

INFLUENCE DES DEFAUTS D'IRRADIATION SUR LES

PROPRIETES ANELASTIQUES DU MAGNESIUM

C. MINIER*, G. HANECZOK** et J. LAUZIER***

CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE GRENOBLE
Département de Recherche Fondamentale
Section de Physique du Solide
85 X, 38041 GRENOBLE CEDEX (France)

I - INTRODUCTION

L'irradiation électronique introduit dans le cristal des défauts ponctuels : interstitiels et lacunes ; les premiers pouvant migrer dans le réseau à partir d'un domaine de température correspondant au stade I. La concentration des défauts créés par irradiation dépend de l'énergie des électrons E , de la dose ϕ et de la température de bombardement. Il faut souligner que si nous utilisons une énergie relativement faible (0,8 à 2 MeV), avec des doses de l'ordre de $10^{15} - 10^{16}$ el/cm² ce sont essentiellement des monointerstitiels et des monolacunes qui sont créés et la concentration reste inférieure à 1 p.p.m.

Le mouvement des défauts et leurs interactions avec les dislocations changent beaucoup les propriétés du cristal. Dans ce domaine on utilise différentes méthodes expérimentales, en particulier la mesure de la résistivité électrique, le frottement interne (F.I.) etc ...

L'objectif de ce travail est de présenter l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus dans le magnésium de haute pureté (6N) en utilisant la méthode du F.I. dans [1-4] et discuter l'influence des défauts d'irradiation sur les diverses manifestations anélastiques du Mg.

II - RESUME DES RESULTATS EXISTANT DANS LA LITTERATURE

1. Les défauts d'irradiation

Pour comprendre le rôle que jouent les défauts d'irradiation dans Mg il faut résumer les résultats des expériences de résistivité électrique. Après bombardement électronique avec des doses comprises entre 1 et $6 \cdot 10^{16}$ el/cm² ($E = 0,1$ à $0,4$ MeV) les processus de restauration des paires proches ont été observés par O'Neal et Chaplin [5] à des températures de 5-8 K et 9-13 K. A plus haute température Vajda et al. [6] ont observé :

1. à 90-120 K la migration des multiinterstitiels
2. au dessus de 170 K la migration des monolacunes.

* Membre de l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble

** Université de Silésie, KATOWICE (Pologne)

*** Membre de l'Institut National Polytechnique de Grenoble

Par ailleurs Schönfeld et Ehrhart [7] ont montré, en utilisant la méthode de la diffusion diffuse des rayons X, que les interstitiels libres migrent dans Mg en dessous de 4,5 K. Enfin Tzanetakis [8] a étudié la migration des monolacunes dans les échantillons de Mg après trempe. Il a observé un stade de restauration de résistivité électrique à 200 K avec une énergie de migration de 0,48 eV.

Il faut souligner, que les résultats de ces travaux [5-8] montrent clairement que dans Mg les monointerstitiels migrent à très basse température, en dessous de 4K. alors que les monolacunes sont mobiles à partir de 170-200 K.

2. Les phénomènes anélastiques

Nous allons donner une description générale des phénomènes anélastiques en dessous de la température ambiante dans les métaux f.c.c. et h.c.p. avant irradiation.

Dans ces métaux, après écrouissage, on observe deux pics de F.I. (B_1 et B_2) qui sont appelés pics de Bordoni. La théorie de cette relaxation est bien développée [9] et aujourd'hui nous pouvons dire qu'elle est due à la formation thermiquement activée des doubles décrochements sur les dislocations. Dans le cas du magnésium le pic B_1 est situé à $T \approx 60$ K et B_2 à 120 K (pour une fréquence de 700 Hz). L'amplitude des pics de Bordoni est très sensible au changement de longueur libre des lignes de dislocation L. Si nous observons une diminution de cette amplitude, par exemple en fonction de la température de recuit, nous pouvons dire qu'il y a une diminution de la longueur de ligne L qui est due à l'ancrage des dislocations par les défauts qui arrivent après diffusion dans le réseau. Par contre si la hauteur des pics de Bordoni augmente (L augmente) deux explications sont possibles :

1. la diffusion des défauts le long des dislocations
2. l'annihilation de défauts qui ancreraient les dislocations ; par exemple si des lacunes arrivent, elles peuvent s'annihiler avec les interstitiels.

Théoriquement on a prévu également l'existence d'une relaxation due au mouvement des décrochements géométriques des dislocations, mais l'énergie d'activation de ce processus est très faible, elle est donc située à très basse température et n'a pas été observée expérimentalement [10]. En dessous de la température du pic de Bordoni, seuls les décrochements géométriques sont mobiles et tous les pics d'interaction observés dans ce domaine de température concernent les décrochements géométriques.

Au-dessus de la température du pic de Bordoni on observe plusieurs pics d'interaction entre défauts et dislocations ; ils sont appelés pics de Hasiguti.

En résumé il y a quatre sortes de phénomènes anélastiques dus à la présence des défauts d'irradiation :

- 1. Les pics de relaxation des défauts seuls.
- 2. L'ancrage des dislocations qui est la conséquence de la migration des défauts à longue distance. Dans ce cas, on observe une augmentation du module élastique et une diminution du fond de F.I.
- 3. Les pics d'interaction défauts intrinsèques - dislocations.
- 4. Les modifications des phénomènes de relaxation des dislocations par exemple par l'ancrage.

Nous allons discuter en détail chaque phénomène dans le cas du magnésium.

III - PICS DE RELAXATION A TRES BASSE TEMPERATURE DUS AUX DEFAUTS D'IRRADIATION

Nous avons déjà souligné que dans Mg la migration des monointerstitiels est située en dessous de 4 K. En conséquence la relaxation des interstitiels isolés doit avoir lieu en dessous de cette température et doit disparaître lors d'un recuit à 4 K. Il est clair que cette relaxation ne pourra être observée qu'après irradiation à $T_{irr} < 4$ K.

Une autre relaxation possible due aux défauts d'irradiation concerne les paires proches. Le pic de F.I. correspondant doit avoir lieu à une température inférieure à celles des stades de résistivité des paires proches (c'est à dire en dessous de 5-8 K ou 9-13 K [5]) et il doit disparaître lors d'un recuit à 5-8 K ou 9-13 K.

Sur la figure 1 sont représentés nos résultats préliminaires de F.I. obtenus en utilisant le cryostat travaillant à partir de 0,7 K [1]. La courbe 1 représente le spectre de F.I. d'un échantillon de Mg haute pureté (6N) immédiatement après irradiation à 7 K ($\phi = 5 \times 10^{15}$ el/cm² et $E = 0,8$ MeV) et la courbe 2 présente le spectre de F.I. au cours de la 2e montée (après recuit à 22 K). Les pics observés à 3 K, 7 K et 16 K sont absents avant irradiation. Le grand pic observé vers 16 K a disparu après recuit à 22 K, c'est le pic appelé π_0 décrit dans [2]. Ce pic ne peut pas être lié à la relaxation de l'interstitiel ou d'une paire proche car il existe à une température supérieure à 13 K qui est la fin du stade I. Il est attribué à un mécanisme d'interaction entre décrochements géométriques et défauts d'irradiation de nature interstitielle [2].

Les pics situés à 7 K et 3 K semblent aussi être associés à un mécanisme similaire car ils existent encore après un recuit à 22 K.

Pour choisir entre un modèle de relaxation des multiinterstitiels ou un pic d'interaction avec les dislocations il faudrait préciser la zone de disparition de ces pics.

Finalement aucun des pics observés à basse température dans ce travail ne peut être interprété par la relaxation des monointerstitiels ou de certaines paires proches.

IV - REMONTÉES DU MODULE ELASTIQUE ENTRE 15 K ET 300K

Théoriquement il existe deux possibilités d'explication de remontée du module au cours d'une montée en température :

1. La disparition d'un pic de F.I. situé à plus basse température.
2. L'ancrage des dislocations par les défauts.

Conformément à la théorie de Granato et Lucke [11] le fond de F.I. est proportionnel à la longueur des dislocations à la puissance 4 ($Q^{-1} \propto L^4$) donc pendant l'ancrage nous devons observer une forte diminution du fond continu de F.I.

L'étude détaillée de l'influence des défauts d'irradiation sur les propriétés anélastiques du Mg a été faite dans [3]. Le spectre de F.I. et f^2 qui sont représentés sur la fig. 2 sont obtenus sur un échantillon de Mg écroui à 8 K (par 4 flexions successives de 0,3 %) puis recuit à 340 K et irradié à 10 K ($E = 0,8$ MeV, $\phi = 2 \times 10^{15}$ e1/cm²). Au cours d'une montée thermique juste après le bombardement électronique nous observons des augmentations de fréquence vers 15 K, 110, 180, 245, 280 et des pics de F.I. vers 13-16 K, 20, 130, 145, 180, 225, 245 et 280 K.

1. Remontée du module vers 15 K

Sur la figure 2 le premier pic est vu dans la gamme des températures 13-16 K, et il est assimilé à π_0 . Les résultats présentés sur la figure 1 montrent que ce pic a complètement disparu après le recuit à 22 K. Cette disparition doit s'accompagner d'une augmentation de module or dans cette gamme de température, nous n'observons qu'une remontée de f^2 vers 15 K, donc ce phénomène est responsable de la disparition du pic π_0 . Ces résultats précisent donc que π_0 disparaît juste après la température d'observation (≈ 15 K).

2. Remontée du module vers 110 K

La figure 3 représente les spectres de F.I. mesurés après écrouissage à 8 K (4 fois 0,3 %) et avant irradiation (courbe 1) et après irradiation au

cours de trois montées à des températures croissantes ($E = 0,8 \text{ MeV}$, $\phi = 2 \times 10^{15} \text{ e1/cm}^2$) [3]. Au cours de la montée linéaire jusqu'à 120 K, on observe une augmentation de la fréquence entre 95 et 115 K. Après cette montée la courbe 4 montre que le pic B_1 et l'anomalie de module correspondante ont diminué. Dans le domaine 90-120 K il est proposé [6] qu'après bombardement électronique les multiinterstitiels migrent dans le réseau, ils peuvent ancrer les dislocations responsables de B_1 et diminuer son amplitude. L'arrivée de ces complexes interstitiels doit aussi diminuer le fond de F.I., or nous observons bien sur la figure 3 (courbe 3) un décalage du spectre de F.I. centré vers 108 K comme la remontée de fréquence. L'ensemble des phénomènes observés est donc bien expliqué par la migration de complexes interstitiels.

3. Remontée du module vers 180 K

La figure 4 représente les résultats obtenus lors des recuits successifs effectués après ceux de la figure 3. On remarque qu'au cours des montées linéaires des courbes 6 et 7 l'augmentation de fréquence vers 180 K est accompagnée d'une décroissance rapide du F.I. ; elle peut donc être attribuée à l'ancrage des dislocations responsables du fond de F.I. Nous observons également que dans cette zone de température (montée jusqu'à 190 K) le pic de Bordoni augmente.

Dans les travaux [6-8] il a été montré qu'à partir de 170-200 K les monolacunes sont mobiles, elles peuvent donc ancrer les dislocations responsables du F.I. et aussi s'annihiler avec les interstitiels qui ont ancré les dislocations responsables de B_1 (augmentation de la relaxation de Bordoni).

V - PIC A 147 K DU A L'INTERACTION ENTRE DEFAUTS ET DISLOCATIONS

Au dessus de la température du pic de Bordoni, dans l'échantillon écroui et/ou irradié, on observe habituellement plusieurs pics d'interaction entre défauts et dislocations (pics de type Hasiguti).

Dans le cas du Mg, après écrouissage Seyed Reihani [12] a observé le pic P_1 à 105 K ($f = 1 \text{ Hz}$) qui disparaît après recuit à 150 K. Nous avons observé, après écrouissage (à 8 K), le même pic à 147K ($f = 700 \text{ Hz}$), il a donc disparu après recuit à 350 K, mais il est créé à nouveau par irradiation électronique. Sur la figure 5 nous représentons la comparaison entre les courbes correspondantes de F.I. Les résultats montrent clairement que les défauts responsables de ce phénomène sont de nature intrinsèque. Nous observons également ce pic P_1 sur la figure 2 et en particulier sur la figure 3 et 4 au cours des recuits successifs (courbes 4, 5, 6). L'examen de ces figures montre que P_1 a presque totalement disparu après recuit à 167 K. A ces températures les lacunes ne peuvent pas

encore migrer dans le réseau, donc les défauts responsables de P_1 sont de nature interstitielle. Il est probable que les dislocations qui interagissent sont celles responsables du pic B_1 car, lors de la disparition de P_1 on observe une augmentation de l'amplitude de B_1 . C'est bien le comportement attendu si le pic d'interaction P_1 est associé à un mécanisme de diffusion des interstitiels sous contrainte sur les dislocations responsables de B_1 (par exemple longitudinalement) [13]. La disparition de P_1 correspond alors à la diffusion à longue distance des interstitiels le long des dislocations et s'accompagne donc d'une augmentation du pic de Bordoni associé, puisque les longueurs des segments libres des dislocations augmentent.

VI - INFLUENCE DE L'IRRADIATION SUR LA RELAXATION DE BORDONI

Nous avons déjà dit que les défauts créés par irradiation peuvent diffuser dans le réseau, et ancrer les dislocations, diminuant ainsi les longueurs libres L , alors que les contraintes internes et la densité de dislocations reste inchangé ; on peut donc étudier l'influence de L sur la relaxation de Bordoni.

L'amplitude de la relaxation de Bordoni Q_M^{-1} dépend très fortement des longueurs libres des dislocations L . En général une loi de la forme $Q_M^{-1} = kL^p$ est acceptée (k est une constante). L'exposant p varie suivant les différentes théories : depuis des valeurs très faibles jusqu'à $p = 2$ pour Seeger et al. [14], $p = 1$ dans la théorie de Paré [15] et p atteint 2 pour des fortes contraintes internes σ_1 dans la théorie d'Alefeld [16]. Plus récemment Esnouf [9] a montré que cette variation dépend fortement de la distribution des contraintes internes et des longueurs de dislocation et peut varier depuis des valeurs très faibles jusqu'à $p = 2$. Simultanément une diminution de la température T_M du maximum du pic de Bordoni est attendue quand la longueur L diminue [9].

Expérimentalement plusieurs auteurs ont proposé par une analyse assez indirecte une variation $Q_M^{-1} = kL^2$ pour B_2 dans les métaux c.f.c. [17-18-19], mais Lauzier et al. [20] ont montré que dans le cuivre très pur on peut observer un exposant p de l'ordre de 0,15.

Nous pouvons tirer profit du processus d'ancrage des dislocations pour vérifier les résultats des travaux théoriques [9-14-16]. Dans le cas du Mg la situation est très commode pour faire cette vérification, car la migration des interstitiels ($T < 4$ K) et des lacunes ($T > 170$ K) est bien séparée. En outre, il a été montré [2] que les défauts ancreurs des dislocations ne diffusent pas en dessous de 150 K sur les dislocations responsables de B_1 et de 200 K pour B_2 . Nous avons donc choisi d'irradier la magnésium à 140 K.

Les résultats de cette expérience sont représentés sur la figure 6. L'échantillon a été écroui de 1,5 % à 8 K et recuit à 230 K pour bien développer B_1 et B_2 comme le montre cette figure. Ensuite nous avons effectué 9 irradiations à 140 K ($E = 2$ MeV) et nous avons relevé le spectre de F.I. entre 8 K et 140 K après chaque irradiation (fig. 6). Nous observons que l'amplitude de B_1 et B_2 diminue au cours des irradiations successives et que la température T_M du maximum de B_2 diminue alors que celle de B_1 reste constante.

L'analyse quantitative de ces phénomènes montre que la valeur obtenue pour le paramètre p est égale à 0,09 pour B_1 et 0,15 pour B_2 . Dans [4] nous avons montré qu'une valeur de l'exposant p très inférieure à 1 peut être bien expliquée dans le cadre de la théorie d'Esnouf [9] avec une distribution des longueurs des dislocations et des contraintes internes :

$$N_1(L, \sigma_i) = AL \exp\left(-\frac{L}{\bar{L}}\right) \delta(\sigma_i - \bar{\sigma}_i)$$

($A =$ constante de normalisation ; \bar{L} et $\bar{\sigma}_i =$ valeurs moyennes de L et σ_i) et pour les valeurs de L relativement grandes ($4 \times 10^{-6} < L < 10^{-4}$ cm dans notre cas).

La température du maximum de B_2 change en accord avec la loi prévue par la théorie d'Esnouf :

$$T_M = B \ln L \quad \text{avec} \quad B = \frac{2w_k}{k_B} \mathcal{L}(\sigma_i) \quad [9], \quad \text{dans laquelle}$$

$2w_k$ est l'énergie de formation d'un double décrochement,

k_B la constante de Boltzman,

$\mathcal{L}(\sigma_i)$ est un facteur numérique qui dépend de la contrainte interne σ_i et de la distribution des longueurs de dislocations (9).

Pour la valeur de B dans [4] nous avons obtenu 1,06 K. A partir de cette valeur nous pouvons calculer l'énergie d'activation de la relaxation de Bordoni E_c . Pour la distribution N_1 nous avons obtenu :

$0,12 \text{ eV} < E_c < 0,16 \text{ eV}$ pour $0,08 < \sigma_i / \sigma_p < 0,2$ σ_p étant la contrainte de Peierls. La valeur expérimentale de E_c trouvée par déplacement du pic B_2 en fonction de la fréquence [12] est 0,15 eV ; nous constatons donc un excellent accord.

Nous devons cependant souligner que T_M du pic B_1 ne varie pas avec l'irradiation contrairement à ce qui est prévu théoriquement. Le même phénomène avait été observé dans le cuivre irradié [20] et on constate également dans le magnésium écroui, au cours des recuits successifs, une baisse importante de l'amplitude de B_1 qui n'est pas accompagnée d'une diminution de T_M de ce pic alors que pour B_2 les deux variations sont concomitantes. Ce comportement semble

donc être associé à la nature différente des dislocations responsables de B_1 et B_2 et qui seraient analogues dans les deux métaux (cuivre et magnésium).

CONCLUSION

L'étude du frottement interne et du module élastique est une méthode très puissante pour la connaissance des défauts d'irradiation dans les métaux et de leurs interactions avec les dislocations. Dans ce travail nous avons voulu l'illustrer par des exemples précis relatifs au magnésium.

Nous avons notamment déterminé les stades de migration à longue distance de défauts de différentes espèces. L'analyse de pics de relaxation existant à très basse température a été faite et le choix entre mécanismes dus aux défauts seuls ou en interaction avec les décrochements géométriques a été approfondi. Dans le cas du pic P_1 d'interaction entre défauts et dislocations nous avons pu montrer que les défauts intervenant sont de nature interstitielle et que les dislocations interagissant sont celles qui sont responsables du pic B_1 et nous suggérons qu'il s'agit d'un mécanisme d'interaction associé à un mouvement latéral des défauts le long des lignes.

Enfin, indirectement, les défauts ajoutés par irradiation sur les dislocations peuvent servir à tester les théories de relaxation de Bordoni et nous avons présenté une analyse des variations des paramètres des pics B_1 et B_2 .

REFERENCES

- 1- MINIER C., LAUZIER J., DISDIER F. ET HAGNIER R.,
ECIFUAS-4, J. de Physique (sous presse)
- 2- MINIER C., DUCLOS D. et LAUZIER J.,
J. Phys. F : Met. Phys, 13, 13 (1983)
- 3- LAUZIER J., HANECZOK G. et MINIER C.,
ECIFUAS-4, J. de Physique (sous presse)
- 4- HANECZOK G., LAUZIER J. et MINIER C.
ECIFUAS-4, J. de Physique (sous presse)
- 5- O'NEAL J.N. et CHAPLIN R.L.,
Phys. Rev. B5, 3810 (1972)
- 6- VAJDA P., MAURY F., LUCASSON A. et LUCASSON P.,
Rad. Effects, 45, 41 (1980)
- 7- SCHONFELD B. et EHRHART P.,
Rad. Effects, 59, 93 (1981)
- 8- TZANETAKIS P.,
Thèse, Université de Grenoble (1978)
- 9- ESNOUF C.,
Thèse, Université de Lyon (1978)
- 10- FANTOZZI G. et RITCHIE I.G.,
ICIFUAS-7, J. de Physique, 42, C5-3 (1981)
- 11- NOWICK A.S. et BERRY B.S.
Anelastic Relaxation in Crystalline Solids, Academic Press, New-York (1972)
- 12- SEYED REIHANI S.M.,
Thèse, Université de Lyon (1981)
- 13- WINKLER-GNIEWEK W., SCHLIPF J. et SCHINDEMAYR R.,
ICIFUAS-5, éd. Lenz D et Lücke K., Springer-Verlag Berlin (1975) p 246
- 14- SEEGER A., DONTER H. et PLAFF,
Discuss. Faraday Soc. 23, 19 (1957)
- 15- PARE V.K.,
J. Appl. Phys., 32, 332 (1961)
- 16- ALEFELD G., J. Appl. Phys., 36, 2642 (1965)
- 17- GRANDCHAMP P.A.,
J. de Physique Coll. 32, 229 (1971)

- 18- FANTOZZI G.,
Thèse, Université de Lyon (1971)
- 19- FORNEROD R.C.,
Mem. Sci. Rev. Mat., 66, 2 (1962)
- 20- LAUZIER J. et MINIER C.,
J. Phys. F : Met. Phys., 11, 1361 (1981)

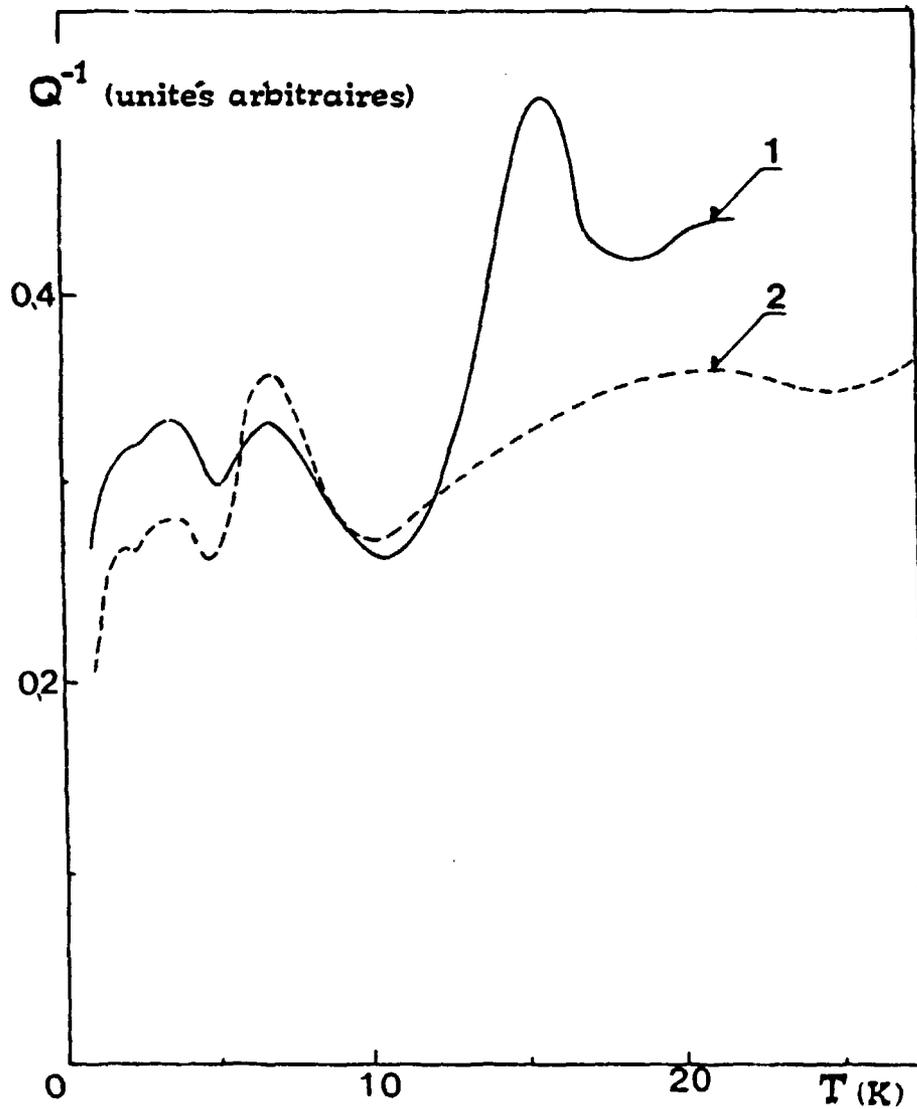


Fig. 1 : Frottement interne en unités arbitraires, en fonction de la température, après irradiation ($\phi = 5 \cdot 10^{15}$ el/cm², $E = 0,8$ MeV) courbe 1 au cours de la 1ère montée jusqu'à 22 K - courbe 2 au cours de la 2ème montée.

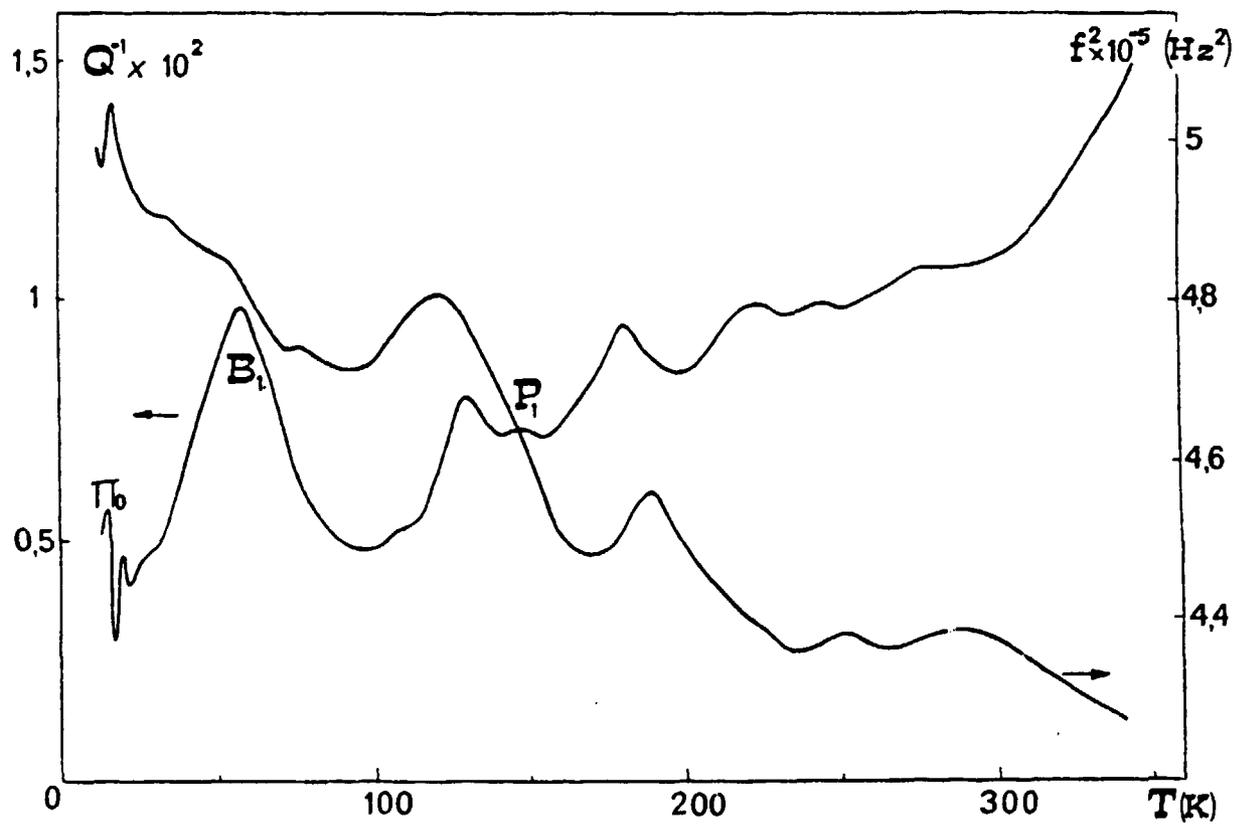


Fig. 2 : Variations de Q^{-1} et f^2 après irradiation à 10 K ($E = 0,8$ MeV ; $\phi = 2 \times 10^{15}$ e1/cm²) sur l'échantillon écroui à 8 K (4 flexions de 0,3 %) et recuit à 340 K.

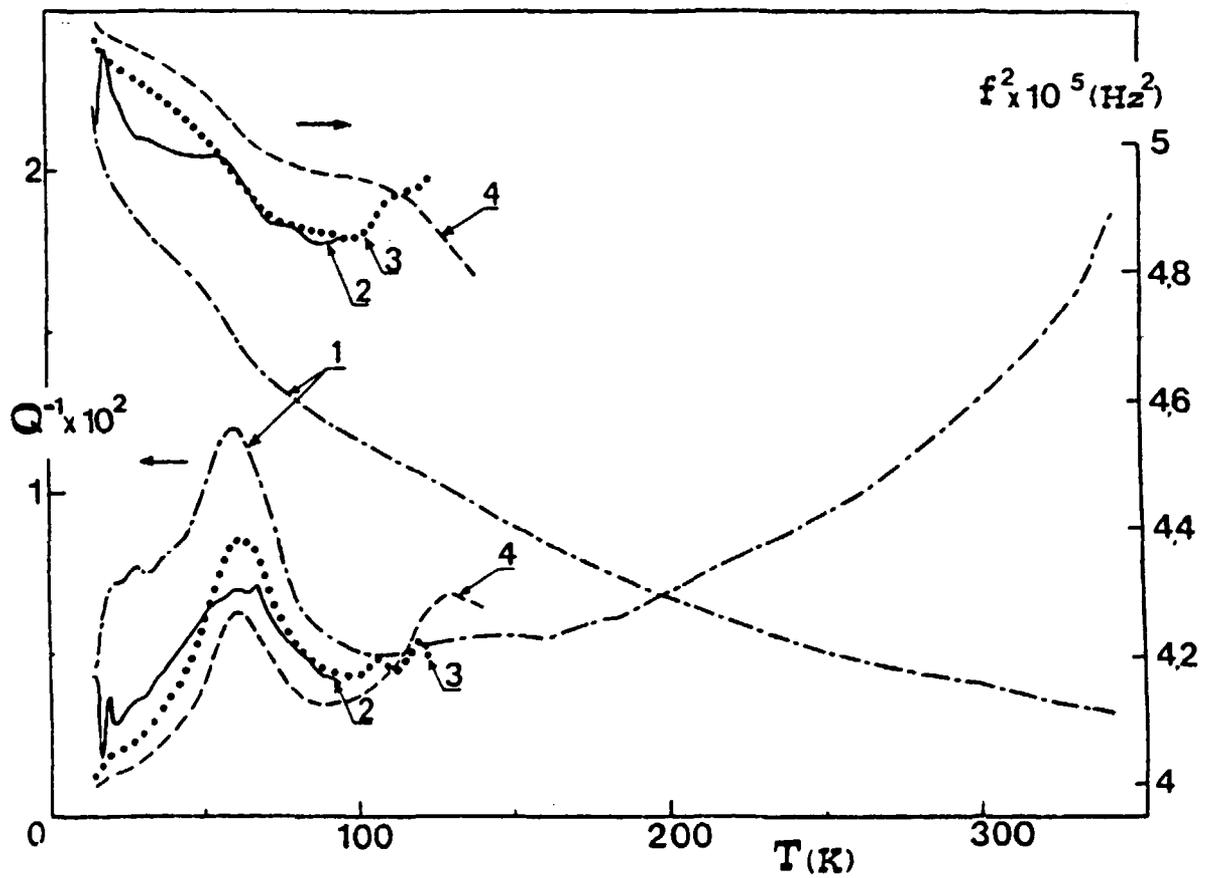


Fig. 3 : Evolutions de Q^{-1} et f^2 avant irradiation (courbe 1), après irradiation (courbe 2) et recuits aux températures suivantes : 95 K (courbe 3) 123 K (4).

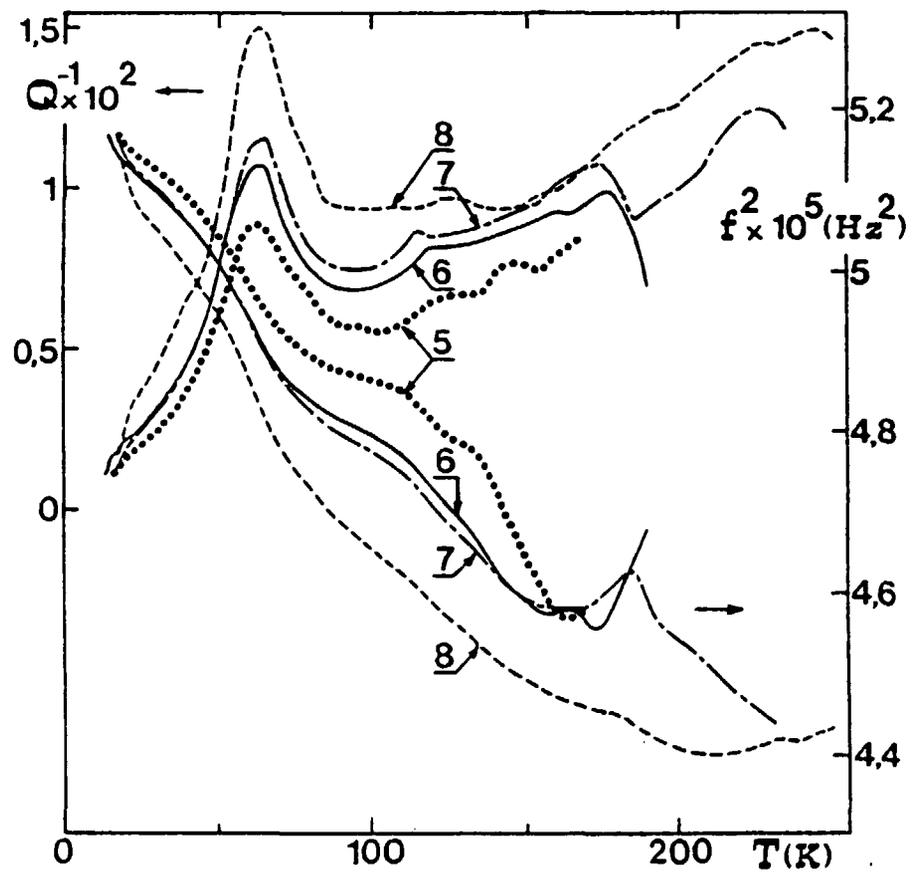


Fig. 4 : Suite de la figure 3 : après recuits à 140 K (courbe 5), 167 K (6), 190 K (7), 235 K (8).

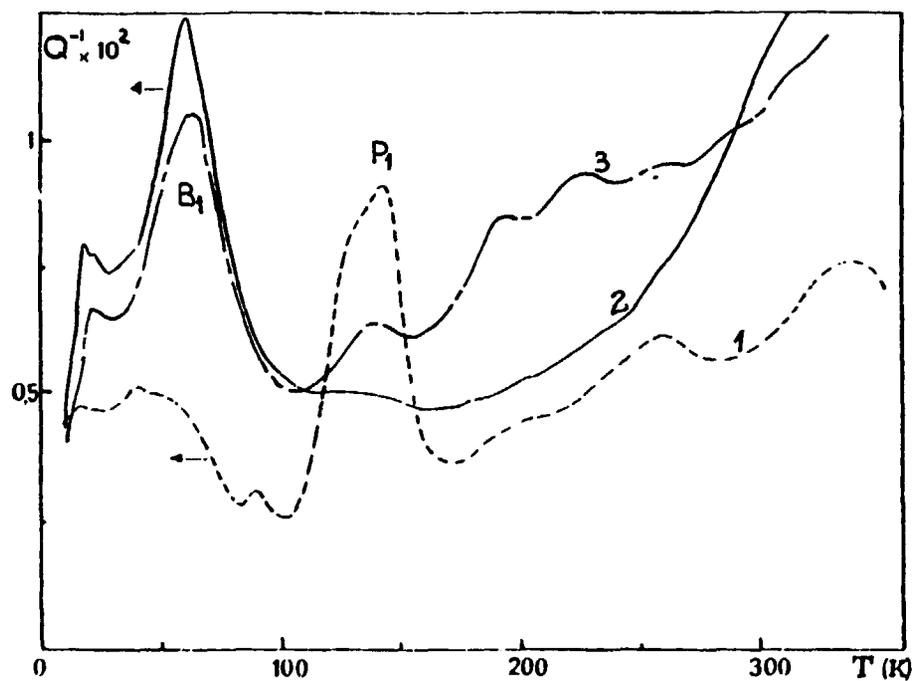


Fig. 5 : Variation du frottement interne Q^{-1} immédiatement après écouissage (courbe 1) ; après écouissage et recuit à 350 K (courbe 2) et après irradiation électronique (courbe 3) $E = 0.8 \text{ MeV}$, $\phi = 2 \times 10^{13} \text{ el/cm}^2$ $f = 700 \text{ H}_2$.

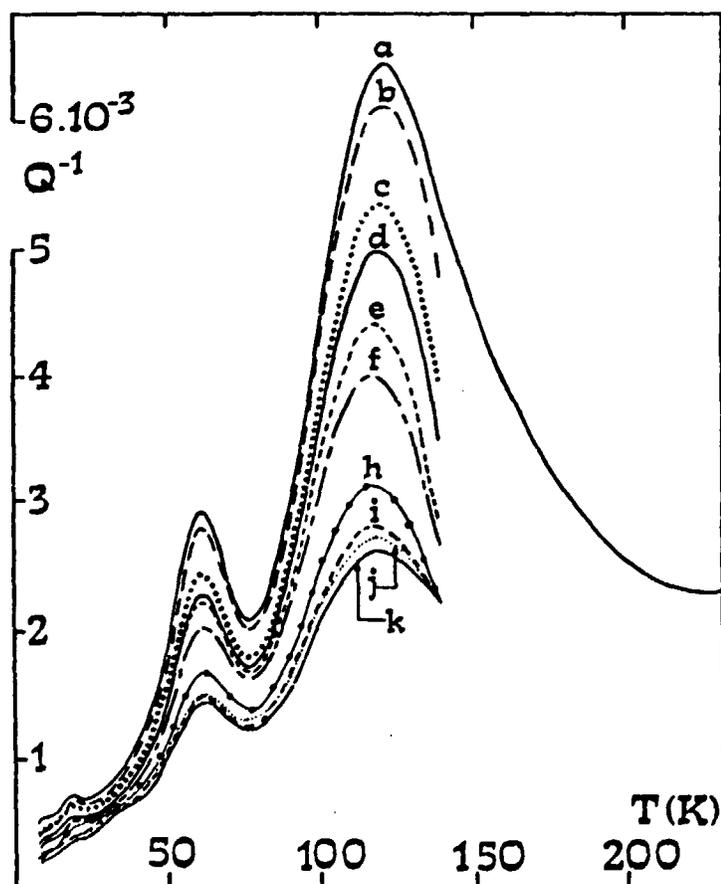


Fig. 6 : Spectres de frottement interne en fonction de la température pour différentes doses d'irradiation.

- (a) avant irradiation
- (b) $\phi = 6,37 \cdot 10^{13}$ eI/cm²,
- (c) $20 \cdot 10^{13}$,
- (d) $46 \cdot 10^{13}$,
- (e) $88,7 \cdot 10^{13}$,
- (f) $0,3 \cdot 10^{16}$,
- (h) $1,07 \cdot 10^{16}$,
- (i) $2,89 \cdot 10^{16}$,
- (j) $7,03 \cdot 10^{16}$,
- (k) $16,6 \cdot 10^{16}$.