

2 - PHYSIQUE DE L'ETAT CONDENSE

2.1 - DEFAUTS ET EFFETS DES RADIATIONS DANS LES SOLIDES

Etude des défauts dans les gaz rares solides [1] (R. LAGRANGE,
G. CASALI, P. MOSER)

L'étude théorique des défauts dans les gaz rares solides a été envisagée dans de nombreux laboratoires. Des approches expérimentales partielles ont été réalisées à l'aide des rayons X. Des mesures de chaleur spécifique et d'énergie stockée ont été menées à bien.

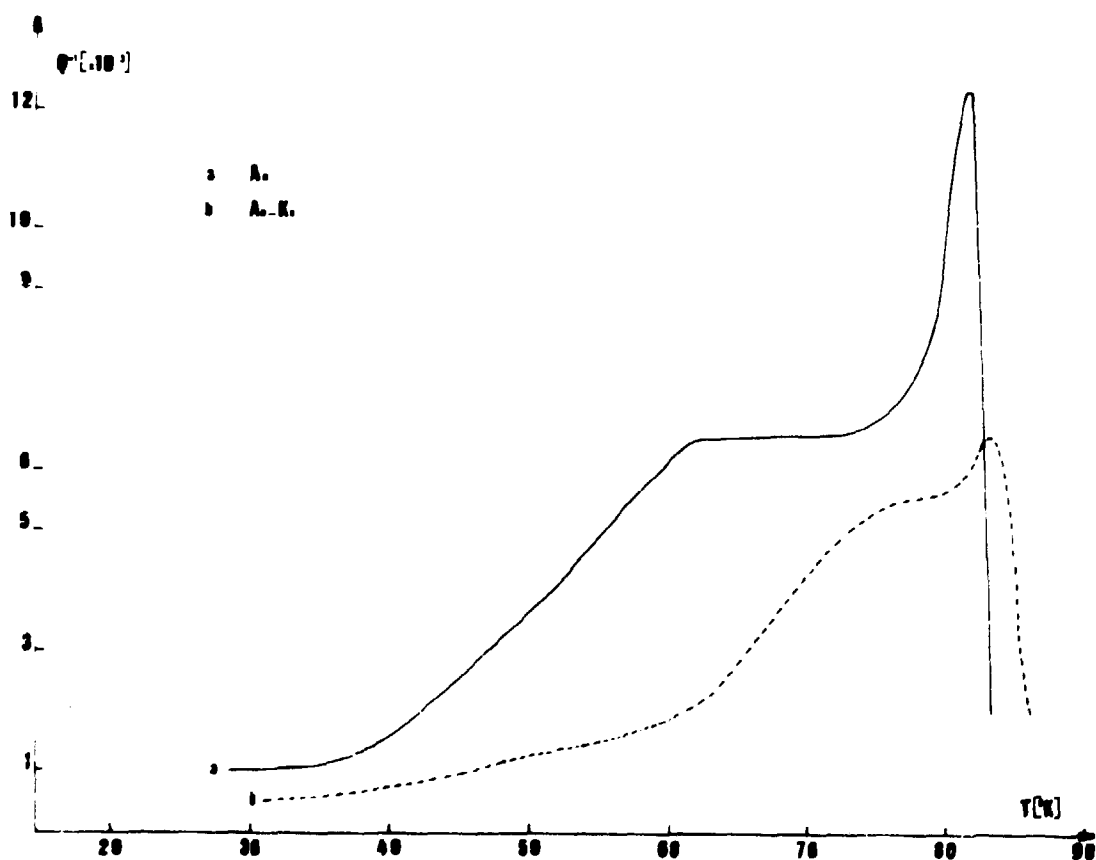


Fig. 5-FROTTEMENT INTERNE ARGON PUR ET ARGON 20 % KRYPTON

Pour notre part, nous avons tenté des expériences de frottement interne car cette technique visualise à la fois les dislocations et les défauts ponctuels.

De très grosses difficultés expérimentales ont été résolues et la technique mise au point permet la fabrication d'un petit bâtonnet d'argon solide pur ou allié, son montage dans un pendule de frottement interne à 1 Hz ou 50 Hz et son étude entre 20 K et la fusion.

La figure 5 présente une courbe de frottement interne relative à l'argon pur et allié. A basse température, les phénomènes peuvent être décrits par un processus d'ancrage-désancrage des impuretés par les dislocations, identique à celui qu'on observe dans l'aluminium. A haute température, le frottement interne correspond à des déformations plastiques.

Cette étude préliminaire pourrait être étendue sans nouveau problème technique au cas des gaz se solidifiant au dessus de 80 K. Ainsi, on pourrait entreprendre l'étude de pics de relaxation de défauts ponctuels (pics de Snoek) provenant soit d'hétéro-interstitiels introduits par alliage, soit d'auto-interstitiels créés par irradiation.

[1] - Thèse de 3ème cycle de R. LAGRANGE - Grenoble, Mars 1972

2.1.1. - Métaux purs

a) Migration à longue distance de l'oxygène dans le fer pur irradié aux neutrons en présence d'eau (Mme J. VERDONE, P. MOSER)

Il est généralement admis que l'oxygène en solution dans le fer occupe des positions de substitution. Cependant, quelques auteurs envisagent la possibilité de trouver l'oxygène en position interstitielle. Les expériences suivantes semblent en accord avec cette dernière hypothèse.

Du fer de très haute pureté, irradié à température ambiante dans la pile Mélusine et en contact avec l'eau de la pile pendant toute la durée de l'irradiation ($2 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2 > 1 \text{ MeV}$), présente une bande de traînage magnétique très importante dans le domaine de température 200-450 K (figure 6). L'existence de ce traînage implique qu'un défaut simple anisotrope, existant dans tout le volume de l'échantillon, se réoriente par rapport à l'aimantation spontanée du fer, avec une énergie d'activation $E_m = 1,1 \text{ eV} \pm 0,1 \text{ eV}$. Ce défaut ne peut pas être substitutionnel.

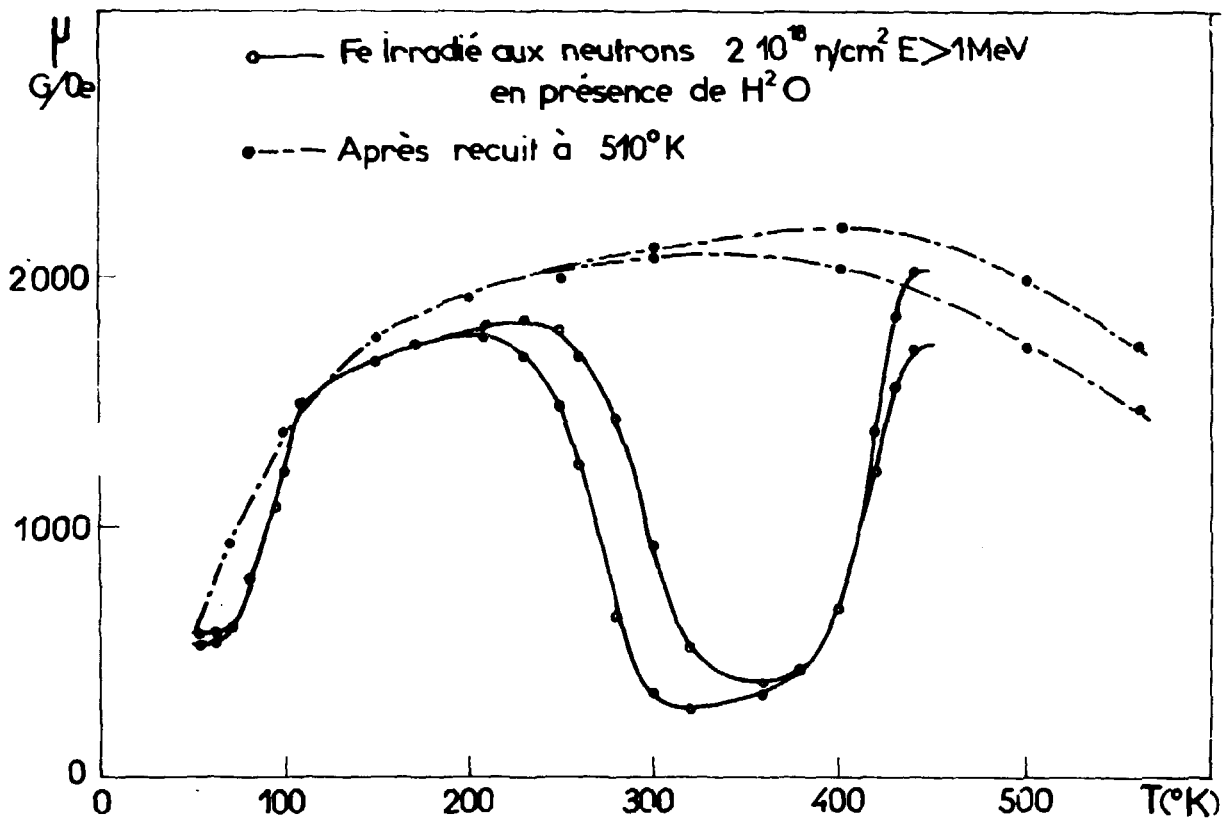


Fig. 6

Ces phénomènes n'apparaissent pas lorsque le fer est soumis à un flux de neutrons sans aucun contact avec l'eau de la pile (irradiation sous atmosphère d'hélium sec, à même température ou irradiation à 77 K, dans une boucle à azote liquide) ou lorsque le fer est en contact avec de l'eau, sans être soumis à un flux de neutrons.

Le défaut ainsi mis en évidence présente les caractéristiques prévues théoriquement pour l'oxygène en interstitiel dans le fer.

Ces résultats peuvent s'expliquer par le mécanisme suivant : les chocs élastiques des neutrons sur les ions de l'eau en contact avec l'échantillon provoquent l'introduction d'ions oxygène sous la surface du fer. Ces ions, en position interstitielle, sont captés par les interstitiels de fer créés par irradiation et véhiculés à l'intérieur du métal (on sait que ce type de complexe est très mobile à la température ambiante [1]). Lorsque le complexe oxygène-interstitiel de fer rencontre une lacune, l'interstitiel de fer s'annihile et laisse l'oxygène en position d'interstitiel libre.

Cet oxygène migre lentement ($E_m = 1,1 \text{ eV}$), en donnant lieu au phénomène de traînage magnétique observé, jusqu'au moment où la rencontre avec une seconde lacune le fait passer à l'état substitutionnel.

Afin de vérifier cette hypothèse un tracé du profil de diffusion de l'oxygène dans du fer préparé et irradié dans les mêmes conditions expérimentales que ci-dessus a été effectué (cf. note de Melle Boissier dans le présent bulletin).

Les résultats obtenus confirment l'existence d'une diffusion à grande distance de l'oxygène de l'eau qui était au contact du fer pendant l'irradiation.

[1] - VIGIER P. - Thèse Grenoble, Rapport CEA-R-3280, 1968

b) Diffusion de l'oxygène dans les métaux sous irradiation neutronique (M. BOISSIER, E. LIGEON)

Certains auteurs ont remarqué une diffusion anormale du milieu environnant sous irradiation. Ph. ALBERT lors du dosage du soufre par irradiation neutronique observe une diffusion du soufre ^{35}S produit par la réaction (n,p) sur le chlore. Cette diffusion a lieu sur une très grande profondeur dans certains matériaux tels le cuivre, le fer et le nickel et ne semble pas se produire dans le cas du magnésium et de l'aluminium. ENGELMANN signale la diffusion du cuivre ^{61}Cu produit à partir du nickel irradié aux ^3He de 15 MeV, dans du silicium jusqu'à une profondeur de 200 μ . On peut se demander si de telles diffusions sont possibles avec certaines impuretés stables superficielles, en particulier l'oxygène. On a pu montrer qu'elles ne perturbaient en tout cas pas le dosage de l'oxygène interne par activation aux particules chargées. Cependant, J. VERDONE et P. MOSER [1] en irradiant du fer dans l'eau d'un réacteur piscine ont vu apparaître une bande de traînage magnétique qu'il serait possible d'attribuer à une diffusion particulière de l'oxygène. (cf. note de Mme VERDONE dans le même bulletin).

Nous avons donc entrepris une étude systématique de l'existence, de l'importance et des facteurs propres de la diffusion éventuelle, sous des conditions d'irradiations variées, de l'oxygène à l'intérieur de certaines matrices.

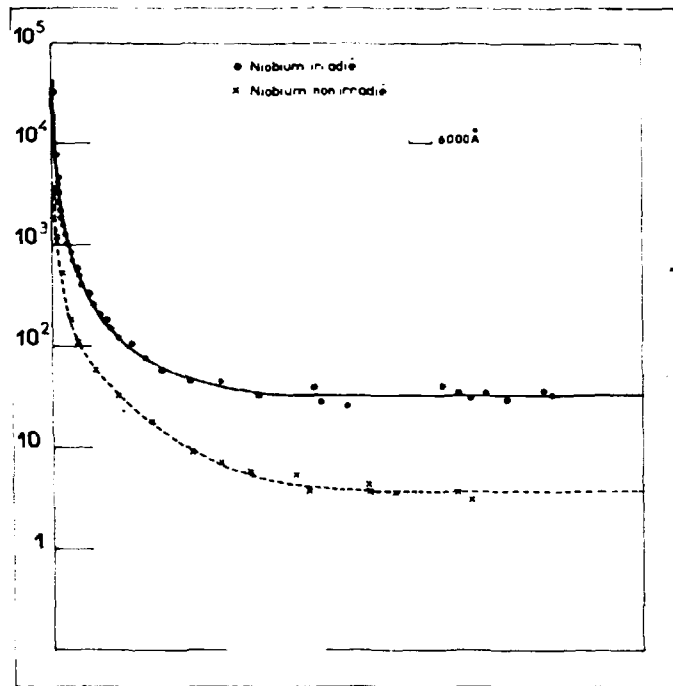


Fig. 7 - Profils de diffusion de l'oxygène dans le niobium.

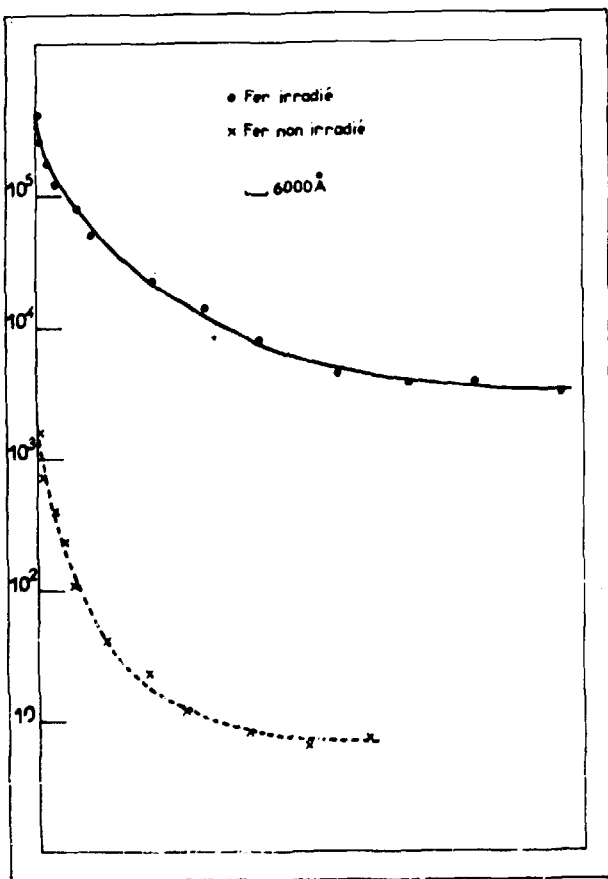


Fig. 8 - Profils de diffusion de l'oxygène dans le fer.

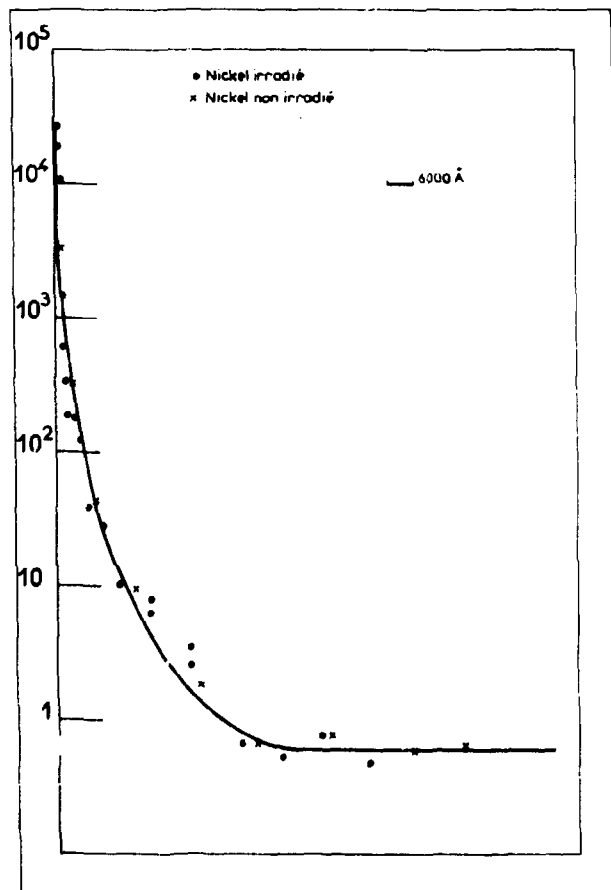


Fig. 9 - Profils de diffusion de l'oxygène dans le nickel

Le but a été de comparer les profils de diffusion de l'oxygène dans des échantillons mis en contact direct avec de l'eau, les uns dans un réacteur, les autres hors réacteur. Ces profils sont obtenus en abrasant l'échantillon par un bombardement ionique de forte intensité. L'oxygène est analysé par la méthode d'observation des réactions nucléaires. Bien que la détection de l'oxygène 16 par cette méthode soit possible et fréquemment utilisée, nous avons choisi d'employer comme traceur l'oxygène 18 et la réaction $^{18}\text{O}(p,\alpha)$ lors de l'analyse. Les résultats obtenus au cours de cette série d'expériences prouvent une diffusion importante dans le niobium et le fer sous irradiation neutronique (fig. 7 et 8). Par contre, des expériences similaires effectuées avec du nickel (fig. 9) ne montrent pas de diffusion de l'oxygène pendant l'irradiation. L'étude des différents facteurs pouvant influencer cette diffusion : la température, le flux de neutrons, la structure cristalline, etc..., est en cours.

[1] - J. VERDONE et P. MOSER (à paraître)

c) Interaction entre interstitiels, parois de Bloch et dislocations dans le nickel (J.C. SOULIE, C. MINIER, J. LAUZIER)

INTRODUCTION

Nous présentons ici des mesures de frottement interne Q^{-1} et module élastique E qui dans les ferromagnétiques sont sensibles à trois phénomènes distincts :

- à la présence des défauts ponctuels dans tout le volume du cristal et que l'on étudie classiquement par résistivité électrique,
- à l'interaction entre les défauts anisotropes et l'aimantation, qui provoque une stabilisation des parois de Bloch, que l'on suit généralement par mesures de traînage magnétique ,
- à l'ancrage des dislocations par les défauts migrant à longue distance.

L'intérêt des expériences présentées est de réaliser des mesures couplées sur le même échantillon (conditions métallurgiques et thermiques idéales) et de préciser les modèles d'annihilation des défauts ponctuels créés par irradiation.

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION [2] [3]

Du nickel de fusion de zone a été bombardé par des électrons de 2 MeV dans le cryostat à l'hélium liquide décrit précédemment [1] et on mesure l'amortissement q^{-1} et la fréquence de résonance f_0 de l'échantillon (proportionnelle à $E^{1/2}$).

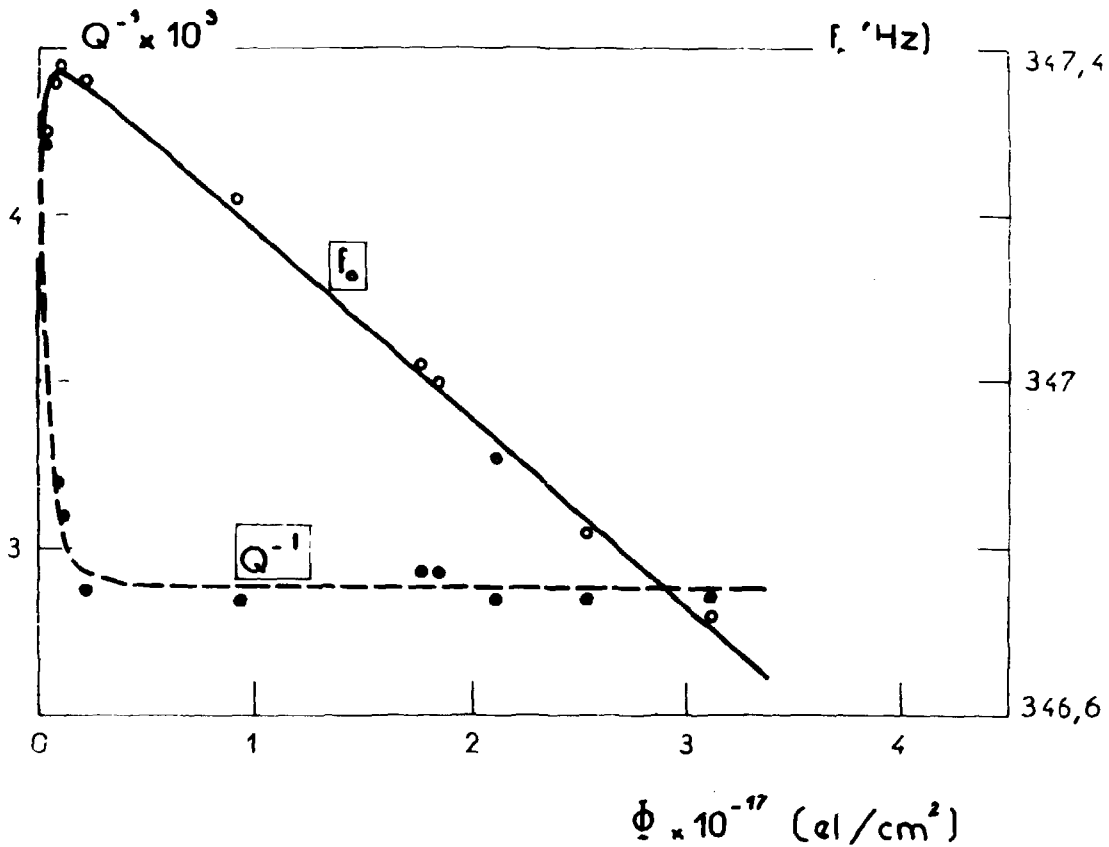


Fig. 10 - VARIATION DU FROTTEMENT INTERNE ET DE LA FREQUENCE DE RESONANCE D'UN ECHANTILLON DE NICKEL IRRADIE A 18 K PAR DES ELECTRONS DE 2 MeV.

1 - Au cours de l'irradiation

La figure 10 présente les variations de f_0 et q^{-1} en fonction du flux intégré d'électrons au cours d'un bombardement à 18 K. Au début de l'irradiation, l'augmentation de f_0 et la baisse de q^{-1} sont attribuées à l'ancrage des dislocations par les défauts créés. Lorsque cet effet est saturé, pour des flux plus élevés, la diminution de fréquence sans variation de frottement interne est due à l'effet élastique en volume : modification des constantes élastiques introduites par la présence des défauts ponctuels dans le cristal.

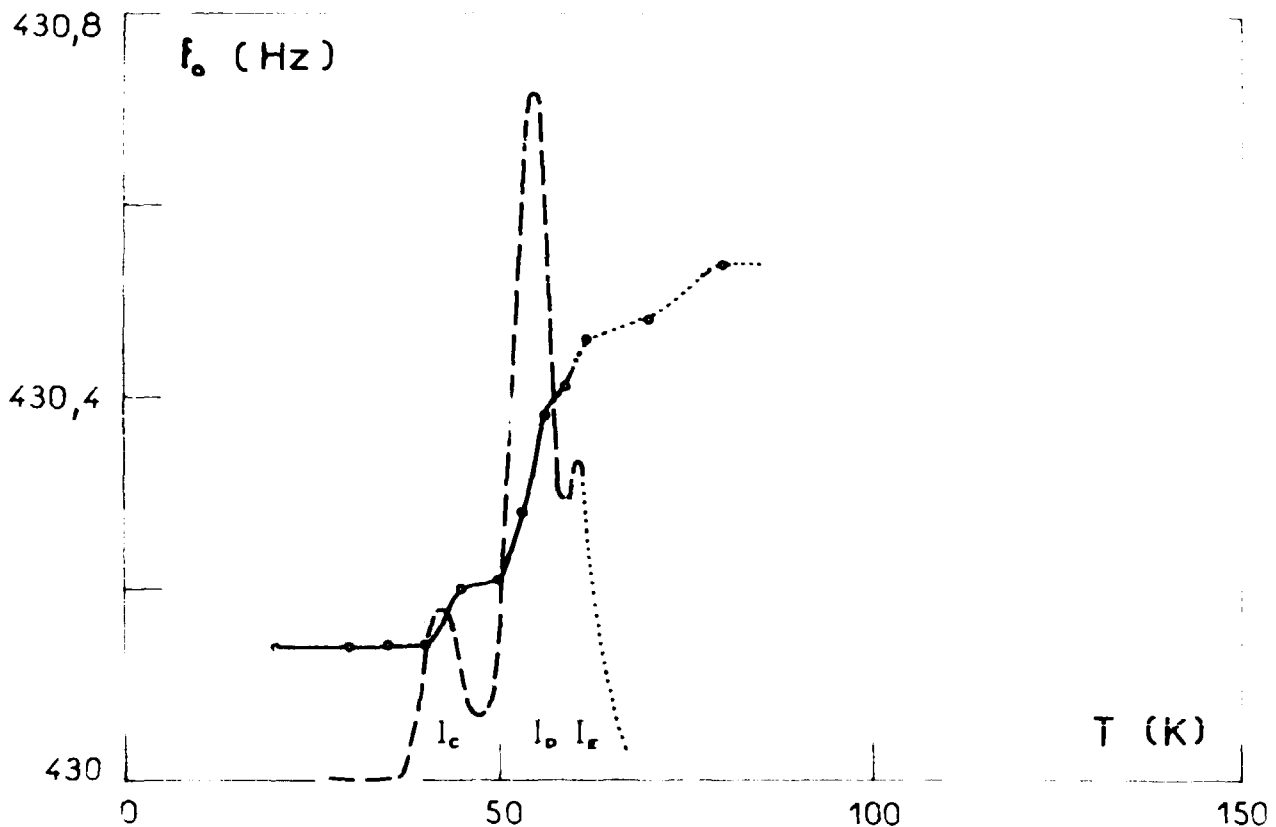


Fig. 11 - VARIATION DE LA FREQUENCE DE RESONANCE MESUREE A 4 K D'UN ECHANTILLON DE NICKEL DESAIMANTE, BOMBARDE AUX ELECTRONS, APRES UN RECUIT ISOCHRONE JUSQU'A LA TEMPERATURE T. DERIVEE.

2 - Après irradiation, au cours d'un traitement isochrone

La figure 11 présente les variations de fréquence f_0 de l'échantillon désaimanté mesurée à 4 K après un traitement isochrone jusqu'à la température T et sa dérivée. Jusqu'à 60 K on observe une restauration de l'effet élastique en volume qui reflète la variation de la concentration des défauts ponctuels dans le réseau : la dérivée met en évidence les stades bien connus $I_C I_D I_E$ d'annihilation des paires de Frenkel proches et de l'interstitiel libre.

La figure 12 montre les variations du frottement interne, mesuré à 4 K, on effectue une désaimantation et la nouvelle mesure est portée sur la courbe en pointillés.

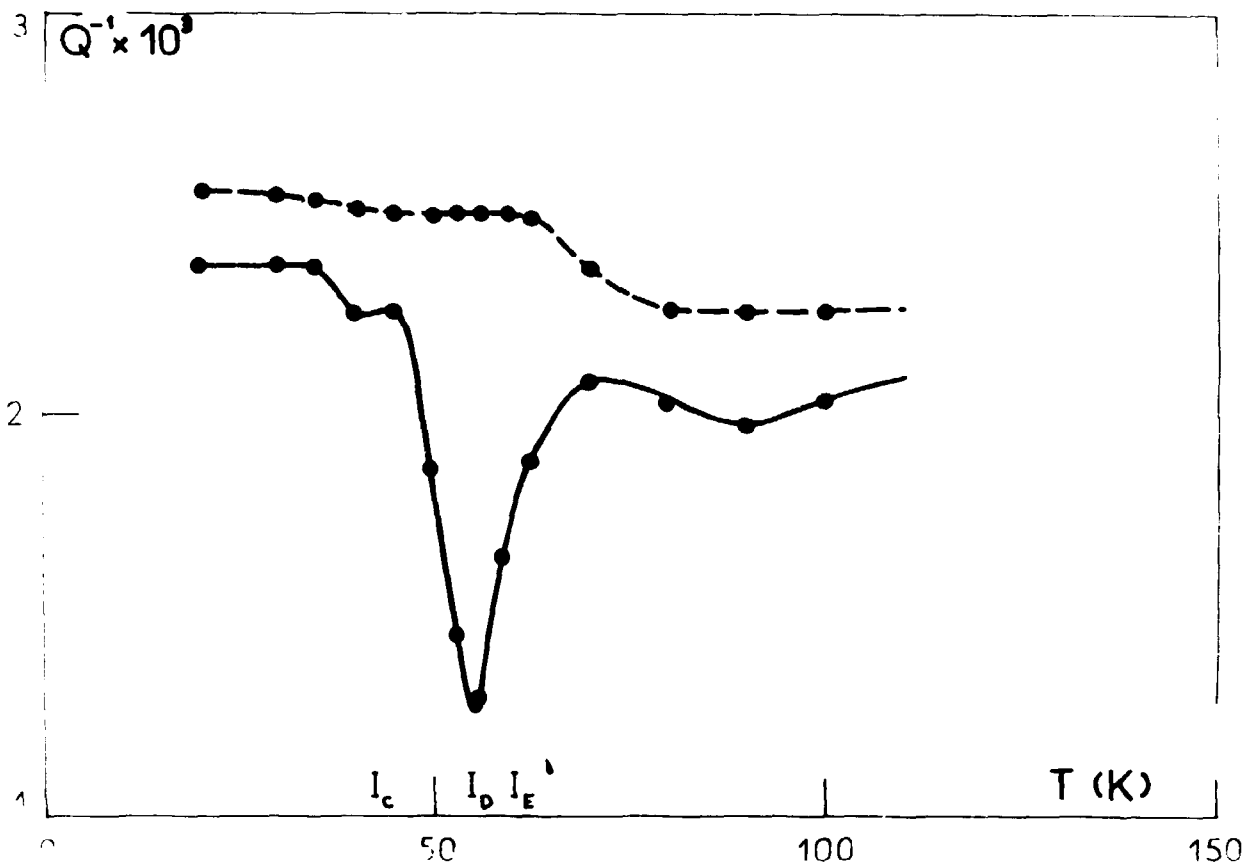


FIG. 12 - VARIATION DU FROTTEMENT INTERNE MESURE A 4K D'UN ECHANTILLON DE NICKEL BOMBARDE AUX ELECTRONS APRES UN RECUIT ISOCHRONE JUSQU'A LA TEMPERATURE T.

—— avant désaimantation
 - - - - - après désaimantation à 4K.

Le nickel présente une forte magnétostriction. Une contrainte mécanique sinusoïdale provoque donc un mouvement alternatif des parois de Bloch, donc une dissipation d'énergie. D'après la théorie de Néel, si un défaut anisotrope est susceptible de se réorienter par rapport à l'aimantation à la température T, il provoque une stabilisation des parois de Bloch qui se manifeste par une baisse de perméabilité dans les expériences de traînage magnétique et, simultanément, nous devons observer une diminution de frottement interne.

Ce phénomène est bien observé entre 35K et 40K (bande I_C) et entre 45K et 55K (bande I_E).

Les remontées de ces bandes sont dues à l'annihilation de l'interstitiel et correspondent bien aux stades de la figure précédente.

Si, par exemple, nous refroidissons à 4K (la surstructure restant figée) et si nous effectuons une désaimantation à 4K, les parois de Bloch sont emmenées en des endroits où la surstructure n'est plus favorable à leur stabilisation. Donc la courbe en pointillés ne présente pas de baisse de frottement interne correspondant aux bandes de traînage magnétique.

Sur cette courbe, après désaimantation, la baisse de q^{-1} observée entre 60K et 80K est attribuée à l'ancrage des dislocations par les interstitiels migrant librement. On peut calculer que le défaut qui arrive à 70K sur la dislocation a effectué environ 70.000 sauts, ce qui est compatible avec le taux de dislocations du cristal.

CONCLUSION

Un des arguments principaux de l'école allemande qui propose une migration unidimensionnelle de l'interstitiel (crowdion) dans les stades I est l'absence de pic de frottement interne associé au stade I_E . Les expériences réalisées ici montrent que dans le nickel étudié sans champ magnétique extérieur, même si ce pic existe, il se superpose à un fond continu de frottement interne qui présente une forte baisse ($1 \text{ à } 3 \cdot 10^{-3}$) dans la zone de température où l'on attend le pic.

Si on applique maintenant un fort champ continu pour éliminer les parois de Bloch, Keating Hart a montré que l'on ne peut pas voir non plus la réorientation de l'interstitiel libre par rapport à la contrainte mécanique car les divers sites sont rendus énergétiquement trop différents par la magnétostriction.

[1] - J.C. SOULIE, J.P. JODEAU, Y. DEPIERRE, C. MINIER
Radiation Effects 1971, vol. 11 p 221.

[2] - J.C. SOULIE, C. MINIER, J. LAUZIER
University of Sussex, 19 Sept. 1972.

[3] - J.C. SOULIE, C. MINIER, J. LAUZIER
à paraître dans Radiation Effects.

d) Volume de formation des lacunes dans l'or et le platine

(M. CHARLES)

Le volume de formation V^F d'une lacune dans un cristal, que l'on définit comme la variation du volume de ce cristal quand une lacune y est créée, est directement relié à la relaxation des atomes qui se produit au voisinage d'un site lacunaire. On a donc, dans la connaissance de ce volume, un moyen de tester les calculs de relaxation utilisant différents types de potentiels interatomiques.

Pour la détermination de V^F , on utilise les variations de la concentration d'équilibre c de lacunes en fonction de la pression p à température constante. En effet, une relation classique de thermodynamique conduit à

$$V^F = - kT \left[\frac{\partial \text{Log } c(T,p)}{\partial p} \right]_T \quad (A)$$

Le métal, sous forme d'un fil fin, est soumis à une haute pression hydrostatique d'hélium jusqu'à 10 Kbars. Il est chauffé par passage d'un courant continu. Pour mesurer la concentration de lacunes correspondante, on effectue une trempe ultra-rapide (la vitesse initiale de refroidissement est de l'ordre de 80.000°/s) par coupure du courant de chauffage et on mesure, à 77 K ou 4 K, l'augmentation de résistance électrique induite par la trempe.

Etude de l'or [1] [2]

Nos résultats sont représentés sur la figure 13. La valeur obtenue à 700°C ($V^F = 0,50$ v.at.) est en bon accord avec celles que trouvent différents auteurs pour des températures de trempe voisines. Par contre, le volume mesuré pour 850°C ($V^F = 1,08$ v.at.) est anormalement élevé ; en particulier, il est supérieur au volume d'autodiffusion déterminé à 900°C par Bayeler (0,72 v.at.)

Par ailleurs [2] nous avons mis en évidence :

- d'une part, une très forte augmentation de la solubilité de l'hélium dans l'or sous l'effet de la pression : la concentration atomique du gaz dans ce métal passe de 10^{-9} avant trempe à environ $2 \cdot 10^{-6}$ après trempe depuis 700-800°C sous 6 Kb.

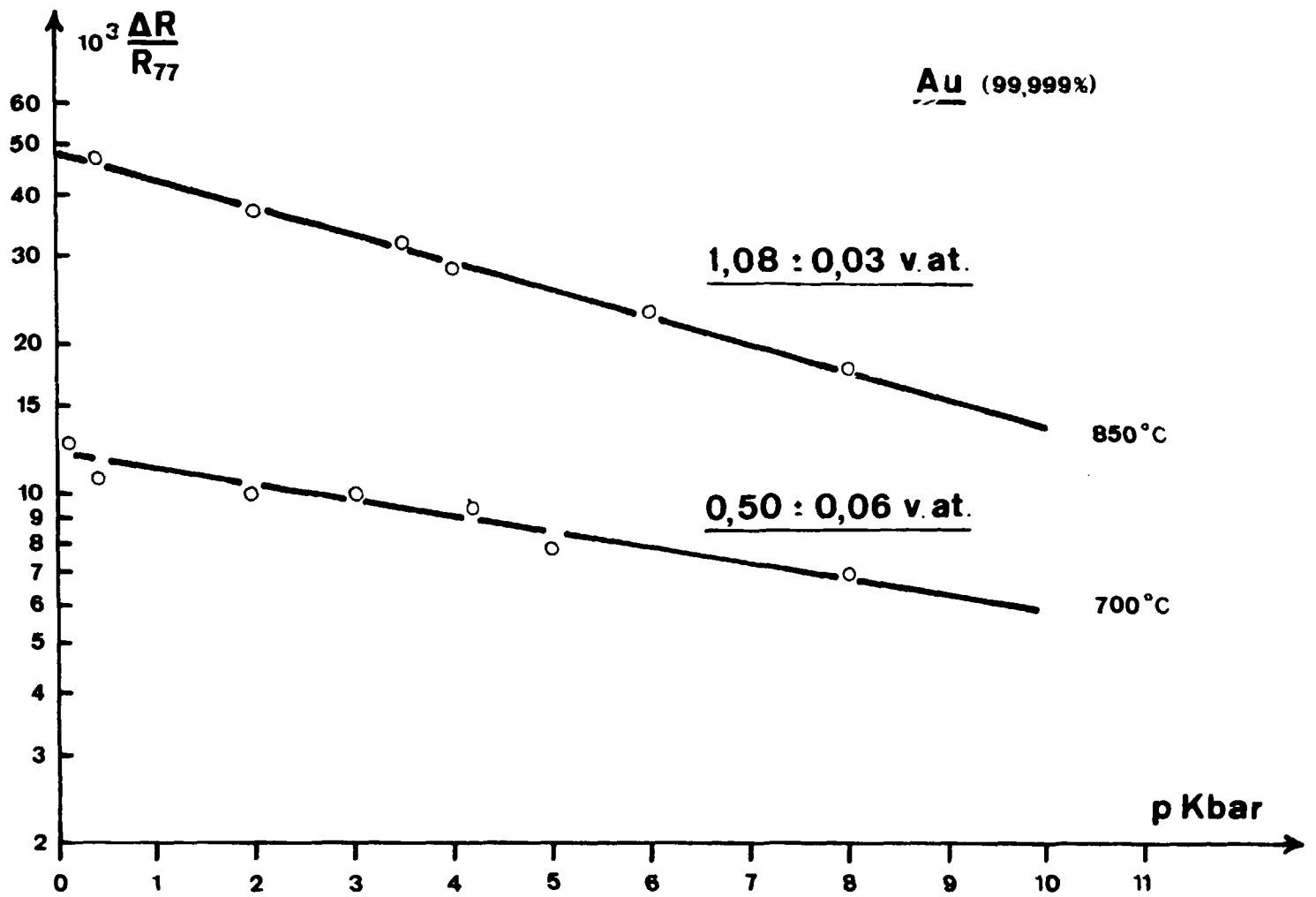


Fig. 13 - DETERMINATION DU VOLUME DE FORMATION DES LACUNES DANS L'OR :
VARIATIONS DE L'EXCES DE RESISTANCE ELECTRIQUE APRES TREMPE
EN FONCTION DE LA PRESSION.

La pente est égale à $-\frac{V^F}{kT}$

- d'autre part, une forte interaction entre les lacunes et cet hélium introduit par chauffage sous haute pression : des observations faites au microscope électronique révèlent la présence, dans l'or trempé depuis 700-800°C sous pression de 6 Kb et vieilli pendant quelques jours à 20°C, non seulement de tétraèdres de fautes d'empilement, comme on s'y attend, mais aussi de bulles d'hélium dont la taille varie de 25 à 500 Å, et dont la densité peut atteindre localement $10^{15}/\text{cm}^3$.

Nous pensons à ces deux phénomènes : solubilité croissante de l'hélium avec la pression et interaction lacunes-hélium pour expliquer le très fort volume de formation apparent obtenu dans nos expériences à 850°C et nous étudions actuellement l'interaction lacunes-hélium en fin de trempe et immédiatement après la trempe.

Etude du platine [β]

Des expériences analogues faites pour le platine à trois températures de trempe, ont donné les résultats suivants :

800°C	$v^F = 0,67 \pm 0,03 \text{ v.at.}$
1060°C	$v^F = 0,95 \pm 0,10 \text{ v.at.}$
1200°C	$v^F = 1,25 \pm 0,08 \text{ v.at.}$

Il est vraisemblable qu'on se trouve en présence d'un phénomène du même genre que pour l'or. La valeur obtenue pour 800°C semble néanmoins exempte de toute perturbation et nous proposons comme volume de formation des lacunes dans le platine

$$v^F = 0,67 \pm 0,03 \text{ v. at.}$$

