devant le jury:**

**B. BENRABAH**

**Professeur**

**Président**

**A. ADJADJ**

**M .C.A**

**Examineur**

**L.HALIS**

**M.C.B**

**Encadrant**

**ANNEE UNIVERSITAIRE 2021/2022**

## ***REMERCIEMENTS***

Avant tout, nous tenons à remercier nos **DIEU** tout puissant, De nous avoir accordé

la force, le courage, la Volonté et la patience pour achever ce modeste travail de fin d'études de master.

Je tiens tout d'abord à remercier mon encadreur **L. HALIS** Professeur à l'Université de Tiaret, qui a dirigé ce travail, de m'avoir encadré et proposé un sujet aussi passionnant et intéressant pour ces qualités humaines et pour sa connaissances scientifiques qui m'ont aidé et à sa compétence et ses conseils m'ont été d'un grand secours.

Je tiens à remercier le professeur **B. BENRABAH** Enseignant à l'Université de Tiaret pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail et pour l'honneur qu'il m'a fait de présider le jury. J'adresse mes sincères remerciements et mon profond respect à Monsieur **A. ADJADJ** maitre de Conférences à l'Université de Tiaret d'avoir accepté d'examiner ce travail et me faire l'honneur de participer au jury Nos sincères remerciements vont également tous les Enseignants de la Faculté des sciences et de la matière, Université Ibn Khaldoun-Tiaret

Nous remercions également toutes les personnes qui nous ont aidé, de près ou de loin pour la réalisation de ce travail.

## ***DEDICACES***

***Avec mes sentiments les plus profonds je dédie ce travail***

***À mes très chers parents***

*Quoique je dise, quoique je fasse, et quoique j'écrive, je ne saurais  
Exprimer ma gratitude, mon amour et l'affection que j'ai pour vous.*

*Ma grande joie est de vous voir heureux et fière dans ce jour.*

***À mes chères sœurs Et mon cher frère Hicham***

*Que dieu vous bénisse et vous prête une vie pleine de santé, de succès et  
de bonheur. Que la vie ne puisse jamais nous séparer*

***À mon amour Adam***

*Vous êtes pour moi la source de joie.*

*Que dieu vos protège*

***À mon âme sœur Wahiba***

*Pour votre aide précieuse, j'exprime ma reconnaissance*



## *Sommaire*

### Sommaire:

Introduction Générale.....1

#### *Chapitre I:*

##### *Les matériaux Pérovskites et Codes de Calcul*

I.1 Les matériaux pérovskites.....	5
I.1.1. Introduction.....	5
I.1.2. Définition du matériau pérovskite.....	5
I.1.3 La structure pérovskite ABO <sub>3</sub> .....	6
I.1.4. Les types des matériaux pérovskites.....	7
I.1.4.a. Les pérovskites simples.....	8
I.1.4.b. Pérovskites complexes.....	8
I.1.5. Conditions de stabilité d'une structure pérovskite.....	8
I.1.5.1. le facteur de tolérance.....	8
I.1.5.2. L'ionicité de la liaison anion-cation.....	9
I.1.6. Les propriétés des matériaux pérovskites et leurs applications.....	10
I.1.7. Applications Actuelles des pérovskites.....	11
I.1.7.a. Cellule photovoltaïque a pérovskite.....	11
I.1.7.b. Les Diodes à Pérovskite.....	12
I.1.7.c. Pérovskites pour lutter contre le Cancer.....	12
I.1.8. Généralités sur le matériau $KNbO_3$ .....	12
I.1.8.a. Description de Nobiote de potassium.....	12
I.1.8.b. Structure de Nobiote de potassium.....	13
I.1.8.c. Les propriétés physiques de $KNbO_3$ .....	14
I.1.8.d. Application du Nobiote de potassium ( $KNbO_3$ ).....	15
I.2. Les codes de calcul (Simulation Numérique).....	15
I.2.1. Introduction.....	15
I.2.2. Le code basé sur l'approximation des collisions binaires.....	16
I.2.2.a. Pour les cibles amorphes.....	16
I.2.2.b. Pour les cibles cristallines.....	16
I.2.3. Modélisation et simulation du transport des particules.....	16
I.2.3.a. Méthode déterministe.....	16
I.2.3.a.1. La Méthode de l'équation de transport.....	17

## ***Sommaire***

---

I.2.3.a.1.1 La théorie du transport.....	17
I.II.2.1.1.2.La solution générale de l'équation de transport.....	18
I.2.3.b. les Méthodes Statistiques.....	19
I.2.3. b.1.Méthode Statistique de Monte-Carlo.....	20
I.2.3.b.1.1.Le principe de Monte-Carlo.....	20
I.2.4.Simulation des processus et des effets d'implantation.....	22
I.2.5.La modélisation des défauts.....	23
I.2.6. Simulations réalisées par le logiciel SRIM .....	24
I.2.6.1.Présentation du logiciel de simulation numérique SRIM.....	24
Références.....	30

### ***Chapitre II:***

#### ***La Théorie du Ralentissement***

II.1.Introduction.....	34
II.2. La théorie du ralentissement des particules chargées dans la matière.....	34
II.2.1. Interaction Ion-Atome.....	34
II.2.1.1. les processus élémentaires et régime de vitesse.....	35
II.2.1.2.Description d'une collision.....	36
II.2.2.Principaux processus d'interaction.....	38
II.2.2.1. Définition du pouvoir d'arrêt.....	38
II.2.2.2. Etude des pertes élastiques dans une collision binaire.....	40
II.2.2.3. Evaluation de l'angle de diffusion $\theta$ .....	44
II.2.2.4. Expression de la perte d'énergie.....	46
II.2.2.5. Perte d'énergie nucléaire.....	47
II.2.2.6. Notion de section efficace.....	48
II.2.2.7. Perte d'énergie électronique.....	50
II.2.2.8. Comparaison entre les pertes d'énergie nucléaire et électronique.....	51
II.2.2.9. Dégâts créés par le dépôt d'énergie nucléaire.....	55
II.2.2.10. Dispersion en énergie du faisceau incident le « straggling ».....	56
II.2.2.11. Différents potentiels d'interactions.....	57
II.2.2.11.a. Autre modèles de potentiels.....	57
II.2.2.12.Fonctions d'écrans.....	59
II.3. Distribution en profondeur des ions implantés.....	59
II.3.1. Les Parcours.....	59

## *Sommaire*

---

II.3.2. Création de défauts.....	62
II.3.3. Distribution de Gauss.....	63
II.3.4. Distribution de Pearson.....	64
II.3.5. Autre distribution d'implantation.....	65
Références.....	66

### *Chapitre III:*

#### *Résultats et Discussions*

III.1 Introduction.....	67
III.2 Quelques vues de la cascade de collision.....	69
III.3 Profils de distribution des parcours des ions du Th.....	70
III.4.Perte d'énergie et création des désordres.....	72
III.4.a.Ionisation.....	73
III.4.b.Les phonons .....	74
III.4.c.Profil de distribution des atomes.....	75
III.4.d. Bilan des différents événements dans la cascade de collision.....	76
III.5.Résumé des résultats et conclusions .....	78
Références.....	81
Conclusion Générale.....	83



*Liste des Figures*



**Liste des Figures :**

**Chapitre I :**

**Figure I.1 :** le titanate de calcium..... (6)

**Figure I.2 :** la structure pérovskite (maille cubique) .....(7)

**Figure I.3 :** représentations de la structure pérovskite selon l'occupation des sites A et B....(8)

**Figure I.4 :** structure cristalline orthombique de  $\text{KNbO}_3$ .....(13)

**Figure I-5:** Schéma de principe des méthodes de Monte-Carlo.....(21)

**Figure I.6 :** interface menu du logiciel SRIM 2015.....(24)

**Figure I.7:** Interface du programme Ion Stopping and Range Tables.....(25)

**Figure I.8 :** Interface du programme TRIM.....(25)

**Figure I.9 :** Interface des résultats du programme TRIM.....(27)

**Figure I.10 :** Parcours d'un ion incident (Th) accéléré à 60 KeV..... (28)

**Figure I.11 :** Quelques paramètres calculés par TRIM dans le cas du  $(\text{KNbO}_3)$  bombardé par un des ions du Th de 60KeV.....(28)

**Chapitre II**

**Figure II -1:** Les processus atomiques mono-électroniques élémentaires .....(35)

**Figure II- 2 :** Schéma des différentes interactions ion-solide : élastiques, Inélastique.....(37)

**Figure II- 3 :** Représentation schématique d'une cascade de collisions.....(37)

**Figure II- 4 :** Composantes nucléaires et électroniques du pouvoir d'arrêt en fonction de la vitesse de l'ion incident. I : arrêt nucléaires – II : arrêt électroniques – III : Zone de Bethe Block.....(40)

**Figure. II-5:** représentation d'une collision binaire dans les coordonnées du laboratoire dans le plan (x, y). La particule incidente de masse  $M_1$  et de vitesse  $V_0$  vient heurter l'atome de masse  $M_2$  au repos.  $\theta$  représente l'angle de diffusion et  $\phi$  est l'angle de recul. La vitesse  $V_1$  est la vitesse de l'ion incident après la collision et  $V_2$  la vitesse de l'atome de recul.....(41)

**Figure.II-6:** représentation d'une collision binaire dans les coordonnées du centre de masse dans le plan. Les deux atomes sont considérés en mouvement. Seul le centre de masse est immobile. Ce référentiel se déplace à la vitesse  $V_c$  par rapport au référentiel du laboratoire.  $V_0 - V_c$  est la norme de la vitesse de l'ion incident qui reste constante avant et après la collision,  $V_c$  est aussi la norme de la vitesse de l'atome cible.  $\phi$  est l'angle de recul et  $\theta$  l'angle de diffusion.....(42)

## Liste des Figures

---

**Figure.II-7 :** Diagramme des vitesses de l'ion incident qui permet d'exprimer la tangente de l'angle  $\varphi$  en fonction de l'angle  $\theta$ .  $V_0$  représente la norme de la vitesse de l'ion incident dans le référentiel de laboratoire et  $V_0 - V_c$  sa norme dans le centre de masse.  $\varphi$  représente l'angle de diffusion dans le laboratoire et  $\theta$  l'angle de diffusion de l'ion incident dans le référentiel CM.....(43)

**Figure.II-8 :** représentation d'une collision entre deux particules dans le CM.  $\theta$  est l'angle de diffusion,  $P$  le paramètre d'impact,  $\rho_1$  et  $\rho_2$ , les rayons de courbure des trajectoires,  $R_0$ , la distance minimum d'approche et  $\delta_1$  et  $\delta_2$ , deux termes de correction. On peut exprimer le cosinus de  $\theta/2$  en fonction de tous ces paramètres.....(45)

**Figure. II-9 :** Interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact.....(48)

**Figure. II-10 :** Pouvoir d'arrêt nucléaire (courbe pleine) et pouvoir d'arrêt électronique (en pointillé).....(54)

**Figure. II-11:** Formation d'une cascade de déplacement.....(56)

**Figure. II-12:** parcours projeté  $R_p$  et parcours total  $R$  d'un ion pénétrant dans la matière..(60)

**Figure.II-13:** Schématisation d'une implantation ionique à travers un masque.....(61)

### Chapitre III :

**Figure III-1 :** Quelques vues de différents plans qui démontrent La cascade de collision en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 KeV pour le bombardement d'ions du Thorium dans le  $\text{KNbO}_3$ .....(69)

**Figure III-2 :** Distribution en profondeur des ions de thorium(Th) pour une énergie de 80 KeV dans le ( $\text{KNbO}_3$ ).....(70)

**Figure III-3:** Le profil de distribution des pénétrations des ions de Thorium dans le  $\text{KNbO}_3$  « SRIM2015 ».....(71)

**Figure III-4:** La variation de la déviation standard  $\Delta R_p$  des ions de Thorium en fonction de l'énergie.....(71)

**FigureIII-5:** Le taux d'énergie dissipé sous forme ionisation, phonons et défauts des ions Thoret les atomes de recules de  $\text{KNbO}_3$  en fonction de l'énergie incident.....(73)

## Liste des Figures

---

- Figure III-6 :** Profil de perte d'énergie électronique pour une énergie de 80 KeV (en rouge : ions de thorium, en bleu : atomes de recul  $\text{KNbO}_3$ ).....(74)
- Figure III- 7:** Profil de distribution des phonons pour une énergie de 80 KeV (en rouge : ions de thorium, en bleu : atomes de recul  $\text{KNbO}_3$ ).....(75)
- Figure III-8 :** Profil de Distribution de recul d'ion en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 KeV(en rouge : le recul d'ion, a : en vert ; le recul d'atome K, en bleu ; le recul d'atome Nb, en violet ; le recul d'atome O).....(76)
- Figures III-9 :** Profil de distribution des événements de dommages en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 KeV (a : événements de déplacement total , b :évènement de remplacements , c : évènement de création de défauts:, d : pulvérisation ).....(77)



*Liste des Tableaux*

**Liste des Tableaux :**

**Chapitre I :**

**Tableau I-1 :** Les différentes symétries adoptées par la structure pérovskite en fonction du facteur de tolérance  $t$  .....9

**Tableau I-2 :** Propriétés physiques de certains matériaux pérovskites et leurs application...11

**Tableau I-3:** Propriétés cristallographique de  $(\text{KNbO}_3)$ .....14

**Tableau I-4 :** propriétés de  $(\text{KNbO}_3)$ .....14

**Tableau I-5 :** Caractéristiques des deux types de simulation.....23

**Tableau I-6 :** Paramètres d'entrée et de sortie de TRIM.....26

**Chapitre III :**

**Tableau III-1 :** Détail des propriétés chimiques et physiques d'échantillon.....68

**Tableau III-2:** Statistique des deux premiers moments physiques ( $R_p$ ,  $\Delta R_p$ ) lors de l'implantation ionique dans le Nobiote de Potassium par des ions de Thorium à des énergies variant entre 60 jusqu'à 100 KeV « SRIM2015 ».....70

**Tableau III-3 :** Le taux des pertes d'énergies sous formes Ionisation, Défauts et Phonons en fonction de l'énergie de particule chargée le Th sur le  $(\text{KNbO}_3)$ .....72

**Tableau III-4:** Distribution des pertes d'énergies électroniques et nucléaires dans le  $\text{KNbO}_3$  bombardée par des ions de Thorium.....78



***Introduction Générale***

## *Introduction Générale*

---

Les déchets radioactifs sont potentiellement très dangereux pour la santé de l'homme et l'environnement, et ils continueront de l'être pour les générations futures, jusqu'à ce que leur radioactivité ait décliné; c'est pourquoi il importe de surveiller de très près leur gestion, en particulier leur entreposage et leur stockage.

En ce qui concerne les déchets faiblement ou moyennement radioactifs, une série de solutions à long terme ont été trouvées et sont appliquées d'ores et déjà, particulièrement les sites d'entreposage en surface ou proches de la surface. Et ce qui concerne les déchets hautement radioactifs (principalement les combustibles usés, qui représentent environ 1% du total des déchets nucléaires), il faut tenir compte du fait qu'un réacteur nucléaire ordinaire de 1000 MW produit en moyenne 25 tonnes de combustible usé par an. Il existe déjà en Europe plus de 60.000 tonnes de combustible usé que l'on entrepose sur les sites des réacteurs ou ailleurs. C'est là une réalité dont on doit s'occuper, indépendamment des tendances observées dans l'évolution de l'industrie nucléaire en Europe.

La solution préconisée par la majorité des experts est le stockage dans des dépôts géologiques profonds, où le confinement physique et chimique des déchets est assuré à la fois par des barrières naturelles et des dispositifs ouvrages. Toutefois, le choix de sites d'enfouissement s'est avéré difficile dans certains pays : quelques pays européens ont des structures géologiques inappropriées et la population reste souvent méfiante quant à la sûreté de cette formule et de la technologie employée et ignore les options en présence. L'entreposage dans les sites de surface, ou de subsurface pour une durée de quelques centaines d'années, ne peut pas être considéré comme une solution définitive.[1] Le conditionnement constitue une alternative à la transmutation. Il s'agit d'incorporer les radioéléments dans des matrices adaptées pour résister aux éventuelles actions de l'eau conjuguées aux effets d'irradiation. On recherche des matériaux céramiques présentant des structures cristallines plus résistantes sous l'action de l'eau ou lixiviation que le verre "nucléaire" pendant toute la durée du stockage. Les effets d'irradiation, lors de la décroissance alpha peuvent altérer ses propriétés physiques et chimiques. En particulier, le pouvoir de rétention vis-à-vis des radioéléments peut être fortement réduit. Pour parer à une éventuelle arrivée de l'eau au contact du colis radioactif, celui-ci est entouré de plusieurs barrières ouvrages afin aussi de limiter les risques de migration des radionucléides vers la biosphère.[2]

## *Introduction Générale*

---

Mon travail de projet s'inscrit dans le cadre du conditionnement spécifique des actinides dans des céramiques. Ces matrices d'accueil doivent être fiables sur des périodes de temps géologiques vis à vis de la lixiviation malgré les effets de l'irradiation interne occasionnée par les actinides. La majeure partie des dégâts créés dans une céramique cristalline dopée avec des actinides est due aux noyaux de recul provenant de la désintégration alpha et conduit généralement à l'amorphisation à cause d'un nombre élevé d'atomes déplacés. Lors du changement de phase cristal-amorphe, Les propriétés physiques et chimiques du solide sont modifiées.

Généralement, l'amorphisation s'accompagne d'un gonflement en volume de la matrice qui peut induire des fissures et donc augmenter fortement la surface spécifique d'attaque de celle-ci. Dans certains cas, la vitesse de lixiviation de la matrice est alors augmentée lors de l'amorphisation. Ces deux phénomènes se conjuguent pour augmenter le taux de relâchement des radioéléments dans la biosphère. Il est donc indispensable de sélectionner des matrices hôtes résistant aux dégâts d'irradiation ou qui présentent une durabilité chimique élevée sous auto-irradiation. Pour cela, il faut que la matrice dédiée au stockage des radioéléments possède des mécanismes efficaces de guérison des défauts engendrés par les noyaux de recul.

Parmi ces matériaux, nous pouvons citer les Perovskites qui ont montré leur prédisposition naturelle à servir de matrice de stockage [3].

C'est ainsi que nous nous sommes intéressés à ce type de matériaux en étudiant de manière globale et détaillée les effets de l'émanation des noyaux du Thorium sur la pérovskite  $\text{KNbO}_3$ . Pour cela nous avons modélisé l'évolution du désordre dans d'un échantillon de ce matériaux après leur exposition aux irradiations. Nous avons identifié et évalué les cinétiques de création des dégâts ainsi que leurs distributions et leurs variations en fonction des paramètres liés au couple « irradiants Thorium-matrice pérovskite ».

Notre modélisation s'est basée sur un code de simulation numérique appelé SRIM2015 [4]. Ce code, type Monte-Carlo, traite l'interaction ion-matière dans le cadre de l'approximation des collisions binaires.

Ce travail est réparti sur trois chapitres :



## ***Introduction Générale***

---

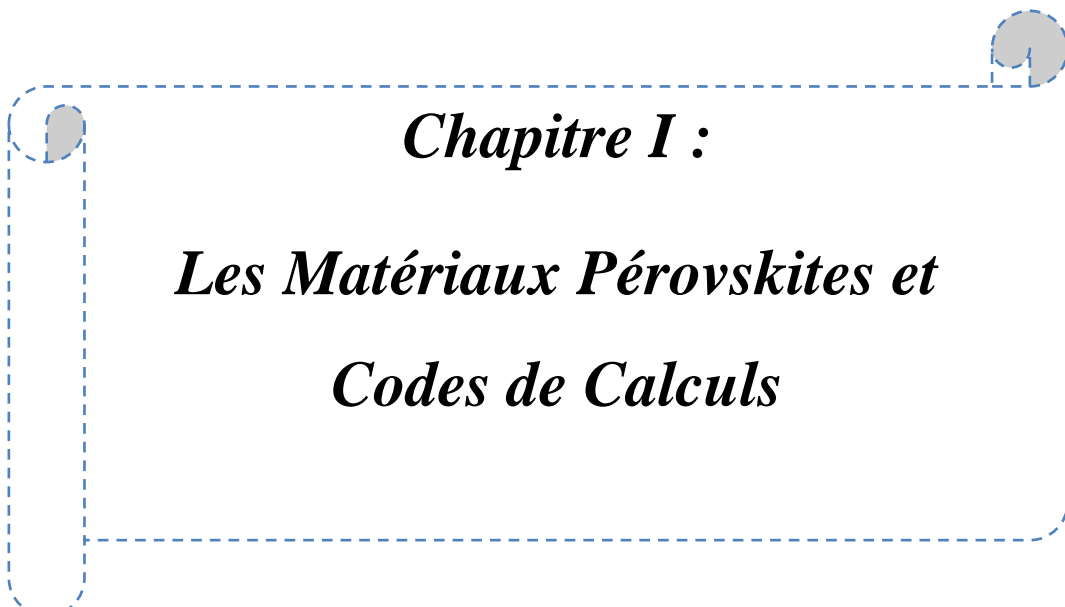
**Chapitre I:** Généralités sur les matériaux pérovskites, leurs variétés, leurs caractéristiques et leurs principales utilisations. On s'intéressera surtout dans ce chapitre au  $\text{KNbO}_3$  ainsi et :  
L'étude du programme de simulation utilisé (SRIM2015) et ses principes.

**Chapitre II:** études de l'interaction ion matière.

**Chapitre III:** Résultats et Discussions .

### **Références:**

- [1] Les déchets radioactifs et la protection de l'environnement, M. Alan MEALE, Royaume-Uni, Groupe socialiste, 17 septembre 2007
- [2] CATHERINE SABATHIER, thèse Pour obtenir Le grade de docteur en sciences de l'université Paris Xi Orsay
- [3] Smith K. L., Lumpkin G. R., Blackford M. G. and Vance E. R., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 556 (1999) 1185-1191, "Amorphization of Perovskite: the effect of composition and Pre-existing cation vacancies."
- [4] Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U., The stopping and Range of Ions in Solids, New York: Pergamon Press, 1985, 321 p.



***Chapitre I :***  
***Les Matériaux Pérovskites et***  
***Codes de Calculs***

## **I.1. Les matériaux pérovskites:**

### **I.1.1 Introduction:**

Ce chapitre a pour objectif de présenter l'intérêt du matériau étudié dans ce travail (les pérovskites) et l'importance de caractériser finement leurs structures, ainsi que les définitions des grandeurs physiques qui caractérisent leurs propriétés. Une brève vue d'ensemble sur les aspects de base de cristallographie de ce type structural sera donnée.

Les propriétés physiques des matériaux sont devenues de plus en plus très importantes pour les chercheurs afin de trouver de nouveaux matériaux qui répondent au besoin du développement technologique et cela pour le confort et la civilisation humaine.

Les pérovskites font une grande partie des manteaux de la croûte terrestre et donc l'étude des propriétés physiques de ces composés est hautement souhaitable à cause de leurs importances dans le domaine technologique, ils révèlent de nombreuses propriétés physiques intéressantes du point de vue étude théorique et expérimental, qui touchent la haute puissance thermoélectrique, la ferroélectricité, la supraconductivité, l'ordre de charge, et le transport dépendant du spin, la magnétorésistance colossale et l'interaction des propriétés structurales, magnétiques et optiques sont les caractéristiques-communément observées de ces matériaux. Ces matériaux sont fréquemment utilisés comme capteurs, substrats, électrode catalytique dans les piles à combustible et sont également des candidats prometteurs pour l'optoélectronique [1].

### **I.1.2.Définition du matériau pérovskite:**

La pérovskite a été décrite pour la première fois vers 1830 par le géologue Gustave Rose, son nom provient de celui de Lev Aleksevich Von Pérovski, un minéralogiste russe. Initialement, elle était un minéral précieux, un titanate de calcium  $\text{CaTiO}_3$  avec une structure cubique simple, mais le terme pérovskite désigne, aujourd'hui, un ensemble de composés possédant tous un même arrangement atomique  $\text{ABX}_3$ , où A étant le cation le plus gros, B le plus petit et X l'anion. Cet anion peut être oxyde, fluorure et, en quelques cas, chlorure, bromure, iodure, sulfure ou hydruure. La structure type pérovskite, occupe une place très majoritaire dans les systèmes ternaires connus sous la composition  $\text{ABX}_3$ , cela est dû non seulement à son

occurrence large, mais également à une série de propriétés intéressantes et utiles liées à ce type structural [2].

Les scientifiques des matériaux ont montré un énorme intérêt pour la pérovskite car elle est abondamment disponible dans la nature. La structure minérale de la pérovskite est illustrée à (*la figure-I.1*) En plus de cela, il dirige également la recherche dans l'exploration de la supraconductivité, de la magnétorésistance, de la conductivité ionique et de la collecte des propriétés diélectriques, qui sont d'une importance significative dans les télécommunications et la microélectronique [3].



*Figure I.1 :Le titanate de calcium.*

### I .1.3. La structure pérovskite:

La structure pérovskite, idéalement cubique (groupe d'espace  $Pm\bar{3}m$  et  $a_c \approx 4 \text{ \AA}$ ) a pour formule  $ABO_3$  où A est un cation de grande taille et peu chargé ( $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $Pb^{2+}$ ,  $Ba^{2+}$ ,  $Sr^{2+}$ ,...) pouvant occuper des sites cuboctaédriques de coordinence 12, et B un cation ( $Ta^{5+}$ ,  $Nb^{5+}$ ,  $Ti^{4+}$ ,...) occupant des sites octaédriques de coordinence 6. Les ions occupent les positions cristallographiques suivantes dans la maille :

-A aux sommets de la maille :  $(0, 0, 0)$ .

-B au centre de la maille :  $(1/2, 1/2, 1/2)$  [4].

Les octaèdres  $BO_6$  forment un réseau tridimensionnel liés par leurs sommets. Les ions  $Ax^+$  occupent les sommets,  $By^+$  le centre, et  $O^{2-}$  les centres de chaque face du cube, respectivement (*la figure- I.2*) [5].

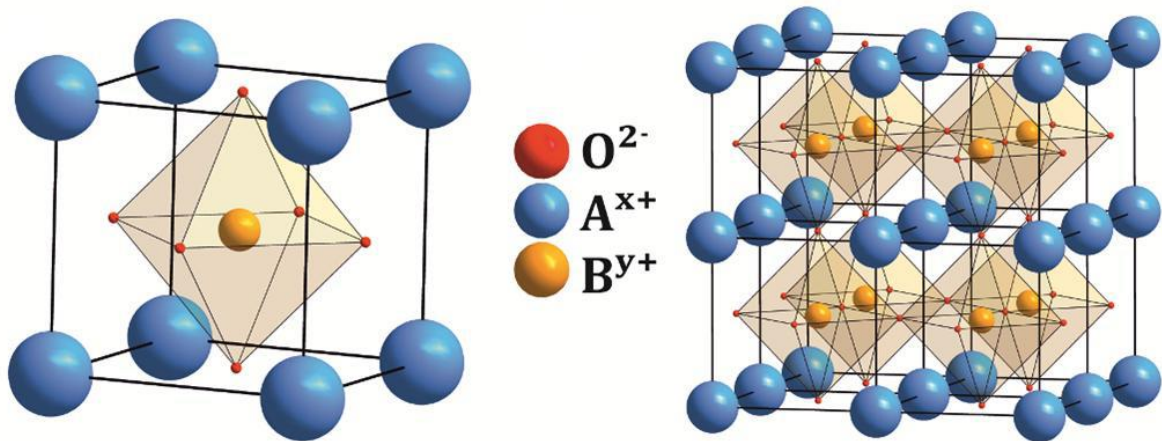


Figure I.2 : la structure pérovskite (maille cubique).

En raison de la différence d'électronégativité des cations ( $A^{X+}$  et  $B^{Y+}$ ) et des anions ( $O^{2-}$ ) et des rayons ioniques, des déformations de la structure idéalement cubique peuvent être observées. Plus le caractère ionique de la liaison entre les cations et l'oxygène sera fort, plus la structure sera stable. Ce caractère est décrit par la formule suivante :

$$\bar{\chi} = \frac{\chi_{A-O} + \chi_{B-O}}{2} \quad (I-1).$$

Où  $\chi_{A-O}$  et  $\chi_{B-O}$  sont les différences d'électronégativité entre les cations A et B, et les atomes d'oxygène.

#### I.1.4. Les types des matériaux pérovskites:

On distingue généralement deux types de pérovskites suivant l'occupation des sites A et B (figure I-3).

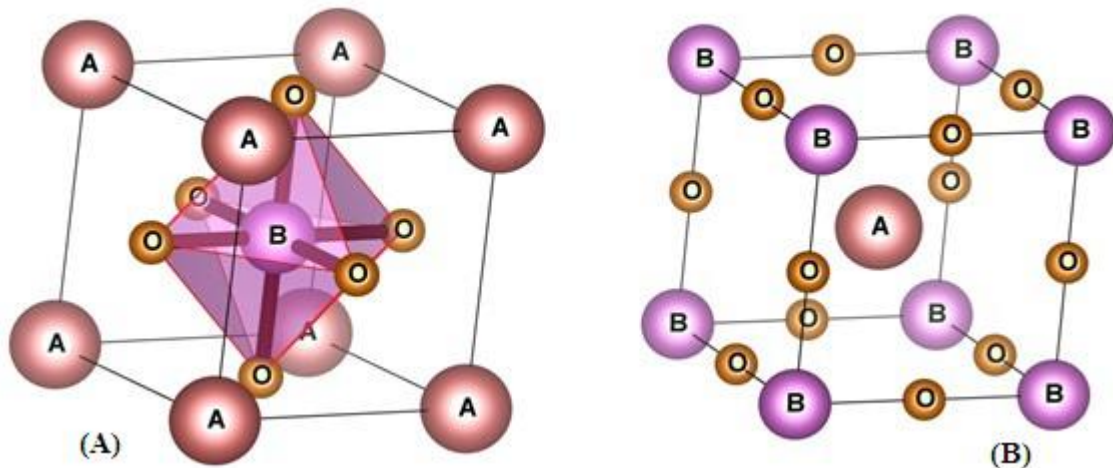


Figure I-3 : représentations de la structure pérovskite selon l'occupation des sites A et B.

**I.1.4.a. Les pérovskites simples:** Les pérovskites simples par définition, ce sont les structures  $ABO_3$  dont les sites A et B sont occupés respectivement par un seul type de cation ( $BaTiO_3$ ,  $KNbO_3$ ,  $NaTaO_3$ ,  $PbTiO_3$ ,  $CaTiO_3$ , ...).

**I.1.4.b. Pérovskites complexes:** Ce sont les structures dont l'un des sites A ou B est occupé par différents types de cation ( $Ka_{0.5}Bi_{0.5}TiO_3$ ;  $Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO_3$ ...). [6].

### I.1.5. Conditions de stabilité d'une structure pérovskite:

#### I.1.5.1 le facteur de tolérance:

Le réseau pérovskite est un ensemble très compact qui ne permet pas la formation des compositions interstitielles. En revanche, de nombreuses substitutions sont possibles sur les sites A ou B. Chaque composition ainsi obtenue peut présenter une structure pérovskite distordue, en fonction de la taille des cations occupant les sites A et B. La taille des cations A et B joue un rôle essentiel pour qu'une maille pérovskite (simple ou double) soit stable et pour l'existence des distorsions [7]. Pour décrire la distorsion des structures pérovskites, le facteur de tolérance (Goldschmidt 1926) est introduit et défini comme l'écart de taille entre A et B comme suit [8] :

$$t = \frac{(R_A + R_X)}{\sqrt{2}(R_B + R_X)} \quad (I-2).$$

$R_A$ ,  $R_B$  et  $R_X$  sont des rayons ioniques des éléments des sites A, B et de l'oxygène.

Le facteur de tolérance  $t$  quantifie globalement la compacité de la pérovskite et la liberté de mouvement des cations A et B. Les substitutions par des atomes de tailles différentes sur les sites A et B entraînent l'apparition de distorsions dans la maille. Elles impliquent des modifications profondes des propriétés diélectriques et piézoélectriques [9]. Ces distorsions peuvent être expliquées par le facteur de tolérance  $t$ .

Normalement, dans la structure pérovskite cubique idéale  $t$  vaut 1. Ainsi, tout écart à cette valeur implique une déformation de la maille. En fonction de la valeur du facteur de tolérance, on peut distinguer plusieurs situations, schématisées dans (le tableau I.1) [10].

Facteur tolérance $t$	Symétrie observée	Exemple
$1 < t < 1.06$	Hexagonal	<b>BaTiO<sub>3</sub></b>
$0.95 < t < 1$	Cubique	<b>LaMnO<sub>3</sub></b>
$0.90 < t < 0.95$	Orthorhombique	<b>KNbO<sub>3</sub></b>
$0.8 < t < 0.9$	Quadratique	<b>PbTiO<sub>3</sub>, GdFeO<sub>3</sub>, LaMnO<sub>3</sub></b>

**Tableau I-1 : Les différentes symétries adoptées par la structure pérovskite en fonction du facteur de tolérance  $t$ .**

Et aussi :

- Pour  $t = 1$  : tous les ions sont en contact, on aura un empilement compact parfait.
- Pour  $t > 1$  : l'ion B peut être mobile dans le réseau.
- Pour  $t < 1$  : l'ion A peut-être mobile dans le réseau.

### **I.1.5.2. l'ionicité de la liaison anion-cation:**

Le caractère ionique d'une composition  $ABO_3$  est quantifié d'après l'échelle de Pauling à partir de la différence d'électronégativité :

$$\Delta E = \frac{X_{A-O} + X_{B-O}}{2} \quad (\text{Eq I-3})$$



$\Delta E$  (eV) : la moyenne arithmétique de la différence de l'électronégativité.

$X_{A-O}$ : les différences d'électronégativité entre (A-O)

$X_{B-O}$  : les différences d'électronégativité entre (B-O)

La structure pérovskite est d'autant plus stable que les liaisons mises en jeu présentent un fort caractère ionique. Ainsi, les pérovskites à base de plomb de type covalent sont moins stables que des pérovskites plutôt ioniques comme BaTiO<sub>3</sub> ou SrTiO<sub>3</sub> [11].

### I.1.6. Les propriétés des matériaux pérovskites et leurs applications:

Les pérovskites, un véritable coffre au trésor pour la science des matériaux. Ces matériaux céramiques avec leur structure cristalline particulière présentent une variété étonnante de propriétés électroniques et magnétiques dont on cite quelques une :

- ✓ **Supraconductivité:** Les pérovskites sont des supraconducteurs à des températures élevées. Elles sont utilisées dans les condensateurs, les appareils à micro-ondes et l'électronique ultrarapide.
- ✓ **Piézoélectricité :** Ces pérovskites transforment la pression mécanique ou la chaleur en électricité, elles sont utilisées dans les microphones, circuit d'allumage et capteurs sous-marins.
- ✓ **Catalyseurs:** Elles accélèrent les réactions chimiques utilisées comme cathode dans les piles à combustible.
- ✓ **Magnétorésistance:** Les pérovskites changent soudainement leur résistance électrique lorsqu'elles sont placées dans un champ magnétique. Elles sont utilisées dans les bandes et les disques magnétiques.
- ✓ **Ferroélectricité:** La propriété selon laquelle un matériau possède une polarisation électrique à l'état spontané, polarisation qui peut être renversée par l'application d'un champ électrique extérieur comme BaTiO<sub>3</sub> et PZT.

Sur la base de leurs seules propriétés ferroélectriques, diélectriques, pyroélectriques ou piézoélectriques, les composés pérovskites sont intégrés dans de nombreuses applications (*Tableau I-2*) [12].

Composition	Propriété physique	Application
$\text{CaTiO}_3$	D'électricité	Micro-onde
$\text{BaTiO}_3$	Ferroélectricité	Mémoires d'ordinateur non-volatiles
$\text{pbZ}_{r_{1-x}}\text{TiO}_3$	Piézoélectricité	Sondes
$\text{B}_{a_{01-x}}\text{L}_{a_x}\text{TiO}_3$	Semi-conducteur	Semi-conducteur
$\text{Y}_{0.33}\text{B}_{a_{0.67}}\text{CuO}_{3-\delta}$	super conducteur	Détecteurs des signaux magnétiques
$(\text{L}_n, \text{S}_r)\text{CoO}_{3-\delta}$	Conducteur mixte Ionique et électronique	Diffusion de gaz membranes
$\text{B}_a\text{L}_n\text{O}_{2.5}$	Conducteur ionique	Electrolyte en piles à combustible
$\text{AM}_n\text{O}_{3-\delta}$	Magnétorésistance géante	Têtes de lecture pour des disques durs

Tableau I-2 : Propriétés physiques de certains matériaux pérovskites et leurs application.

### I.1.7. Applications Actuelles des pérovskites:

#### I.1.7.a. Cellule photovoltaïque a pérovskite:

Une cellule photovoltaïque conventionnelle est constituée de plusieurs couches superposées dans lesquelles le silicium joue le rôle de capteur et d'émetteur. Dans une cellule à silicium-pérovskite, on superpose deux sous-cellules, la sous-cellule supérieure à pérovskite semi-transparente absorbe les photons de fréquences relativement élevées tout en laissant passer les rayonnements de plus faible énergie, tandis que, dans la cellule inférieure, le silicium absorbe les photons résiduels et récupère l'énergie de ces photons. Le couplage des deux cellules a considérablement amélioré leur rendement [13].

### I.1.7.b. Les Diodes à Pérovskite:

On retrouve également les structures pérovskites dans les recherches destinées au domaine des diodes électroluminescentes (LED) qui vise à produire des dispositifs bon marché, de brillance et de pureté de couleurs aussi élevées que possible, à partir de divers matériaux, le plus souvent à base de silicium. Les diodes qui utilisent des pérovskites hybrides se sont révélées plusieurs dizaines de fois plus efficaces que les semi-conducteurs classiques [14].

### I.1.7.c. Pérovskites pour lutter contre le Cancer:

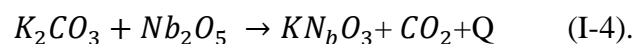
D'autres pérovskites pourraient avoir un intérêt dans le domaine de la biomédecine. Ainsi, des nanoparticules composées de pérovskites ( $\text{BiFeO}_3$  ou  $\text{KNbO}_3$ , par exemple) devraient pouvoir se lier spécifiquement aux cellules cancéreuses et ainsi constituer une nouvelle piste thérapeutique, notamment dans le cas des cancers dits de surface comme le cancer du col de l'utérus ou de l'œsophage par exemple [15].

### I.1.8. Généralités sur le matériau $\text{KNbO}_3$ :

#### I.1.8.a. Description de Nobiote de Potassium:

Le Niobate de potassium sous forme  $\text{KN}_b\text{O}_3$  sous forme monocristalline est l'un des membres les plus étudiés dans la classe pérovskite des cristaux ferroélectriques à cause de ses propriétés optiques non linéaires et électrooptiques excellentes.

Ce matériau fut découvert en 1876 par Joly [Joly-1876] à partir d'un mélange de  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  et  $\text{K}_2\text{CO}_3$  suivant la relation exothermique suivante :

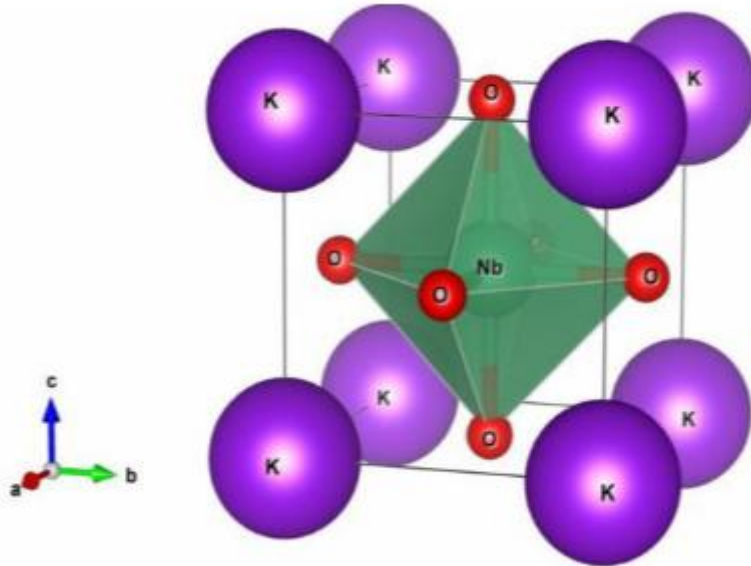


Un cristal flottant est obtenu à partir d'un germe créé spontanément à la surface du bain fondu dans un creuset. Il y est maintenu par la tension superficielle du liquide. Un gradient thermique est utilisé pour réduire la zone de nucléation et pour contrôler ainsi le nombre de germes critiques. A partir d'un seul germe, un cristal peut croître de façon continue à partir des cinq faces immergées. Pour extraire le cristal du bain avant qu'il ne colle au creuset ou qu'il ne dissolve par immersion, il faut l'aspirer par sa face supérieure à l'aide d'une canne [16].

**I.1.8.b. Structure de Nobiote de Potassium ( $KNbO_3$ ):**

Le Niobate de potassium est un composé ferroélectrique présentant une structure pérovskite, à température ambiante ; il se cristallise dans le système orthorhombique (*figure I-4*) avec le groupe d'espace  $A_{mm2}$ [17], il possède donc comme éléments de symétrie:

- Un axe binaire
- Deux plans miroirs perpendiculaires et parallèles à l'axe binaire.



*Figure I-4: structure cristalline orthombique de  $KNbO_3$*

A la température ambiante ses propriétés cristallographiques sont cités dans (*tableau I-3*).

Symétrie cristalline	Orthorhombique
Groupe d'espace	$A_{mm2}$
Paramètres de maille	a=3,9692, b=5,6896, c= 5,7256
Densité	4.62g/cm <sup>3</sup>
Température de transition de phase	435 ± 5 °C, 225 ± 5 °C, -10°C
Nombre d'unités par maille	2

Tableau I-3: Propriétés cristallographique de  $KNbO_3$ .

### I.1.8.c. Les propriétés physiques de $KNbO_3$ :

Le Niobate de potassium ( $KNbO_3$ ) est l'un des matériaux ferroélectriques de type ABO<sub>3</sub> sans plomb et respectueux de l'environnement les plus étudiés et technologiquement importants qui possède des coefficients électro-optiques prometteurs, des facteurs de couplage électromécaniques et de grands coefficients optiques non linéaires ( $d_{eff} = 10,8 \text{ }^{-27} \text{ pm V}^{-1}$  à  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ), utile pour diverses applications de dispositifs électroniques et photoniques : mémoires ferroélectriques, résonateurs électroniques, actionneurs électrostrictifs, capteurs et générateurs d'harmoniques optiques[18].

Formule de composé	Rayon atomique		Masse atomique	Densité	Indice de réfraction	Température de fusion	Apparence
$KNbO_3$	K	220 pm	180,0029 g/mol	4.62g/cm <sup>3</sup>	transparent	Poudre ou particules	Poudre ou particules
	Nb	145 pm					
	O	60 pm					

Tableau I-4 : propriétés de  $KNbO_3$ .

**I.1.8.d. Application du Nobiote de potassium ( $KN_bO_3$ ):**

- Mémoires holographique
- dispositif de guide d'onde
- modulateur optique
- Détecteur pyroélectrique
- générateur d'énergie
- micro miroir déformable(MOEMS)
- La détection pyroélectrique
- La photographie infrarouge «Caméra infrarouge»
- La mémorisation binaire et optique
- La Modulation électrooptique [19].

**I.2.Les codes de calcul (Simulation Numérique):****I.2.1.Introduction:**

Les progrès en simulation numérique réalisés depuis les années 1960 sont en grande partie dus au développement de l'aéronautique, de l'espace par la NASA et de la production d'électricité par le nucléaire aux USA et en Europe. La simulation numérique, considérée comme l'une des avancées scientifiques et technologiques du XX<sup>e</sup> siècle, a grandement contribué au développement des technologies innovantes dans les différents secteurs industriels.

Les simulations numériques sont des représentations par des modèles numériques. Comme exemple : les simulations de Monte-Carlo impliquent la représentations par des tirages aléatoires. Donc La simulation numérique consiste à reproduire par le calcul le fonctionnement d'un système préalablement décrit par des modèles. Ces modèles s'expriment au travers des équations mathématiques qui, dans le cas les plus simples, présentent des solutions analytiques.

Cependant, ce n'est en général pas le cas et l'on a alors recourt à la résolution numérique effectuée à l'aide d'un ordinateur [20].

### **I.2.2. Le code basé sur l'approximation des collisions binaires:**

La méthode utilisant l'approximation des collisions binaires est plus simple à mettre en œuvre et plus rapide en temps de calcul, ce qui est un facteur de choix important. On distingue deux catégories de codes basés sur cette approximation [21].

#### **I.2.2.a. Pour les cibles amorphes:**

Ces codes de type Monte Carlo supposent que le solide est désordonné « amorphe » et que les particules sont soumises uniquement à des collisions binaires. On utilise alors un potentiel d'interaction simplifié de type coulombien écranté. Le choix d'un tel potentiel associé à l'approximation de collision binaire permet de simuler les cascades collisionnelles et la Pulvérisation résultante [22].

Les distributions théoriques des parcours, des défauts, des phonons, des ionisations,.....Peuvent être calculées par des méthodes statistiques [23] (code TRIM et ACAT), ou par des méthodes analytiques [24] (code Marlowe ou BCA) à partir des quatre premiers moments.

#### **I.2.2.b. Pour les cibles cristallines:**

Ces codes ne s'intéressent généralement qu'à la cible, par exemple MARLOWE. Les positions de tous les atomes dans le réseau doivent être connues. Le calcul de la prochaine collision se fait à travers une procédure spéciale. Les principales différences avec les codes précédents sont la possibilité d'inclure une dépendance temporelle et de simuler les collisions entre deux atomes en mouvement dans la cascade[25].

### **I.2.3. Modélisation et simulation du transport des particules:**

Les lois régissant les diverses interactions élémentaires des particules (électrons et des photons...etc.) avec la matière sont bien connues. Mais il est souvent difficile d'évaluer les effets résultants d'un grand nombre d'interactions successives. Pour cela, il existe deux catégories de méthodes : les méthodes déterministes et les méthodes statistiques [26].

#### **I.2.3.a. Méthode déterministe:**

Des équations théoriques de transfert sont utilisées pour modéliser le transport des particules dans la matière (équation de Boltzmann (**Méthode de l'équation de transport**), équation de Lewis...etc.).La résolution de ses équations caractérise la valeur du champ d'irradiation par une fonction de densité des particules en un point donné de l'espace et à tout instant, en fonction de l'énergie, de l'angle et du type de la particule incidente. Cependant, la

complexité des systèmes étudiés rend très rapidement ces méthodes déterministes lourdes à mettre en œuvre.

### I.2.3.a.1. La Méthode de l'équation de transport:

Dans la méthode de l'équation de transport le mécanisme de pénétration de particules chargées dans la matière est vu comme un phénomène de transport. Elle permet de construire directement le profil d'implantation à l'aide des quatre moments de la distribution spatiale.

#### I.2.3.a.1.1. La théorie du transport:

Considérons un faisceau d'ions incident de masse,  $M_1$  de nombre atomique  $Z_1$  et d'énergie  $E$  sur un matériau cible de masse  $M_2$  de nombre atomique  $Z_2$  et de densité atomique  $N$ , suivant une direction  $\vec{e}$  formant un angle  $\theta$  avec la normale à la surface  $\vec{n}$ . Soit la fonction  $F(E, \vec{e}, \vec{r})$  qui représente le nombre d'ions d'énergie  $E$  s'arrêtant à une distance  $\vec{r}$  dans l'élément de volume compris entre  $r$  et  $r + dr$ . La structure de la cible n'affecte pas la distribution des parcours, la cible est considérée comme infinie ce qui donne des solutions mathématiques négatives, mais dans la réalité les ions rétrodiffusés n'entrent pas dans la distribution, la dose ou la fluence est inférieure à la densité atomique.

La structure de la cible n'affecte pas la distribution des parcours, la cible est considérée comme infinie ce qui donne des solutions mathématiques négatives, mais dans la réalité les ions rétro-diffusés n'entrent pas dans la distribution, la dose ou la fluence est inférieure à la densité atomique.

Les collisions binaires élastiques avec les atomes cibles sont décrites à l'aide des sections efficaces de diffusion nucléaires, lors du passage d'un état  $(E, \vec{e})$  à un état  $(E - T_n, \vec{e}')$  avec  $T_n$  est l'énergie transférée aux atomes cible et,  $\vec{e}'$  la direction après le choc.

Les collisions binaires inélastiques sont décroissantes avec leur section efficace,  $d\sigma_e(E, T_e)$  est l'énergie transférée à la structure électronique de la cible.

L'équation de transport est donnée par :

$$\cos\theta = N \int d\sigma_n [F(E, \vec{e}, x) - F(E - T_n, \vec{e}, x)] + N \int d\sigma_e [F(E, \vec{e}, x) - F(E - T_n, \vec{e}, x)] \quad (I-5).$$

Avec  $\cos\theta = \vec{e} \cdot \vec{n}$ .

À **basse énergie**, on néglige les interactions inélastiques, on décrit seulement les collisions nucléaires par les sections efficaces  $d\sigma_n = iE^{-m}T^{-1-m}$ ,  $0 \leq m \leq 1$ . Cette approche est discutée par plusieurs auteurs [27, 28, 29, 30, 31], il est valable à basse énergie et pour les ions lourds.

À **haute énergie**, l'interaction électronique est dominante par rapport aux autres interactions.



L'équation de transport devient :

$$-\cos(\theta) \cdot \frac{\partial F}{\partial x} = N \int d\sigma_e [F(E, \vec{e}, x) - F(E, T_e, \vec{e}, x)]$$

$$\cos\theta \frac{\partial F}{\partial x} = \sum_{k=1} \frac{\partial^k F}{\partial E^k} \cdot \frac{(-1)^k}{k!} \cdot \int N \cdot d\sigma_e \cdot T_e^k. \quad (I-6).$$

Le dernier terme en intégral est la perte d'énergie électronique, si k=1 on aura la perte d'énergie moyenne par unité de longueur.

$$\frac{\Delta E}{\Delta x} = N \cdot s_e(E) = N \int d\sigma_e T_e \quad (I-7).$$

Et pour k=2 on obtient la dispersion (straggling) moyenne de l'énergie électronique par unité de longueur.

$$\frac{\langle \Delta E^2 \rangle}{\Delta x} = N U_e(E) = N \int d\sigma_e T_e^2. \text{ Et pour calculer les parcours on néglige généralement les termes pour } k \geq 2, \text{ dans ces cas la solution est :}$$

$$F(E, \vec{e}, x) = \delta(x - \int_0^E \frac{dE'}{N S_e(E')}) \cos \theta.$$

Le parcours déterminé à partir de cette équation est le parcours électronique extrapolé car on néglige les collisions nucléaires. A très haute énergie (diffusion de Rutherford pure), le parcours électronique extrapolé donne une très bonne approximation du parcours réel.

L'équation de transport peut être écrite de la façon suivante :

$$\cos\theta \frac{\partial F}{\partial x} - N S_e(E) \frac{\partial F}{\partial E} + \frac{1}{2} N U_e(E) \frac{\partial^2 F}{\partial E^2} = N \int_0^E \int d\sigma_e [F(E, \vec{e}, x) - F(E, T_e, \vec{e}, x)] \quad (I-8).$$

$$T_m = \gamma E = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)} E$$

### I.2.3.a.1.2. La solution générale de l'équation de transport:

Le problème des parcours est résolu à l'aide de l'équation (8) par plusieurs chercheurs [28, 31, 32,33], en utilisant la séparation des variables de la fonction  $F(E, \vec{e}, x)$ , la dépendance en profondeur est éliminée en considérant les moments spatiaux sur la fonction  $F(E, \vec{e}, x)$ .

$$F^n(E, \vec{e}) = \int_{-\infty}^{+\infty} x^n F(E, \vec{e}, x) dx \quad n=0,1,\dots \quad (I-9).$$

L'approximation des collisions élastiques binaires dans une cible isotope donne deux simplifications : la première,  $F$  ne possède pas de dépendance azimutale donc,  $\vec{e}$  est remplacé par  $\eta = \cos\theta = \vec{n} \cdot \vec{e}$  La deuxième, la section efficace de diffusion élastique est donnée par :

$$d\sigma(E, T, \vec{e}, \vec{e}') = d\sigma(E, T) \cdot \delta(\vec{e}, \vec{e}' - \cos\phi') \cdot \frac{d\vec{e}'}{2\pi} \quad (I-10).$$

$\phi'$ , est l'angle de diffusion dans le système du laboratoire avec :

$$\cos\phi' = (1 - T/E)^{1/2} + \frac{1}{2} (1 - M_2/M_1)(T/E)(1 - T/E)^{1/2} \quad (I-11).$$

Développant  $F^n$  et  $d\sigma$  en polynômes de Legendre  $P_l(\eta)$  et  $P_l(\cos\phi')$ .

$$\frac{n}{2l+1} [lF_{l-1}^{n-1}(E) + (l+1)F_{l+1}^{n-1}(E)] = NS_e(E) \frac{d}{dE} F_l^n(E) + N \int_{T=0}^{\gamma E} d\sigma(E, T) F_l^n(E) - F_l^n(E - T) P_l(\cos\phi') \quad (I-12).$$

Avec  $F^n(E, \vec{e}) = F^n(E, \eta) = \sum_{T=0}^{\infty} F_l^n(E) p_n(\eta) (2l+1) \quad (I-13).$

Dans l'intégration de l'équation (11) on suppose que  $F$  décroît plus vite que  $|x|^{-n}$ , et elle est définie comme la densité de probabilité.

Insérant dans les équations (9) et (12)  $\theta = 0$  ou  $\eta = 1$ , on obtient le parcours moyen projeté ou la Pénétration  $R_p$  :

$$R_p = \int_{-\infty}^{+\infty} xF(E, L, x) dx = 3F_1^1(E) \quad (I-14).$$

La dispersion longitudinale des parcours (longitudinal range-stragglng) est obtenue par :

$$\sigma_{\parallel}^2(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - R_p)^2 F(E, 1, x) dx = F_0^2(E) + 5F_2^2(E) - 9 [F_1^1(E)]^2 \quad (I-15).$$

La dispersion transversale des parcours (dans le cas de l'incidence rasante  $\theta = 90^\circ$  ou  $\eta = 0$ )

$$\sigma_{\perp}^2(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} x^2 F(E, 0, x) dx = F_0^2(E) - 5F_2^2(E) \quad (I-16).$$

Dans le cas général ces mêmes formules peuvent être écrites de la façon suivante :

$$\bar{x}(E, \eta) = R_p(E)\eta = \int_{-\infty}^{+\infty} xF(E, \eta, x) dx \quad (I-17).$$

$$\sigma^2(E, \eta) = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - \bar{x})^2 F(E, \eta, x) dx = \sigma_{\perp}^2(E) + [\sigma_{\parallel}^2(E) - \sigma_{\perp}^2(E)] \eta^2 \dots \dots$$

Le troisième moment et le quatrième moment de la distribution sont appelés le skewness  $S_K$  et le kurtosis  $S_U$  et sont définis par.

$$S_K(E, \eta) \sigma^3(E, \eta) = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - \bar{x})^3 F(E, \eta, x) dx \quad (I-18).$$

$$S_U(E, \eta) \sigma^4(E, \eta) = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - \bar{x})^4 F(E, \eta, x) dx \quad (I-19).$$

### I.2.3.b. les Méthodes Statistique:

Se base sur la représentation d'un phénomène par un système équivalent (simulations numériques). Comme exemple : les simulations de Monte-Carlo. Donc ces méthodes de La simulation numérique consistent à reproduire par le calcul le fonctionnement d'un système préalablement décrit par des modèles .Ces modèles s'expriment au travers des équations mathématiques qui, dans le cas les plus simples, présentent des solutions analytiques.

Cependant, ce n'est en général pas le cas et l'on a alors recourt à la résolution numérique effectuée à l'aide d'un ordinateur.

### **I.2.3.b.1.Méthode Statistique de Monte-Carlo:**

Les méthodes dites de Monte-Carlo se basent sur une modélisation microscopique aboutissant à une simulation en 3 dimensions : on ne parle plus de fonction de distribution mais de probabilité d'occurrence de chaque interaction (appelée aussi événement). Les trajectoires des particules sont simulées individuellement à partir d'une série de nombres aléatoires et de sections efficaces chargées de reproduire le phénomène physique. La solution est tirée de la moyenne statistique des grandeurs obtenues à partir de la simulation d'un grand nombre de particules primaires (appelées aussi "histoires"). Pour simuler les histoires des particules, il est nécessaire de posséder un modèle de diffusion constitué principalement d'un ensemble de sections efficaces différentielles qui déterminent les distributions de probabilité des variables aléatoires représentant une trajectoire.

Une fois que ces distributions de probabilité sont connues, les histoires peuvent être générées en utilisant des méthodes d'échantillonnage adaptées [34]. Après la simulation d'un grand nombre d'histoires, l'information voulue est tirée de la moyenne statistique des grandeurs obtenues, affectées d'incertitudes statistiques.

#### **I.2.3.b.1.1.Le principe de Monte-Carlo:**

Le but de toute méthode de Monte Carlo appliquée au transport des particules repose sur principe de l'utilisation de nombres aléatoires pour simuler les trajectoires des particules en répondant aux distributions de probabilité des différents paramètres des interactions, à savoir [35]:

- les constituants du milieu et les différents types d'interaction dans celui-ci
- le libre parcours moyen entre 2 interactions
- les transferts ou pertes d'énergie
- les déflexions angulaires

La figure I-5 illustre ce principe.

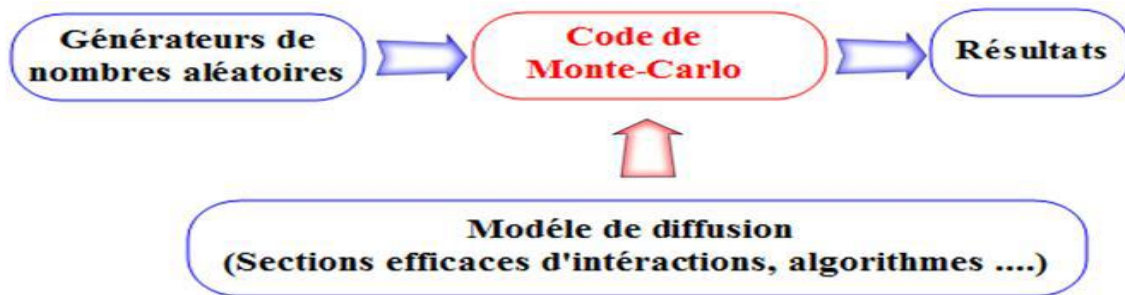


Figure I-5: Schéma de principe des méthodes de Monte-Carlo .

Donc la méthode de Monte Carlo, permet de contourner les problèmes de non linéarité et permet d'attribuer un niveau de confiance à une incertitude, l'une des principales caractéristiques est la génération de nombres aléatoires, tous les calculs reposent à la base, sur la génération de nombres suivant une distribution uniforme. Cette méthode consiste donc en des simulations expérimentales des problèmes mathématiques, dans lesquels des nombres aléatoires sont utilisés pour trouver une solution, qui dans certains cas, n'est pas aléatoire. Plusieurs auteurs ont affiné le modèle Kinchin-Pease, en l'adaptant à la simulation du type Monte-Carlo. Le domaine énergétique courant (quelques centaines de keV au maximum) a principalement été étudié par Hâbler [36], et des calibrations dans le domaine des MeV ont même été récemment présentées [37]. Dans ce dernier cas, un phénomène particulier semble avoir lieu. Des macros défauts sont formés dans le matériau implante, le modèle de Kinchin-Pease modifié, le nombre d'atomes déplacés par collisions nucléaires s'exprime de la façon suivante [38] :

$$N(E) = \nu \frac{E_n}{2E_d} \quad (I-20).$$

- $E_n$  est l'énergie totale perdue par les chocs nucléaires.
- $E_d$  est l'énergie de seuil de déplacement des atomes du matériau.
- Le paramètre  $\nu$  est appelé facteur d'endommagement. Il dépend de la section de capture et des potentiels interatomiques. Une valeur typique de 0,8 existe, qui peut néanmoins varier selon les auteurs [39].

### I.2.4.Simulation des processus et des effets d'implantation:

Des méthodes de simulation informatique pour calculer le déplacement des ions dans un milieu et leurs effets ont été développées depuis les années soixante. Leur idée principale se fonde sur le suivi du mouvement de l'ion dans un milieu par la simulation des collisions avec les noyaux des atomes. Le pouvoir d'arrêt électronique est habituellement pris en compte comme une force frictionnelle qui ralentit l'ion.

Les méthodes conventionnelles utilisées pour calculer des portées des ions reposent sur l'approximation des collisions binaires (Binary Collision Approximation (BCA)) [40,41]. Dans ces méthodes, le déplacement des ions dans un échantillon implanté est considéré comme une succession des collisions individuelles entre l'ion de recul et les divers atomes de l'échantillon. Le programme de simulation le plus connu est le code TRIM [42, 43] (Transport of Ions in Matter) qui est basé sur une formulation de l'arrêt électronique et du potentiel inter atomique issue d'un modèle élaboré par Ziegler, Biersack et Littmark (ZBL) [44]. {Équations (II-48 et II-49) chapitre II}

Il peut renseigner sur le profil des pertes électroniques et nucléaires, le profil des atomes déplacés (par ionisation ou par recul), le profil des ions implantés, le rendement de pulvérisation. Néanmoins, bien que des méthodes d'approximation des collisions binaires été utilisées avec succès, elles rencontrent quelques obstacles quand on tient compte des interactions multiples. De surcroît, dans la simulation des matériaux cristallins, le processus de la sélection d'un atome dans une collision secondaire et le paramètre d'impact impliquent toujours le choix de paramètres non physiques qui peuvent changer les résultats de 10-20% [43]. Par ailleurs, les calculs se font en régime « aléatoire », c'est à dire que la nature cristalline du matériau est ignorée.

Un autre moyen plus simple pour modéliser des collisions atomiques est fourni par des simulations de dynamique moléculaire (MD), où l'évolution temporelle du système (projectile cible) peut être déterminée en résolvant les équations du mouvement de Newton et en prenant en compte les forces d'interaction entre toutes les particules [45]. Les paramètres d'entrée sont les positions et les vitesses initiales du projectile et de tous les atomes de la cible; la plupart du temps, on supposera donc que le réseau a une structure régulière [46].

Les techniques de simulation de dynamiques moléculaires, utilisées pour modéliser l'interaction atome - surface, sont plus appropriées pour les collisions à faibles énergies, car dans ce cas-là, l'énergie est partagée entre plusieurs particules et l'approximation des collisions

binaires n'est plus valable [47]. Les inconvénients de ces codes sont qu'ils nécessitent des temps de calculs très longs et qu'une bonne statistique ne peut être atteinte qu'à faible énergie [29]. Le tableau ci-dessous résume les principales caractéristiques de ces deux groupes de codes.

BCA		Dynamique Moléculaire
BCA: Approximation des Collisions Binaires		MARLOWE [28] [26] [30]
Cibles amorphes - Monte Carlo	Cibles cristallines et aussi amorphes	
ACAT (projectile + atomes de recul)	MARLOWE (prend en charge la structure de la cible, la température de la cible et les pertes inélastiques)	
TRIM (ne tient pas compte de la structure de la cible, néglige les pertes inélastiques)		
<b>Temps de calcul</b>		
Rapides		longs
<b>Bonne statistique</b>		
pour des énergies variables allant de quelques eV jusqu'au MeV		uniquement à faible énergie
<b>Paramètres d'entrée</b>		
énergie de liaison, de surface et de déplacement, le nombre d'ions incidents, l'angle d'incidence,....		position et énergie du projectile et des atomes de la cible + potentiel d'interaction des atomes de la cible avec eux-mêmes et avec l'ion incident

Tableau 1.5 : Caractéristiques des deux types de simulation

### I.2.5. La modélisation des défauts :

Dans la gamme énergétique qui nous concerne (50 Kev, 6 MeV), les ions légers perdent beaucoup de leur énergie cinétique par des collisions inélastiques (Se), tandis que les ions lourds la perdent plutôt par des collisions élastiques (Sn). Or, ce sont ces dernières qui sont responsables de l'endommagement cristallin du réseau, en créant surtout des paires de Frankel. Donc pour d'estimer le nombre d'atomes déplacés par ion le code TRIM couple deux méthode : celle de Kinchin-Pease modifiée pour les calculs locaux, et celle de la cascade de collisions (suivi des atomes individuels reculés jusqu'à ce que leur énergie devienne inférieure à  $E_d$ ). Cette dernière donne directement la distribution spatiale des défauts [42].

## I.2.6. Simulations réalisées par le logiciel SRIM:

### I.2.6.1. Présentation du logiciel de simulation numérique SRIM:

Les simulations ont été effectuées avec le logiciel SRIM 2013 (Stopping and Range of Ions in Matter) qui est basé sur l'approximation des collisions binaires et sur le principe de la méthode Monté Carlo. Ce logiciel est un groupe de programmes qui s'exécutent sous Windows et qui permettent de simuler la trajectoire d'un ion ainsi que celle des atomes de recul dans un solide pour des énergies d'incidence allant de 10 eV à 2 GeV [49] [50]. Il a une interface simple permettant de choisir par simple clic entre deux programmes principaux qui sont le calcul du pouvoir d'arrêt des ions (Stopping/Range Tables) et le calcul détaillé (TRIM Calculation) voir (figure -6). Pour le premier programme, le manipulateur sera orienté vers l'interface de (la figure I-7) où il sera invité à entrer ses données : l'ion (type, gamme d'énergie) et la cible (Target). Pour le deuxième programme, l'ion et la cible sont choisis par simple clic sur l'icône \_ Add new element to layer \_ add new layer \_ et l'icône PT (ou table périodique) comme c'est donné sur (la figure I-8). La cible est considérée amorphe et les collisions entre les ions et les atomes cibles sont supposées de type coulombiennes écrantées.

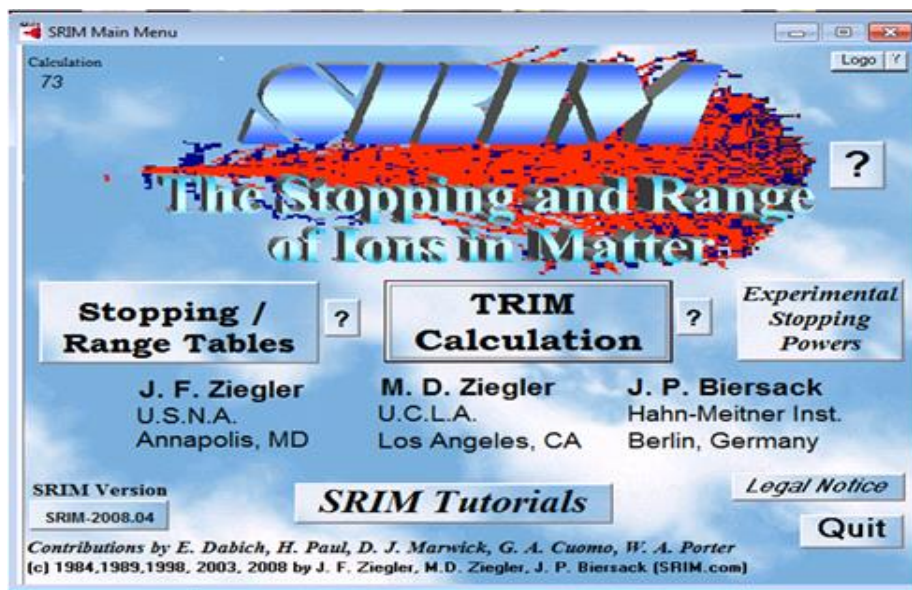


Figure I-6 :interface menu du logiciel SRIM 2015.



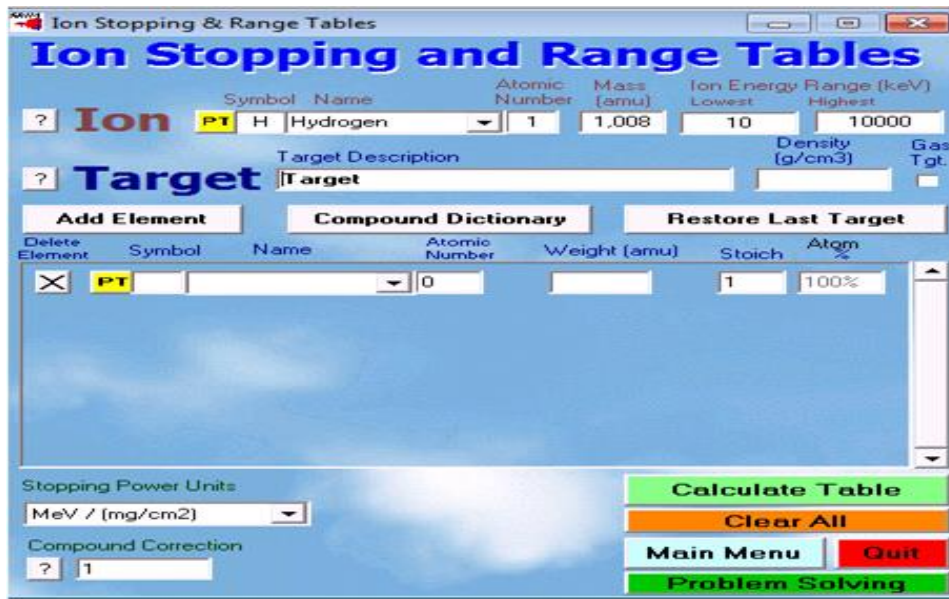


Figure I-7: Interface du programme (Ion Stopping and Range Tables).

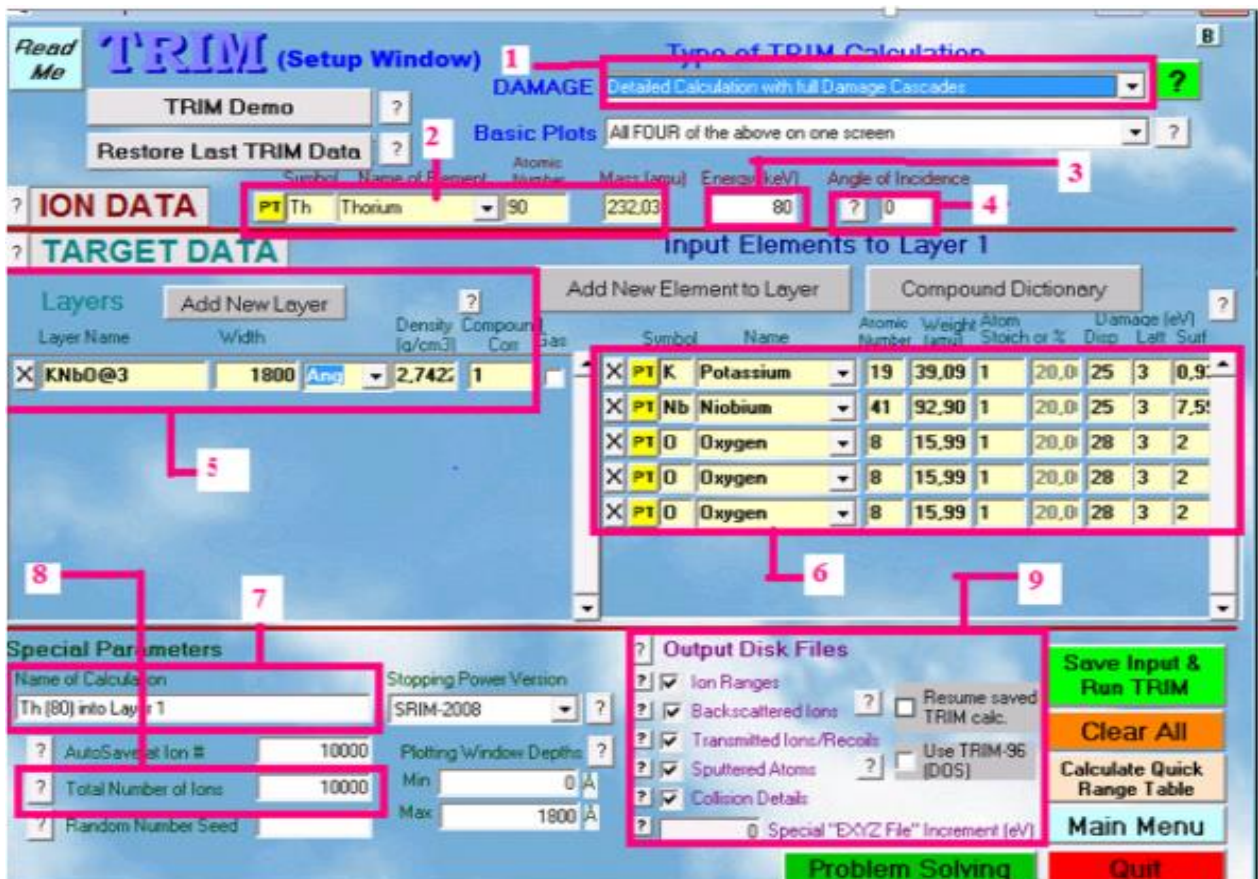


Figure I-8 : Interface du programme TRIM.

L'interface du programme TRIM possède plusieurs options. Les options de 1 à 9 permettent de choisir les paramètres d'entrée et de sortie regroupés dans (le tableau I-6).



option	paramètres	
1	Entrée	Elle permet de choisir les phénomènes à étudier parmi : - l'endommagement de la cible et la distribution des ions - l'implantation ionique. - la pulvérisation - l'énergie spécifique, angle, profondeur des ions.
2		Les données d'ions incidents : ions, symbole, nombre atomique, masse atomique.
3		Energie des ions incidents en KeV.
4		L'angle d'incidence des ions entre 0° et 90°.
5		La nature du matériau cible.
6		Le nom, le nombre atomique de la cible et l'énergie des liaisons des atomes.
7		Nom de la simulation : Th _ KNbO <sub>3</sub> (projectile _ cible).
8		Le nombre d'ions qu'on peut introduire peut aller jusqu'à 9999999 ions et la valeur proposée par défaut est de 99999 ions .
9	Sortie	Range.txt : tableau de la répartition finale des ions et des atomes cible de recul. Backscat.txt : cinétique de tous les ions rétrodiffusés (énergie, emplacement et trajectoire). Transmit.txt : cinétique de tous les ions transmis ( énergie , localisation et trajectoire ). Sputter.txt : cinétique de tous les atomes de la cible par pulvérisation de la cible. Collision.txt : tableau de toutes les collisions atomiques ions/cibles qui conduisent à endommager la cible .

**Table I-6 : Paramètres d'entrée et de sortie de TRIM.**

Ce programme, développé par Ziegler et Biersack [49] [50] permet de calculer différents paramètres qui sont liés à l'implantation d'ions dans la cible, on peut les citer comme suit [51] :

- \_ La distribution spatiale des ions implantés (la profondeur moyenne, la dispersion).
- \_ Les distributions des pertes d'énergies électronique et nucléaire en fonction de la profondeur (distributions moyennes pour un ion exprimé en ( KeV/A°).
- \_ La distribution des lacunes qui se sont formés à partir du déplacement des atomes

\_ le rendement de pulvérisation .

Le logiciel contient une interface qui fournit directement le profil de pénétration des ions incidents dans la cible et les différents paramètres physiques recherchés voir (la figure I-9).

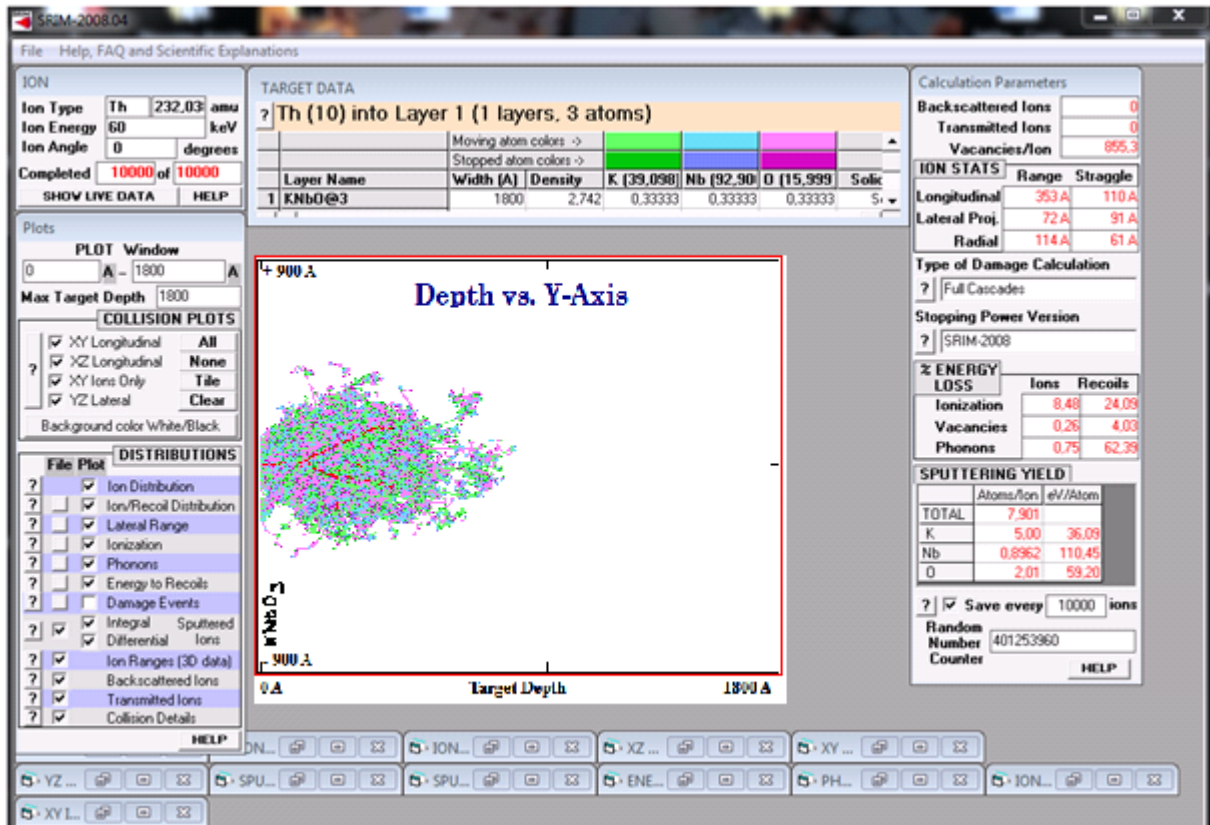


Figure I-9 : Interface des résultats du programme TRIM.

La trajectoire des ions est directement donnée par l'interface ainsi que les déplacements atomiques résultant. La figure 2.5 montre les cascades de collision provoquées par le passage d'un seul ion incident de KeV dans la cible. Les points rouges représentent l'ion projectile, les verts, les bleus et les violets désignent les sites vacants créés par les cascades de collision (atomes de recul).

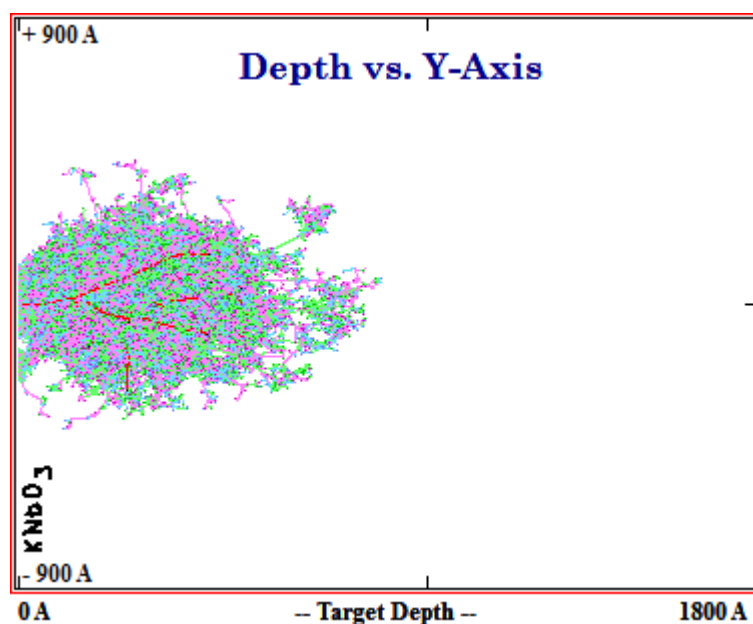


Figure I-10 : Parcours d'un ion incident (Th) accéléré à 60 KeV.

On remarque que le déplacement des atomes est limité à une région très proche de la surface et le parcours projeté maximal des ions est d'environ 706 Å°. Cet ion a créé 855 sites vacants au total et environ 8 atomes pulvérisés d'après les résultats donnés par le programme TRIM, voir( figure I-11).

SPUTTERING YIELD		
	Atcms/ion	eV/A:om
TOTAL	7,901	
K	5,00	36,09
Nb	0,8962	110,45
O	2,01	59,20

Calculation Parameters	
Backscattered Ions	0
Transmitted Ions	0
Vacancies/ion	855,3

Figure I-11: Quelques paramètres calculés par TRIM dans le cas du (KNbO<sub>3</sub>) bombardé par un des ions du Th de 60KeV.

Ce logiciel utilise la méthode de cascades de collisions, les atomes sont suivis Individuellement lors de leurs déplacement jusqu'à ce que leur énergie devienne inférieure à  $E_d$ . Cette énergie c'est l'énergie minimale qu'il faut fournir à un atome cible pour le faire déplacer de son site et créer un site vacant. Si  $E_1$  est l'énergie des ions incidents après la collision et  $E_2$  est l'énergie transférée à un atome cible, 4 situations peuvent se présenter comme suit :

\_ Si  $E_1 > E_d$  et  $E_2 > E_d$  : l'ion incident peut faire déplacer l'atome cible le faire déplacer de son site qui va devenir a son tour une particule incidente qui va provoquer d'autres collisions constituant d'autres sites vacants.

\_ Si  $E_1 > E_d$  et  $E_2 < E_d$  : la cible reste dans son site car son énergie est petite ce qui veut dire qu'elle sera dissipée provoquant la vibration du réseau (création de phonons), par contre le projectile continue son mouvement.

\_ Si  $E_1 < E_d$  et  $E_2 > E_d$  : la cible devient une particule incidente car elle est éjectée, créant d'autres collisions. La particule incidente occupe des sites vides (substitutionnels) et son énergie est dissipée provoquant des vibrations dans le réseau (phonons).

\_ Si  $E_1 < E_d$  et  $E_2 < E_d$  : l'ion incident peut seulement occuper des sites interstitiels et son énergie est dissipée dans le réseau créant des phonons par contre la cible va continuer à vibrer sans quitter sa position.

## Références

- [1, 3] BENAÏSSA CHERIF YUCEF, «Structures Magnétiques des Pérovskites de type ABC3 Etude du premier principe ».Thèse de Doctorat. Université de Mostaganem.
- [2] BOURMAL BELKIS, « Synthèse et caractérisation structurale des oxydes mixtes de structure pérovskite  $SrCo_{1-x}Cu_xO_3(x=0-0.1-0.2-0.3)$  ». Mémoire de master. Université de Mostaganem.
- [4] Bourmal Belkis , mémoire de master en chimie spécialité chimie du matériaux
- [5] MAHBOUB WALID, «L'effet de dopage sur la structure de la composition pérovskite ( $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$ ) ». Mémoire de master. Université de Tiaret
- [6] BENAÏSSA CHERIF YUCEF, «Structures Magnétiques des Pérovskites de type ABC3 Etude du premier principe ».Thèse de Doctorat. Université de Mostaganem.
- [7] AMANI SAMIRA, « Effet du bombardement ionique sur les matrices potentielles ( $BiTiO_3$ ) par la méthode statistique(BCA) ». Mémoire de master. Université de Tiaret
- [8] MAHBOUB WALID, «L'effet de dopage sur la structure de la composition pérovskite ( $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$ ) ». Mémoire de master. Université de Tiaret
- [9] R.C. Pohanka, P.L. Smith. Electronic ceramics Lionel M, LEVINSON, Marcel DEKKER, Recent Advances In Piezoelectric Ceramics, p. 45-145,1988
- [10] GUESMIA KAOUTHAR\_ SAADI AMINA « Elaboration et Caractérisation Des Oxydes de Type Pérovskite  $XFeO_3$  Dopés». Mémoire de master. Université de Biskra.
- [11] H.ABDENNOUCHE\_K.HASSNI, « détermination de la limite de substitution dans le système  $SrTiO_3-NaF-MgF_2$ ,) ». Mémoire de master. Université de Béjaïa
- [12] M.MAHBOUB, " Synthèse, « caractérisation par diffraction X et spectroscopie Raman des composés  $Ca_{1-x}Sr_xFeO_{2.5-\delta}(\delta = 0,0.5)$  », thèse de doctorat. Université Mentouri Constantine.

- [13] M. LEBID, « Etude de l'influence des conditions de synthèses sur les propriétés physicochimiques du système  $\text{LaFeO}_3$ , mémoire de master. Université Mohamed Khider, Biskra
- [14]<https://www.universalis.fr/encyclopedie/perovskites/4-le-fort-rendement-des-cellules-photovoltaiques-a-perovskite/>
- [15] <https://www.futura-sciences.com/planete/definitions/geologie-perovskite-4808/>
- [16, 17,18] RAMDNE KARIMA, « caractérisation et élaboration du poudres  $\text{KNbO}_3$  ».Thèse de Doctorat. Université de Jijel.
- [19] FLORENT MARLEC, Nouveaux veaux matériaux pérovskites ferroélectriques : céramiques et couches minces issues de la solution solide  $(\text{Sr}_2\text{Ta}_2\text{O}_7)_{100-x}(\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7)_x$ .université de Rennes 1.
- [20] Mansour.AFALI, « la simulation numérique :un outil pour les innvations technologique»,10 janv 2022
- [21] W.Ecktein, Computer simulation of ion-solid interaction (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg and New York, 1991).
- [22] W.L.Morgan, « Dynamical simulation of liquid- and solid-metal self-sputtering »,J.Appl. Phy.65(3),1265-1269 (1989).
- [23] J. P. Biersack and L.G.Haggmark, NuclInst Meth 174,257 1980.
- [24] M .T .Robinson, Phys Rev B9, 12, 1974.
- [25] W. Takeuchi and y. Yamamura, Radiat Eff71, 51 1983.
- [26] Cheick Oumar Thiam. T.H.D .physique corpusculaire .université blaise pascal (dosimétrie en radiothérapie et curiethérapie par simulation Monte-Carlo gâte sur grille informatique) 12 octobre 2007.
- [27] J.Lindhart. Scharff and H.E.Schiott, Mat. Fys. Medd. Kgl. Dan.Vid. Selsk. 33, N°14 (1963).

- [28] H.E. Schiott. Mat. Fys. Medd. Kgl. Dan. Vid. Selsk. 35, N°14 (1966).
- [29] H. E. Schiott, Can. J. Phys. 46, 449 (1968).
- [30] J. B. Sanders, Can. J. Phys. 46,455 (1968).
- [31] J.Biersack, proc .SPIE. Int. Sco. Eng (USA), vol 2775, page 585-93 (1996).
- [32] K. B. Winterbon, P. Sigmund and J. B. Sanders, Mat. Fys. Medd. Kgl. Dan. Vid. Selsk. 37,N°14 (1970).
- [33] D. K. Brice, « Ion Implantation Range and Energy Deposition Distributions, vol 1, High Energies », Plenum Press, New York (1975).
- [34] Mazurier J. (1999) Adaptation du code MC PENELOPE pour la métrologie de la dose absorbée : caractérisation des faisceaux de photons X et calcul de facteurs de correction de dosimètres de référence, Thèse, Université Paul Sabatier.
- [35] J .Mazurier .M.Terrissol de Monte Carlo. Support de cours du Master RIM DE TOULOUSE III.2009.
- [36] See W. H. Dennis, Metallurgy of the Ferrous Metals (1963) and Foundations of Iron and Steel Metallurgy (1967).
- [37] Harry B. les électrons et la liaison chimiques, Gray Clumbia university.
- [38]Day and R. F. Tylecote, the Industrial Revolution in Metals (Institute of Materials 1991).
- [39]H. Ryssel, G. Prinke, K. Haberger, K. Hoffmann, K. Müller, and R. Henkelmann, Range Parameters of Boron Implanted into Silicon,"Appl.Phys.A, vol. 24, pp. 39-43, 1981.
- [40] Nordlund, <http://www.helsinki.fi/~knordlun>
- [41] M.T. Robinson, Ian M. Torrens, Physical Review B, 9(12),p. 5008, 1974
- [42] J.P. Biersack, L.G. Haggmark, Nuclear Instruments and Methods, 174-257, 1980.
- [43] ht tp: / /www.srim.org.
- [44] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, "In the Stopping and Range of Ions in Matter, volume1", Pergamon, New York, 1985.

- [45] K.A. Muller, H. Burkand, (SrTiO<sub>3</sub>. An intrinsic quantum paraelectric below 4 K), Phys. Rev. B 19 1(1976)3593-3602.
- [46] P.L. Wise, I.M. Reaney, W.E. Lee, T.J. Price, D.M. Iddles, D.S. Cannell, (Structure-microwave property relations in (Sr<sub>x</sub>Ca<sub>(1-x)</sub>)<sub>n+1</sub>Ti<sub>n</sub>O<sub>3n+1</sub>) J. Eur. Ceram. Soc..21(2001)1723-1726.
- [47] M. Yuan, C.L. Wang, Y.X. Wang, R. Ali, J.L. Zhang, (Effect of zero-point energy on the dielectric behavior of strontium titanate) Solid State Communications, 127[61] (2003) 419-421.
- [48] Lieu: Murun massif, Chara River, Davan, Torgo bassin de la rivière, Aldan Shield, Saha (Sakha) République (Yakoutie), l'Est-Sibérien région, la Russie. Droid d'auteur: © Thomas Witzke / Abraxas-Verlag SrTiO<sub>3</sub> Dana No: 04.03.03.05 Strung No: 04.CC.35
- [49] J. F. Ziegler, J. Biersack, and U. Littmark, "The stopping and range of ions in matter, vol. 1", 1, Pergamon Press, New York, 1985.
- [50] J. Ziegler, J. Biersack, and M. Ziegler, "SRIM the stopping and range of ions in matter, ion implantation press", 2008.
- [51] H. Faik-Etienne, Étude de l'implantation ionique dans les miroirs multicouches Mo/Si : application aux optiques di\_ractives, Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, 2005.





***Chapitre II :***  
***La Théorie de Ralentissement***

**II.1.Introduction:**

Le but de ce chapitre est de présenter quelques notions de base concernant les interactions particule-matière. Nous commençons par décrire de manière générale l'interaction entre une particule incidente et la matière cible. Les mécanismes d'interaction sont ensuite détaillés dans le cas des irradiations ioniques. Enfin, nous abordons l'endommagement des matériaux sous irradiation.

Le passage des particules chargées dans la matière fait intervenir différents types d'interaction avec les atomes du milieu traversé. Le principe de base est le suivant. La pénétration violente de particules chargées à travers les couches superficielles d'un matériau au cours du bombardement ionique cause un bouleversement local au niveau des microstructures par des cascades de collisions successives, est peut être réalisé dans le but d'obtenir dans les couches superficielles du matériau, soit une modification structurale pouvant aller jusqu'à l'amorphisation, soit une modification structurale et chimique pouvant aller jusqu'à la synthèse d'un nouveau composé à la surface (traitement de surface).

Des atomes dopants sont vaporisés, ionisés, accélérés et projetés sur le matériau à doper dans lequel se produisent de nombreuses collisions avec les atomes-cibles. Les ions subissent alors une perte graduelle d'énergie, jusqu'à ce qu'ils s'arrêtent à une certaine profondeur. La profondeur sur laquelle portent ces modifications dépend d'un certain nombre de paramètres liés au couple faisceau d'ions-matériau. Cependant on peut remarquer que cette profondeur est ajustable et varie de plusieurs ordre de grandeurs suivant l'énergie, les masses du couple projectile-cible, l'incidence du faisceau d'ions, la dose ou le flux d'implantation ionique, la température et l'érosion de la surface par pulvérisation [1,2]. Ces trois derniers paramètres ne seront pas comptés sur notre travail.

**II.2.La théorie du ralentissement des particules chargées dans la matière:****II.2.1.Interaction Ion-Atome:**

L'interaction ion atome peut être considérée comme une première étape dans la compréhension de l'interaction ion-matière. Les processus monoélectroniques, tels que l'ionisation, l'excitation et la capture d'un électron intervenant lors d'une collision ion-atome, (figure I-1) sont décrits de façon satisfaisante par un grand nombre de théories.

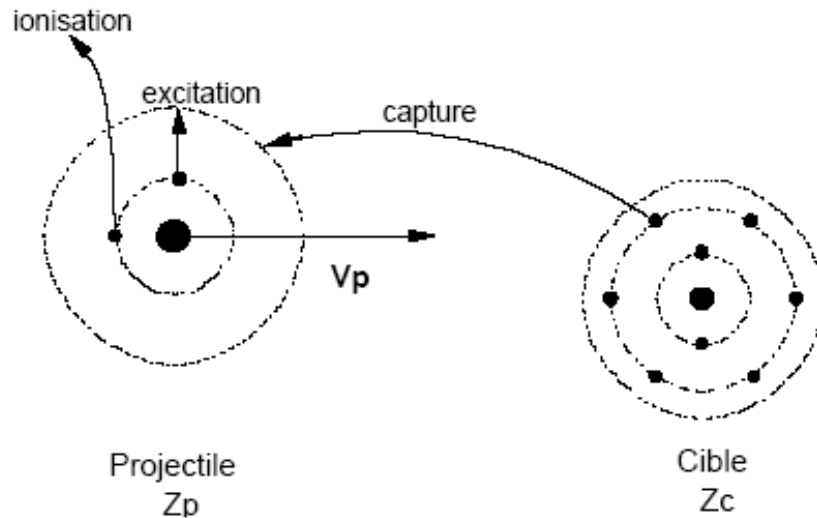


Figure. II-1 : Les processus atomiques monoélectroniques élémentaires.

### II.2.1.1.les processus élémentaires et régime de vitesse:

Ces divers processus sont caractérisés par des sections efficaces qui, pour un ion projectile et une cible donnée, dépendent de l'énergie de la collision. Trois régimes différents peuvent être distingués selon la valeur du facteur de proportionnalité  $K$  dépend du projectile et de la cible considérés, est défini par :

$$K = \frac{Z_c}{Z_p} \times \frac{V_e}{V_p}$$

Où  $V_e$  est la vitesse initiale de l'électron actif mis en jeu dans un processus atomique considéré,  $V_p$  est la vitesse de projectile,  $Z_p$  et  $Z_c$  respectivement correspondent au nombre atomique de projectile et de la cible.

- **Le régime dit des basses vitesses** ou régime de forte interaction ( $K \gg 1$ ) est atteint pour des vitesses de collision ( $V_p$ ) très inférieures à celle de l'électron actif ( $V_e$ ) entre partenaires de numéros atomiques comparables ou pour une grande asymétrie de collision  $Z_c \gg Z_p$ . La théorie, adaptée à ce régime, est basée sur l'hypothèse de la formation d'une quasi-molécule transitoire au cours de la collision.

- **Le régime dit des hautes vitesses** ou régime perturbatif ( $K \ll 1$ ) est atteint pour des grandes vitesses de collision ou pour des grandes asymétries de collision du type  $Z_p \gg Z_c$ .
- **Le régime dit des vitesses intermédiaires** ( $K \approx 1$ ) pour lequel les sections efficaces des différents processus atomiques sont proches de leur valeur maximum et sont toutes du même ordre de grandeur. Les processus multiples faisant intervenir plusieurs de ces processus simples simultanément (Capture-Ionisation, Excitation-Ionisation, Double Excitation,...) ont alors des probabilités non négligeables.

D'une manière générale, l'irradiation de la matière correspond à l'interaction entre une particule incidente, considérée comme le projectile, et les atomes constituant la cible. Cette irradiation peut donner lieu à quatre phénomènes physiquement très différents : le transfert de quantité de mouvement aux atomes-cibles (par des chocs élastiques), excitation et ionisation de la cible (chocs inélastiques), la production de photons, et diverses réactions nucléaires. Ces deux derniers processus se déroulent lors d'implantation à hautes énergies (généralement supérieures au GeV), et ne seront pas étudiés ici.

### **II.2.1.2. Description d'une collision:**

Un ion incident crée une cascade de collisions, focalisées ou non, avec phénomène de l'implantation, création de défauts (lacunes, interstitiels) et pulvérisation (atomes, ions, clusters).

Le matériau est considéré comme un arrangement d'atomes au repos. Tant que l'énergie de l'ion incident, et des atomes déplacés par la suite, est supérieure à l'énergie de déplacement  $E_d$  (10-25 eV) il y a suite de collisions. Les atomes qui se rencontrent sont beaucoup plus proches l'un de

l'autre que des autres atomes dans la cible; on considère alors les cascades de collisions comme une suite de collisions binaires. Si l'énergie transférée devient inférieure à l'énergie de déplacement il y a simplement vibration thermique et émission de phonons [3]. Voir la figure II-2.

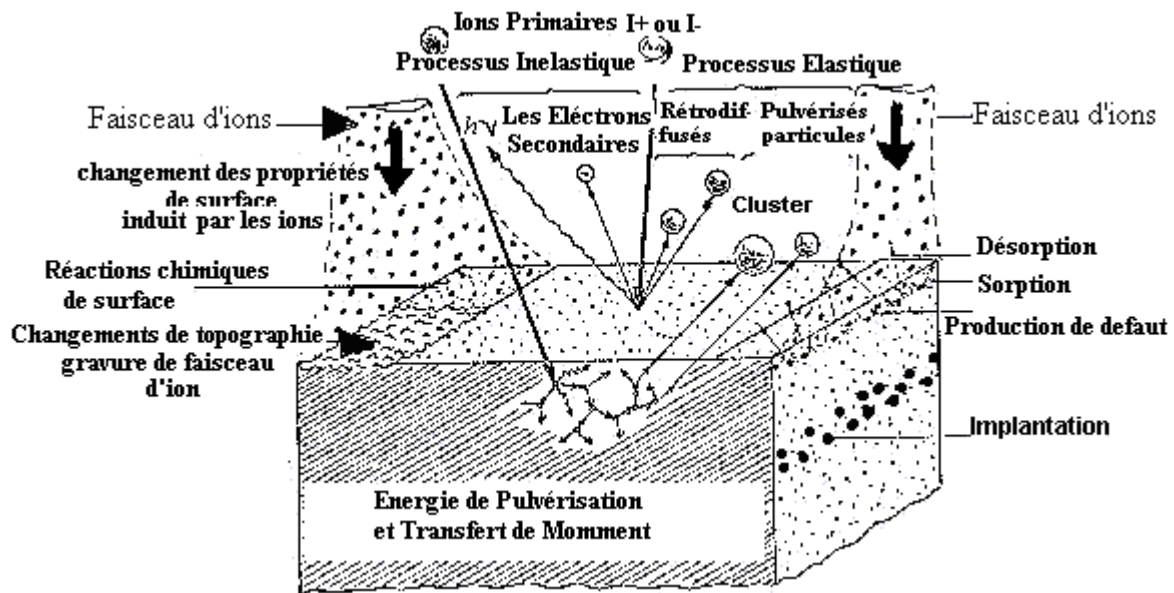


Figure.II-2 : Schéma des différentes interactions ion-solide : élastiques  
Inélastiques.



Figure. II-3 : Représentation schématique d'une cascade de collisions

Le domaine énergétique envisagé dans la plupart des modèles présentés s'étend environ de 50 KeV à 6 MeV. Les hautes énergies sont utilisées pour l'implantation des ions légers (Hélium) qui font intervenir les électrons du cortège électronique (ex : l'excitation-ionisation de la cible par le chocs inélastiques), et les faibles énergies sont réservées aux bombardement des ions lourds

(Thorium) pour le chocs élastiques (formation de défauts superficielles). La dose fixée a 10000 ions/cm<sup>2</sup>.

Nous allons donner les principales théories de l'arrêt des ions dans un matériau, en considérant les deux cas bien distincts qui peuvent se présenter : le matériau implanté est amorphe, ou bien de nature cristalline. Ce dernier cas présentant des difficultés supplémentaires de modélisation à cause du caractère anisotrope du phénomène (direction privilégiées axiales ou planaires).

### **II.2.2.Principaux processus d'interaction:**

Deux types d'interactions physiques peuvent se produire, chacun d'eux étant prédominant dans un domaine qui dépend des valeurs de l'énergie de l'ion et de sa masse atomique. Ces deux processus de perte énergétique sont : la collision nucléaire et la collision électronique, on peut imaginer quatre types principaux d'interaction :

1- Collisions inélastiques avec les électrons atomiques. C'est le mécanisme prépondérant qui conduit à l'ionisation ou l'excitation du milieu traversé. Elles sont prédominantes pour des ions ayant une énergie supérieure à quelques dizaines de KeV par unité de masse atomique  $uma$ .

2- Collisions inélastiques avec un noyau. La particule est déviée par les forces coulombiennes et son ralentissement se manifeste par l'émission d'un rayonnement de freinage (bremsstrahlung). Elle peut aussi céder de l'énergie au noyau et amener celui-ci dans un état excité. C'est l'excitation coulombienne du noyau.

3- Collisions élastiques avec les électrons. Ces interactions ne sont observées que pour des particules de très faible énergie ( $<100eV$ ) [5].

4- Collisions élastiques avec les noyaux. La particule incidente est diffusée sans rayonner ni exciter les noyaux, mais en revanche, les noyaux subissent des déplacements. Ce processus est majoritaire pour des énergies de quelque KeV/ $uma$ .

#### **II.2.2.1.Définition du Pouvoir d'Arrêt:**

De fait, les modélisations du ralentissement de l'ion dans le matériau vont étudier séparément ces deux phénomènes, et les additionner ensuite pour déterminer le pouvoir d'arrêt total  $S$ . Ce

dernier est défini comme étant directement proportionnel à la perte énergétique et de l'ion rapporté à la distance parcourue, soit  $dE/dx$  [6].

$$S(E) = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = S_n + S_e \quad (\text{II-1})$$

$S(E)$  est le pouvoir d'arrêt atomique, ou section efficace de ralentissement.  $S_n$  est le pouvoir d'arrêt nucléaire, et  $S_e$  le pouvoir d'arrêt électronique.  $N$  est la concentration atomique du matériau implanté.

La Figure.II-4 : donne un aperçu de la variation du pouvoir d'arrêt en fonction de la vitesse de l'ion incident. La forme générale de ces courbes est valable quels que soient l'ion et le matériau. Trois régions distinctes apparaissent.

La zone I s'étend jusqu'à  $v_0 Z_1$ .  $v_0$  est la vitesse de Bohr et vaut  $e^2/h$ , soit  $2,2 \cdot 10^8$  cm/s ;  $Z_1$  est le numéro atomique de l'ion incident. C'est la seule région dans laquelle l'arrêt nucléaire joue un rôle important. Cette contribution nucléaire est d'autant plus importante que l'ion est plus lourd. Le pouvoir d'arrêt électronique est sensiblement proportionnel à la vitesse de l'ion, soit la racine carré de l'énergie incidente.

La zone II est dominée par l'arrêt électronique, lequel passe par un maximum pour une vitesse égale à  $2 Z_1 v_0$ . Au-delà de cette valeur, la probabilité pour que l'ion soit complètement ionisé devient très importante. Les collisions électroniques seront par conséquent moins nombreuses, et nous entrons dans la zone III dite de Bethe Block ou le pouvoir d'arrêt décroît quand l'énergie augmente. Il existe une quatrième zone (non représentée) qui correspond aux énergies relativistes, dans laquelle  $S_e$  redevient proportionnel à la vitesse incidente à cause de l'émission de photons par le matériau. Ces effets relativistes ont lieu pour des vitesses ioniques au-delà de  $10^7$  eV/amu.

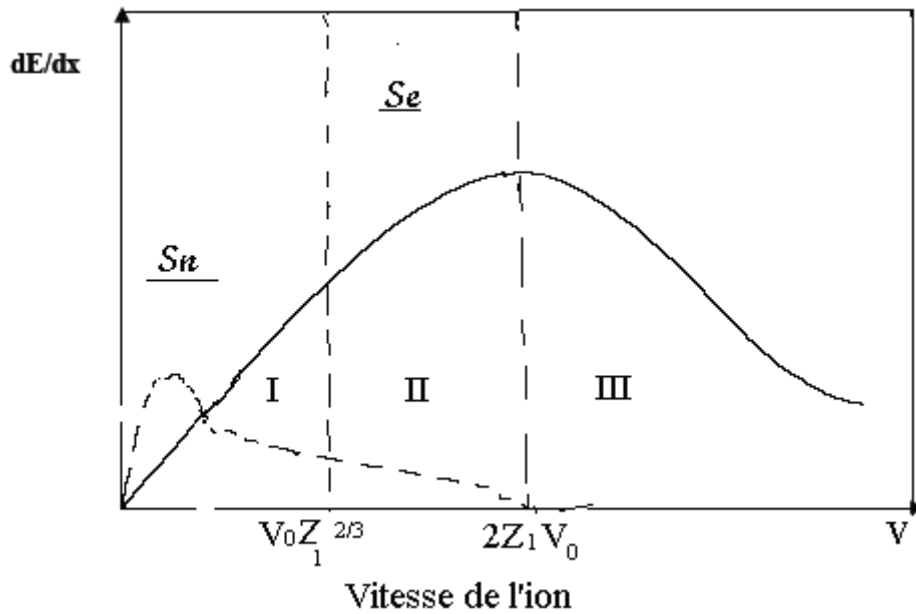


Figure. II-4: Composantes nucléaires et électroniques du pouvoir d'arrêt en fonction de la vitesse de l'ion incident.

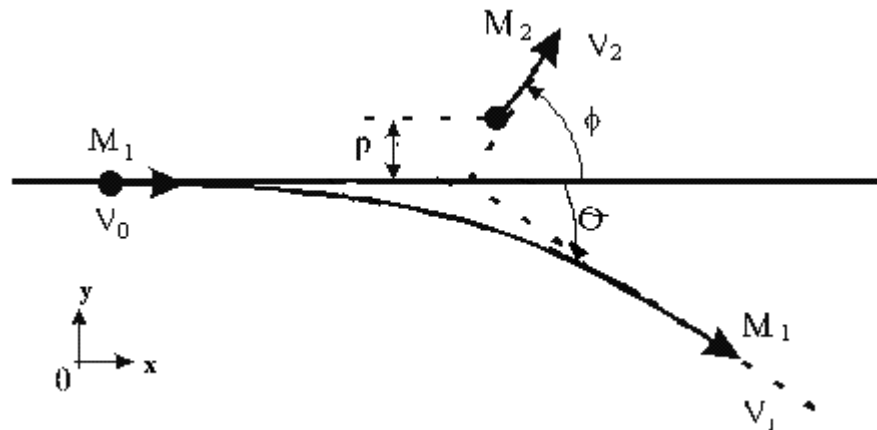
*I : arrêt nucléaires – II : arrêt électroniques – III : Zone de Bethe-Block*

Nous présentons ici les principaux modèles physiques relatifs aux deux types d'arrêt dans le matériau, ainsi que les différentes familles de courbes choisies par divers auteurs pour décrire la contribution finale des dopants dans le matériau.

### II.2.2.2. Etude des pertes élastiques dans une collision binaire:

Dans une collision élastique entre deux particules, le mouvement de celles-ci peut être représenté soit en coordonnées du laboratoire, ce qui simplifie la compréhension, soit dans le référentiel du centre de masse, ce qui simplifie souvent les calculs.





**Figure. II-5:** représentation d'une collision binaire dans les coordonnées du laboratoire dans le plan  $(x,y)$ . La particule incidente de masse  $M_1$  et de vitesse  $V_0$  vient heurter l'atome de masse  $M_2$  au repos.  $\theta$  représente l'angle de diffusion et  $\phi$  est l'angle de recul. La vitesse  $V_1$  est la vitesse de l'ion incident après la collision et  $V_2$  la vitesse de l'atome de recul.

Dans le programme TRIM, l'utilisation des coordonnées barycentriques ou du centre de masse (CM) est bien plus avantageuse. En effet, la description d'une collision élastique de deux particules possède des aspects remarquables dans le référentiel barycentrique. Ainsi la somme des quantités de mouvements est nulle avant et après la collision. Ceci permet de déduire de la conservation de l'énergie cinétique que les normes de toutes les quantités de mouvements.

Dans une collision élastique binaire dans le CM, sont égales et d'exprimer les vitesses de l'ion et de l'atome en fonction de la vitesse initiale  $V_0$  de l'ion :

$$V_{ion} = V_0 - V_C = V_0 \cdot \frac{M_T}{M_1} \quad (\text{II-2})$$

$$V_{atome} = V_C = V_0 \cdot \frac{M_T}{M_2} \quad (\text{II-3})$$

Où  $M_T$  représente la masse réduite définie par :  $M_T = \frac{M_1 \cdot M_2}{M_1 + M_2}$

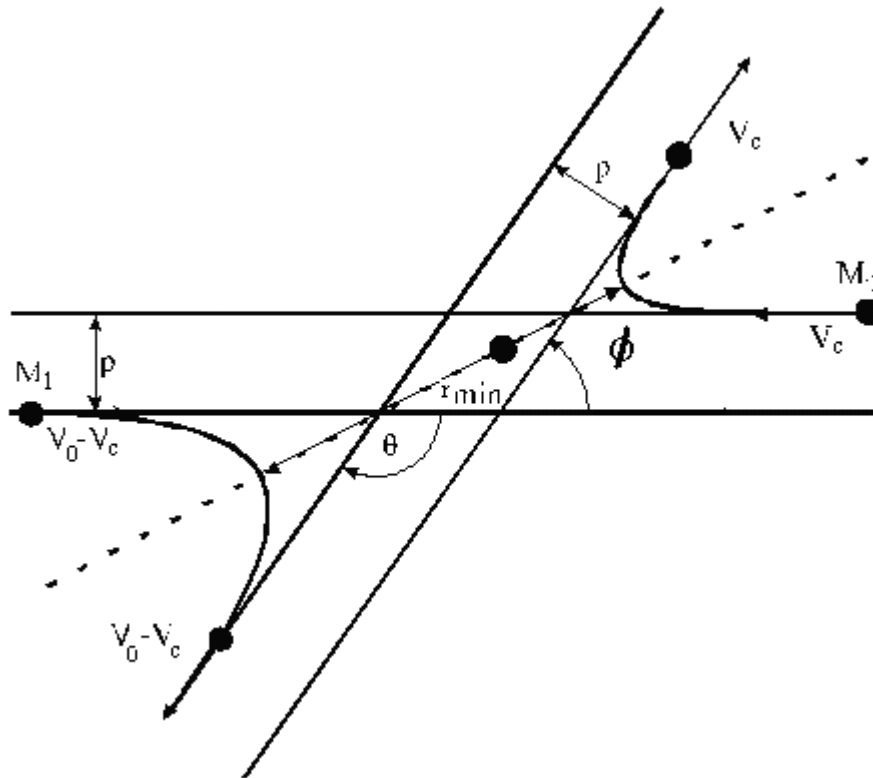


Figure.II-6: représentation d'une collision binaire dans les coordonnées du centre de masse dans le plan. Les deux atomes sont considérés en mouvement. Seul le centre de masse est immobile. Ce référentiel se déplace à la vitesse  $V_c$  par rapport au référentiel du laboratoire.  $V_0 - V_c$  est la norme de la vitesse de l'ion incident qui reste constante avant et après la collision,  $V_c$  est aussi la norme de la vitesse de l'atome cible.  $\phi$  est l'angle de recul et  $\theta$  l'angle de diffusion.

Un autre avantage de l'utilisation des coordonnées du CM est que les vitesses du système sont indépendantes de l'angle de diffusion entre les deux particules. Le système formé par les deux équations à une solution unique ce qui n'est pas le cas dans le référentiel du laboratoire.

Le diagramme des vitesses de l'ion incident peut être représenté dans les deux référentiels comme le montre la figure.II-6, dans cet exemple, " $\cos\theta$ " est négatif, on peut donc exprimer l'angle  $\phi$  par la formule :

$$\tan \phi = \frac{(V_0 - V_c) \cdot \sin \theta}{V_c + (V_0 - V_c) \cdot \cos \theta} \quad (\text{II-4})$$

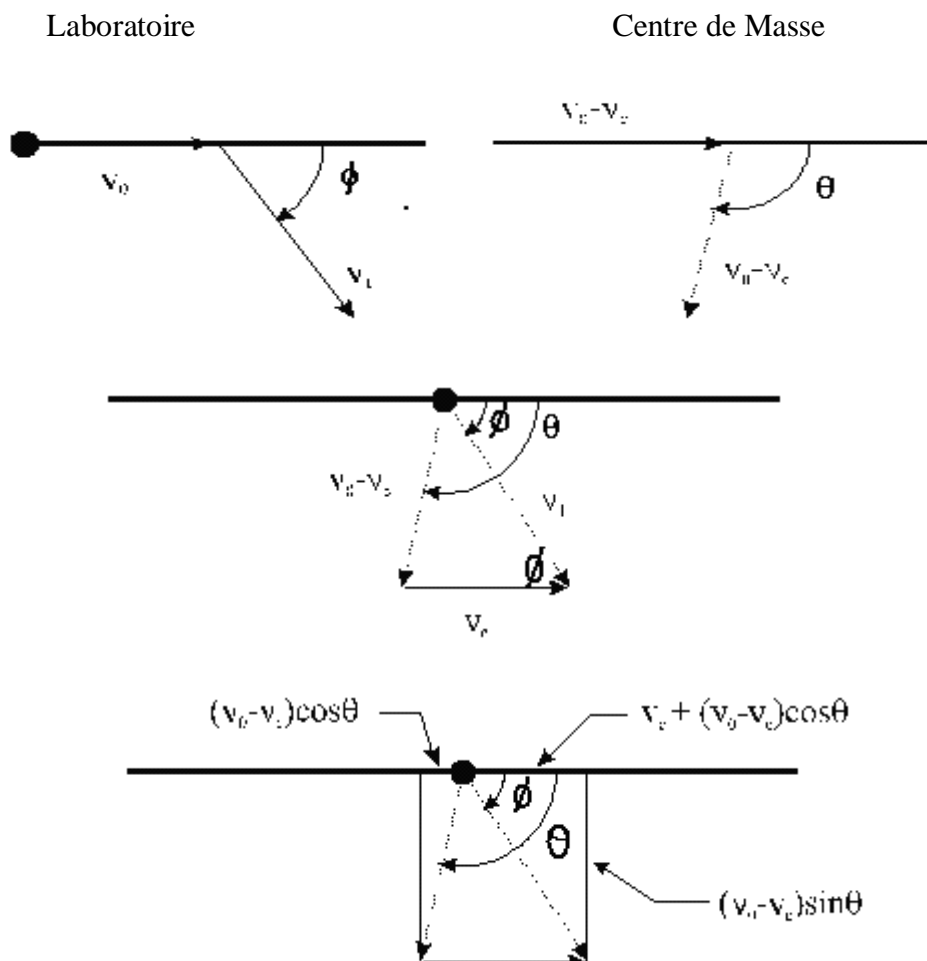
L'énergie transférée  $T$  à l'atome cible, qui est égale à la perte d'énergie élastique de l'ion, s'exprime en fonction de l'énergie incidente  $E_0$  par :

$$T = \frac{4.M_1.M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_0 \cdot \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{II-5})$$

La détermination de l'angle  $\theta$  permet de revenir facilement à l'angle de diffusion  $\phi$  et à la perte d'énergie T. L'énergie restante de l'ion est alors calculée simplement par :

$$E_r = E_0 - T - \Delta E_i \quad (\text{II-6})$$

$\Delta E_i$  représente la perte d'énergie inélastique. Nous la négligeons par la suite pour minimiser le temps de calcul.



**Figure.II-7 :** Diagramme des vitesses de l'ion incident qui permet d'exprimer la tangente de l'angle  $\phi$  en fonction de l'angle  $\theta$ .  $V_0$  représente la norme de la vitesse de l'ion incident dans le référentiel de laboratoire et  $V_0 - V_c$  sa norme dans le centre de masse.  $\phi$  représente l'angle de diffusion dans le laboratoire et  $\theta$  l'angle de diffusion de l'ion incident dans le référentiel CM.

### II.2.2.3. Evaluation de l'angle de diffusion $\theta$ :

L'angle de diffusion dans le CM est calculé par une relation exacte si  $\varepsilon \geq 10$  ou par une résolution trigonométrique si  $\varepsilon < 10$ .

- \* Si  $\varepsilon \geq 10$  : pour un potentiel Coulombien,  $\theta$  s'exprime en fonction de l'énergie réduite et du paramètre d'impact réduit " $P_r$ " par la relation :

$$\sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{1}{1 + P_r(1 + P_r)(2\varepsilon P_r)^2} \quad (\text{II-7})$$

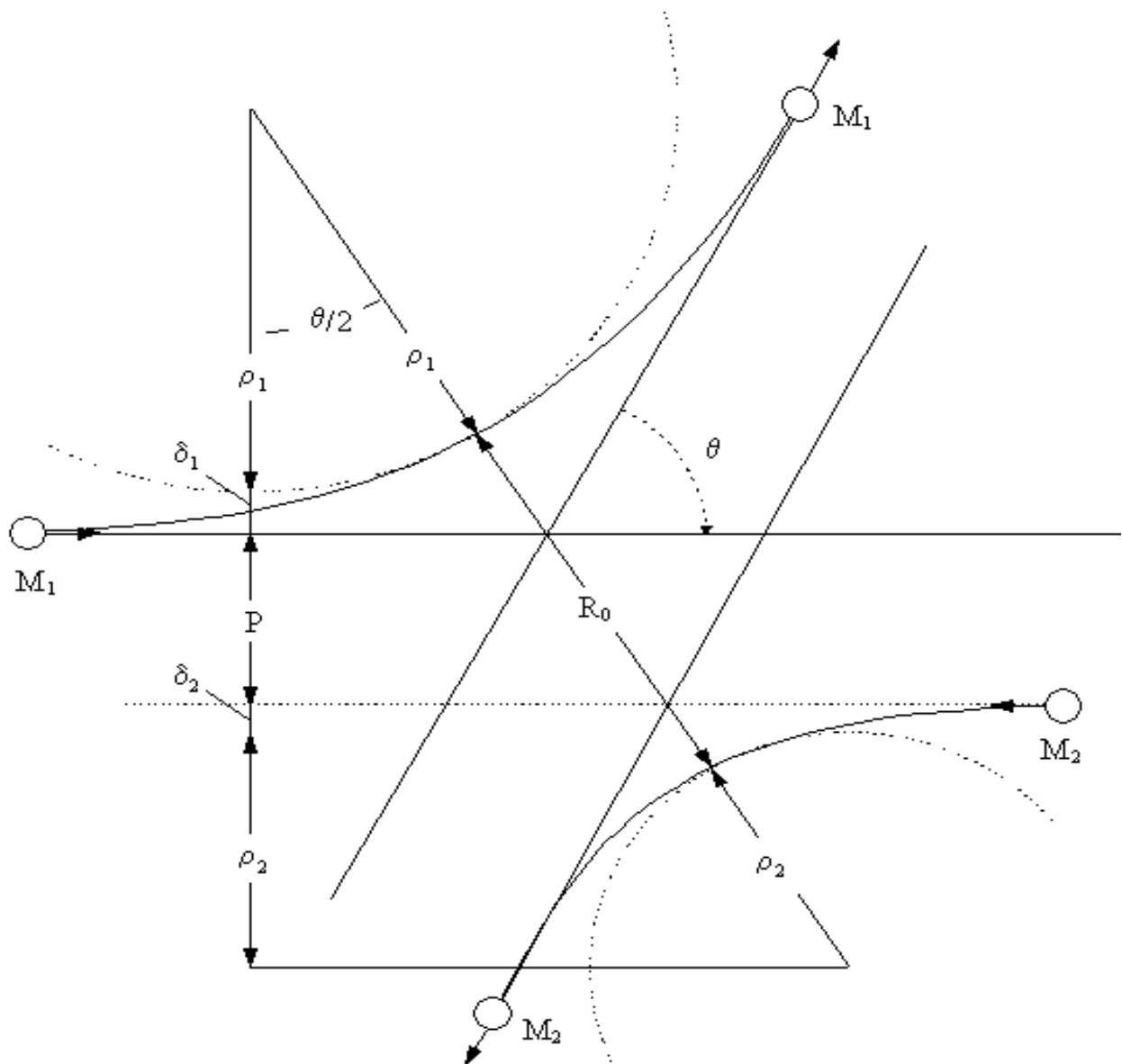
où  $P_r = \frac{P}{a_u}$  avec " $P$ " le paramètre d'impact de la collision.

- \* Si  $\varepsilon < 10$  : la valeur de  $\theta$  se déduit par l'astuce suivante.

La figure.II-8 : décrit, dans le référentiel barycentrique, la collision entre l'ion incident de masse  $M_1$  et d'énergie cinétique  $E$  avec un atome, initialement immobile et de masse  $M_2$  [3]. Le triangle superposé aux deux orbites des particules s'appelle le *triangle de diffusion*. Il est constitué de différentes grandeurs comme  $p$ , le paramètre d'impact,  $R_0$ , la distance minimum d'approche,  $\rho_1$  et  $\rho_2$ , les rayons de courbure des trajectoires au minimum d'approche, et  $\delta_1$  et  $\delta_2$ , deux termes de correction pour fermer le triangle. L'accès à tous ces paramètres rend aisée l'expression de l'angle  $\theta$  par la relation :

$$\cos \frac{\theta}{2} = \frac{\rho + P + \delta}{\rho + R_0} \quad (\text{II-8})$$

avec  $\rho = \rho_1 + \rho_2$  et  $\delta = \delta_1 + \delta_2$



**Figure.II-8 :** représentation d'une collision entre deux particules dans le CM.  $\theta$  est l'angle de diffusion,  $P$  le paramètre d'impact,  $\rho_1$  et  $\rho_2$ , les rayons de courbure des trajectoires,  $R_0$ , la distance minimum d'approche et  $\delta_1$  et  $\delta_2$ , deux termes de correction. On peut exprimer le cosinus de  $\theta/2$  en fonction de tous ces paramètres.

Toutes les valeurs citées sont accessibles [3,15]. La valeur de  $\theta$  peut donc se calculer et l'on peut ainsi revenir au parcours de l'ion éjectée dans la cible, la distribution finale des parcours est calculée à partir de la théorie de transport, d'une façon statistique (méthode Monte-Carlo) ou analytique par la simulation directe des trajectoires des ions implantés. Le problème commun de ces traitements est la description des interactions entre les ions en mouvement et les atomes de la cible comme des collisions binaires (Approximation des collisions binaires).

Et enfin l'équation de mouvement classique (ou intégrale de diffusion) (II-1) est remplacée par des formules numériques ou analytiques simplifiées.

$$\theta = \pi - 2 \int_{r_{\min}}^{+\infty} \frac{p dr}{r^2 \left[ 1 - \frac{V(r)}{E_c} - \left(\frac{p}{r}\right)^2 \right]^{1/2}} \quad (\text{II-9})$$

$$E_c \text{ est l'énergie totale du CM, } E_c = \frac{1}{2} M_c V_0^2$$

$V(r)$  est le potentiel d'interaction et  $P$  le paramètre d'impact.

L'équation (II-9) est l'équation principale de mouvement qui donne l'angle final de diffusion dans le CM (centre de masse). C'est l'équation fondamentale du mouvement utilisée dans les différents codes de calculs.

#### II.2.2.4. Expression de la perte d'énergie:

L'expression analytique de la perte d'énergie rend compte du type d'interaction mise en jeu entre la particule incidente et l'atome cible. Il est presque toujours supposé que ces interactions se produisent par collisions binaires, indépendantes et nous négligerons les effets collectifs impliquant plusieurs atomes cibles à la fois. La probabilité  $dP$  pour qu'un ion entrant dans un matériau de densité atomique  $N$  et une énergie de transfert  $T$ , subisse une collision dans un intervalle de parcours  $\Delta x$  est :

$$dP(\sigma) = N \cdot d\sigma(E, T) \cdot \Delta x \quad (\text{II-10})$$

Où  $d\sigma$  est la probabilité de transfert d'une énergie  $T$  par une particule d'énergie  $E$ . L'énergie moyenne perdue dans l'intervalle  $\Delta x$  sera:

$$\Delta E = - \int T_{(transmis)} dP = -N \Delta x \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma(E, T) \quad (\text{II-11})$$

avec  $T_{\min} = 0$

Si  $\Delta x$  tend vers  $dx$ , on définit le pouvoir d'arrêt nucléaire comme étant égal à :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = -N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \cdot d\sigma(E, T) \quad (\text{II-12})$$

### II.2.2.5. Perte d'énergie nucléaire:

Soit une particule incidente de masse  $M_1$ , de charge  $Z_{1e}$  et d'énergie cinétique  $E_1$  se dirigeant avec un paramètre d'impact  $P$  vers un atome cible au repos de masse  $M_2$ , de charge  $Z_{2e}$ . La particule 1 subit une répulsion coulombienne qui la dévie d'un angle  $\theta$  ( $F = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r^2}$  dans le système CGS). D'après la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, la relation qui lie le paramètre d'impact à l'angle de diffusion est (figure II-9) :

$$P = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E} \cot\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (\text{II-13})$$

La distance minimale d'approche,  $d$ , s'écrit :

$$d = 2b \tan\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (\text{II-14})$$

L'énergie transférée au cours de la collision avec l'atome cible est :

$$T = T_{\max} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (\text{II-15})$$

où  $T_{\max}$  est l'énergie maximale transférée lors d'un choc frontal ( $P=0$ ,  $\theta = 180^\circ$ ) :

$$T_{\max} = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)} E \quad (\text{II-16})$$

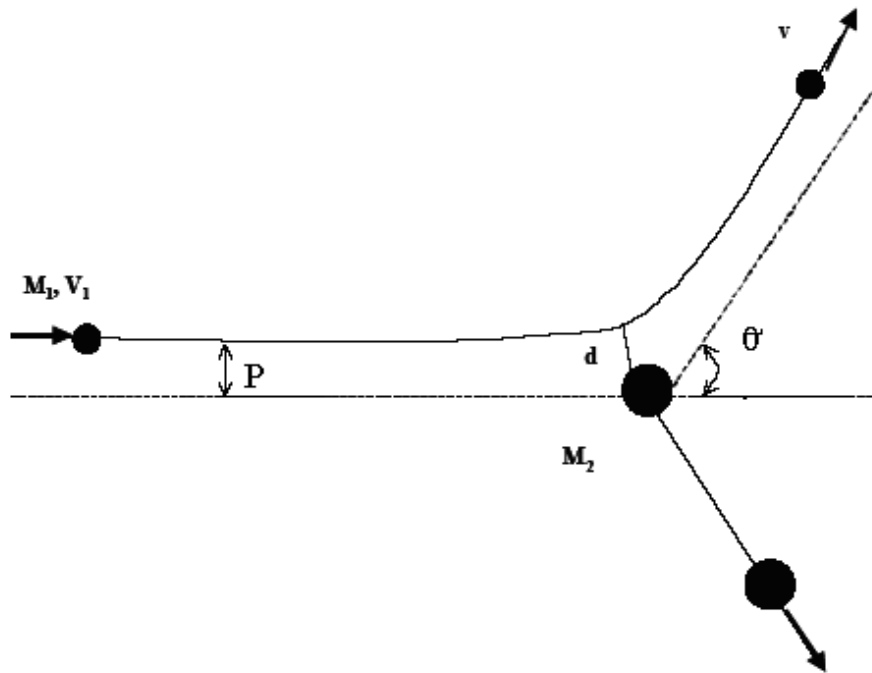


Figure. II-9 : Interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact.

L'énergie transférée peut être exprimée en fonction du paramètre d'impact  $P$  et de la distance minimale d'approche  $d$  par la relation :

$$T = \frac{T_{\max}}{1 + \left(\frac{2P}{d}\right)^2} \quad (\text{II-17})$$

### II.2.2.6. Notion de section efficace:

A ce stade de l'exposé, il faut définir cette quantité, qui joue un rôle très fondamentale dans toutes les interactions de la physique. Pour une interaction donnée, quelque soit sa nature, la section efficace  $\sigma$  est l'aire utile que présente la cible pour cette interaction.

La section efficace différentielle est :

$$d\sigma = 2\pi P dP \quad (\text{II-18})$$

La perte d'énergie par choc nucléaire s'écrit comme l'équation (II-12), et en intégrant entre les valeurs minimale et maximale de l'énergie transférée, nous obtenons la relation suivante :



$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = 2\pi N \frac{(Z_1 Z_2 e^2)^2}{M_2 v^2} \ln\left(\frac{T_{\max}}{T_{\min}}\right) \quad (\text{II-19})$$

Au fur et à mesure que la vitesse de l'ion diminue, la distance minimale d'approche du noyau cible augmente. Nous venons de voir que lorsque la vitesse de l'ion est de l'ordre de celle de ses électrons périphériques, il a tendance à devenir neutre. Dans ces conditions, le potentiel décrivant l'interaction entre la particule projectile et l'atome cible peut être considéré comme un potentiel de Coulomb écranté de type Thomas-Fermi :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (\text{II-20})$$

dont la fonction d'écrantage est égale à :

$$\Phi\left(\frac{r}{a}\right) = \frac{a}{2r} \quad (\text{II-21})$$

d'où le potentiel d'interaction :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2 a}{2r^2} \quad (\text{II-22})$$

La perte d'énergie par choc nucléaire s'écrit donc :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = \frac{\pi^2 N Z_1 Z_2 e^2 a M_1}{2(M_1 + M_2)} \quad (\text{II-23})$$

Lindhard et al [5] ont exprimé la perte d'énergie par choc nucléaire en utilisant une énergie réduite  $\varepsilon$  (sans dimension) :

$$\varepsilon = \frac{M_2}{M_1 + M_2} E \frac{4\pi\varepsilon_0 a}{Z_1 Z_2 e^2} \quad (\text{II-24})$$

Et une longueur réduite  $\rho$  :

$$\rho = x N M_2 4\pi a^2 \frac{M_1}{(M_1 + M_2)^2} \quad (\text{II-25})$$

La perte d'énergie avec ces variables devient :

$$\frac{dE}{dx} = aNZ_1Z_2e^2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} \frac{d\varepsilon}{d\rho} \quad (\text{II-26})$$

où  $\frac{d\varepsilon}{d\rho}$  dépend de la forme du potentiel  $V(r)$  utilisé et donc de la forme de la fonction de Fermi. Selon l'approximation de Kalbitzer et Al [9], cette perte d'énergie peut s'écrire:

$$\left( \frac{d\varepsilon}{d\rho} \right)_n = \frac{1,7\varepsilon^{1/2} \log(\varepsilon + e)}{1 + 6,8\varepsilon + 3,4\varepsilon^{3/2}} \quad (\text{II-27})$$

Cette relation reste la même quel que soit le couple projectile-atome cible. C'est une fonction universelle de la perte d'énergie nucléaire.

### II.2.2.7. Perte d'énergie électronique:

Cette fois, l'interaction a lieu entre la particule incidente et les électrons de l'atome cible. Les approximations précédentes restent valables dans ce cas, à savoir une collision entre charges ponctuelles. L'équation (II-19) est modifiée, la masse  $M_2$  est remplacée par celle de l'électron ainsi que la charge qui devient  $e$  au lieu de  $Z_2 e$ .

La perte d'énergie électronique pour  $Z_2$  électrons devient :

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_e = 2\pi N \frac{Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \ln \left( \frac{T_{\max}}{T_{\min}} \right) \quad (\text{II-28})$$

L'énergie maximale transférée aux électrons est d'après l'équation (II-16) :

$$T_{\max} \cong 2m_e v^2 \quad (\text{II-29})$$

Car le rapport des masses entre un ion et un électron,  $M_1/m_e$ , est  $\gg 1$ . Pour avoir l'expression complète de la perte d'énergie électronique, il faut évaluer le transfert d'énergie minimale.  $T_{\min}$  peut être considérée comme une énergie moyenne d'ionisation  $I$  qui tiendrait compte de la possibilité d'ioniser l'atome cible considéré.

Si le projectile est un ion lourd, la charge  $Z_1$  varie le long de son parcours. En effet, lorsque celui-ci est ralenti lors de sa pénétration dans la matière, il tend à devenir neutre par

capture électronique. Il faut donc considérer sa charge effective notée  $Z_1^*$  dans l'équation (II-19). Cette charge est estimée par la relation de Barkas [7] par :

$$Z_1^* = Z_1 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{130\beta}{Z_1^{2/3}}\right) \right] \quad (\text{II-30})$$

où  $\beta = V/V_e$  avec  $V$  et  $V_e$  respectivement correspond à la vitesse de projectile et la vitesse des électrons de Bohr.

L'équation (II-28) : montre que la perte d'énergie électronique varie en  $1/V^2$ , soit en  $1/E$ . Cette perte d'énergie est aussi proportionnelle au carré de la charge effective  $Z_1^{*2}$  de l'ion projectile. Enfin, on peut remarquer que, du fait de la faible masse des électrons, les collisions avec les électrons dévient faiblement la trajectoire de l'ion incident et que les transferts d'énergie sont très petits devant l'énergie de la particule incidente.

L'évolution de la charge effective  $Z_1^*$  des ions lourds incidents est responsable du maximum de la courbe de perte d'énergie électronique en fonction de la vitesse de l'ion incident (pic de Bragg). Tant que la vitesse  $V$  de l'ion incident est supérieur à celle  $V_e$  de ses électrons, la perte d'énergie varie en  $(\ln E)/E$ , alors qu'à des énergies plus faibles elle varie en  $\ln E$ .

### II.2.2.8. Comparaison entre les pertes d'énergie nucléaire et électronique :

#### a). grande vitesse :

Le rapport entre les pertes d'énergie nucléaire et électronique (en négligeant les variations logarithmiques puisqu'on considère des vitesses élevées du projectile) s'exprime par :

$$\frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_n}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_e} = \frac{Z_2 m_e}{M_2} \approx \frac{1}{3600} \quad (\text{II-31})$$

et par conséquent :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e \gg \left(\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (\text{II-32})$$

La perte d'énergie nucléaire est négligeable devant la perte d'énergie électronique aux grandes vitesses. Les collisions inélastiques sont majoritaires et la perte d'énergie totale est inversement proportionnel à l'énergie de la particule incidente.

**b). Faible vitesse :**

**b.1) perte d'énergie nucléaire :**

A faible vitesse, la vitesse de l'ion est inférieure à celle de ses électrons. Dans ces conditions, la probabilité qu'a l'ion de se neutraliser est importante et les collisions entre le projectile et les électrons périphériques sont quasi élastiques. Ceci conduit à utiliser un potentiel coulombien écranté de type Thomas-Fermi :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \varphi_{TF} \left( \frac{r}{a_{12}} \right) \quad (\text{II-33})$$

où  $\varphi_{TF} \left( \frac{r}{a_{12}} \right)$  est la fonction de Fermi,  $a$  est le rayon d'écrantage de Thomas-Fermi que

L'on exprime sous la forme :

$$a_{12} = 0,8853 \frac{a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (\text{II-34})$$

avec  $a_0 = 0,53A^0$  (rayon de Bhor) et  $a_{12}$  : est le rayon d'écran pris par Lindhard.

Dans cette gamme d'énergie la perte d'énergie nucléaire est dominante, c'est la phase des cascades des collisions.

Ziegler et al [5] introduisent un nouveau potentiel (ZBL) basé sur le modèle de la densité locale utilisant la méthode self consistant de Hartree-Fock, et une fonction d'écran universelle ainsi que la longueur d'écran (II-34).

$$a_u = 0.8854 \cdot a_0 (Z_1^{0,23} + Z_2^{0,23})^{-1} \quad (\text{II-35})$$

Puis, pour simplifier les calculs, les auteurs introduisent l'énergie réduite sans dimension " $\varepsilon$ " [5] :

$$\varepsilon = \frac{a_u \cdot M_2}{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot (M_1 + M_2)} E \quad (\text{II-36})$$

$E$  est l'énergie de l'ion incident,  $M_1$  et  $M_2$  sont les masses et  $Z_1$  et  $Z_2$  les numéros atomiques respectivement de l'ion et de l'atome cible, " $e$ " est la charge de l'électron. Cette transformation a pour but de simplifier considérablement les équations de collision.

### b.2) Perte d'énergie électronique :

A partir de ce potentiel écranté, Lindhard, Scharff et Schiott ont élaboré une théorie (Dite théorie LSS) [5] qui permet de donner une expression analytique de la perte d'énergie électronique :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{8N\pi e^2 a_0 Z_1^{7/6} Z_2 v_1}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} v_0} \quad (\text{II-37})$$

37)

Cette formule montre que la perte d'énergie varie comme la vitesse du projectile  $V_1$  et donc comme  $E^{1/2}$ .

En utilisant les coordonnées réduites, on obtient l'expression de la perte d'énergie électronique suivante :

$$\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_e = K\varepsilon^{1/2} \quad (\text{II-38})$$

où le facteur de proportionnalité  $K$  dépend du projectile et de la cible considérés, mais puisque la perte d'énergie électronique passe par une crête à environ 90KeV/amu, ceci limite l'applicabilité de la théorie de LSS aux énergies au-dessous de cette valeur.

D'après la figure.II-10, on remarque que dans le domaine des faibles vitesses, les collisions élastiques entre particule incidente et atome cible sont prédominantes. Le principal mode de ralentissement est la perte d'énergie nucléaire.

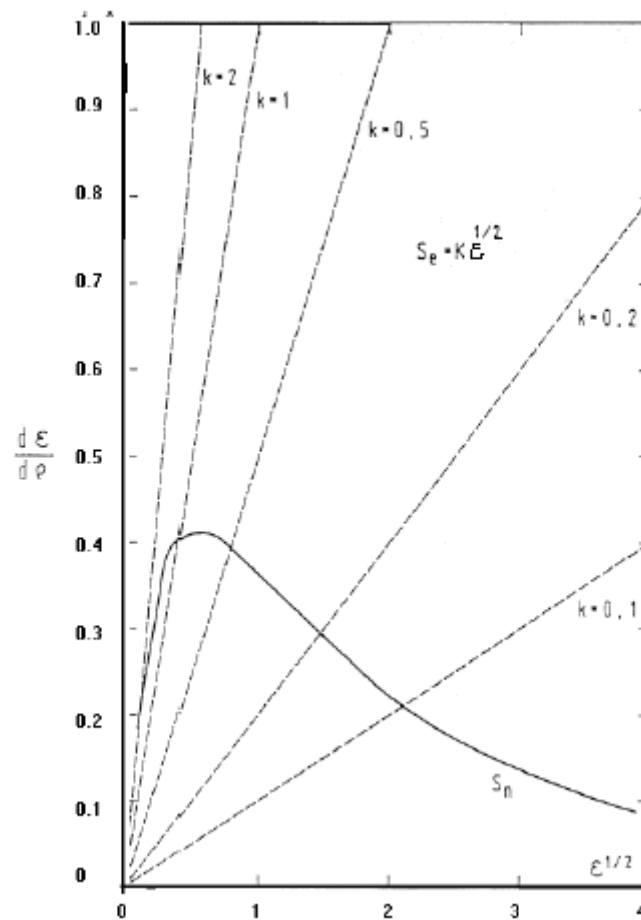


Figure. II-10 : Pouvoir d'arrêt nucléaire (courbe pleine) et pouvoir d'arrêt électronique (en pointillé).

Ces différentes considérations nous amènent à mieux comprendre la nature des dégâts d'irradiation dans les céramiques retenues pour le conditionnement des actinides. En effet, lors de la désintégration alpha, l'interaction de la particule alpha, d'énergie environ de 4 à 6MeV, avec le solide peut être traitée selon le modèle à grande vitesse, qui privilégie les collisions inélastiques, alors que l'interaction du noyau de recul, avec une énergie cinétique de l'ordre de 100keV et une masse voisine de celle de l'uranium, suit le modèle à faible vitesse, où les collisions sont majoritairement élastiques. Dans ce cas, la perte d'énergie totale est assimilable à la perte d'énergie nucléaire.

Ainsi, dans la désintégration alpha, les effets du noyau de recul et la particule alpha peuvent être étudiés séparément, puisqu'ils ne se déroulent pas dans le même domaine d'énergie.

Les déplacements atomiques induits par les collisions élastiques du noyau de recul causent la majorité de dégâts d'irradiation dans un cristal, alors que la particule alpha perd son énergie essentiellement par chocs inélastiques et n'augmente le nombre total moyen de déplacements atomiques que de 10 %.

### II.2.2.9. Dégâts créés par le dépôt d'énergie nucléaire:

Lorsque les collisions élastiques ont lieu près de la surface du matériau, l'énergie communiquée aux atomes des couches superficielles peut être suffisante pour qu'ils atteignent la surface. Si leur énergie est supérieure à  $E_s$ , l'énergie de sublimation d'une cible mono élémentaire, ils vont quitter la surface. On parle alors de pulvérisation. Ce seuil d'énergie de l'ordre de 2eV pour une cible mono élémentaire comme le silicium, par exemple. Cependant, pour les doses d'irradiation utilisées dans ce travail, le phénomène pulvérisation est peu observable.

Lorsque les interactions se produisent à l'intérieur du matériau, des déplacements atomiques ont lieu lorsque l'énergie transférée aux atomes cibles est au moins égale à une énergie seuil de déplacement appelée  $E_d$ . Cette énergie seuil qui varie avec la nature des éléments dans une même matrice est la somme de deux termes : le premier est l'énergie nécessaire à la rupture des liaisons de l'atome à déplacer, le second est l'énergie nécessaire pour franchir la barrière de potentiel existant entre son site stable dans le réseau et la position interstitielle ou substitutionnelle dans laquelle il aura été déplacé. Ce dernier terme constitue la majeure partie de l'énergie seuil de déplacement. En moyenne, la valeur de  $E_d$  est de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Dans le cas des céramiques envisagées pour le stockage des déchets nucléaires, elle est mal connue, et on prendra, pour simuler les cascades,  $E_d=25\text{eV}$  pour tous les atomes constituant la matrice.

Un premier atome choqué par l'ion incident ne pourra être déplacé que si l'énergie  $T_1$  qui lui est transférée est supérieure ou égale à  $E_d$ . Si  $T_1$  est supérieure à  $2E_d$ , l'atome choqué, peut à son tour constituer un projectile et déplacer un autre atome auquel il transférera une énergie  $T_2$ . Si cette énergie est supérieure au  $2E_d$  le même phénomène peut se poursuivre et une cascade de déplacement se développe tant que des atomes posséderont une

énergie supérieure à  $2E_d$ . (cf. figure.I-11). Le temps de thermalisation d'une cascade est de l'ordre de  $10^{-11}$  secondes [10].

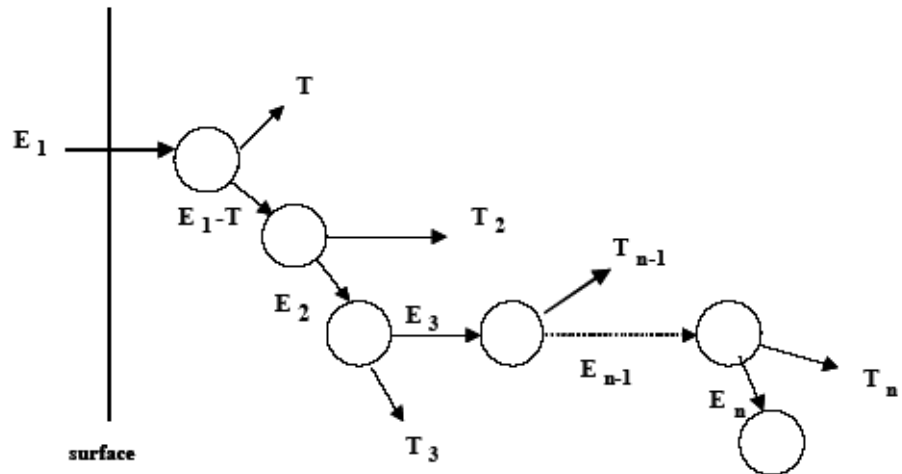


Figure. II-11: Formation d'une cascade de déplacement.

Le projectile crée donc un volume désordonné autour de sa trajectoire et la distribution du nombre de défauts à l'intérieur de ce volume est fonction de la perte d'énergie nucléaire de chaque projectile. Comme cette dernière est aléatoire, la distribution des défauts peut être approximativement assimilée (pour des ions d'énergie de quelque KeV/uma) à une gaussienne.

### II.2.2.10. Dispersion en énergie du faisceau incident : le « straggling »

Au cours des collisions élastiques et inélastiques le transfert d'énergie est différent pour chaque particule du faisceau et induit une dispersion en énergie  $\Delta E$  du faisceau. La loi statistique décrivant la dispersion en énergie, ou « **straggling** », peut être représentée par une gaussienne lorsque la perte d'énergie est faible devant l'énergie initiale de la particule (Inférieure à une valeur comprise entre 10% et 20%).

Soit  $\sigma^2$  la variance autour d'une perte d'énergie moyenne pour une particule traversant une épaisseur  $x$  de matière avec une densité atomique  $N$ , on a:

$$\sigma^2 = 4\pi(Z_1e^2)NZ_2x \quad (\text{II-39})$$

La dispersion en énergie s'écrit alors :

$$\Delta E = 2.35\sigma \quad (\text{II-40})$$



### II.2.2.11. Différents potentiels d'interactions :

On considère que le projectile en mouvement passe devant l'atome cible stationnaire, et le transfert d'énergie est complexe à cause de l'interprétation des cortèges électroniques, (effet d'écran), on utilise la physique des collisions de Coulomb (écrantée et quantifiée). Parmi les modèles de potentiels inter atomiques qui ont été largement utilisés dans les calculs du pouvoir d'arrêt :

- L'approximation de Sommerfeld du potentiel de Thomas-Fermi
- L'approximation de Molière
- L'approximation de Lenz-Jensen
- L'approximation de Bohr.
- L'approximation de Z- B- L
- L'approximation de Kr-C
- L'approximation de K-J-B
- Gamma.

Tous ces potentiels sont sous forme d'un terme de Coulomb en  $1/r$  multiplié par les fonctions d'écrans de ces approximations.

#### II.2.2.11.a. Autre modèles de potentiels :

Si chaque atome a une distribution de charge  $\rho(x)$  (symétrie sphérique), avec au centre de la charge  $Z_e$ . Le volume de normalisation  $Z = \int \rho dx^3$ , quand l'ion incident et l'atome émergent, on suppose qu'il n'y a pas une distorsion spatiale des électrons et chaque nucléide est au centre.

$$V = V_{c+} + V_{en+} + V_{ee+} + V_{k+} + V_a$$

$$\text{Avec } V_c = V_{nn+} + V_{en+} + V_{ee}$$

$$\Rightarrow V = V_{c+} + V_{k+} + V_a \tag{II-41}$$

$V_{nn}$  : potentiel électrostatique entre les nucléons.

$V_{ee}$  : potentiel électrostatique entre les deux distributions électroniques.

$V_{en}$  : l'énergie d'interaction entre chaque nucléon et la distribution de charge de l'autre atome.

$V_k$  : l'augmentation de l'énergie cinétique des électrons dans les régions d'interactions entre les deux distributions à cause du principe de Pauli.

$V_a$  : l'augmentation de l'énergie de l'effet d'échanges de ces électrons.

$$V_{nn} = \frac{Z_1 Z_2 \cdot e^2}{r_{12}} \quad (\text{II-42})$$

$r_{12}$  : Distance entre les deux nucléon.

$$V_{en} = -Z_1 e^2 \left[ \int_{r_{12}}^{\infty} \left( \frac{4\pi \cdot r^2 \rho_2}{r} \right) dr + \frac{1}{r_{12}} \int_0^{r_{12}} (4\pi r^2 \rho_2) dr \right]$$

$$Q_2(r) \equiv \int_0^{r_0} 4\pi r^2 \rho_2 dr$$

$$\Psi_2(r_0) \equiv \int_{r_0}^{\infty} \frac{4\pi r^2 \rho_2}{r} dr$$

$$V_{en} = -Z_1 e^2 \left[ \Psi_2(r_{12}) + \frac{Q(r_{12})}{r_{12}} \right] \quad (\text{II-43})$$

$$\delta V_{ee} = e^2 \left[ \Psi_2(r_2) + \frac{Q_2(r_2)}{r_2} \right] \rho_1 \delta x^3$$

$$V_{ee} = e^2 \int \left[ \Psi_2(r_2) + \frac{Q_2(r_2)}{r_2} \right] \rho_1 dx^3 \quad (\text{II-44})$$

$$V_k(\text{total}) = \left[ \frac{3 \hbar^2 \pi^2}{5} \left( \frac{3}{\pi} \right)^{\frac{2}{3}} \right] \int \rho^{\frac{5}{3}} dx^3$$

$\rho = \rho_1 + \rho_2$  : la densité d'électrons dans l'élément de volume  $dx^3$ ,  $m$  : la masse de l'électron.

$$V_k = K_k \int \left[ (\rho_1 + \rho_2)^{\frac{5}{3}} - \left( \rho_1^{\frac{5}{3}} + \rho_2^{\frac{5}{3}} \right) \right] dx^3, K_k = 21.88 \text{ eV } \text{Å}^\circ \quad (\text{II-45})$$

$$V_a(\text{total}) = - \left[ \frac{3e^2}{4} \left( \frac{3}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \int \rho^{\frac{4}{3}} dx^3$$

$$V_a = -K_a \int [(\rho_1 + \rho_2)^{\frac{4}{3}} - (\rho_1^{\frac{4}{3}} + \rho_2^{\frac{4}{3}})] dx^3, K_a = 10.635 \text{ eV } \text{Å}^\circ \quad (\text{II-46})$$

Enfin  $V = V_c + V_k + V_a$ .

- Potentiel est calculé par Biersack et Haggmark [11] à partir de la fonction d'écran universelle  $\Phi_u(x)$ . Cette fonction interatomique est faite par une série à trois exponentiels [8].

$$\Phi(x) = \sum_{i=1}^{i=3} a_i \exp(-b_i x) \quad (\text{II-47})$$

avec  $a_i$  et  $b_i$  des constantes calculées et  $\Phi(x=0)=1$

$\sum_{i=1}^{i=3} a_i = 1$ , pour la fonction d'écran universelle et s'écrit :

$$\Phi_u(x) = 0.1818e^{-3.2x} + 0.5099e^{-0.9423x} + 0.2802e^{-0.4029x} + 0.02817e^{-0.2016x} \quad (\text{II-48})$$

Ou la coordonnée radial réduit  $x$  est définie comme,  $x = r_{12} / a_u$

avec  $a_u$  est la longueur d'écran universelle, Equation (II-35).

Donc le potentiel peut être écrit :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi_u(x) \quad (\text{II-49})$$

#### II.2.2.12. Fonctions d'écrans :

La fonction d'écran est définie comme le rapport entre le potentiel réel sur le potentiel de Coulomb sans effet d'écran.

$$\Phi(r) = \frac{V(r)}{Z_e / r} \quad (\text{II-50})$$

$V(r)$  : Potentiel réel au point  $r$ .

Il y a trois approches utilisées pour le calcul de la fonction d'écran, et donc du potentiel d'interaction.

### II.3. Distribution en profondeur des ions implantés :

#### II.3.1. Les Parcours :

Une schématisation du parcours de quelques ions introduits dans un matériau amorphe est donnée sur la Fig.II-12. Tous les ions sont implantés avec la même énergie à travers un masque d'épaisseur déterminée.

Soit  $R$  la distance totale parcourue par un ion dans le matériau. Elle est déterminée à partir des pouvoirs d'arrêt nucléaire  $S_n$  et électronique  $S_e$ . Nous avons en effet la relation suivante :

$$R = \int_0^R dr = \frac{1}{N} \int_0^E \frac{dE}{S_n + S_e} \quad (\text{II-51})$$

Chaque ion suit donc une trajectoire bien particulière dans le matériau, dépendante des diverses collisions obtenues avec les atomes cibles. Notons que cette trajectoire possède un caractère fortement aléatoire, du fait du caractère isotrope du matériau implanté. Les atomes cibles sont ainsi considérés comme étant placés au hasard dans le volume.

La longueur  $R$  est difficilement exploitable expérimentalement, et nous préférons utiliser  $R_p$ , projection de  $R$  sur la direction perpendiculaire à la surface du matériau implanté.  $R_p$  sera appelé parcours moyen projeté, car il correspond en fait à la moyenne de tous les parcours projetés particulière. Il peut être déterminé ainsi :

$$R_p = \frac{1}{\phi} \int x n(x) dx \tag{II-52}$$

$\phi$  est la dose totale implantée (en ion/cm<sup>2</sup>). La fonction  $n(x)$  représente la distribution en profondeur de tous les ions, est elle peut être caractérisé à l'aide de ces moments de distributions. Un moment analytique d'ordre  $i$  est défini comme suit :

$$m_i = \frac{1}{\phi} \int_{-\infty}^{+\infty} (x - R_p)^i n(x) dx \tag{I-41}$$

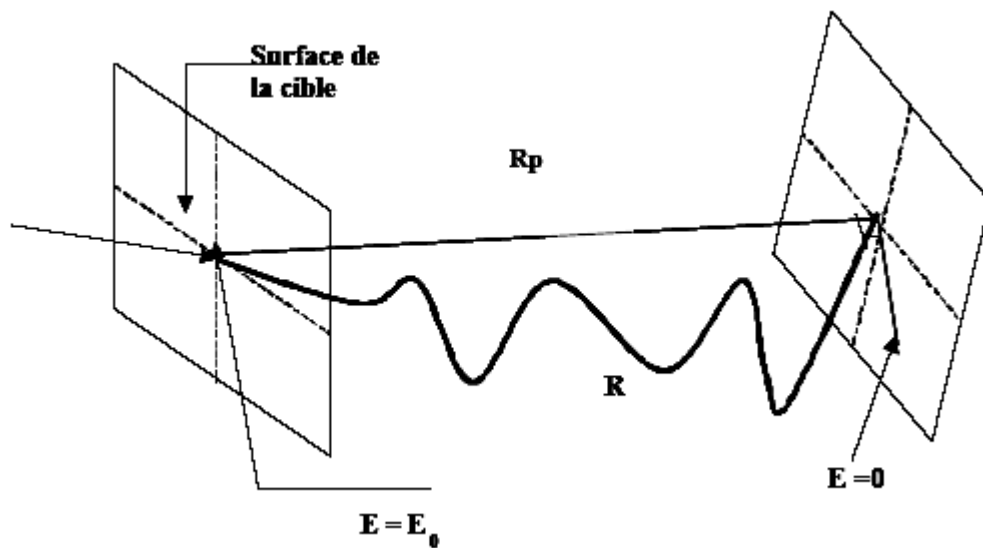


Figure. II-12: parcours projeté  $R_p$  et parcours total  $R$  d'un ion pénétrant dans la matière.

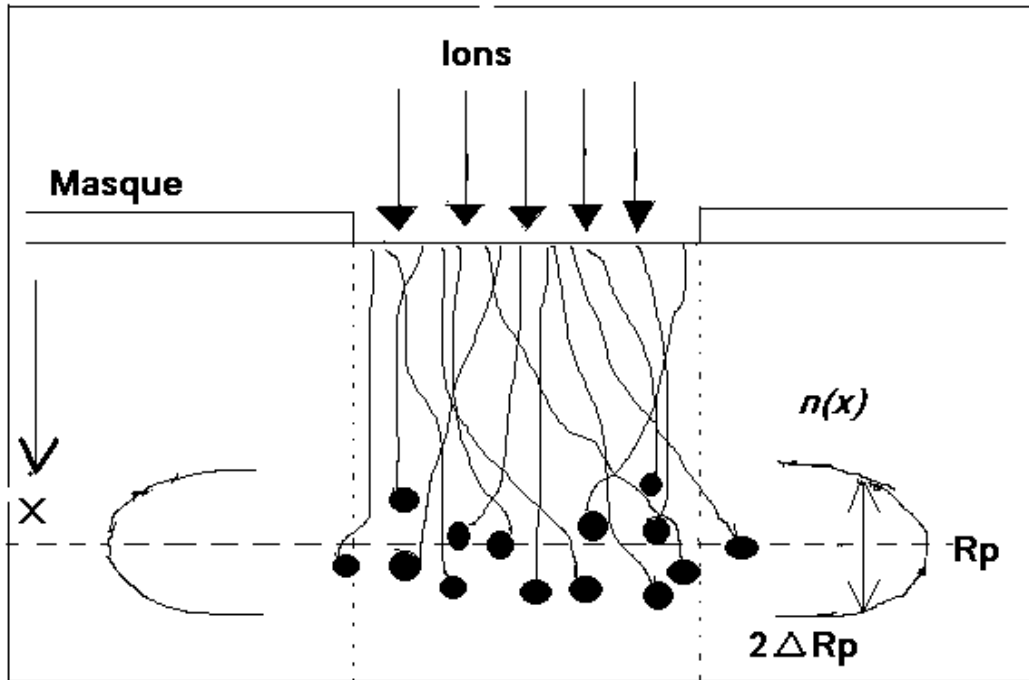


Figure.II-13: Schématisation d'une implantation ionique à travers un masque.

Suivant la méthode utilisée, la fonction de distribution  $n(x)$  est une fonction de Gauss ou Pearson ; et elle est toujours caractérisée par ces quatre premiers moments physiques. Ces moments sont définis à partir des moments analytiques de la fonction suivante :

- Le parcours moyen projeté. 
$$R_p = \frac{1}{\phi} \int x \cdot n(x) dx \quad (\text{II-53})$$

- La déviation standard qui représente l'écart type du pic.

$$\Delta R_p = \sqrt{\frac{m_2}{\phi}} \quad (\text{II-54})$$

- L'obliquité (ou Skewness), mesure l'asymétrie de la distribution, soit le positionnement du sommet de la courbe par rapport à  $R_p$ .

$$\gamma = \frac{m_3}{\Delta R_p^3} \quad (\text{II-55})$$

- Le Kurtosis mesure l'écrasement du pic (ou l'extension de la queue de distribution en volume).

$$\beta = \frac{m_4}{\Delta R_p^4} \quad (\text{II-56})$$

Notons l'existence d'une expression reliant les deux derniers paramètres, et qui peut s'avérer utile dans le cas où l'un des deux n'est pas directement accessible :

$$\beta \approx 2,91 + 1,56.\gamma^2 + 0,59.\gamma^4 \quad (\text{II-57})$$

### II.3.2. Création de défauts:

Le phénomène de création de défauts ponctuels par des chocs nucléaires est caractérisé par l'apparition d'une paire de Frenkel (c'est à dire apparition d'un interstitiel associé à une lacune). Si l'atome déplacé a récupéré assez d'énergie au cours du choc il pourra déplacer lui-même d'autres atomes du solide pour créer des paires de Frenkel.

Ce phénomène de cascade de collision se développe jusqu'à ce que les atomes en mouvement n'aient plus assez d'énergie pour déplacer d'autres atomes.

Kinchin-Pease en 1955 [17] a proposé une relation qui permet d'évaluer le nombre d'atomes déplacés par ion d'énergie  $E$  ( $N(E)$ ), pénétrant dans un solide.

$$N(E) = \frac{0.8 \left(\frac{dE}{dX}\right)_n \Phi_0}{2N_a} \quad (\text{II-58})$$

$\left(\frac{dE}{dX}\right)_n$  : la perte d'énergie nucléaire,  $\Phi_0$  : la dose d'implantation (en nombre/cm<sup>2</sup>),  $N$  : la densité atomique de la cible.

M. T. Robinson [16] donne une approximation analytique à partir de la relation de Kinchin-Pease, qui une estimation simple du nombre des lacunes ou de défauts produit de la façon suivante.

Soit  $E_N$  : l'énergie de production de défauts, qui est en fonction de l'énergie transférée  $T$ .

$$E_N = \frac{T}{1 + k_d g(\varepsilon_d)} \quad (\text{II-59})$$

ou  $g(\varepsilon_d)$  : est la contribution de la perte d'énergie électronique ;

$$k_d = 0.1334 Z_2^{2/3} M_2^{-1/2}$$

$$g(\varepsilon_d) = \varepsilon_d + 0.40244 \varepsilon_d^{3/4} + 3.4008 \varepsilon_d^{1/6}$$

avec

$$\varepsilon_d = 0.01014 Z_2^{-7/3} T$$

a partir de  $E_N$  le nombre de déplacement est calculé par le modèle de Kinchin-Pease par :

$$N = 1 \quad \text{si} \quad E_d < E_N < 2.5E_d. \quad (\text{II-60})$$

$$N = \frac{0.8E_N}{2E_d} \quad \text{si} \quad E_N > 2.5E_d.$$

avec  $E_d$  : l'énergie seuil de déplacement

### II.3.3. Distribution de Gauss :

La première distribution utilisée a été la distribution gaussienne, dont l'expression analytique est la suivante :

$$n(x) = n_0 \exp \left[ \frac{-(x - R_p)^2}{2\Delta R_p^2} \right] \quad (\text{II-61})$$

L'intégration de cette expression nous donne la valeur du pic de concentration  $n_0$  :

$$n_0 = \frac{\phi}{\sqrt{2\pi}\Delta R_p} \approx \frac{0.4\phi}{\Delta R_p} \quad (\text{II-62})$$

$\phi$  est la dose totale implantée (en ion/cm<sup>3</sup>).

Notons que les valeurs de  $\beta$  et  $\gamma$  sont pour les courbes de Gauss, respectivement égales à 0 et 3. Gibbons et al, ont répertorié les valeurs de  $R_p$  et  $\Delta R_p$  pour une combinaison importante d'ions et de matériaux cible amorphe [10].

Les travaux de Hofker et al sur l'implantation de bore dans le silicium ont montré que les profils de distribution devenaient de plus en plus asymétriques à mesure que l'énergie d'implantation augmentait [11]. En effet, s'il était connu que les deux premiers moments ( $R_p$  et  $\Delta R_p$ ) sont proportionnels à l'énergie, il s'est avéré que  $\beta$  et  $\gamma$  l'étaient également.

Gibbon et al, avaient déjà proposé une méthode pour approximer analytiquement des distributions non symétriques [12]. L'estimation du profil se fait avec deux moitiés de gaussiennes se rejoignant en un point  $R_m$ , défini comme étant le parcours projeté nodal. Pour des distances projeté  $X_p < R_m$ , la courbe possédant un écart type  $\Delta R_{p1}$ , et pour  $X_p > R_m$ , un second écart type  $\Delta R_{p2}$  est utilisé. En choisissons le bon  $R_m$ ,  $\Delta R_{p1}$  et  $\Delta R_{p2}$ , les profils expérimentaux peuvent être bien approximé ; à condition toutefois que le troisième moment  $\gamma$  reste inférieur à la déviation standard :

$$n(x) = \frac{2\phi}{(\Delta R_{p1} + \Delta R_{p2})2\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(x - R_m)^2}{2\Delta R_{p1}^2}\right] \quad x \geq R_m \quad (\text{II-63})$$

$$n(x) = \frac{2\phi}{(\Delta R_{p1} + \Delta R_{p2})2\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(x - R_m)^2}{2\Delta R_{p2}^2}\right] \quad 0 \leq x \leq R_m$$

$R_m$ ,  $\Delta R_{p1}$  et  $\Delta R_{p2}$  peuvent être calculés, par exemple à partir des données sous forme de tableaux des Gibbons [12].

### II.3.4. Distribution de Pearson :

D'autres types de distributions ont été utilisés pour décrire la localisation des impuretés implantées dans le matériau de façon plus précise. La famille de Pearson, utilisée en statique descriptive, est la plus courante. Cette famille de courbe est donnée par la solution de équation différentielle suivante :

$$\frac{dn(s)}{ds} = \frac{(s - a)n(s)}{b_0 + b_1s + b_2s^2} \quad (\text{II-64})$$

ou  $s = x - R_p$

Il existe sept solutions différentes à l'équation de Pearson. Pour déterminer quelle est la plus adaptée, quatre coefficients sont calculés à partir des moments physique [13].

$$a = -\frac{\Delta R_p \gamma (\beta + 3)}{A}$$

$$b_0 = -\frac{\Delta R_p^2 (4\beta - 3\gamma^2)}{A}$$

$$b_1 = a$$

$$b_2 = -\frac{(2\beta - 3\gamma^2 - 6)}{A} \quad (\text{II-65})$$

ou  $A = 10\beta - 12\gamma^2 - 18$



Le type de la distribution de Pearson dépend désormais du signe algébrique du déterminant  $D = 4b_0b_2 - b_1^2$ . Pour les profils résultant d'implantations ioniques, le type généralement utilisé est le type IV de Pearson avec quatre moments [14], pour lequel  $D$  est négatif. Le domaine de définition de ce type est infini, alors que les autres posent un domaine restreint.

Le maximum de la courbe est situé au point  $x = (R_p + a)$ , et une croissance plus ou moins prononcée vers zéro se produit des deux cotés (en surface et en volume). L'intégration de Eq. (II-64), dans les conditions de la solution particulière du type IV, donne la relation :

$$\ln \left[ \frac{n(s)}{n_0} \right] = \frac{1}{2b_2} \ln(b_0 + b_1s + b_2s^2) - \frac{b_1/b_2 + 2b_1}{\sqrt{4b_0b_2 - b_1^2}} \tan^{-1} \left( \frac{2b_2s + b_1}{\sqrt{4b_0b_2 - b_1^2}} \right) \quad (\text{II-66})$$

### II.3.5. Autre distribution d'implantation :

On a proposé de diverses autres fonctions de distribution pour la description des profils d'implantation. On peut représenter les concentrations  $C(x)$  des différents cas en fonction de la profondeur pour différentes énergies en utilisant la fonction de Edgeworth [18] qui résulte d'une expansion de la fonction gaussienne dans des polynômes hermitiens de Chebychev, et utilisé également quatre moments. Le profil d'implantation est donné par :

$$C(x) = \frac{\phi_0}{\sqrt{2\pi}\Delta R_p} \cdot \exp \left[ -\frac{(x - R_p)^2}{2\Delta R_p^2} \right] \cdot G(x)$$

avec  $G(x) = 1 + \frac{\gamma}{6}(Z^3 - 3Z) + \frac{\beta - 3}{24}(Z^4 - 6Z + 3) + \frac{\gamma^2}{72}(Z^6 - 15Z^4 + 45Z^2 - 15) + \dots$

$$\text{et } Z = \frac{(x - R_p)}{2\Delta R_p^2}$$

Le Kurtosis est calculé selon Gibbon [18] est :  $\beta = 3 + \frac{5}{3}\gamma^2$ .

Dans ce cas-ci, pour le profil, ce qui suit s'applique :

$$C(x) = \frac{\phi_0}{\sqrt{2\pi}\Delta R_p} \cdot \exp \left[ -\frac{(x - R_p)^2}{2\Delta R_p^2} \right] \cdot \left( 1 + \frac{\gamma}{6}(Z^3 - 3Z) + \frac{\gamma^2}{72}(Z^6 - 10Z^4 + 15Z^2) \right)$$

## Références

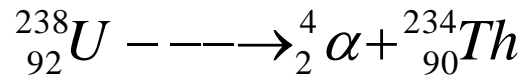
- [1] S.Hiadi Thèse doctorat 3<sup>ème</sup> Cycle 1897 IPN Université Claude Bernar Lyon I France.
- [2] N.Moncoffre N. Thèse 1986 IPN Université Claude Bernar Lyon I France.
- [3] J.F.Ziegler, J.P.Biersach, U.Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids", Vol 1 of the Stopping and Ranges of Ions in Matter, Ed J.F.Ziegler, Pergamon Press, New York (1985).
- [4] Hou M., Eckstein W. et Robinson M. T., Nucl. Instr. Methods B 82 (1993) 234
- [5] Lindhard J., Scharff M. and Shiott H. E., Mat. Phys. Medd., 33 (1963), 14, Range, concepts and heavy ion ranges.
- [6] Balanzat E., Bouffard S., Solid State Phenomena, 31-32 (1993) 7
- [7] Barkas H., Academic Press, New-York, chapter 9, 1 (1963), 371.
- [8] J.P. Biersack and J.F. Ziegler, Nucl. Instr. and Meth. 194, 93 (1982).
- [9] Kalbitzer S., Oetzman H., Grahmann H., Feuerstein A., simple universal fit formula to experimental nuclear stopping power data. Z. Phys., A 278, (1976), 3,223, A
- [10] Favennec P., « L'implantation ionique pour la microélectronique et l'optique », Ed Masson, (1993).
- [11] J.P.Biersack, L.G.Haggmark, Nucl. Inst and Meth, Vol 174, 257 (1980).
- [12] J.F. Gibbons, W.S. Johnson, and S.W. Mylroie, Projected Range Statistics in Semiconductors (Eds.: Dowden, Hutchinson, and Ross), Academic Press, Stroudsburg (1975).
- [13] W.K. Hofker, Philips Res. Repts., Suppl. No.8 (1975)
- [14] J.F. Gibbons and S. Mylroie, Appl. Phys. Lett. 22, 568 (1973)
- [15] M. Bertin, J.P.Faroux et J. Renault, Mécanique Classique de Systemes de Points et Notions de Relativité, Dunod Université, I, (1985).
- [16] M. T. Robinson, « Nuclear Fission Reactors », British Nuclear Energy Society. London, p 364, (1970).
- [17] H. Kinchin, R. S. Pease, Rep. Progr. Phys, 18, 1, (1955).
- [18] J.F. Gibbons, W.S. Jhonson, and S.W. Mylroie, Projected Range Statistics in Semiconductors (Eds.: Dowden, Hutchinson, and Ross), Academic Press, Stroudsburg (1975).



***Chapitre III :***  
***Résultats et Discussions***

### III.1.Introduction:

Dans la nature les actinides se désintègrent en particules alpha très énergétiques (énergie de désintégration comprise entre 4 à 9 MeV et des noyaux de recul entre 80 à 110 KeV), si on prend l'exemple de l'uranium 238, il se désintègre en particules alpha d'énergie de 4.2MeV et des noyaux de thorium d'énergie de l'ordre de 80KeV, suivant l'interaction nucléaire:



Et si on calcule le nombre de désintégration par seconde d'une quantité de 1gramme de l' $\text{U}^{238}$ .

$$T_{1/2} \approx 4,5 \cdot 10^9 \text{ ans} \approx 0,14 \cdot 10^{18} \text{ s}$$

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \Rightarrow \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \approx 4,95 \cdot 10^{-18}$$

1 gr d' $\text{U}^{238}$  correspond à :  $\frac{1\text{g} \cdot 6,02 \cdot 10^{23}}{238} \times 4,95 \cdot 10^{-18}$  désintégration par seconde

$\approx 0,125 \cdot 10^5$  dps, c'est-à-dire 12500 dps.

Si par exemple on prendre 1000 ans on a  $0,125 \cdot 10^5 \times 10^8 \approx 1,25 \cdot 10^{12}$  pour 1gr et si la quantité d' $\text{U}^{238}$  est plus grande que 1gr et si le temps est plus long, la fluence ou la dose reçue par les pérovskites est encore plus grande.

Dans nos calculs (**on a fixé la dose de particules incidentes à 10000 ions/cm<sup>2</sup>**), mais on peut facilement normaliser nos résultats à  $\phi \approx 10^{17}$  ions d'He/cm<sup>2</sup> pour les comparer avec ceux de la littérature [1].

Les particules alpha et les noyaux de recul généralement des noyaux radioactifs, sont immobilisés dans les Synroc (ou roches synthétiques) ou par les Perovskites (voir chapitre I). En général, dans les matériaux monoatomique, et lorsqu'il s'agit d'un self bombardement le calcul est plus simple. Dans notre cas de calcul, la cible est une matrice polyatomique (KNbO<sub>3</sub>), l'approche la plus simple pour traiter cette situation [2] consiste à considérer que

pour un couple atome (de la cible) et un incident donné, la présence des atomes voisin n’influence pas à l’interaction, dans ce sens une correction est introduite dans le code de calcul SRIM2015 à la loi de Bragg par Ziegler et Manoyan pour prendre en compte les effets de liaisons [3].

Ce chapitre regroupe tous les résultats de simulation de l’irradiation dans le matériau pérovskite (KNbO<sub>3</sub>) par des noyaux de thorium induits par la désintégration de l’uranium 238. Ces noyaux sont émis spontanément par l’uranium, avec une énergie de l’ordre de 80keV et au nombre égal à celui des alphas. Nous commençons cette partie par une description générale des résultats de simulation avec quelques profils de distribution (les parcours des projectiles, les ionisations, défauts, phonons,.....) qui accompagnent le bombardement ionique, puis nous traitons en premier lieu les effets dus aux bombardements par des noyaux de thorium en profondeur des matériaux et en termine par les différents évènements liés à ce bombardement.

Ces calculs sont réalisés à l’aide du code de calcul TRIM dans sa version SRIM 2015. Le faisceau ionique sont des noyaux de thorium lourds à des faibles énergies, la cible est une pérovskite KNbO<sub>3</sub>, il est décrit au tableau III-1:

Les paramètres de calculs sont comme suit :

- Le flux de particules « ou dose de bombardement » est égal à **10000** particules.
- Les projectiles sont : les noyaux de **Thorium**, d’énergie variable entre **60** et **100 KeV**.
- L’incidence est prise « **incidence normal** ».
- La cible est : **Pérovskite** de type **KNbO<sub>3</sub>**.

Cible	Elément de cible	Z <sub>2</sub>	M <sub>2</sub> amu	Stochastique	Energie (eV)			Densité atomique (g/cm <sup>3</sup> )	Largeur (Ang)
					E <sub>d</sub>	E <sub>L</sub>	E <sub>s</sub>		
KNbO <sub>3</sub>	K	19	39,09	0,2	25	3	0,93	4,62	1800
	Nb	41	92,90	0,2	25	3	7,59		
	O	8	15,99	0,6	28	3	2		

**Tableau III-1 : Détail des propriétés chimiques et physiques d’échantillon**

### III.2. Quelques vues de la cascade de collision:

Dans ce Travail, nous avons choisis l'énergie de bombardement à 80 KeV sous incidence normale à la surface du matériau, la cible est le  $\text{KNbO}_3$ . A travers les résultats qui suivent, nous voulons montrer une image approchée de tout ce qui se passe dans la cascade de collision.

Les figure III-1 montrent que cette cascade se situe à une profondeur de l'ordre de 840 Å environ, sous forme d'une poire pointue du côté de la surface est plus large vers la profondeur.

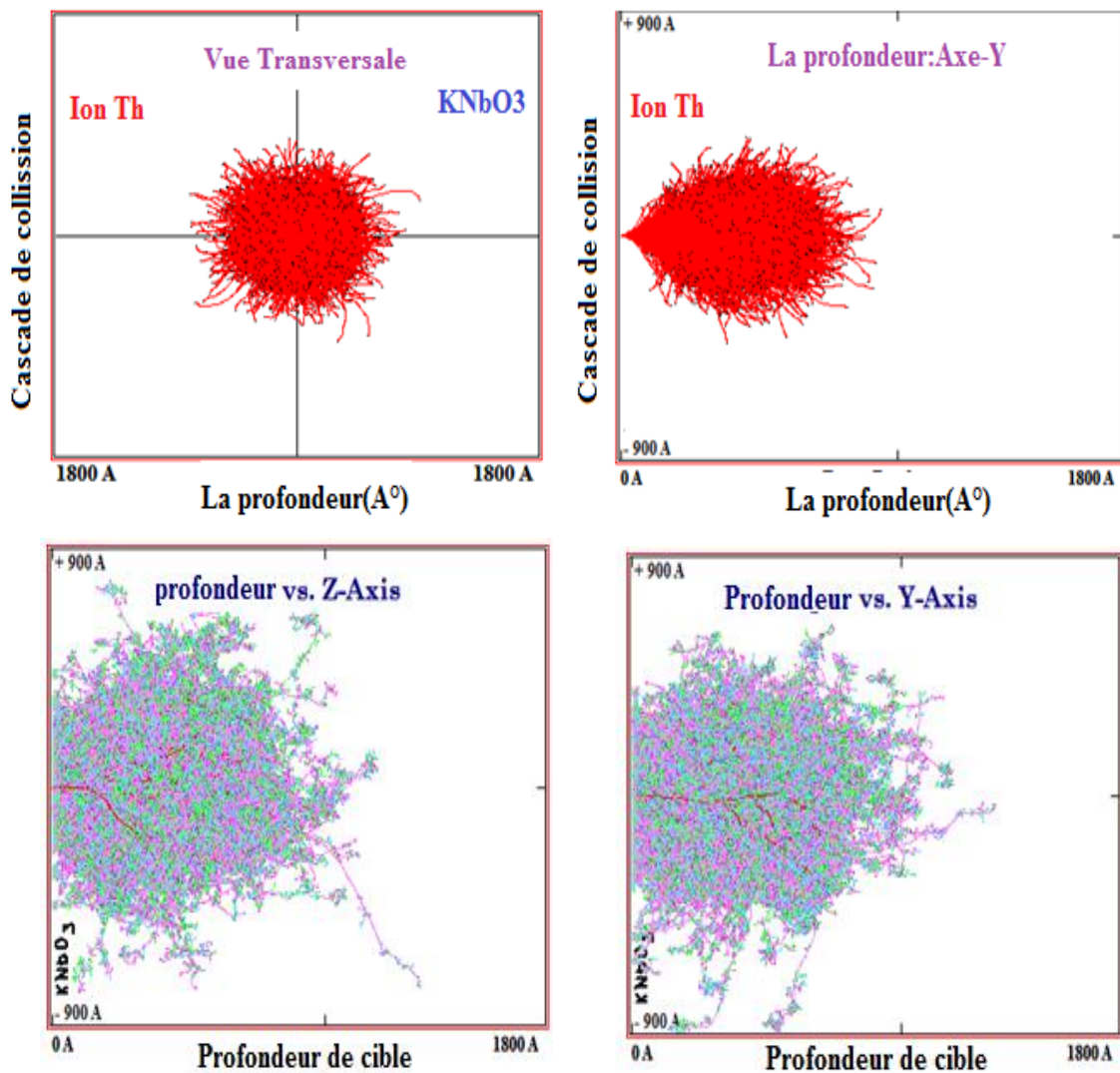


Figure III-1 : Quelques vues de différents plans qui démontrent La cascade de collision en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 KeV pour le bombardement d'ions du Thorium dans le  $\text{KNbO}_3$ .

**III.3.Profils de distribution des parcours des ions du Th:**

La figure III-2 représente le profil de distribution qui a une forme légèrement différente d’une gaussienne c'est-à-dire une distribution avec quatre moments qui sont le parcours moyen projeté ou pénétration  $R_p$ , la déviation standard  $\Delta R_p$  qui représente l’écart type du pic, le skewness  $\gamma$  qui le coefficient de mesure l’asymétrie de la distribution, soit le positionnement du sommet de la courbe par rapport à  $R_p$ , le Kurtosis  $\beta$  qui mesure l’écrasement du pic ou l’extension de la queue de distribution en volume.

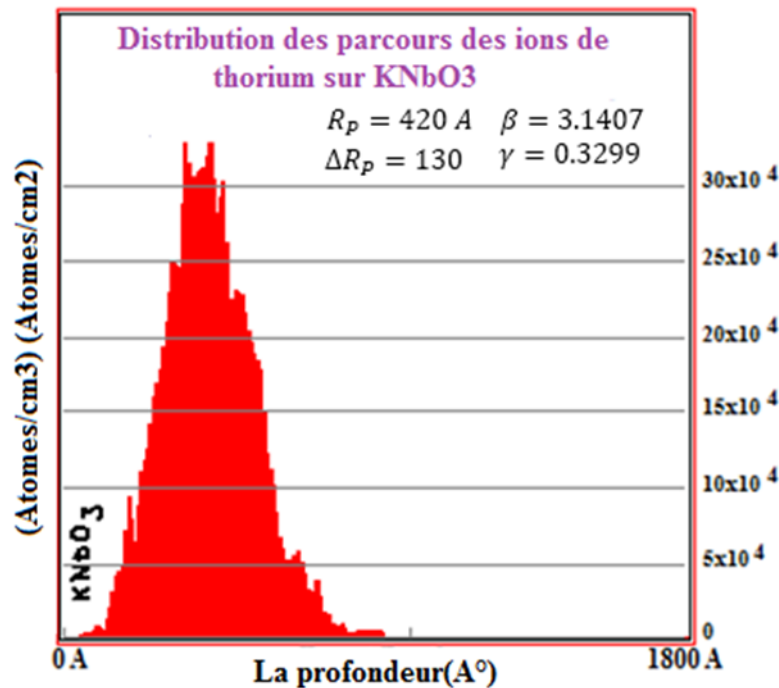


Figure III-2 : Distribution en profondeur des ions de thorium(Th) pour une énergie de 80 KeV dans le KNbO<sub>3</sub>

E (KeV)	Pénétration $R_p$ (A°)	Déviaton $\Delta R_p$ (A°)
60	353	110
70	389	118
80	419	129
90	450	139
100	481	149

Tableau III-2: Statistique des deux premiers moments physiques ( $R_p$ ,  $\Delta R_p$ ) lors de l’implantation ionique dans le Nobiote de Potassium par des ions de Thorium à des énergies variant entre 60 jusqu’à 100 KeV « SRIM2015 ».

On constate que les pénétrations des ions de thorium dans le  $\text{KNbO}_3$  sont relativement faibles et croissent avec l'énergie de l'ion incident [4] et se distribuent dans la zone superficielle de l'ordre de  $2R_p$  (si on prend l'approximation d'une distribution gaussienne), ce qui limite la zone superficielle irradiée de  $706 \text{ \AA}$  ( $60 \text{ KeV}$ ) jusqu'à  $962 \text{ \AA}$  ( $100 \text{ KeV}$ ), voir figure III-3. La dispersion des parcours augmente avec l'énergie ce qui signifie que le thorium se piège dans notre matrice voir tableau III-2 et figure III-4, soit en position interstitielle ou substitutionnelle.

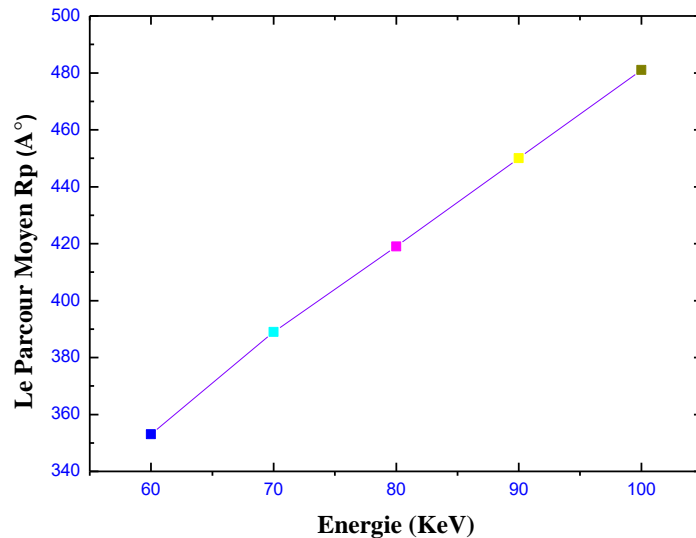


Figure III-3: Le profil de distribution des pénétrations des ions de Thorium dans le  $\text{KNbO}_3$  « SRIM2015 ».

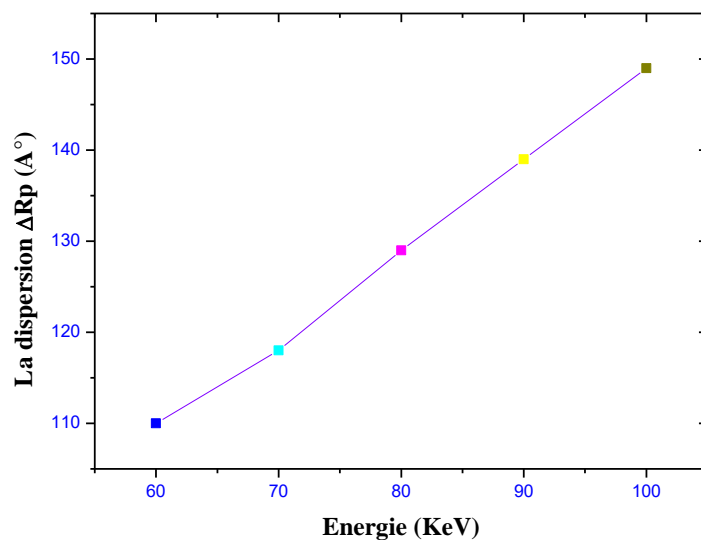


Figure III-4: La variation de la déviation standard  $\Delta R_p$  des ions de Thorium en fonction de l'énergie.



**III.4.Perte d'énergie et création des désordres:**

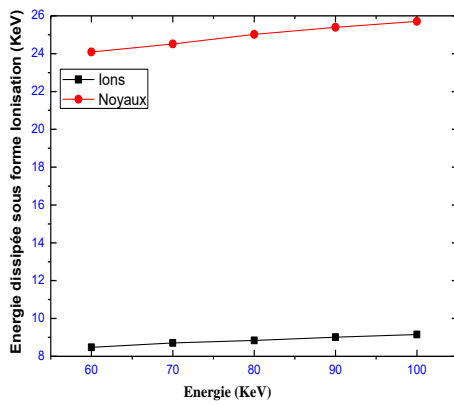
La gamme d'énergie de l'implantation utilisée dans notre étude (60 à 100keV) est située dans le domaine des collisions élastiques [5], où presque la totalité des pertes d'énergie est nucléaire figures III-5 . Ce qui donne beaucoup de création de défauts et de phonons, donc beaucoup de déplacement atomique. Si on fait le bilan des pertes d'énergies (tableau III-3), on constate que l'énergie dissipée sous forme d'ionisation varie linéairement avec l'énergie incidente du thorium, mais elle reste toujours inférieure à l'énergie dissipée par collision nucléaire (sous forme de défauts et de phonons) voir figure III-5-(d).

Les ions thorium créent un léger désordre dans nos cibles vu le rapport de masse  $M_{Th} / M_{Cible}$  qui est important, maintenant si on fait le bilan de pertes d'énergies électroniques créées par l'ensemble des ions dans la cascade, la figure III-5(a,b,c) nous montre que les atomes de recul (atomes cibles) contribuent beaucoup plus à la perte d'énergie électronique et nucléaire que les ions de thorium.

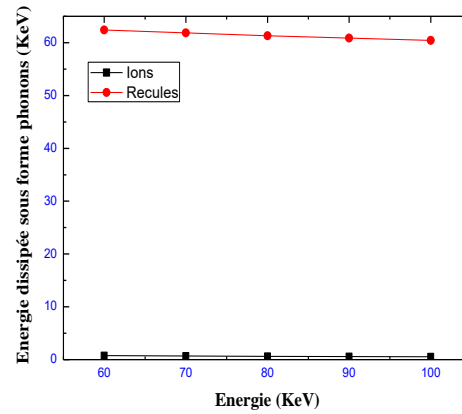
La figure III-5-(d) illustre le tableau III-3, montre d'une part que l'énergie dissipée par collision nucléaire est supérieure à celle dissipée par collision électronique, d'autre part dans les collisions nucléaires, l'énergie dissipée sous forme de phonons est supérieure à celle dissipée sous forme de défauts [6].

E (KeV)	L'énergie dissipée (KeV) sous forme :					
	d'ionisation		des Défauts		Des Phonos	
	Ions	Reculs	Ions	Reculs	Ions	Reculs
60	8.48	24.09	0.26	4.03	0.75	62.39
70	8.71	24.51	0.24	4.00	0.69	61.86
80	8.84	25.02	0.22	3.97	0.63	61.31
90	9.01	25.39	0.2	3.95	0.59	60.86
100	9.15	25.71	0.19	3.93	0.56	60.44

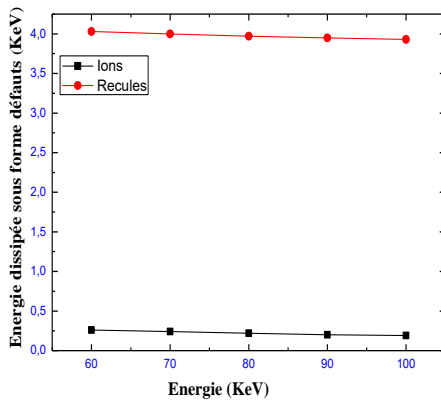
**Tableau III-3 : Le taux des pertes d'énergies sous formes Ionisation, Défauts et Phonons en fonction de l'énergie de particule chargée le Th sur le KNbO<sub>3</sub>.**



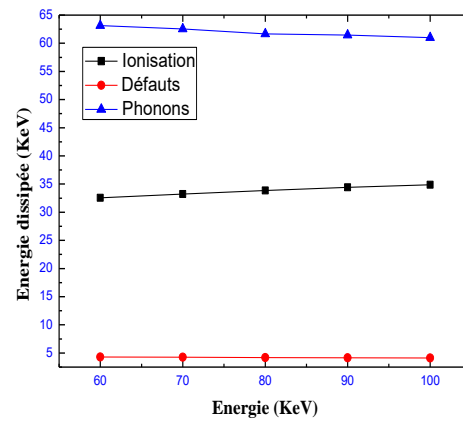
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure III-5: Le taux d'énergie dissipé sous forme ionisation, phonons et défauts des ions Thorium et les atomes de recules de  $\text{KNbO}_3$  en fonction de l'énergie incident.

### III.4.a. Ionisation:

La figure III-6 montre que les pertes d'énergie électronique ou les ionisations sont dues essentiellement aux chocs inélastiques entre les atomes de la cible. La contribution des ions projectiles à l'ionisation est presque le 1/3 que les recules. On peut calculer l'énergie dissipée sous forme d'ionisation (qui égale à l'énergie incidente  $\times$  par le taux d'ionisation) voir tableau III-6.

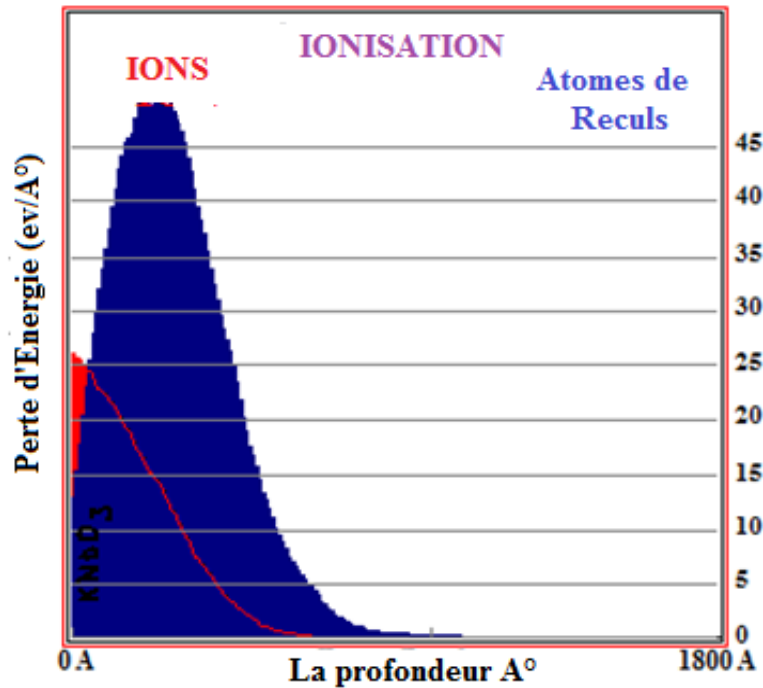


Figure III-6 : Profil de perte d'énergie électronique pour une énergie de 80 KeV (en rouge : ions de thorium, en bleu : atomes de recul KNbO<sub>3</sub>).

#### III.4.b.les phonons:

La figure III-7 montre que la création des phonons est due principalement des atomes de cible que les ions de Thorium est ceci est due au phénomène de vibration de réseau. On peut calculer l'énergie dissipée sous forme de phonons voir tableau III-3 avec, « énergie dissipée= taux de création de phonons x énergie incidente ».

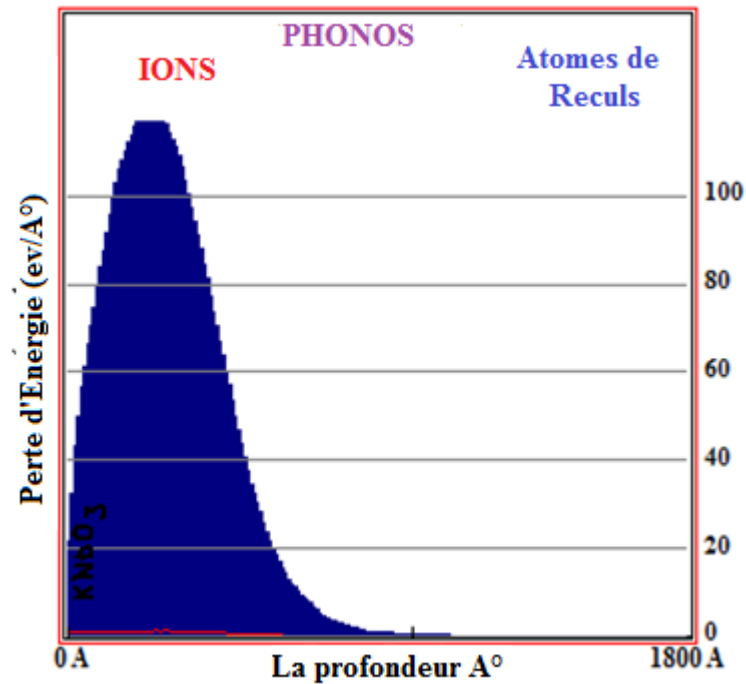
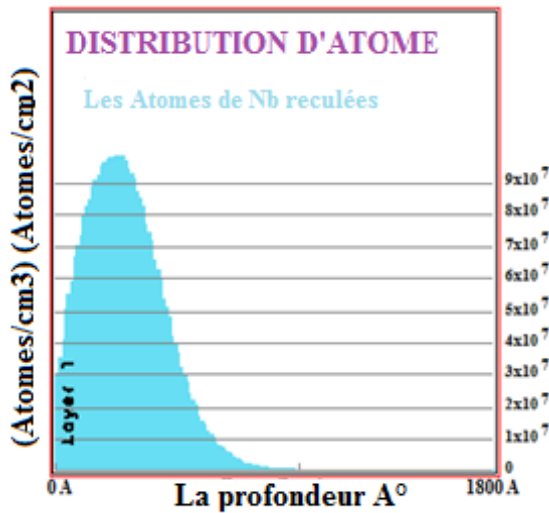


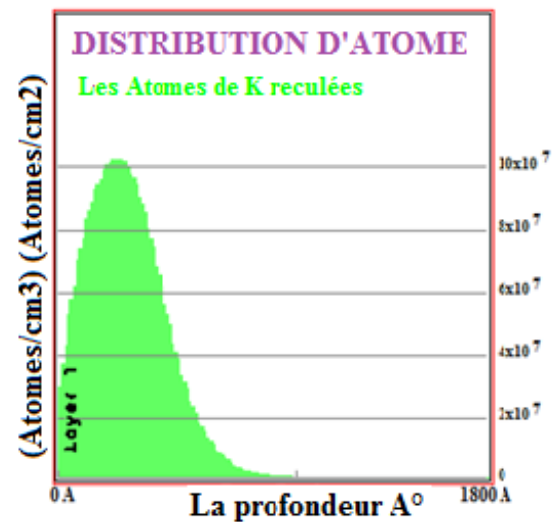
Figure III- 7: Profil de distribution des phonons pour une énergie de 80 KeV (en rouge : ions de thorium, en bleu : atomes de recul KNbO<sub>3</sub>)

#### III.4.c.Profil de distribution des atomes:

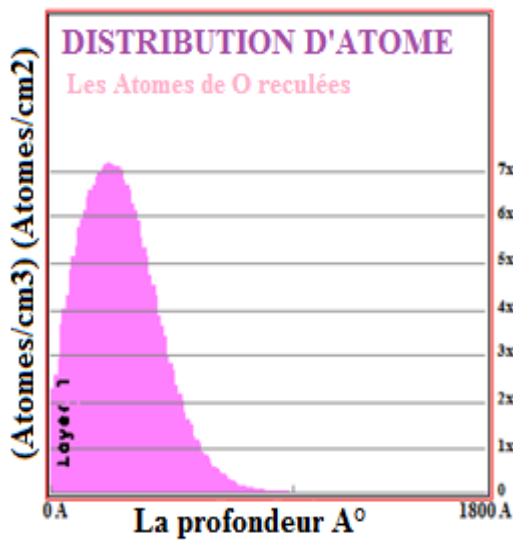
Dans la cascade de collision tous les atomes sont en mouvement pendant un temps moyen de l'ordre de quelques dizaines de fs, les distributions des atomes au repos nous donne une idée sur les défauts créés suivant l'équation suivante (Déplacement= défauts plus les atomes substitués) [2]. Il faut signaler que ces différents mécanismes se produisent en profondeurs de l'ordre de 420 A°.



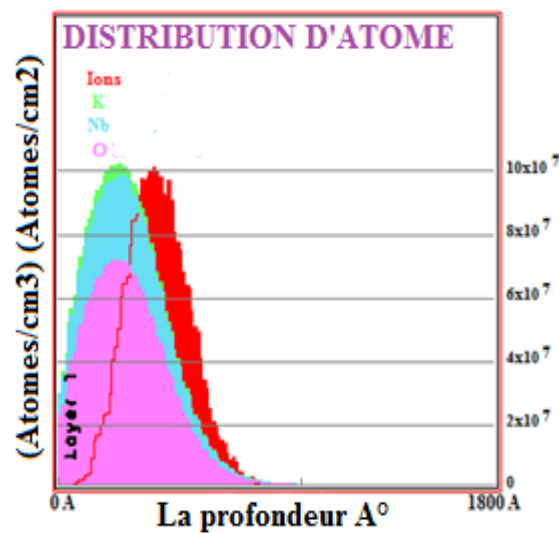
(a).



(b).



(c).



(d).

Figure III-8 : Profil de Distribution de recul d'ion en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 Kev (en rouge : le recul d'ion, a : en vert ; le recul d'atome K, en bleu ; le recule d'atome Nb, en violet ; le recul d'atome O).

#### III.4.d. Bilan des différents événements dans la cascade de collision:

Avant de commencer ce paragraphe on va définir quelques paramètres :

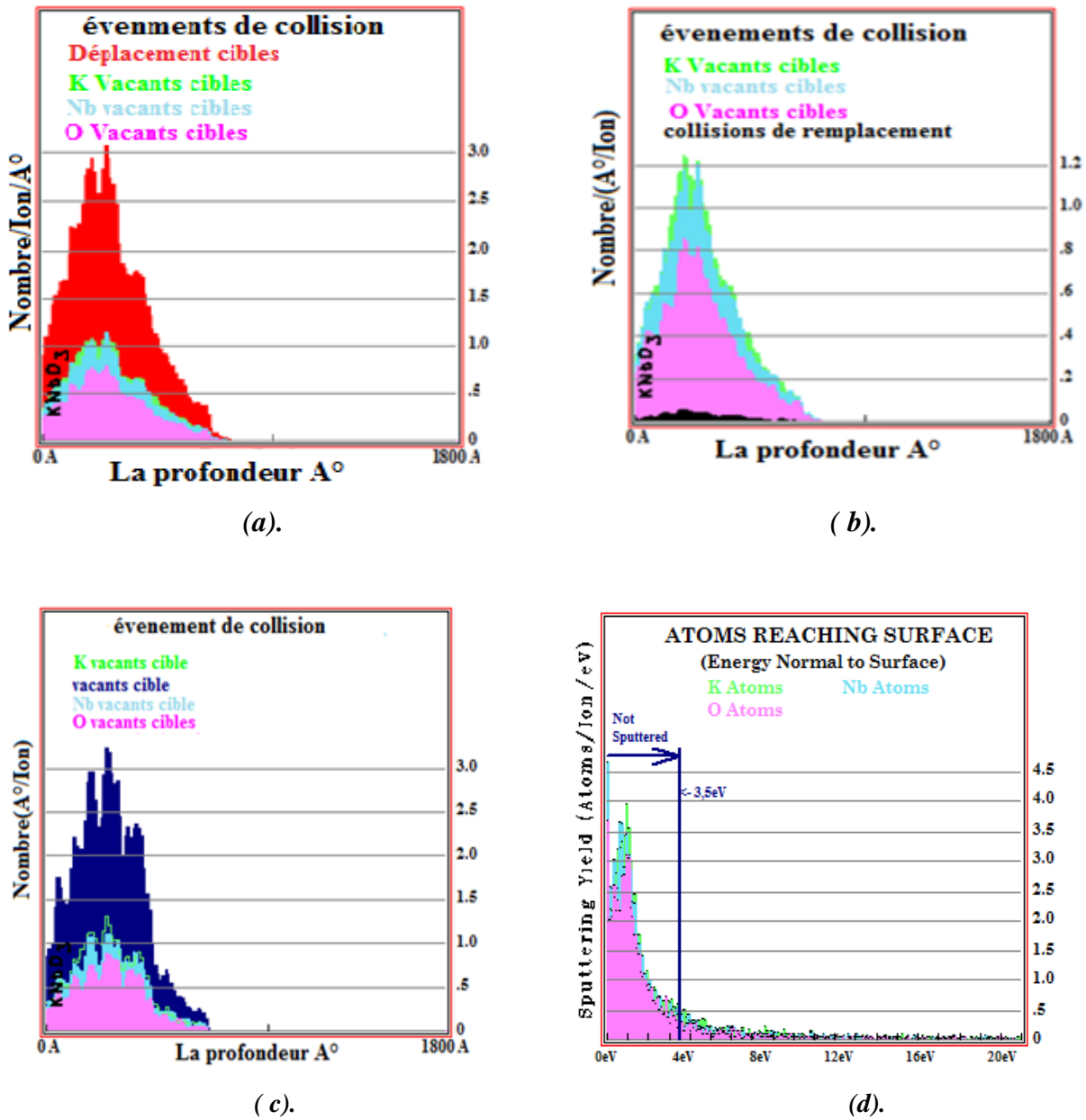
**TD** : Le nombre de déplacement total des atomes de la cible.

**TV** : Le nombre total de lacunes créées.

**RC** : Le nombre de remplacement (c'est les substitutions).

Il faut rappeler qu'on a l'équation suivante [2] :  $TD = TV + RC$ .

Les figures III-6 donnent le bilan des différents événements (déplacement total, création de défauts, les remplacements et pulvérisation).



Figures III-9 : Profil de distribution des événements de dommages en fonction de la profondeur pour une énergie de 80 KeV (a : événements de déplacement total , b : événement de remplacements ; , c : événement de création de défauts; , d : pulvérisation ).

Si on fait le bilan des différents phénomènes de perte d'énergie :

- Dans la cascade de collision, les atomes cibles créent d'avantages de phonons et de défauts que les ions thorium figure III-5-(d) [6, 7, 8].
- Le nombre de déplacement des atomes cibles telle que K et Nb est supérieur à celui de l'oxygène en raison de leur énergie de déplacement tableau III-1 figure III-9(a). Ces déplacements vont être répartis entre le nombre de défauts créé et les remplacements ( $TD=TV+RC$ ). Les atomes cibles éjectées de leurs sites contribuent aussi aux déplacements.

Ces noyaux se distribuent dans la zone superficielle d'épaisseur environ  $2R_p \sim 840\text{Å}$ , on constate que plus de 60% de l'énergie de thorium est dissipée par des collisions élastiques, par des déplacements des atomes cibles, en plus ces atomes une fois dans la cascade de collision contribuent beaucoup plus à la création de désordre dans les cibles pérovskites figures III-5-(d)

**III.5. Résumé des résultats et conclusions :**

Le tableau III-4, représente le cas de la désintégration de l'uranium 238 des noyau de thorium d'énergie de 80 KeV, les résultats trouvés confirment bien notre analyse.

Ion	Energie (KeV), Angle d'incidence (degré)	Se(E)		Sn(E)				Ionisation  Totale  (%)	Energie Elastique  Totale  (%)
		IONISATION		LACUNES		PHONONS			
		Ion %	Cascade %	Ion %	Cascade %	Ion %	Cascade %		
Th	80KeV, 0°	8,84	25,02	0,22	3,97	0,63	61,31	33,86	66,13

*Tableau III-4: Distribution des pertes d'énergies électroniques et nucléaires dans le KNbO<sub>3</sub> bombardée par des ions de Thorium.*

\*33,86 % de l'énergie est dissipée sous forme de pertes électroniques.

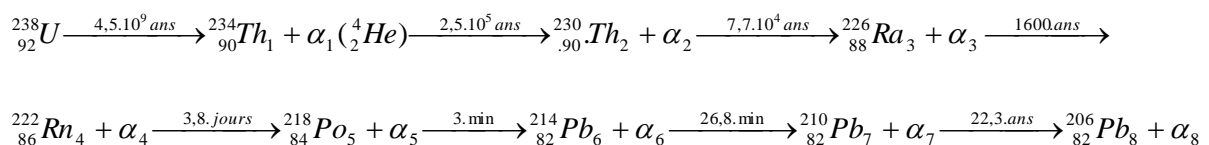
\*66,13 % de l'énergie est dissipée par les déplacements atomiques.

Les noyaux de reculs concernant la désintégration de l'uranium (le thorium) d'énergie de l'ordre de 80 KeV, de masse très grande comparée à la masse des différents constituants des perovskites, et au nombre égal à celui des alpha émis ~ 12500 noyaux de thorium par seconde. Ces noyaux se distribuent dans la zone superficielle d'épaisseur environ  $2R_p \sim 840 \text{ \AA}$ . on constate que plus de 60% de l'énergie de thorium est dissipée par des collisions élastiques, par des déplacements des atomes cibles, en plus ces atomes une fois dans la cascade de collision contribuent beaucoup plus à la création de désordre dans les cibles perovskites figures III-5.

Nos résultats de calculs confirment bien les études expérimentales réalisées par [9, 10, 11] sur le bombardement avec des ions d'hélium dans les céramiques. Voici les conclusions qu'on peut tirer :

✓ On a deux types d'irradiations :

- 1) **L'irradiation externe** qui est le but de notre étude « double bombardement des perovskites avec les  $\alpha$  et les noyaux de thorium 234 ».
- 2) **L'irradiation interne** qui est la suite des désintégrations dans la série radioactive de l'uranium c'est-à-dire, le Thorium 234 donne des  $\alpha$  et un noyau de thorium 230 et ainsi de suite :



Nous pouvons supposer que les 8 processus de désintégrations ci-dessus énumérés, contribuent de la même manière, ce qui nous donne une image approchée des effets combinés du phénomène global des désintégrations. C'est ainsi que les noyaux de thorium vont à leurs tours donner des  $\alpha$  d'énergie de l'ordre de 4,5MeV et des noyaux de thorium 230 d'énergie < 100 KeV et ainsi de suite jusqu'à l'élément stable qui est le plomb 206.

Pour le processus externe, nous distinguons en fait deux zones bien séparées le long de l'épaisseur de la matrice Perovskite :



La première zone qui s'étend de 0 à 840 Å où nous avons une distribution exclusive des noyaux de Th<sup>234</sup> qui sont entièrement piégés.

La deuxième zone qui s'étend de 102000 à 108000 Å où s'accumulent les alphas [12] Par conséquence, l'ensemble des effets combinés donne une première zone affectée par les noyaux lourds « Th234, Th230, .....Pb206 » de 0 à 3500 Å, et une deuxième zone qui s'étend donc de 102000 à 111500 Å [13].

✓ Et nous concluons en disant que la zone globale affectée par tous le processus de désintégration pendant des milliers d'années est inférieure à 12 μm

✓ La zone intermédiaire entre 3500 Å et 102000 Å est pratiquement non affectée.

Les noyaux de thorium sont piégés en positions interstitielles et substitutionnelles. Les actinides ayant un rayon ionique comparable à celui de K et Nb, peuvent de ce fait occuper leurs positions ( Th : 95pm, K: ~220pm et Nb: ~145pm) .

## Références

- [1] C. Sabathier, Effet de l'irradiation dans une Perovskite : utilisation de cette matrice pour le conditionnement des actinides, Thèse de doctorat, Université Paris XIRISAY, N° D'ordre: 7246, Juliet 2003.
- [2] Ziegler J.F., Biersack J.P., Littmark U., The stopping and Range of Ions in Solids, New York: Pergamon Press, 1985, 321 p.
- [3] J. F. Ziegler, T. M. Manoyan, the Stopping of ions in compounds. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research. B, U35, P 215-228 (1988).
- [4] J.P. Biersack, Nucl. Inst. & Methods 182/183, 199 (1981).
- [5] N.Moncoffre, Mat Sc Eng 1987. 90, 99.
- [6] F. Z. Benkenfoud, A. Belaidi, S. Hiadsi, A. Zanoun, Nitrogen phosphorus ions implantation in iron based alloys, envoy 20/08/1999. Au Algerian Journal of Advanced Physics AJAM36/2000, December 2000.
- [7] S. Hiadsi, A. Belaidi, F. Z. Benkenfoud, D. Kadri, Nitrogen and Phosphorus Implantation in alloy amorphous (FeCrC<sub>12</sub>P<sub>8</sub>) Algerian Journal of Advanced Materials. 06/09/99.
- [8] Lindhard J., Scharff M. and Shiott H. E., Range concepts and heavy ion ranges., Mat. Phys. Medd., 33 (1963), 14.
- [9] Ouchani S., J.-C. Dran and Chaumont J., Applied Geochemistry, 13 (1997) 707-714, "Exfoliation and diffusion following helium ion implantation in fluoroapatite : Implications for radio chronology and radioactive waste disposal."
- [10] Ziegler J. F., Biersack J. P., Stopping and Range of Ions in Matter, SRIM 2003.10.
- [11] Ouchani S., J.-C. Dran and Chaumont J. ; Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B 132 (1997) 447-451, "Evidence of Ionization Annealing Upon Helium Ion Irradiation of pre-damaged Fluoroapatite".

[12,13] L.HALIS, « Modélisation de l'Implantation Ionique dans les Matériaux Pérovskites (SrTiO<sub>3</sub>,CaTiO<sub>3</sub>) par la Théorie de Transport». Thèse de magistere .université d'Oran(USTO).



## *Conclusion Générale*

### **Conclusion Générale :**

Nous avons étudié les effets de la double irradiation dans la matrice pérovskite  $\text{KNbO}_3$  par les noyaux de thorium produit de la désintégration des noyaux de l'Uranium  $\text{U}^{238}$ , les noyaux de thorium émis simultanément à des énergies de l'ordre de 80 KeV, se distribuent en surface et causent beaucoup de dégâts sur la structure du matériau dans une zone superficielle d'épaisseur 840 Å. Nous avons mis en évidence que les défauts « paires de Frenkel » et phonons « vibrations du réseau » sont prépondérant sous l'effet du bombardement de thorium, les remplacements ou les substitutions sont aussi considérables ce qui justifie leur intérêt par l'incorporation de ces noyaux toxiques dans la matrice de pérovskite. Il n'y a aucun doute, les matrices perovskites confinent mieux les actinides.

Nous devons aussi signaler que des études portant sur des céramiques synthétiques (incluant un mélange de pérovskite et zirconolite) sont en cours afin d'optimiser leurs capacités de confinement des déchets radioactifs.

Il nous reste à confronter nos résultats aux données expérimentales ainsi que ceux déduits par d'autres codes essentiellement basés sur une approche de type dynamique moléculaire.

## المخلص :

تعتمد دراستنا على مادة البيروفسكايت التي أظهرت استعدادها الطبيعي لتكون بمثابة مصفوفة تخزين. لذا ركزنا في بحثنا لدراسة خصائص هذه المصفوفات لدرجة تقييد خطر انشطارات النوية لذرة الثوريوم على مصفوفة بيروفسكايت ( $\text{KNbO}_3$ ) لهذا قمنا بمحاكات تطور الاضطراب في عينة من هذه المادة بعد تعرضها للإشعاع. لقد حددنا وقيمنا حركية إحداث الضرر وكذلك توزيعاتها وتنوعاتها وفقاً للمعايير المتعلقة بالزوجين "تثعيع مصفوفة الثوريوم-بيروفسكايت". استندت النمذجة لدينا إلى رمز محاكاة رقمي يسمى ( $\text{SRIM2015}$ ) بحيث يعتمد على نظام مونت كارلو الذي يعالج تفاعل المادة مع الأيون في إطار تقريبي للاصطدام الثنائي.

## Abstract:

Our study is based on Perovskites which have shown their natural predisposition to serve as a storage matrix. This is how we became interested in this type of material by studying in a global and detailed way the effects of the emanation of Thorium nuclei on the  $\text{KNbO}_3$  perovskite. For this we modeled the evolution of the disorder in a sample of this material after their exposure to irradiation. We have identified and evaluated the kinetics of damage creation as well as their distributions and their variations according to the parameters linked to the couple "irradiating Thorium-perovskite matrix". Our modeling was based on a numerical simulation code called SRIM2015. This Monte-Carlo type code deals with the ion-matter interaction within the framework of the binary collision approximation.

## Résumé:

Notre étude est basé sur les Perovskites qui ont montré leur prédisposition naturelle à servir de matrice de stockage. C'est ainsi que nous nous sommes intéressés à ce type de matériaux en étudiant de manière globale et détaillée les effets de l'émanation des noyaux du Thorium sur la pérovskite  $\text{KNbO}_3$ . Pour cela nous avons modélisé l'évolution du désordre dans d'un échantillon de ce matériaux après leur exposition aux irradiations. Nous avons identifié et évalué les cinétiques de création des dégâts ainsi que leurs distributions et leurs variations en fonction des paramètres liés au couple « irradiants Thorium-matrice pérovskite ». Notre modélisation s'est basée sur un code de simulation numérique appelé SRIM2015. Ce code qui est basé sur Monte Carlo traite l'interaction ion-matière dans le cadre de l'approximation des collisions binaires