

**COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**

8.4

**ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREEES  
PAR IRRADIATION DANS :**

- LE NICKEL MONOCRISTALLIN**
- LE GADOLINIUM POLYCRYSTALLIN**

*par**Robert COPE*

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble

**Rapport CEA-R-3854****1969****SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A**

Ea

C.E.N-SACLAY B.P. n°2, 91-GIF-sur-YVETTE-France

CEA-R-3854 - COPE Robert

ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREEES PAR IRRADIATION DANS : - LE NICEL MONOCRISTALLIN  
- LE GADOLINIUM POLYCRYSTALLIN

Sommaire. - Le travail qui a fait l'objet de ce mémoire comporte deux parties distinctes :

- Une première constituée de l'étude du nickel sous la forme de monocristaux, à l'aide de mesures de résistivité ;
- La seconde partie est composée d'expériences de résistivité et de traçage magnétique sur un cristal h.c.p. ferromagnétique autre que le cobalt, le gadolinium.

Dans la première partie, nous avons mis en évidence un effet sensible de la direction de l'irradiation électronique (à 20 °K) sur la création des défauts ponctuels dans le nickel monocristallin, en particulier au niveau des stades

. / .

CEA-R-3854 - COPE Robert

STUDY OF POINTS DEFECTS PRODUCED BY IRRADIATION OF MONOCRYSTALLINE NICKEL AND POLYCRYSTALLINE GADOLINIUM

Summary. - The work described in this thesis falls into two parts :

- The first comprises a study of magnetocrystalline nickel by resistivity measurements ;
- The second is a description of resistivity and magnetic after effect measurements on an h.c.p. ferromagnetic crystal other than cobalt, namely gadolinium.

For the first part we have demonstrated the existence of a small but definite orientation dependence in the creation of point defects by electron irradiation (20 °K) of a nickel

. / .

$I_C$ , II et III des courbes de revenu de la résistivité.

Dans la deuxième partie, un point particulier a été mis en évidence : l'absence de phénomène de traînage magnétique dans un métal ferromagnétique irradié par des neutrons (à 27 °K). Quelques points d'interprétations préliminaires sont avancés pour expliquer la différence notable entre le gadolinium et le cobalt.

1969

57 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

---

single crystal. In particular, the effect is manifested in the form of the stage  $I_C$ , II and III in the resistivity recovery.

In the second part an important result has emerged : namely that there is no magnetic after effect phenomenon in a neutron irradiated (27 °K) ferromagnetic metal. Several considerations are discussed by way of a preliminary interpretation of this important difference between gadolinium and cobalt.

1969

57 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

- Rapport CEA-R-3854 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble  
Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique  
Section de Physique du Solide

ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREEES PAR IRRADIATION DANS :

- LE NICKEL MONOCRISTALLIN
- LE GADOLINIUM POLYCRYSTALLIN

par

Robert COPE

Thèse de docteur de 3ème cycle  
Spécialité : physique du solide

- Juillet 1969 -

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur L. NEEL, Membre de l'Institut, Directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, où a été poursuivie cette étude.

Je remercie Monsieur D. DAUTREPPE, Chef du Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique qui m'a accueilli dans ses laboratoires et m'a accordé toutes les facilités pour mener à bien ce travail.

Monsieur le Professeur B. DREYFUS, Monsieur R. MAYNARD, Maître de Conférences, ont bien voulu participer à la commission d'examen ; je les en remercie.

Qu'il me soit permis de dire ma gratitude à Madame C. MINIER pour ses conseils et sa compétence dans la réalisation de ce travail.

A Monsieur P. MOSER qui a facilité mon initiation à la recherche, à Monsieur H. BILGER, pour sa collaboration scientifique, j'exprime mes remerciements.

Je tiens à remercier le personnel des Basses Températures, des Accélérateurs qui a participé à ce travail.

Enfin, que tous mes amis, parmi lesquels Monsieur NGUYEN THAN, et le personnel de Physique du Solide, en particulier, Madame S. LAFFON et Monsieur G. BAUDRAND, trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour leur aide efficace et sympathique.

TABLE DES MATIERES

---

CHAPITRE I

- Introduction
1. Intérêt de l'étude des monocristaux
  2. Diffusion multiple électronique
  3. Création des défauts dans un cristal

CHAPITRE II

- Techniques expérimentales
1. Elaboration des échantillons
  2. Montage et irradiation des échantillons
  3. Etude thermique

CHAPITRE III

- Résultats expérimentaux
1. Accroissement initial de la résistivité
  2. Restauration de la résistivité

CHAPITRE IV

- Discussion des résultats expérimentaux
1. Structure fine
  2. Essais d'identification des différents stades.

CHAPITRE V

- Etude du gadolinium
- A. Caractéristiques techniques
  - B. Résultats expérimentaux
  - C. Discussion
- Conclusion
-

## ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREEES PAR IRRADIATION DANS :

- LE NICKEL MONOCRISTALLIN
- LE GADOLINIUM POLYCRYSTALLIN

### / I - INTRODUCTION /

#### 1 - INTERET DE L'ETUDE DE MONOCRISTAUX

Un polycristal étant, par définition, composé d'un grand nombre de grains monocristallins répartis d'une façon aléatoire en direction, sera caractérisé par un ensemble de propriétés traduisant une moyenne des propriétés propres à chaque direction cristallographique.

Seule l'étude d'un monocristal nous permet de mettre en évidence certaines propriétés anisotropes. En particulier, les calculs théoriques (Réf. 1) ayant révélé une anisotropie dans la création et la répartition des défauts ponctuels suivant chaque direction d'un cristal, nous essaierons, après irradiation suivant différentes directions cristallographiques de mettre en évidence par des mesures de résistivité, cette anisotropie de répartition dans le nickel. Plus précisément nous essaierons de favoriser, par irradiation dans une direction bien déterminée, la création d'un certain type de pair, -proches par exemple, et de le relier au stade de revenu de la résistivité qui est accru.

De plus, ces résultats sont comparés dans la mesure du possible avec ceux obtenus à l'aide d'expériences de traînage magnétique (Réf. 2) et de mesures de résistivité dans les polycristaux (Réf. 3), à partir desquelles a été établi le modèle proposé par P. PERETTO.

Des expériences de résistivité ont déjà été réalisées sur des monocristaux de Cuivre, de Fer et d'Aluminium. Ainsi LUCASSON et WALKER ont mis en évidence une différence sensible dans les courbes de revenu de la résis-

tivité, de whiskers de Cuivre et de Fer irradiés aux électrons à 20°K suivant différentes directions ; leurs échantillons avaient un diamètre supérieur à 120  $\mu$  (Fig. 1) (Réf. 4).

SOSIN et GARR avec des échantillons de Cuivre d'épaisseur voisine de 10  $\mu$ , irradiés à différentes énergies présentent des résultats assez peu reproductibles (Réf. 5). Les pourcentages de revenu de la résistivité attribués aux différents stades sont reportés dans le tableau (1).

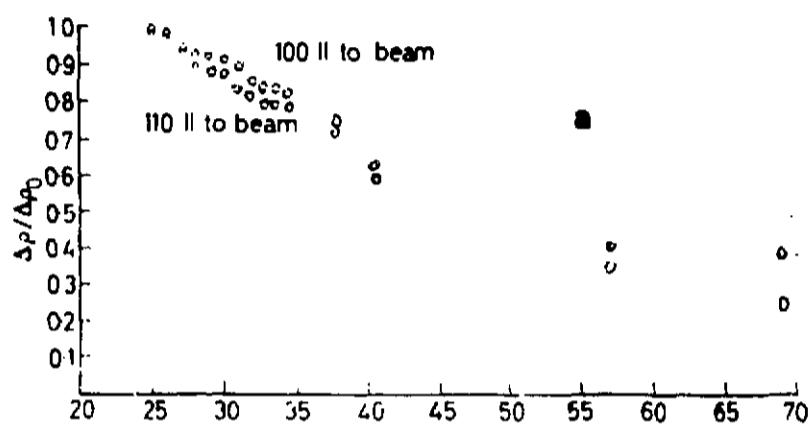
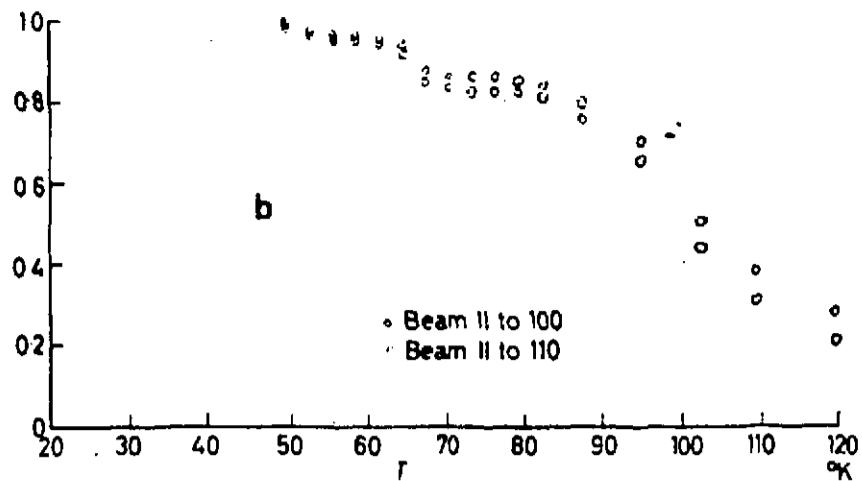
Plus récemment, LONGSHORE a montré au cours d'expériences préliminaires sur des monocristaux d'Aluminium qu'une irradiation suivant la direction <100> provoquait un fort accroissement ( $\times 2$ ) du stade I<sub>B</sub> (17,5°K) par rapport au même stade correspondant à un échantillon polycristallin (Réf. 6).

La connaissance du processus de création des défauts ponctuels à partir des particules incidentes semble être très importante, aussi essaierons-nous de développer quelque peu ce point.

## 2 - DIFFUSION MULTIPLE ELECTRONIQUE

Pour mettre en évidence un effet directionnel au cours d'une irradiation électronique, il convient de considérer l'épaisseur des échantillons comme un "facteur critique" en effet, outre les pertes d'énergies dues à l'épaisseur de matière traversée, le fait le plus important consiste à ce que le faisceau électronique initialement unidirectionnel devient progressivement multi-directionnel en traversant le cristal (Réf. 5). C'est pourquoi la connaissance de la diffusion multiple électronique est d'une grande importance dans les irradiations des monocristaux.

Plusieurs calculs théoriques (Réf. 7, 8) ont été effectués sur ce problème et sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. Aussi, ce calcul sera repris et appliqué aux échantillons monocristallins de nickel.



Sample	900	750	Energy (keV)			
			750	650	600	500
<hr/>						
(100)						
$I_a$	1.4	1.0	0.7	2.8	5.1	2.9
$I_b$	3.6	8.0	5.6	22.4	13.9	17.7
$I_c$	11.0	12.2	13.1	8.5	17.7	15.4
$I_{\text{total}}$	79.9	82.1	80.6	78.9	90.3	80.0
<hr/>						
(110)						
$I_a$	6.2	3.0		2.2	1.8	
$I_b$	16.2	18.0		14.3	20.6	
$I_c$	12.2	16.2		15.6	14.3	
$I_{\text{total}}$	87.8	86.7		91.2	89.6	
<hr/>						
(111)						
$I_a$				1.8		0.8
$I_b$				13.4		7.0
$I_c$				11.7		17.3
$I_{\text{total}}$				82.2		78.0

Figure 1-Restauration de la résistivité de whiskers de cuivre (a) et de whiskers de fer (b) orientés après une irradiation électronique à 20°K. (Traitement isochrone) (ref 4).

Tableau 1-Pourcentage de revenu de la résistivité de monocristaux de cuivre associés aux différents stades ; ces monocristaux ayant été irradiés suivant trois directions avec des électrons d'énergies différentes.

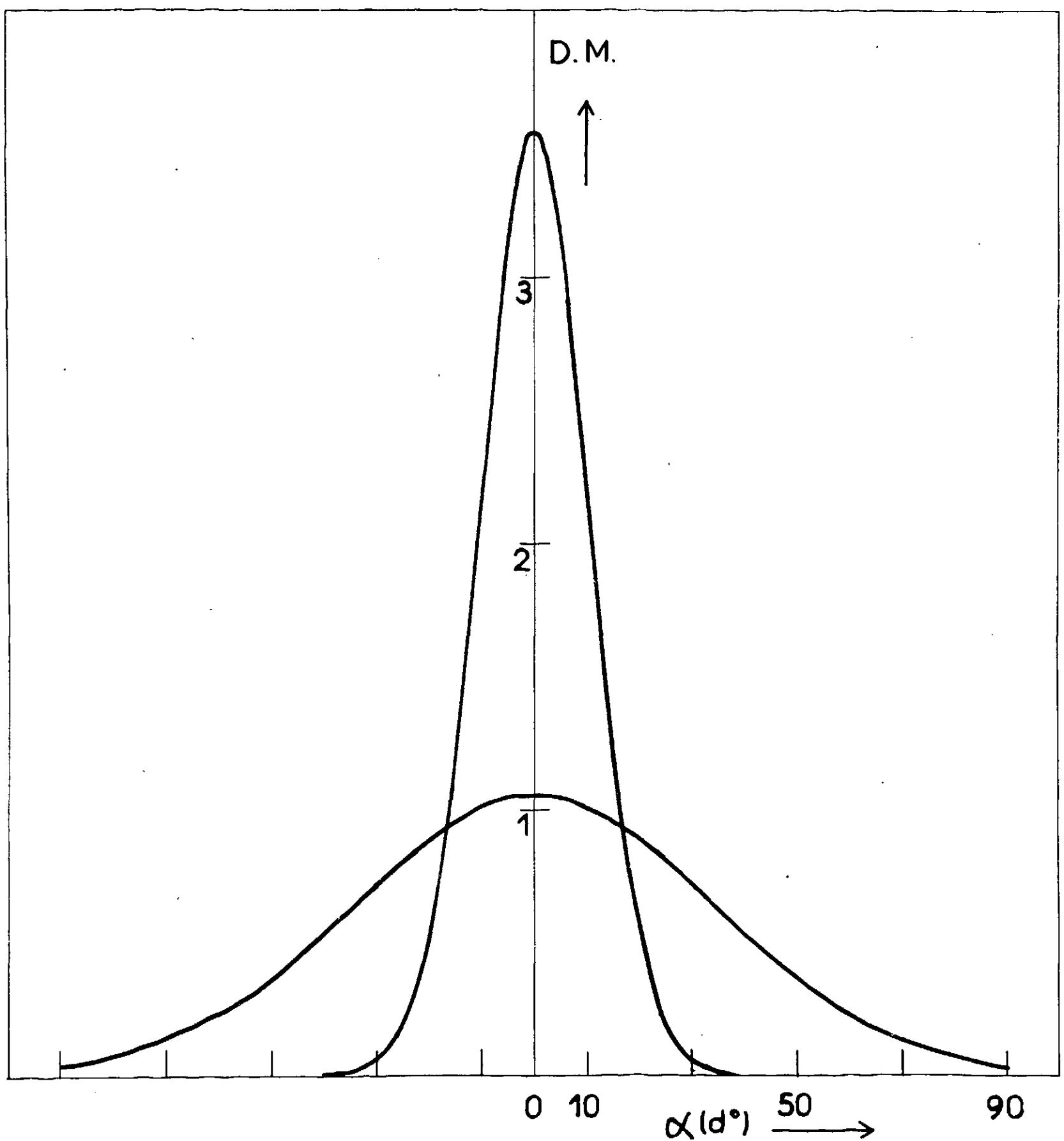


Figure 2 - Probabilité de diffusion d'un électron d'énergie égale à 1 MeV et à 3 MeV au centre d'un échantillon de nickel dans les conditions d'irradiation.

Si on considère un faisceau d'électrons de vitesse  $v = \beta c$  arrivant sur un échantillon d'épaisseur  $t$  renfermant  $N$  atomes/cm<sup>3</sup> de nombre atomique  $Z$ , la probabilité de diffusion d'un électron suivant un angle  $\alpha$  est approximativement Gaussienne :

$$P(\alpha) = \frac{2}{\pi\sigma} \exp(-\alpha^2 / 2\sigma^2)$$

$$\text{avec } \sigma^2 = 2 \theta_0^2 \log(65,3\beta\gamma\theta_0/Z^{1/3})$$

$$\theta_0^2 = 4\pi N t Z^2 \left( e^4 / m_0^2 v^4 \beta^2 \right)$$

$$\beta^2 = \frac{T^2}{T^2 + m_0^2 c^4}; \quad \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}}$$

$T$  étant l'énergie cinétique de l'électron  
 $e$  et  $m_0$  : sa charge et sa masse au repos

Dans les conditions expérimentales présentes, le faisceau électronique a à traverser deux autres milieux avant de parvenir sur les échantillons :

- une fenêtre de  $50\mu$  d'épaisseur en aluminium
- une épaisseur de  $7\text{ mm}$  d'hydrogène mi-liquide, mi-gazeux, (fluide cryogénique).

L'échantillon ayant une épaisseur de  $30\mu$ , la répartition du faisceau électronique sera calculée en son centre après  $15\mu$  de matière traversée.

La superposition de ces trois milieux de diffusion se traduit par une probabilité de diffusion encore Gaussienne, qui est le produit de convolution des trois probabilités propres à chaque milieu traversé :

- aluminium  $\rightarrow \sigma_1$
- hydrogène  $\rightarrow \sigma_2$  ( $\rightarrow \sigma^2 = \sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2$ )
- nickel  $\rightarrow \sigma_3$

$$\text{et } P(\alpha) = \frac{2}{\pi\sigma} \exp(-\alpha^2/2\sigma^2)$$

L'épaisseur des échantillons étant encore assez grande ( $30\mu$ ) et pour éviter une diffusion multiple électronique trop importante nous avons fixé à 3 MeV l'énergie cinétique des électrons du faisceau incident. La Figure 2 explicite par ailleurs la probabilité de diffusion d'un électron d'énergie égale à 1 MeV et à 3 MeV.

Il faut remarquer que l'épaisseur des échantillons, c'est-à-dire indirectement la diffusion multiple électronique, constitue une source importante de critiques des expériences déjà faites sur les monocristaux.

### 3 - CREATION DES DEFAUTS DANS UN CRISTAL

#### 3.1. Energie seuil de déplacement

On appelle énergie seuil l'énergie nécessaire qu'il faut transmettre à un atome pour le déplacer de son site cristallographique normal, et le mettre en position interstitielle. Cette énergie est fonction de la direction de l'impulsion donnée à l'atome par rapport au réseau.

Les calculs de GIBSON sur le cuivre mettent en évidence des paramètres énergétiques propres à chaque direction cristallographique (Réf. 1). Ainsi ils ont calculé les valeurs des énergies seuil suivantes :

24 eV dans la direction < 100 >

28 eV dans la direction < 110 > (Fig. 3)

85 eV dans la direction < 111 >

LUCASSON ayant trouvé expérimentalement une énergie seuil du nickel polycristallin (24 eV) (Réf. 9) semblable à celle du cuivre polycristallin (25 eV), de plus le

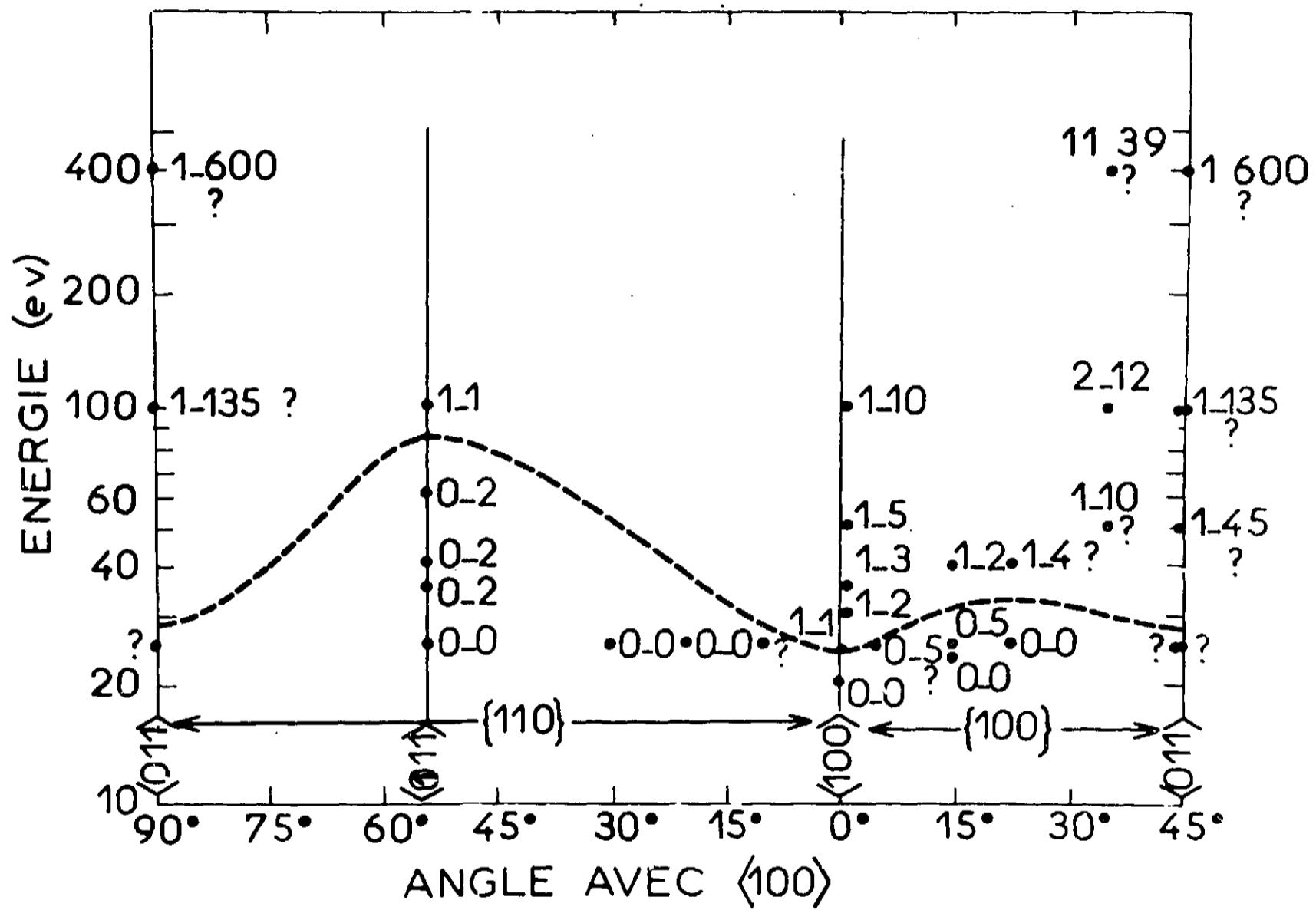
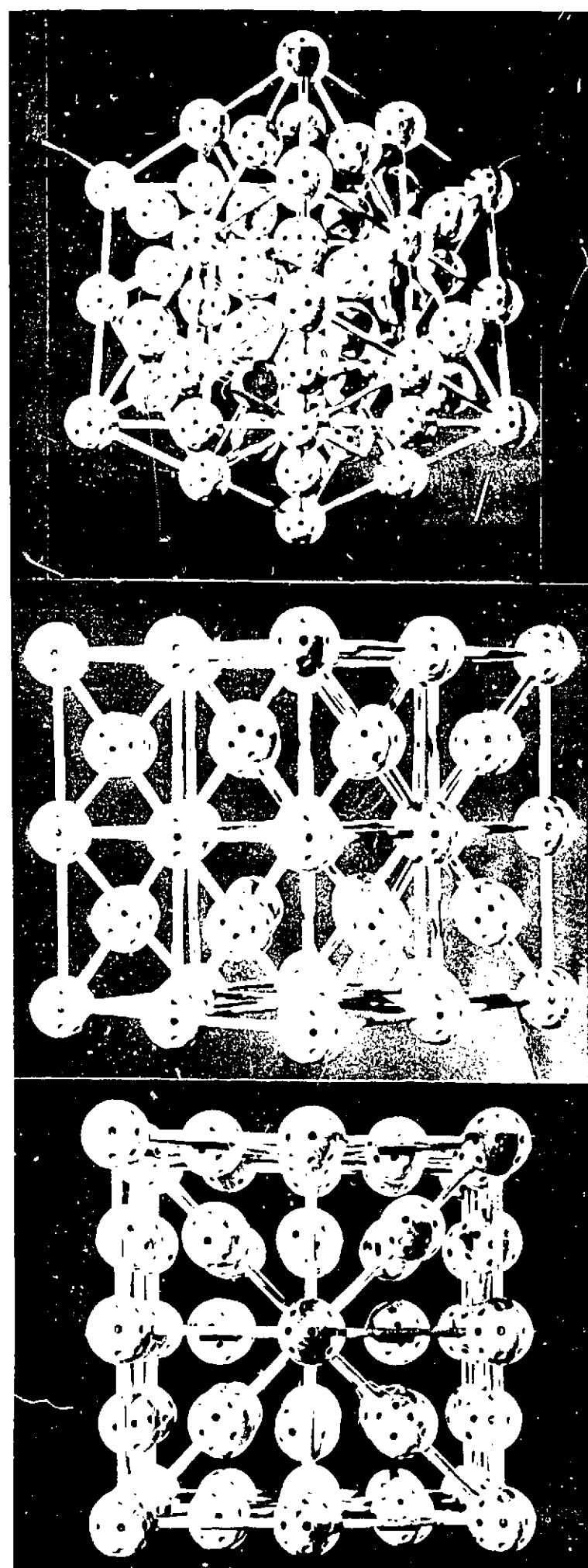


Figure 3- Diagramme résumant les calculs de GIBSON (réf 1) dans quelques plans de l'espace  $E, \theta \varphi$ . Un point représente un tir. Le premier chiffre est le nombre de paires de Frenkel stables ; le deuxième est le nombre de remplacements qui, dans le cas où le nombre de paires est nul, indique la longueur de l'anneau d'auto-annihilation. La ligne en pointillés est l'énergie seuil estimée dans le cuivre.



Figures 4, 5, 6-Observation d'un cristal c.f.c. suivant les trois directions cristallographiques  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$ .

cuivre et le nickel ayant une même structure cristallographique (cfc) et étant caractérisés par des constantes atomiques proches, les paramètres énergétiques définis par GIBSON dans le cuivre semblent donc être applicables au nickel. SOSIN (Réf. 10) a mis en évidence expérimentalement dans le cuivre des énergies-seuil plus basses (16-19 eV) mais KAMADA (Réf. 11) justifie l'existence de tels sous-seuils par des processus complexes telles des interactions chaînes focalisées-impuretés, par exemple. L'étude des énergies-seuil a constitué une grande partie des recherches déjà effectuées sur les monocristaux. Outre les travaux des différents auteurs déjà cités, il faut noter ceux de J. LOMER sur les monocristaux de fer (Réf. 12).

Remarquons enfin que c'est le modèle de la sphère dure introduit par SILSBEE (Réf. 13) qui a servi de base à ce calcul des énergies seuil, tout comme il a servi de base aux théories de la focalisation ou du "Channeling".

### 3.2. Focalisation- "Channeling"

Suivant la direction dans laquelle il est observé, un cristal cfc paraît soit transparent, soit opaque (fig. 4, 5, 6). Ceci est dû à la répartition inhomogène des atomes dans la maille. En particulier, si nous regardons un cristal cfc dans la direction  $\langle 110 \rangle$  nous observons des couloirs (Channel) encadrés par des lignes denses d'atomes : le "Channeling" représente la propagation d'un atome dans un de ces couloirs alors que la focalisation se produit le long d'une ligne atomique dense et peut se présenter sous deux formes : - l'une avec remplacement (transfert de matière), - l'autre sans (transfert d'énergie). Dans ces deux processus le défaut sera créé à une grande distance du point de choc initial. Le "Channeling" est un effet préférentiel aux hautes énergies (quelques KeV - Réf. 14) alors que la focalisation se produirait à basse

énergie (Réf. 15).

Nous nous intéresserons de préférence à la focalisation étant donné le domaine d'énergie dans lequel se situe ce travail. Les énergies de focalisation, c'est-à-dire les énergies en dessous desquelles les chaînes se focalisent (paramètre de focalisation :

$$\Lambda(E_i) = \frac{\theta_i + 1}{\theta_i} < 1$$

(Fig. 7) sont calculées par GIBSON dans le cuivre (Réf. 1) :

<100>

$$E_f \approx 40 \text{ eV}$$

<110>

$$E_f \approx 30 \text{ eV}$$

Ces valeurs sont plus basses que celles calculées par THOMSON et NELSON (74 eV dans la direction <100>) et que celles que le même GIBSON (84 eV suivant <100> : (Réf. 1) ) avait prévues à partir d'une théorie simple de focalisation assistée. Ces dernières valeurs semblent confirmées par les calculs de FRERE (Réf. 16) à partir d'un nouveau modèle de "sphère dure retardée". L'angle initial maximum, selon GIBSON, pour qu'il y ait focalisation dans la direction <110> est de l'ordre de 15° ; cet angle est supérieur à la dispersion moyenne que nous obtenons au centre des échantillons de nickel ( $\approx 10^\circ$ ).

### 3.3. Appréciation des défauts créés dans notre type

-----  
d'irradiation  
-----

Le fait d'avoir irradié les échantillons avec des électrons d'énergie égale à 3 MeV nous conduit à considérer le nombre de paires de Frenkel créées par un électron

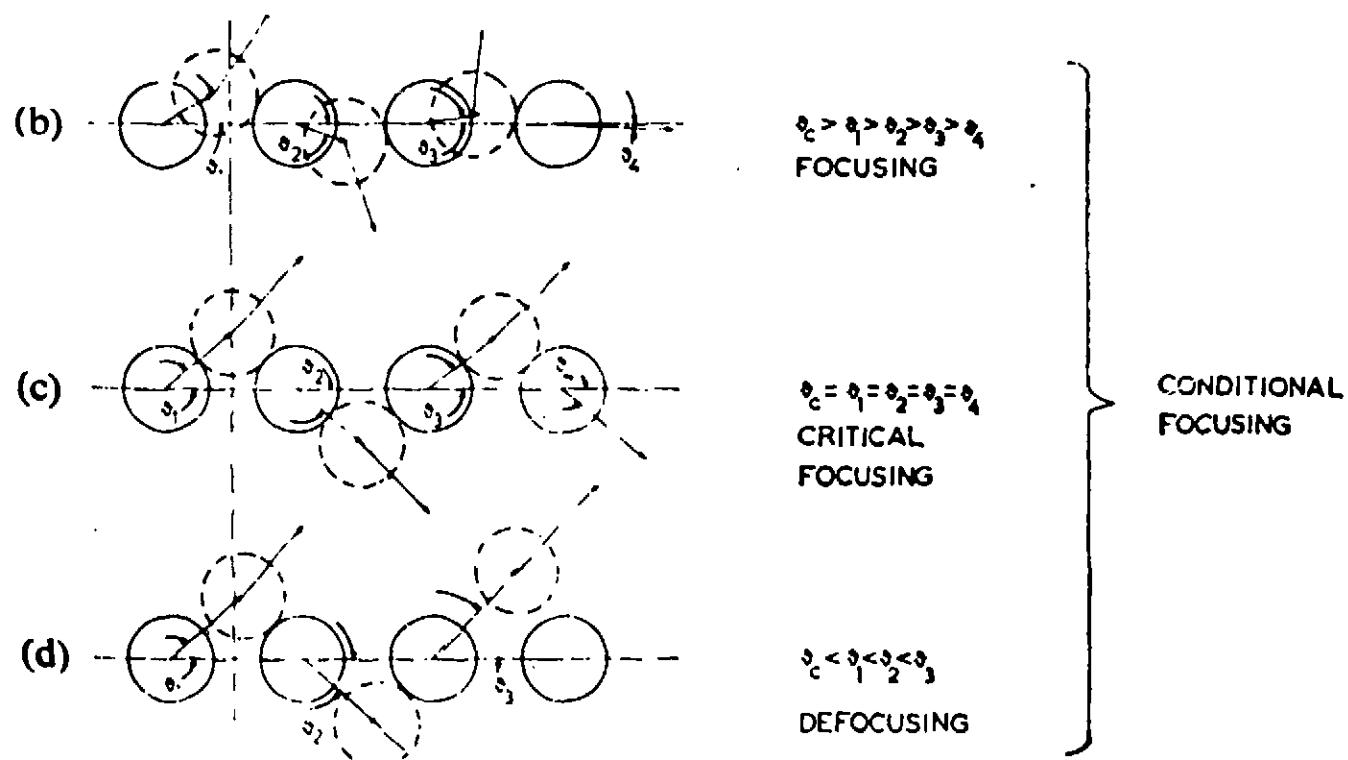


Figure 7. - Conditions de focalisation (d'après SOSIN)

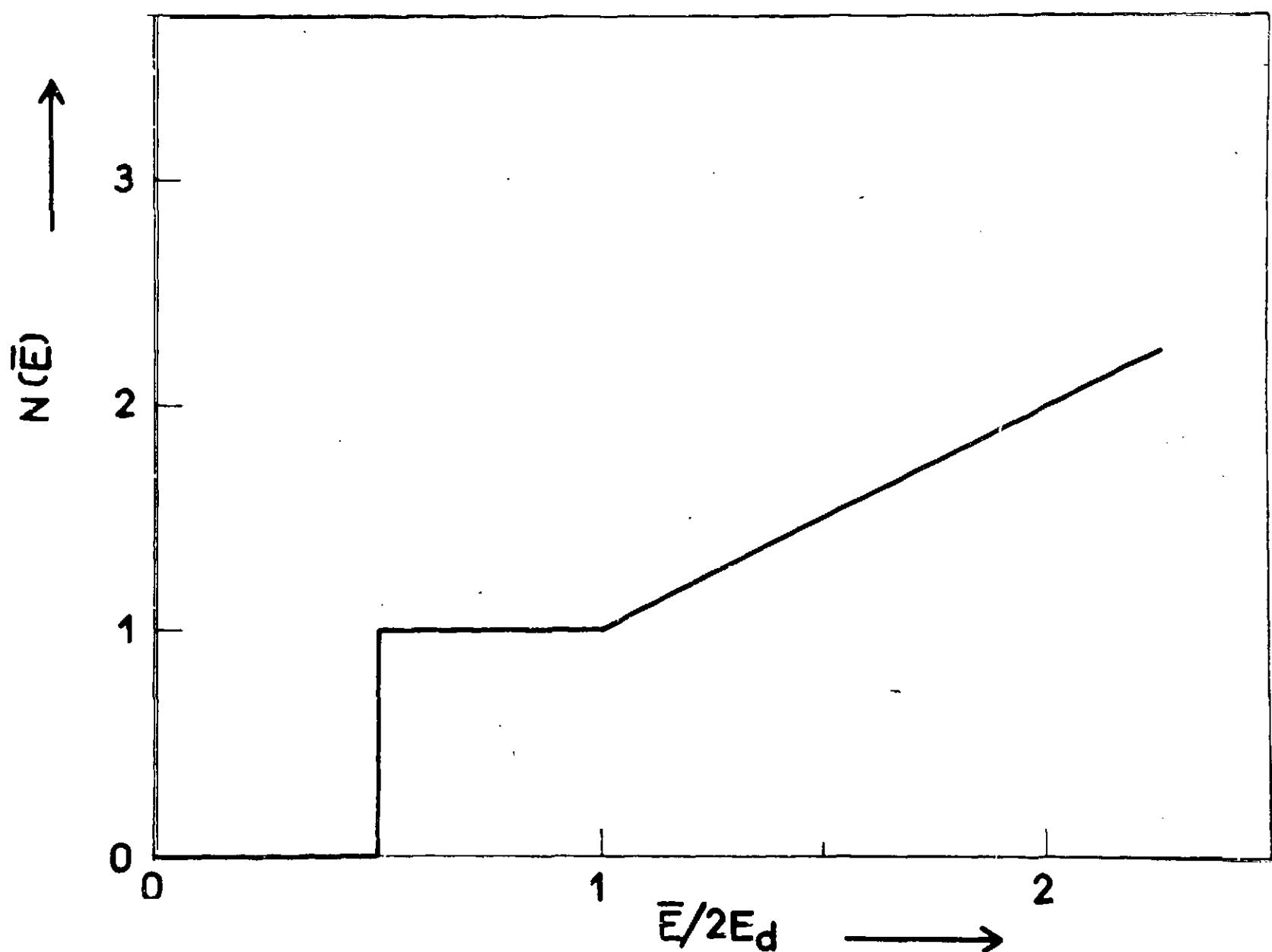


Figure 8. - Nombre moyen d'atomes déplacés par un primaire d'énergie  $\bar{E}$

incident de cette énergie, ceci dans le but de vérifier que nous n'avons à considérer qu'un processus simple de création de défauts auquel cas la théorie élaborée par P. PERETTO est bien applicable.

L'énergie maximum  $T_m$  transmise par électron de masse  $m$  et d'énergie  $E$  à un atome de masse  $M$  est

$T_m = 2 E (E + 2 mc^2) / Mc^2$ . Dans le nickel, avec  $E = 3$  MeV, on obtient :  $T_m \approx 439$  eV.

Calculons maintenant l'énergie moyenne transmise au premier atome choqué : Si  $P(T)$  est la probabilité de transférer une énergie cinétique  $T$  à un atome déplacé.

$$\bar{T} = \frac{\int_0^{T_m} T P(T) d\sigma(T)}{\int_0^{T_m} P(T) d\sigma(T)}$$

$\int_0^{T_m} P(T) d\sigma(T)$  étant la section efficace de déplacement d'un atome. Faisons choix pour  $P(T)$  de la fonction échelon unité c.à.d.  $P(T) = 0$  pour  $T < E_d$  et  $P(T) = 1$  pour  $T > E_d$  ; de plus si on identifie  $d\sigma(T)$  à la formule bien connue de SEITZ et KOELHER (Réf. 17) :

$$d\sigma = \frac{\pi b^2}{4} T_m \left( 1 - \beta^2 \frac{T}{T_m} + \pi \alpha \beta \left( \left( \frac{T}{T_m} \right)^{1/2} - \frac{T}{T_m} \right) \right) \frac{dT}{T^2}$$

$$\text{avec } \frac{\pi b^2}{4} = \frac{2,5 \cdot 10^{-25}}{\beta^4 \gamma^2} (\text{cm}^2) Z^2 ; \gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2} ; \beta = \frac{v}{c} ; \alpha = \frac{Z}{137}$$

$$\bar{T} = \frac{\int_{E_d}^{T_m} T \frac{d\sigma}{dT} dT}{\int_{E_d}^{T_m} \frac{d\sigma}{dT} dT}$$

c'est-à-dire, en développant l'intégration :

$$\frac{\bar{T}}{T_m} = \frac{\log \frac{T_m}{E_d} - \beta^2 (1 - \frac{E_d}{T_m}) + \pi \alpha \beta \{ 2 \left[ 1 - \left( \frac{E_d}{T_m} \right)^{1/2} \right] - (1 - \frac{E_d}{T_m}) \}}{T_m \frac{T_m}{E_d} - 1 - \beta^2 \log \frac{T_m}{E_d} + \pi \alpha \beta \{ 2 \left[ \left( \frac{T_m}{E_d} \right)^{1/2} - 1 \right] - \log \frac{T_m}{E_d} \}}$$

$$E = 3 \text{ MeV} \rightarrow \beta^2 = 0,972$$

$$Z = 28 \rightarrow \alpha = 0,204$$

Si on introduit les énergies seuil choisies précédemment, les énergies moyennes obtenues sont :

suivant	$\langle 100 \rangle$	$\bar{T}_{100} = 62 \text{ eV}$
"	$\langle 110 \rangle$	$\bar{T}_{110} = 69 \text{ eV}$
"	$\langle 111 \rangle$	$\bar{T}_{111} = 147 \text{ eV}$

Nous pouvons ainsi, suivant le modèle de KINCHIN et PEASE (Réf. 18), calculer le nombre d'atomes déplacés. Si on considère un atome premier choqué d'énergie moyenne  $\bar{E}$ , après une première collision, son énergie est répartie sur deux atomes, après une seconde collision, elle est répartie sur quatre atomes, après la  $p^{\text{ième}}$  collision, l'énergie sera répartie

sur  $2^P$  atomes.

→ le nombre d'atomes ayant une énergie  $dE$  sera

$$N_p(E)dE = 2^P \left( \log \frac{\bar{E}}{E} \right)^{P-1} \frac{dE}{\bar{E}(P-1)}$$

Seuls les atomes recevant une énergie  $E > E_d$  sont déplacés ; et seul un atome avec une énergie supérieure à  $2E_d$  pourra à son tour déplacer un autre atome du réseau, d'où le nombre d'atomes déplacés au cours de la  $p^{\text{ième}}$  collision sera :  $E_d N_p(2E_d)$  et le nombre total d'atomes déplacés :

$$N_d = \sum_{p=1}^{\infty} E_d N_p(2E_d) = \frac{\bar{E}}{2E_d}$$

$$\bar{E} < E_d \rightarrow N_d = 0$$

$$\begin{aligned} E_d < \bar{E} < 2E_d &\rightarrow N_d = 1 & (\text{Fig. 8}) \\ \bar{E} > 2E_d &\rightarrow N_d = \frac{\bar{E}}{2E_d} \end{aligned}$$

Appliquons ces résultats à notre cas particulier :

$$\text{Suivant } <100> \quad N_d = 1,29$$

$$\text{" } <110> \quad N_d = 1,23$$

$$\text{" } <111> \quad N_d = 1 \quad \text{car } \bar{E} < 2E_d$$

D'autre part, il est bien connu que dans ce modèle, le nombre d'atomes déplacés est toujours surestimé ; il est donc possible de conclure que, quelle que soit la direction :  $N_d \approx 1$ .

NEELY et BAUER pensent que la théorie de KINCHIN et PEASE est bien adaptée pour des énergies  $T_m \approx 20 E_d$  (Réf. 19). Il semble donc que l'ensemble des processus engendrés au cours d'irradiations par des électrons de 3 MeV soit des processus simples.

## / II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES /

### 1 - ELABORATION DES ECHANTILLONS

Nous avons mis en évidence dans la première partie de ce mémoire, l'importance des paramètres géométriques des échantillons et en particulier le "facteur critique" que représente l'épaisseur des échantillons.

La matière première de laquelle sont tirés les échantillons se présente sous la forme d'un lingot monocrystallin élaboré dans le laboratoire par F. VANONI à partir de nickel polycristallin en poudre, préalablement purifié.

Le lingot monocrystallin a été élaboré par extraction selon la méthode de CZOKRALSKI (Réf. 20).

Les différentes directions cristallographiques ont été repérées aux rayons X (Cliché de LAUE). Les échantillons ont ensuite été découpés par électroérosion sous la forme de petits barreaux de  $14 \times 1 \times 0,5$  mm. Par un rodage mécanique très lent et avec des contraintes minimum, l'épaisseur des échantillons est ramenée à  $15/100$  de mm.

Après cette étape, les échantillons sont polis chimiquement dans un bain acide pendant 15 à 20 secondes à la température de  $90^{\circ}\text{C}$ .

Composition du bain acide (Réf. 21)

- 50 cm<sup>3</sup> d'acide acétique
- 10 cm<sup>3</sup> d'acide sulfurique
- 30 cm<sup>3</sup> d'acide nitrique
- 10 cm<sup>3</sup> d'acide orthophosphorique

Nous obtenons ainsi un état de surface convenable avant que les échantillons soient traités à 600°C sous atmosphère d'hydrogène pendant une dizaine d'heures ; le recuit est suivi d'un refroidissement extrêmement lent (15 à 20 H.). Après ces traitements successifs, nous avons vérifié la nature monocristalline des échantillons ainsi que leurs directions propres. De plus, une analyse spectrographique complète a été faite par M. BOISSIER (les résultats sont consignés dans le tableau 2).

- TABLEAU N° 2 -

Elément	Concentration en ppm. atm.	Elément	Concentration en ppm. atm.
B	3	Cr	2,5
N	14	Mn.	1,5
F	4,5	Fe	23
Na	50	Co	< 0,2
Mg	27,5	Zn	< 0,3
Al	470	Ga	non mesurable
Cl	0,8	Ag	< 0,5
K	15	W	< 0,3
Ca	14	Pb	0,9

Limite de détection pour un élément monoisotopique 0,10 ppm

Analyse par spectrométrie de masse à étincelles d'un échantillon de nickel monocristallin (M. BOISSIER)

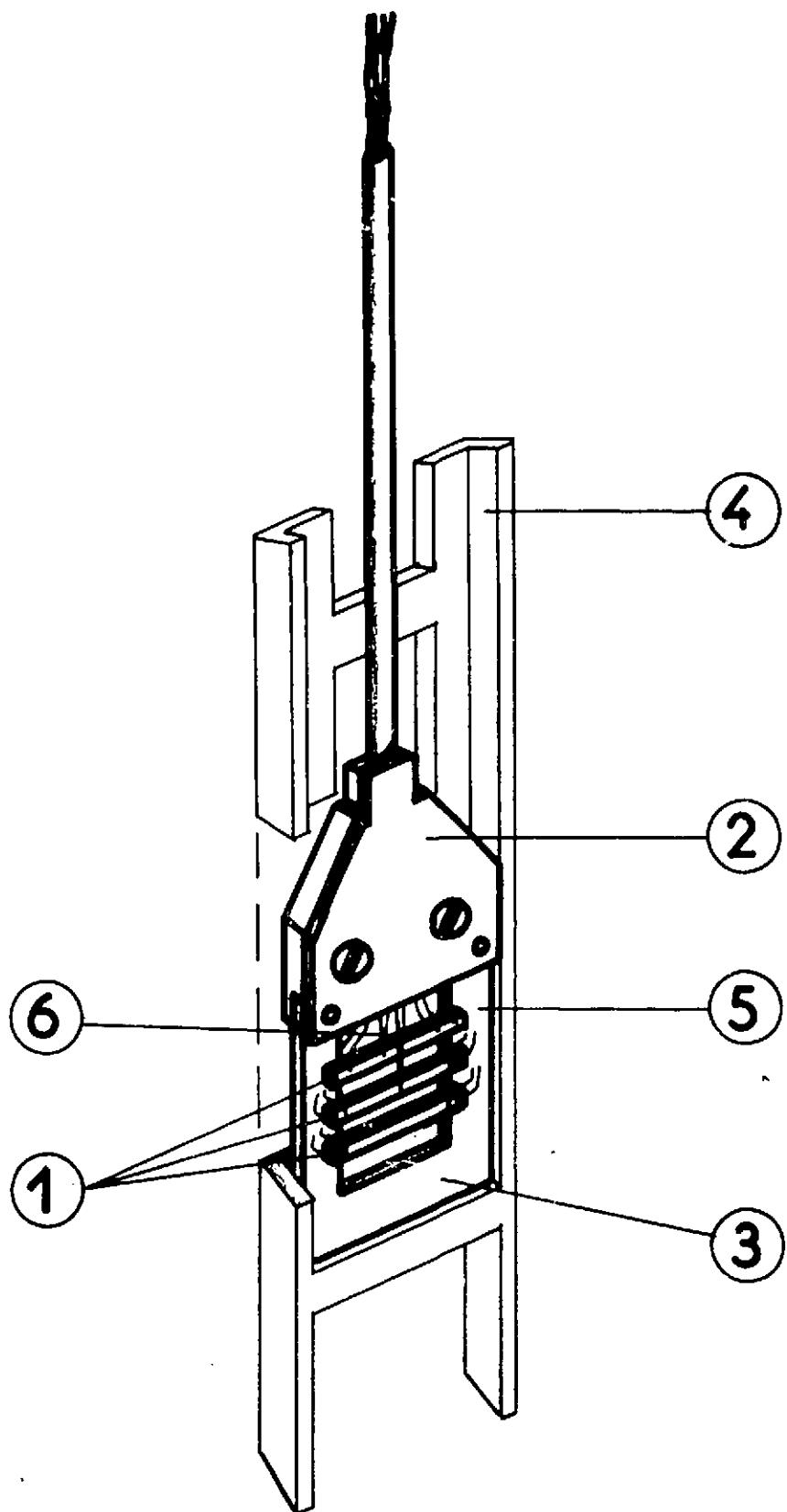


Figure 9-Glissière et porte-échantillon

1. Echantillons
2. Porte-échantillon
3. Plaque en céramique
4. Glissière
5. Prises de courant et tension
6. Thermocouples

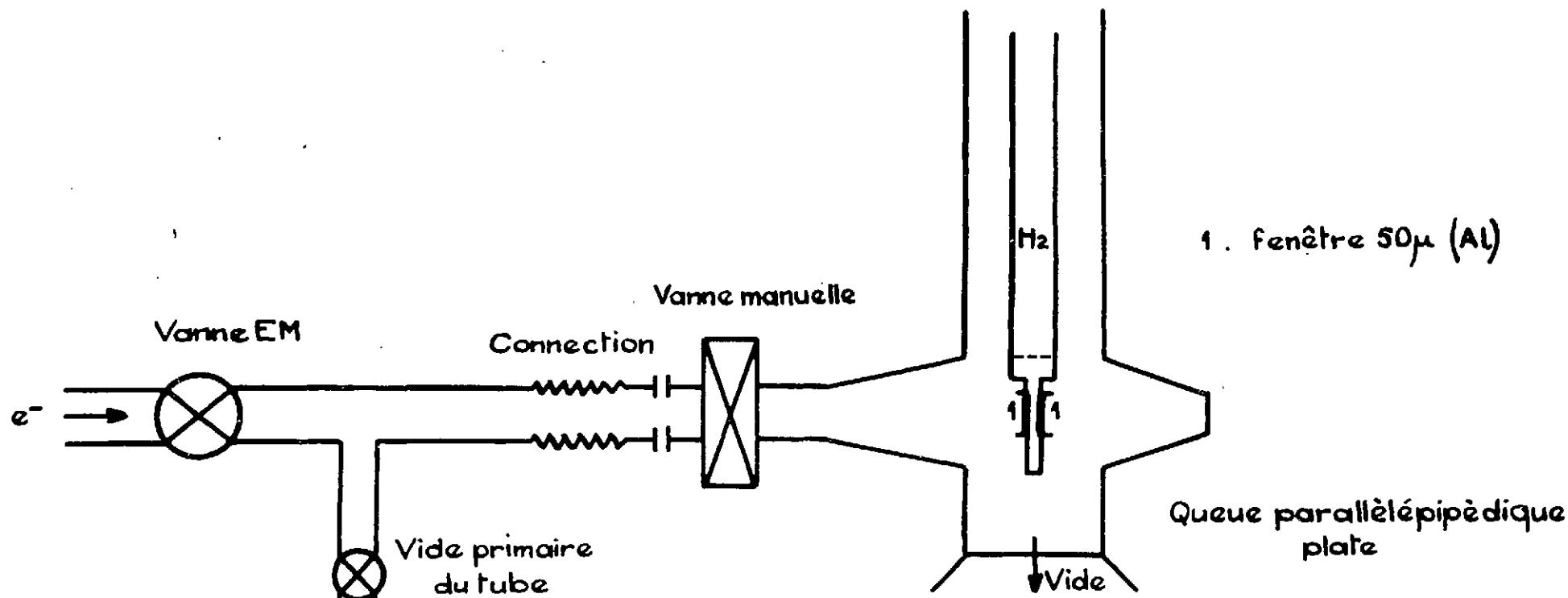
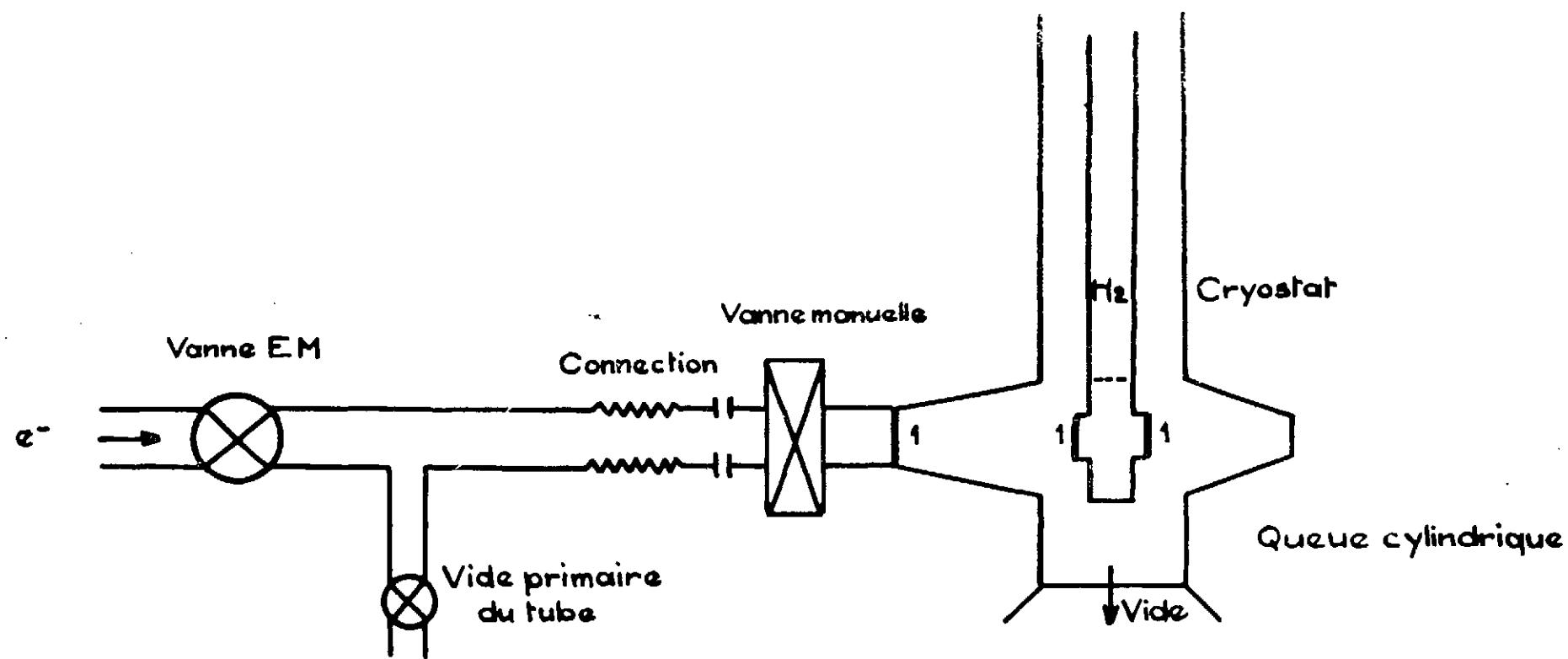


Figure 10-Modifications apportées au cryostat d'irradiation.

Le dernier traitement auquel sont soumis les échantillons est un polissage électrolytique (Réf. 21) qui a pour but de réduire leur épaisseur à  $(30 \pm 2)\mu$ . L'électrolyte se compose de  $30\text{cm}^3$  d'acide perchlorique mélangé à  $270\text{ cm}^3$  d'éther monobutylique de l'éthylène-glycol. Le bain est maintenu dans un intervalle de température de  $-5^\circ\text{C}$  à  $0^\circ\text{C}$  alors que la tension d'électrolyse est de 10,7 volts. Après ce polissage, les échantillons sont rincés dans l'alcool éthylique pour éliminer la mince couche d'électrolyte qui se maintient en surface.

## 2 - MONTAGE ET IRRADIATION DES ECHANTILLONS

---

Après avoir subi ce traitement commun, les trois échantillons de direction cristallographique  $<100>$ ,  $<110>$ , et  $<111>$  sont montés sur un même support en céramique. Les échantillons restent toutefois indépendants les uns des autres, car ils possèdent chacun leur propre prise de courant et de tension. Les différents détails du montage sont expliqués sur la Fig. 9.

Nous avons étudié dans le premier chapitre l'importance de la diffusion multiple électronique ; nous rapporterons ici les modifications apportées aux conditions précédentes d'irradiation (Réf. 3) (Fig. 10). Ces modifications se résument en deux points :

- tout d'abord la suppression de la première fenêtre du cryostat d'irradiation dont le rôle était une isolation totale du cryostat pour le vide et pour l'hydrogène en cas de rupture accidentelle de la deuxième fenêtre d'entrée ; ceci implique donc l'établissement d'un vide commun au canon de l'accélérateur et au cryostat d'irradiation.
- enfin, le remplacement de la queue cylindrique par une queue parallélépipédique plate de façon à minimiser

l'épaisseur d'hydrogène traversée (7mm au lieu de 25 mm). Initialement, nous avions prévu le remplacement de la fenêtre d'entrée du cryostat de  $50\mu$  en aluminium par une fenêtre de  $30\mu$  du même matériau, mais des normes de sécurité ont vite limité ce projet. Positionnés dans la queue plate à l'aide d'une glissière, les échantillons sont bombardés par un faisceau d'électrons unidirectionnels et monokinétiques d'énergie égale à 3 MeV. Ce faisceau est concentré et balayé (écart inférieur à 30' à la direction du faisceau non balayé) pour former une surface irradiée de  $12 \times 10 \text{ mm}^2$  de façon à ce que chaque échantillon reçoive approximativement le même flux. A l'aide des impacts du faisceau sur les fenêtres de la queue parallélépipédique plate, il nous a été possible de vérifier la diffusion subie par le faisceau électronique et d'obtenir un assez bon accord avec les prévisions théoriques.

### 3 - ETUDE THERMIQUE

Après irradiation les échantillons sont défournés et placés dans un cryostat de mesure, une étude *in situ* n'étant guère possible dans les conditions actuelles.

Un four particulier mis au point pour une élévation thermique linéaire (Fig. 11) est alors descendu autour des échantillons. Ce four a été décrit par G. SULPICE (Réf. 22). Nous avons modifié le four intérieur, mais en conservant les mêmes normes d'inertie thermique, afin de l'adapter à la forme particulière du porte-échantillon pour minimiser le plus possible un éventuel gradient de température. C'est aussi dans ce but que les trois échantillons sont montés horizontalement sur une hauteur minimum.

Il faut remarquer que toutes ces opérations de transfert ont lieu sans que les échantillons sortent de l'hydrogène liquide, et dans un intervalle de temps très court pour éviter une éventuelle formation d'azote solide.

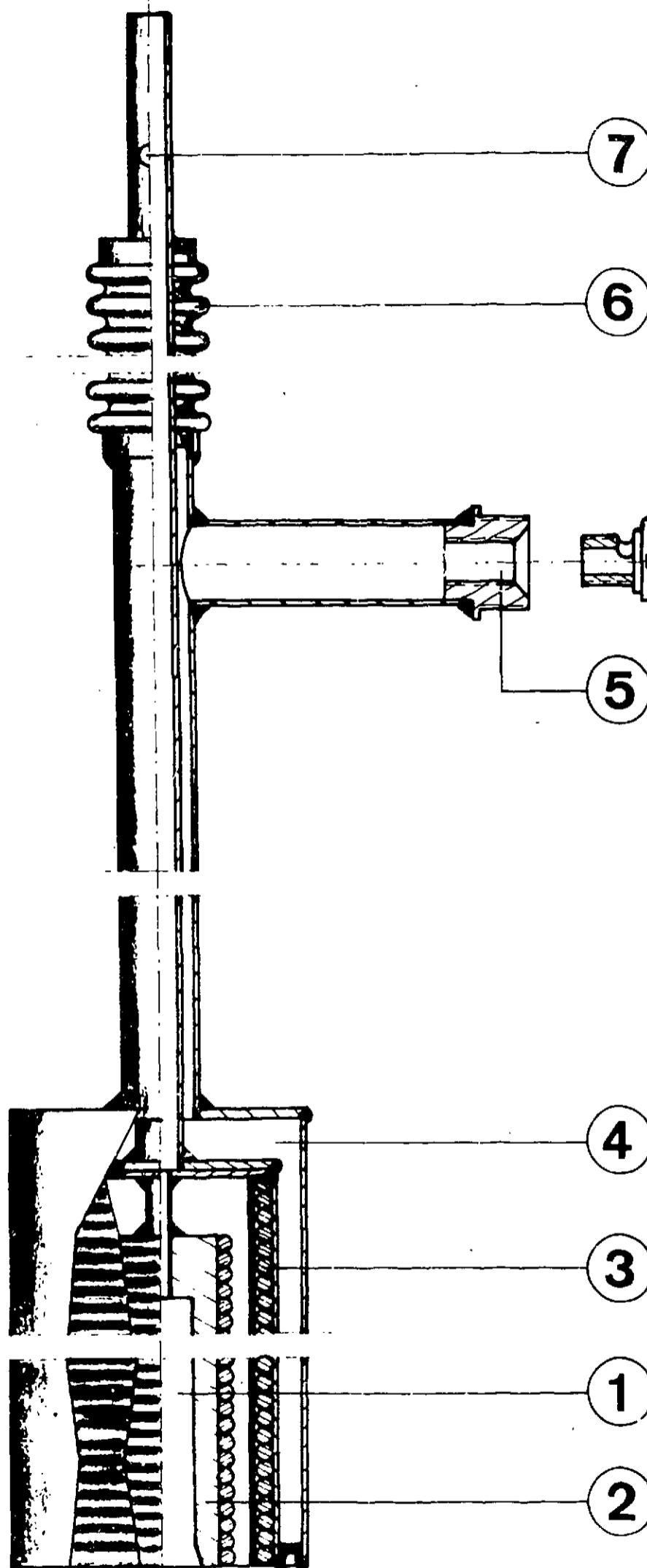
Un contrôle constant au cours de toutes ces manipulations nous permet d'affirmer que la température reste inférieure à 22°K avant le début de l'étude thermique proprement dite.

Les échantillons sont donc étudiés simultanément au cours d'une montée linéaire en température (30°/h). Les conditions nouvelles d'irradiation provoquent un accroissement de résistivité environ dix fois plus grand que dans les irradiations précédentes de même durée (Réf. 3) à cause de la meilleure utilisation du faisceau électronique. Les mesures de résistivité sont donc plus précises.

Nous avons choisi un traitement thermique linéaire pour mettre en évidence d'éventuelles structures fines dans le spectre de restauration de la résistivité en enregistrant d'une façon continue la tension aux bornes de chaque échantillon parcouru par un courant constant de (100,00 ± 0,01)mA. De même une étude comparative directe des courbes de revenu de la résistivité sera possible.

La première partie du traitement thermique s'achève à 100°K, en effet au delà de cette température, l'interaction électron-phonon devient beaucoup plus grande que l'interaction électron-défaut. Aussi, cette étude est-elle poursuivie par des mesures à la température fixe de 20°K au cours de traitements isochrones de 10 mn tous les cinq degrés puis tous les 10 degrés jusqu'à 400°K, les échantillons ayant été introduits dans un four semblable à celui décrit par G. SULPICE pour des recuits isochrones, mais toujours adapté à notre porte-échantillon.

Il nous a ainsi été possible d'obtenir un spectre de guérison relativement complet.



Orifice d'évacuation des gaz

- a) bouché pour une montée en température
- b) ouvert pour un retour à la température de l'hydrogène liquide

Soufflet de dilation

5

Prise de vide

4

Vide d'isolation

3

Four de l'écran isotherme

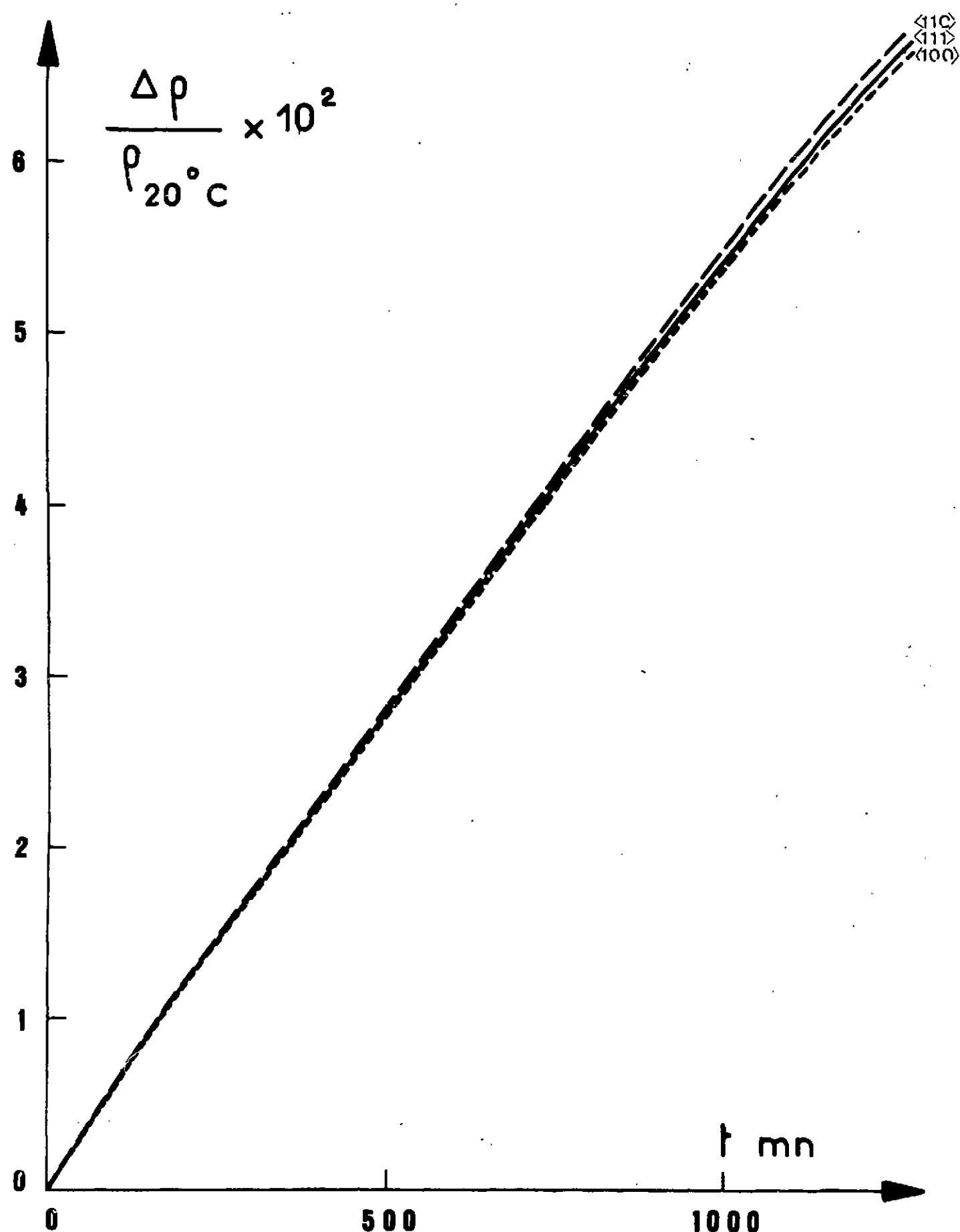
1

Emplacement de l'échantillon

2

Four réglé électroniquement

Fig. 11 - Dispositif utilisé pour un recuit linéaire



/ III - RESULTATS EXPERIMENTAUX /

Avant chaque irradiation il convient de mesurer certaines constantes du matériau à irradier ; ainsi nous mesurons le rapport  $\frac{\rho_{300^\circ K}}{\rho_{20^\circ K}}$  des échantillons. Ce rapport, de

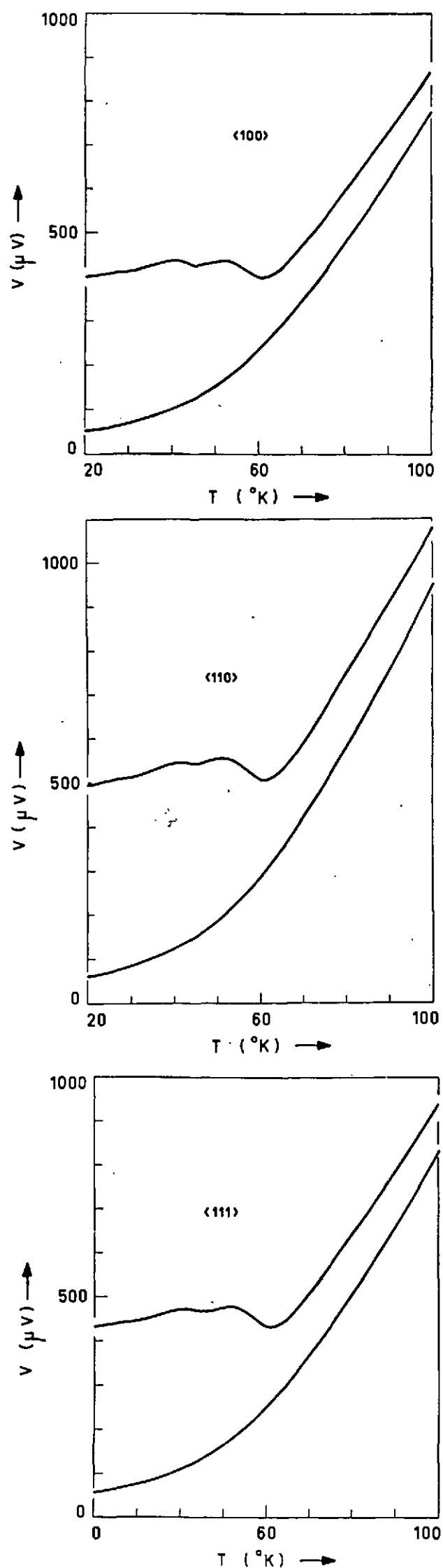
l'ordre de 200 dans le Nickel polycristallin utilisé par J.L. ODDOU tombe à 100 pour les trois échantillons monocrystallins, résultat par ailleurs prévisible étant donné la différence de pureté des matériaux. L'accroissement de la résistivité en cours d'irradiation ainsi que la restauration de cette résistivité pendant le traitement thermique, sont ensuite examinés.

1 - ACCROISSEMENT INITIAL DE LA RESISTIVITE

Il convient tout d'abord de présenter la courbe

$$\frac{(\rho_t - \rho_{20^\circ K})}{\rho_{300^\circ K}} \quad (+)$$

en fonction du temps au cours de l'irradiation (Fig. 12). Nous estimons qu'il est plus prudent de tracer cette variation en fonction du paramètre temps que du flux électronique intégré car la dosimétrie du faisceau est peu reproductible d'une expérience à l'autre. La courbe correspondante présente une courbure sensible au bout d'un certain temps d'irradiation ; ce résultat n'est pas en contradiction avec la droite trouvée dans le nickel polycristallin par J.L. ODDOU ; en effet en comparant les accroissements de résistivité des deux échantillons, le maximum atteint par le nickel polycristallin correspondrait dans ces conditions d'irradiation à une durée de quelques heures seulement (< 10 H), c'est-à-dire à un domaine où cette courbe est elle-même linéaire.



Figures 13, 14, 15-Variation de la tension aux bornes des échantillons <100>, <110>, <111>, parcourus par un courant constant de 100 mA au cours d'une élévation linéaire en température.

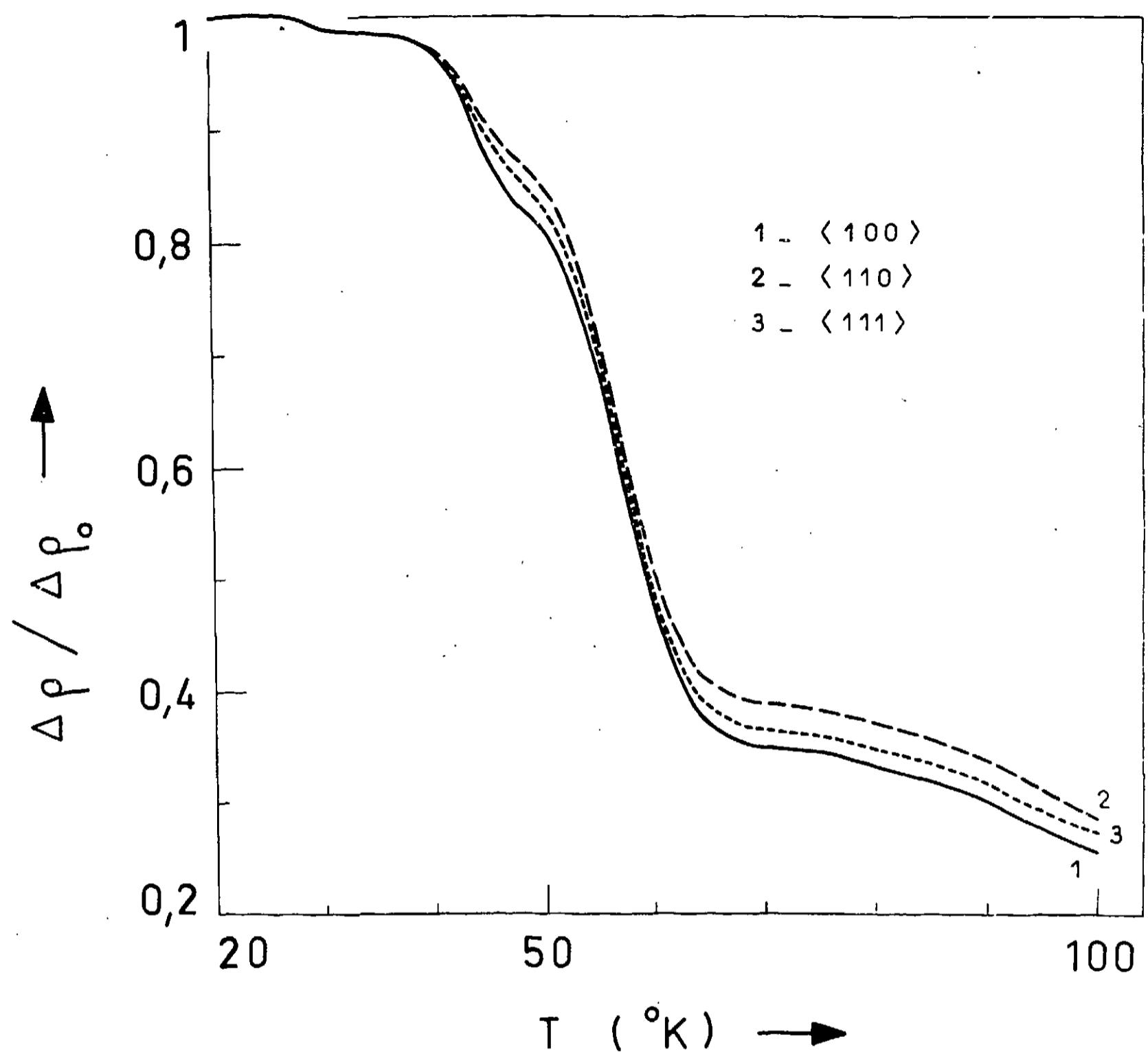


Figure 16-Courbes de restauration de la résistivité des trois échantillons  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  au cours d'un traitement thermique linéaire.

Des accroissements de résistivité identiques (à 1% près) pour chaque échantillon s'interprètent comme une bonne homogénéité du faisceau. Ce point est confirmé par une autre irradiation, les échantillons étant placés dans un ordre différent sur le porte-échantillon. De ce même résultat, il est possible de conclure en outre qu'aucune anisotropie sensible dans la création des défauts n'est décelable. Ce point est justifié par le fait que des électrons assez énergétiques (3 MeV) sont utilisés et un calcul préliminaire a montré qu'en moyenne un électron de 3 MeV crée sensiblement un même nombre de défauts dans chacune des directions choisies, c'est-à-dire une paire de Frenkel.

## 2 - RESTAURATION DE LA RESISTIVITE

Les figures 13, 14, 15 représentent l'évolution de la tension aux bornes de chaque échantillon parcouru par un courant constant de 100 mA (donc indirectement de leur résistance) au cours d'une élévation linéaire en température de 20°K à 100°K à la vitesse de 30°/heure.

- La courbe (a) met en évidence d'une façon directe les différents stades de revenu de la résistivité (la décroissance de résistance au cours d'une élévation en température se justifie par le fait que le nombre de défauts créés est suffisamment grand pour que leur guérison se manifeste par un effet supérieur à l'accroissement de la résistivité en fonction de la température).

- La courbe (b) représente la deuxième montée linéaire à laquelle sont soumis les échantillons après avoir été guéris (c'est une représentation de la résistivité en fonction de la température en l'absence de guérison de défauts).

La Fig. 16 déduite des deux courbes précédentes est analogue à la représentation classique du revenu de

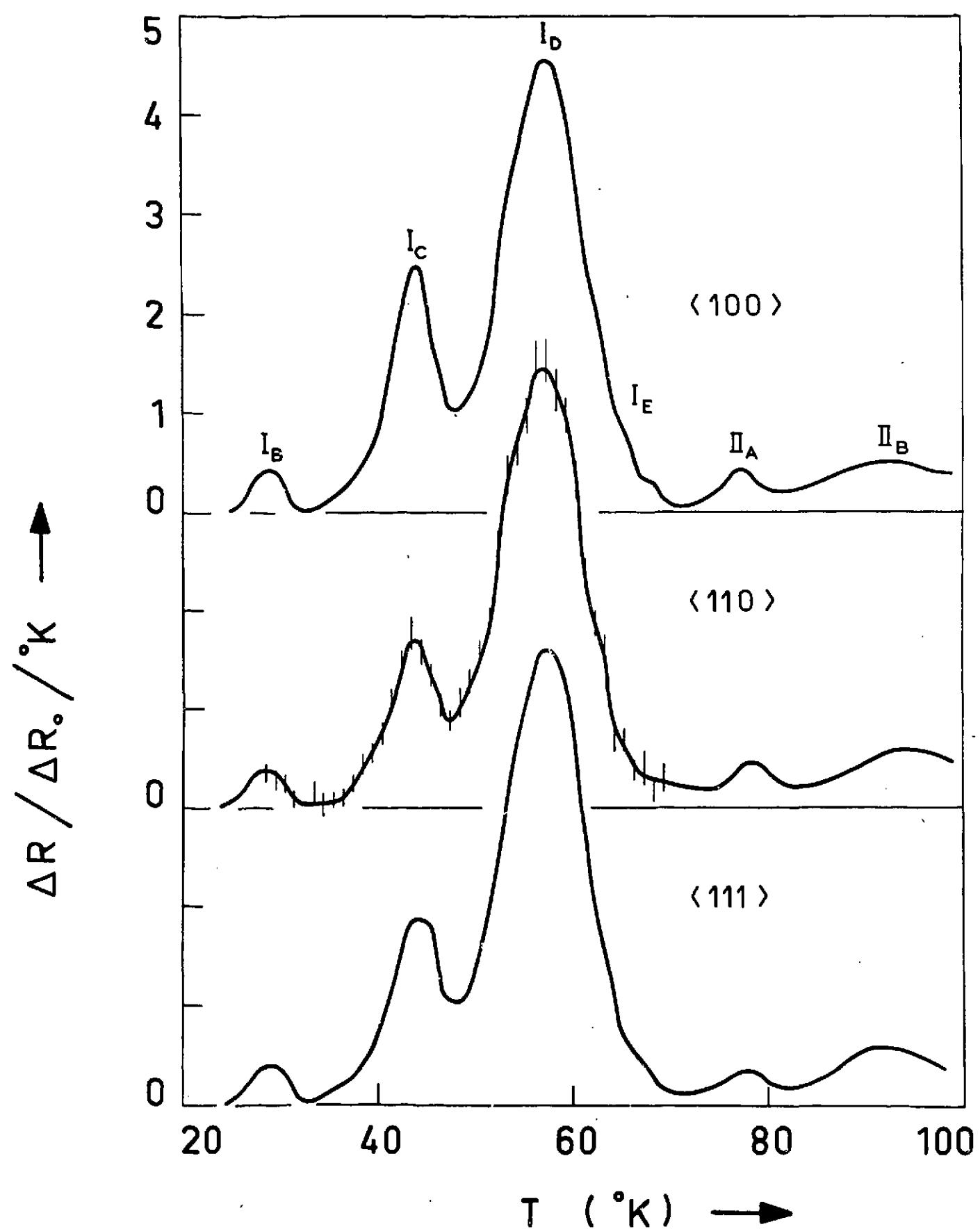


Figure 17-Courbes dérivées des précédentes (figure 16).

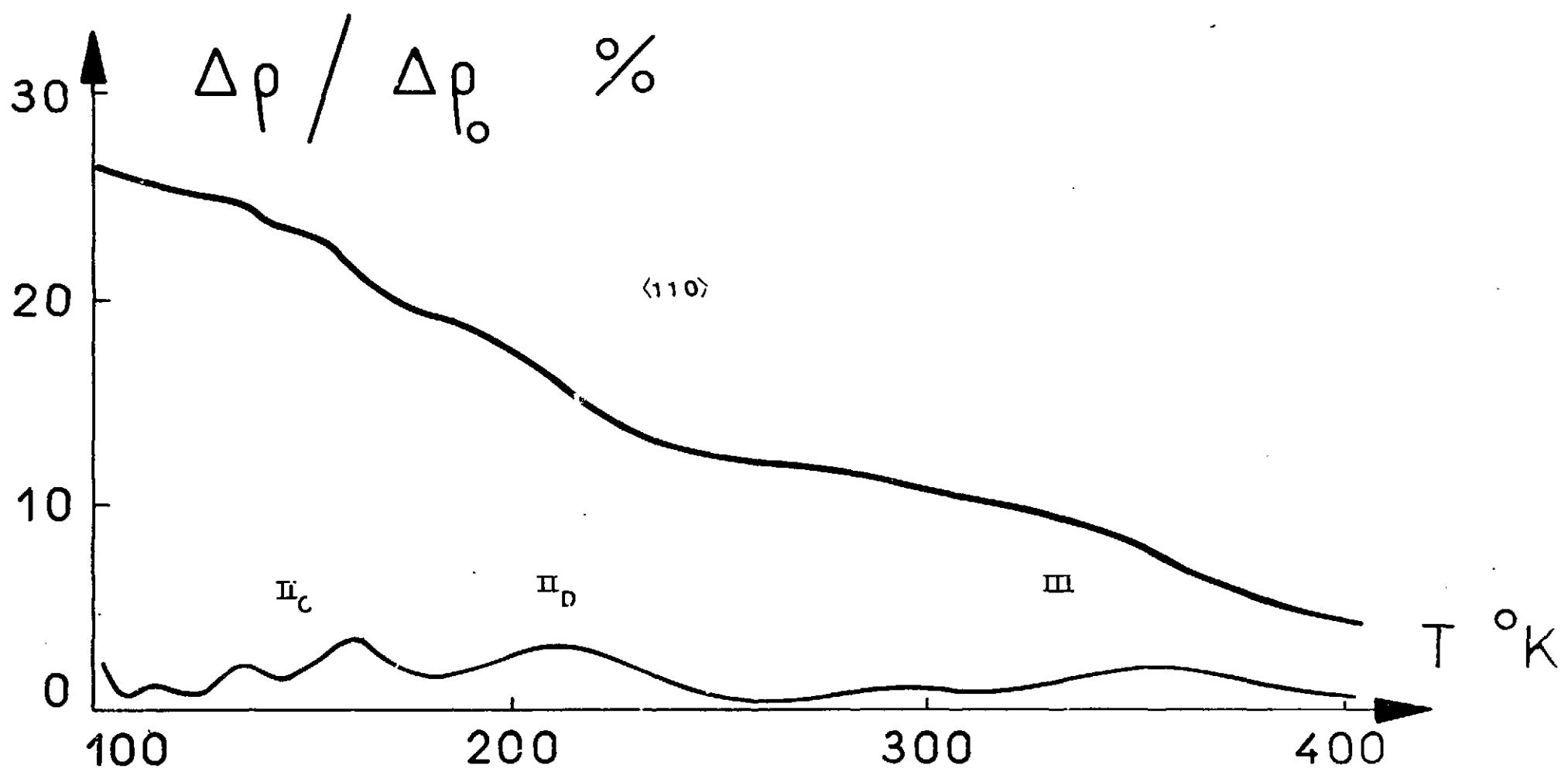


Figure 18-Courbe de restauration de la résistivité et courbe dérivée correspondante pour l'échantillon  $\langle 110 \rangle$  au cours d'un traitement thermique isochrone de 100  $^{\circ}\text{K}$  à 400  $^{\circ}\text{K}$ .

la résistivité ; nous traçons en effet le rapport

$$\frac{\Delta R}{\Delta R_0} = \frac{R_1(T) - R_0(T)}{(R_1 - R_0) \text{ } 20^\circ\text{K}}$$

en fonction de la température, et sa dérivée (Fig. 17) ( $R_1(T)$  : résistance de l'échantillon après irradiation à la température  $T$  ;  $R_0(T)$  : résistance du même échantillon, mais avant irradiation, à la température  $T$ ).

Au-dessus de  $100^\circ\text{K}$ , les échantillons ayant subi un traitement isochrone, ce sont le rapport  $\left[ \frac{R_T - R_0}{R_1 - R_0} \right] (T) \text{ } 20^\circ\text{K}$

et sa dérivée qui sont tracés (Fig. 18) ( $R_T$  : résistance de l'échantillon guéri à la température  $T$  et mesurée à  $20^\circ\text{K}$ ).

Nous nous référerons pour une étude quantitative, à la courbe  $\frac{\Delta R}{\Delta R_0} (T)$ , alors que de la dérivée seront déduites des remarques principalement qualitatives.

Le spectre de guérison classique du nickel est observé : il est décomposé en trois stades, chaque stade étant lui-même subdivisé en sous-stades de dénomination  $I_B$ ,  $I_C$ ,  $I_D + I_E$ ;  $II_A$ ,  $II_B$  ... ;  $III$ .

Un premier fait important est de remarquer qu'aucun stade nouveau n'apparaît, de même qu'aucun stade ne disparaît entièrement dans chacune des directions étudiées.

Les pourcentages de revenu de la résistivité associés aux différents stades sont présentés dans le tableau suivant :

	T	<100>	<110>	<111>
$I_B$	$23^\circ\text{K}-32^\circ\text{K}$	$(1,5 \pm 0,1) \%$	$(1,5 \pm 0,1) \%$	$(1,8 \pm 0,1) \%$
$I_C$	$32^\circ\text{K}-48^\circ\text{K}$	$(15,5 \pm 0,1) \%$	$(11,4 \pm 0,1) \%$	$(12,9 \pm 0,1) \%$
$I_D + I_E$	$48^\circ\text{K}-67^\circ\text{K}$	$(47,5 \pm 0,15) \%$	$(47,6 \pm 0,15) \%$	$(48,3 \pm 0,15) \%$

Une deuxième manipulation, indépendante de la première, avec des échantillons différents, irradiés par un flux intégré d'électrons de 3 MeV égal à la moitié du précédent, confirme les résultats déjà présentés, en particulier le stade  $I_C$  est augmenté de 32% pour un bombardement dans la direction  $<100>$  et de 12% dans la direction  $<111>$  par rapport à la direction  $<110>$ .

Il faut remarquer d'autre part qu'une augmentation du flux intégré d'électrons incidents a pour effet de diminuer le stade  $I$  dans son ensemble, phénomène déjà observé dans les polycristaux.

Les conclusions qui se déduisent des résultats précédents et des courbes présentées sont les suivantes :

1°/ Le stade  $I_B$  ( $23^\circ K$ - $32^\circ K$ ) semble favorisé par un bombardement dans la direction  $<111>$ ; cependant nous resterons prudents, car bien que supérieur de 18% au même stade dans les autres directions cristallographiques,  $I_B$  est un stade de faible amplitude, dont la température est très proche de celle d'irradiation.

2°/ Le stade  $I_C$  ( $32^\circ K$ - $48^\circ K$ ) représente un pourcentage de restauration de la résistivité beaucoup plus important dans la direction  $<100>$ ,  $<110>$  semblant par contre la direction la plus défavorisée. De plus, l'examen des courbes dérivées semble montrer une structure multiple de ce stade.

3°/ L'ensemble des stades  $I_D + I_E$  ( $48^\circ K$ - $67^\circ K$ ) semble peu affecté en amplitude par la direction du bombardement ; cependant la nature multiple de ce stade est mise en évidence par les différents épaulements qui composent le pic associé de la dérivée. En outre, un épaulement plus net correspondant à  $I_E$  apparaît côté hautes températures ( $63^\circ K$ ) pour l'échantillon irradié suivant la direction  $<110>$ .

4°/ Les différents pourcentages de restauration associés aux stades II et III sont rapportés dans le tableau 3.

	T	<100>	<110>	<111>
II <sub>A</sub>	67°K- 82°K	3,1 %	3,1 %	3,0 %
II <sub>B</sub>	82°K-125°K	?	?	?
II <sub>C</sub>	125°K-180°K	5,0 %	5,8 %	5,3 %
II <sub>D</sub>	180°K-260°K	6,5 %	7,4 %	6,8 %
III	260°K-400°K	6,4 %	7,8 %	7,0 %

- Le stade II<sub>A</sub> (67°K-82°K) reste identique suivant les trois directions cristallographiques.

- La discontinuité du traitement thermique à 100°K rend difficile l'étude de II<sub>B</sub> (82°K-125°K).

- Les stades II<sub>C</sub> (125°K-180°K) et II<sub>D</sub> (180°K-260°K) sont plus importants pour un bombardement dans la direction dense <110>.

- Le stade III (260°K-400°K), comme II<sub>C</sub> et II<sub>D</sub> est accru par un bombardement dans la direction dense.

#### / IV - DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX /

Il convient de préciser tout d'abord que les résultats présentés dans ce mémoire ne constituent qu'une partie d'une étude plus complète. Il n'est pas question de construire un nouveau modèle des stades d'annihilation des défauts ponctuels dans le nickel, à partir de ces seules données.

Après avoir résumé les différents points du modèle proposé par P. PERETTO et J.L. ODDOU, nos résultats expérimentaux dans les monocristaux seront examinés en fonction de ces interprétations.

Avant d'exposer cette discussion, quelques remarques s'imposent sur la structure fine des spectres de guérison des monocristaux de nickel.

##### 1. STRUCTURE FINE

Ces expériences ne mettent pas en évidence une structure fine semblable à celle présentée par l'équipe de KAUFFMAN dans les spectres de guérison du cuivre, de l'aluminium ou encore de l'argent (Fig. 19) (Réf. 23,24). Cette structure fine existe essentiellement au niveau des stades  $I_D$  et  $I_E$  dans l'argent et le cuivre alors que dans l'aluminium c'est tout le spectre qui est décomposé (Stade I dans son ensemble).

Les expériences sur les monocristaux de nickel laissent apparaître quant à elles une structuration multiple au niveau des stades  $I_C$  et  $I_D$  :

- la nature multiple de  $I_C$  avait été prévue par J.L. ODDOU à l'aide de la décomposition de la cinétique de guérison du stade en plusieurs cinétiques d'ordre un.

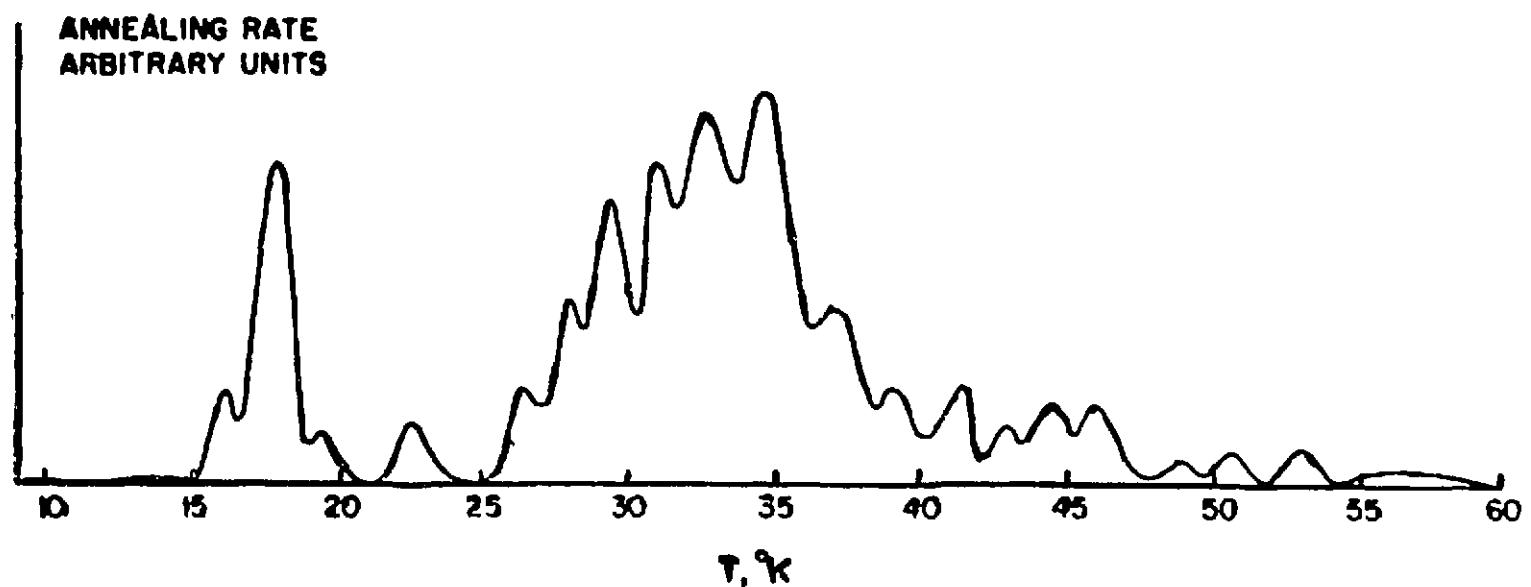


Figure 19-Dérivée de la courbe de restauration de la résistivité pour de l'aluminium irradié avec des électrons de 2 MeV (réf. 24).

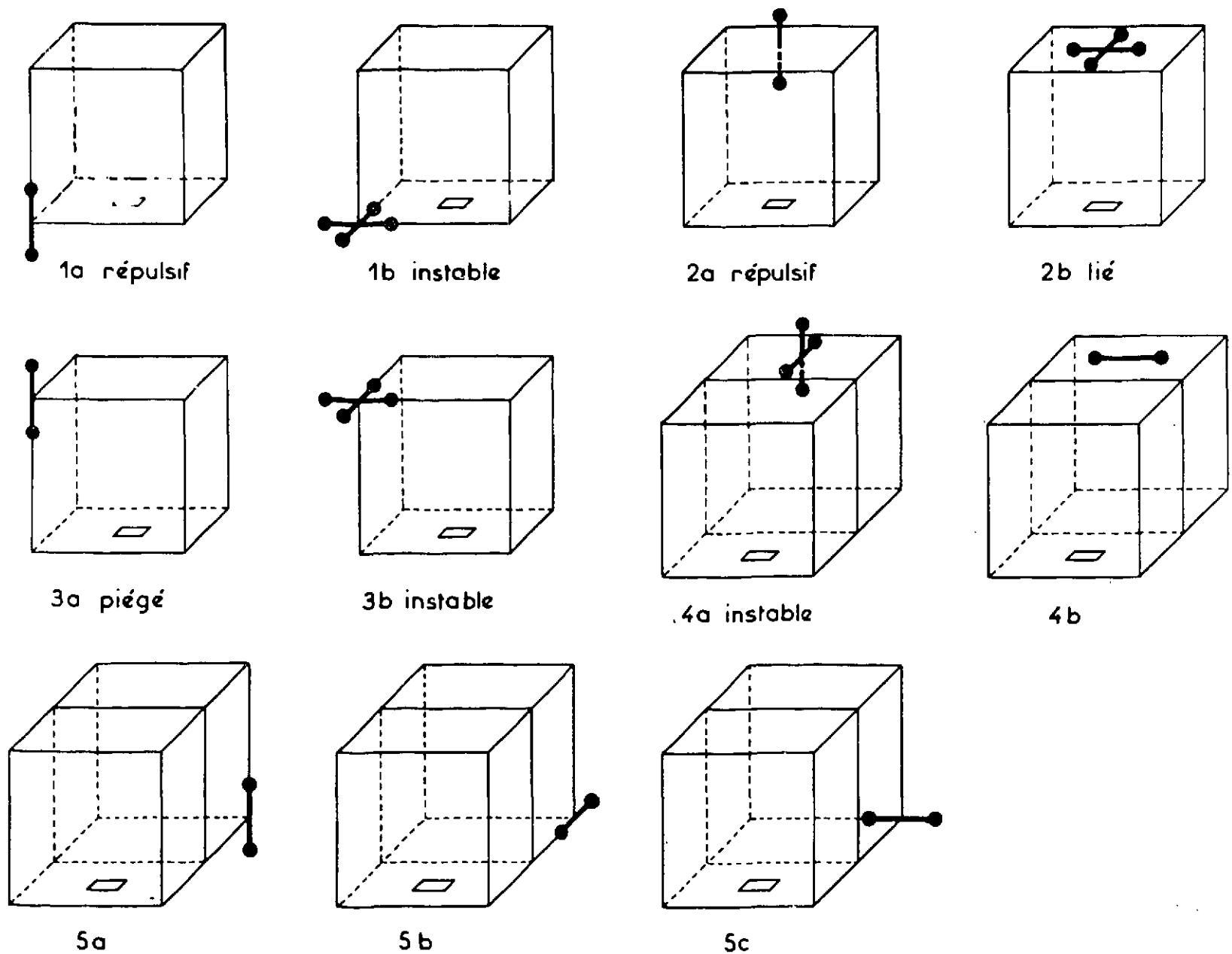


Figure 20-Structures possibles des diverses paires proches jusqu'en position de cinquièmes voisins (5<sup>e</sup> groupe) par rapport à la lacune : avec la nomenclature utilisée sont également notés les résultats de R.A. JOHNSON (réf 3).

-  $I_D$  est la superposition de plusieurs processus comme le laisse prévoir la largeur excessive du stade.

Il faut remarquer que ces résultats ne sont pas propres aux monocristaux mais sont caractéristiques du nickel lui-même.

## 2. ESSAIS D'IDENTIFICATION DES DIFFÉRENTS STADES

---

### 2.1. Rappel du modèle proposé par P. PERETTO (Réf. 2)

- La structure stable de l'interstitiel est l'interstitiel dédoublé suivant  $<100>$ .

- Le stade  $I_B$  de revenu de la résistivité est associé à la disparition d'une zone de traînage magnétique ; il faut donc chercher l'interstitiel associé à la lacune sur les sites du groupe 1 (premiers voisins) ou du groupe 3 (troisièmes voisins) (Fig. 20), les sites du groupe 2 ne pouvant être associés à la disparition d'aucune bande de traînage magnétique.

Les sites du groupe 1 trop proches de la lacune étant probablement instables (JOHNSON a montré que les défauts associés au groupe 1 sont - soit instables, - soit répulsifs (Réf. 25)),  $I_B$  doit être associé aux sites du groupe 3.

Parmi les deux structures possibles du groupe 3, seuls les interstitiels 3b peuvent se réorienter et sont donc responsables d'une zone de traînage magnétique ; un stade de revenu de la résistivité pouvant être associé aux sites 3a (Fig. 20).

Le stade  $I_C$  est également associé à la disparition d'une zone de traînage magnétique ; les sites du groupe 4 étant reconnus instables (ce point est confirmé par les calculs de GIBSON (Réf. 1) ou encore de JOHNSON (Réf. 25)). Le défaut  $I_C$  est donc associé aux sites du groupe 5 qui présente 3 structures possibles (Fig. 20) suivant la direction

de l'interstitiel dédoublé.

- Le stade  $I_D$  suit l'évolution d'un ensemble de défauts métastables se trouvant dans la zone d'interaction de la lacune, mais plus éloignés.

- Le stade  $I_E$  associé à la disparition d'une bande de traînage magnétique importante est attribué à l'interstitiel libre.

- Le stade II dans son ensemble est attribué à la guérison de complexes d'interstitiels ; quant au stade III, il représente l'annihilation des bilacunes.

Il faut remarquer que pour ces deux stades, il ne s'agit plus de défauts de forme simple - type paire de Frenkel -, mais au contraire d'interstitiels se trouvant en dehors de la zone d'interaction de leur lacune mère et créés par des chocs focalisés à plus longue portée.

## 2.2. Analyse des résultats expérimentaux

Le problème interaction électron-atome dans un cristal est un problème très complexe, encore mal résolu, aussi sera-t-il difficile de s'appuyer sur des considérations théoriques pour tirer des renseignements quantitatifs des expériences ou pour justifier certaines hypothèses déduites expérimentalement.

Plusieurs expérimentateurs ont mis en évidence un effet sensible de l'influence de la direction d'irradiation sur l'amplitude des stades de guérison de la résistivité (Réf. 4,5,6, Chap. 1).

Nos expériences ont donné des résultats semblables, en particulier au niveau du stade  $I_C$  (variation de 30% suivant la direction d'irradiation), et des stades II et III.

### 2.2.1. - Stades II et III

Une irradiation suivant la direction dense  $<110>$  du monocristal de nickel engendre un pourcentage de défauts sensiblement plus important à guérir, au niveau des stades II et III, que suivant les directions  $<100>$  ou  $<111>$ .

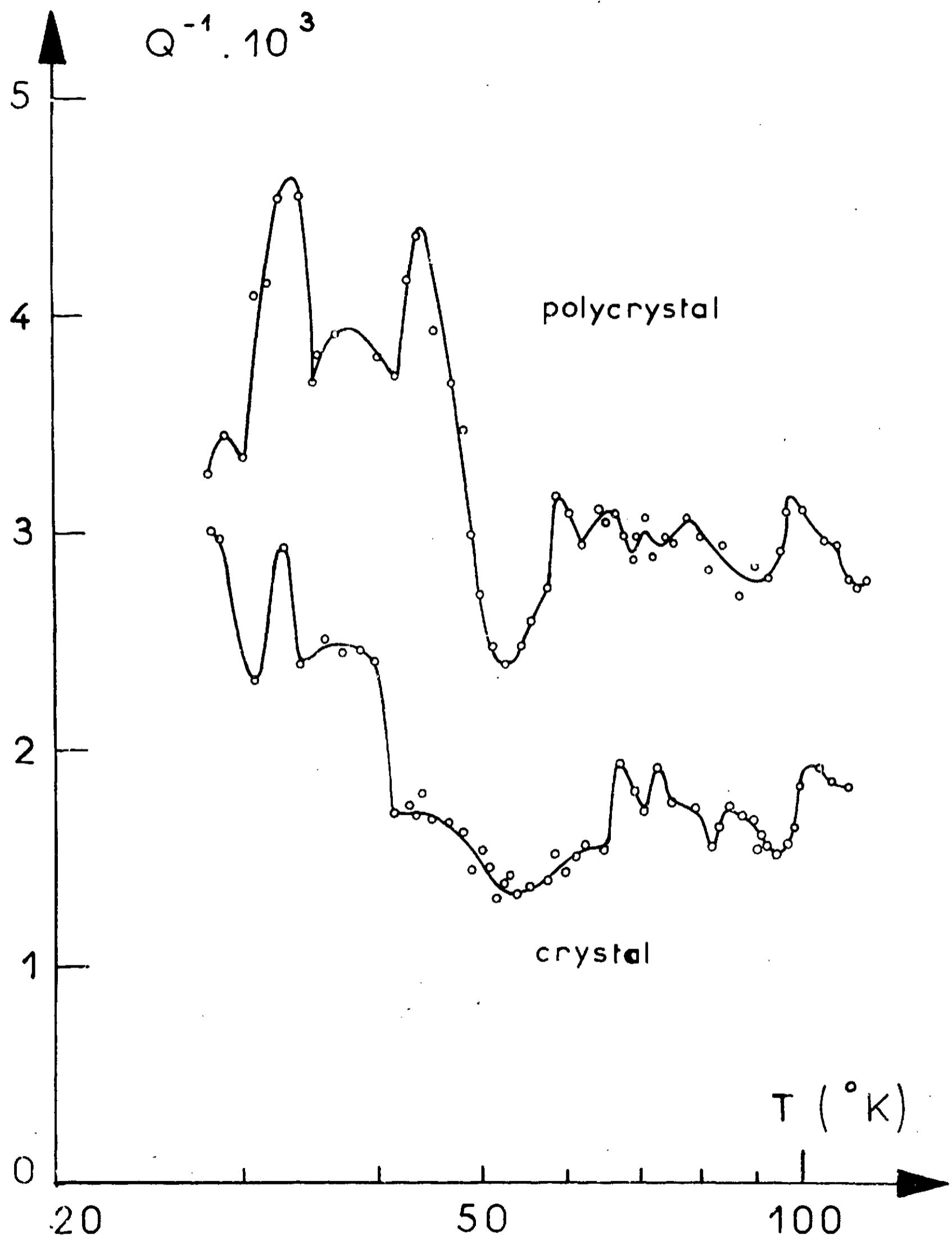
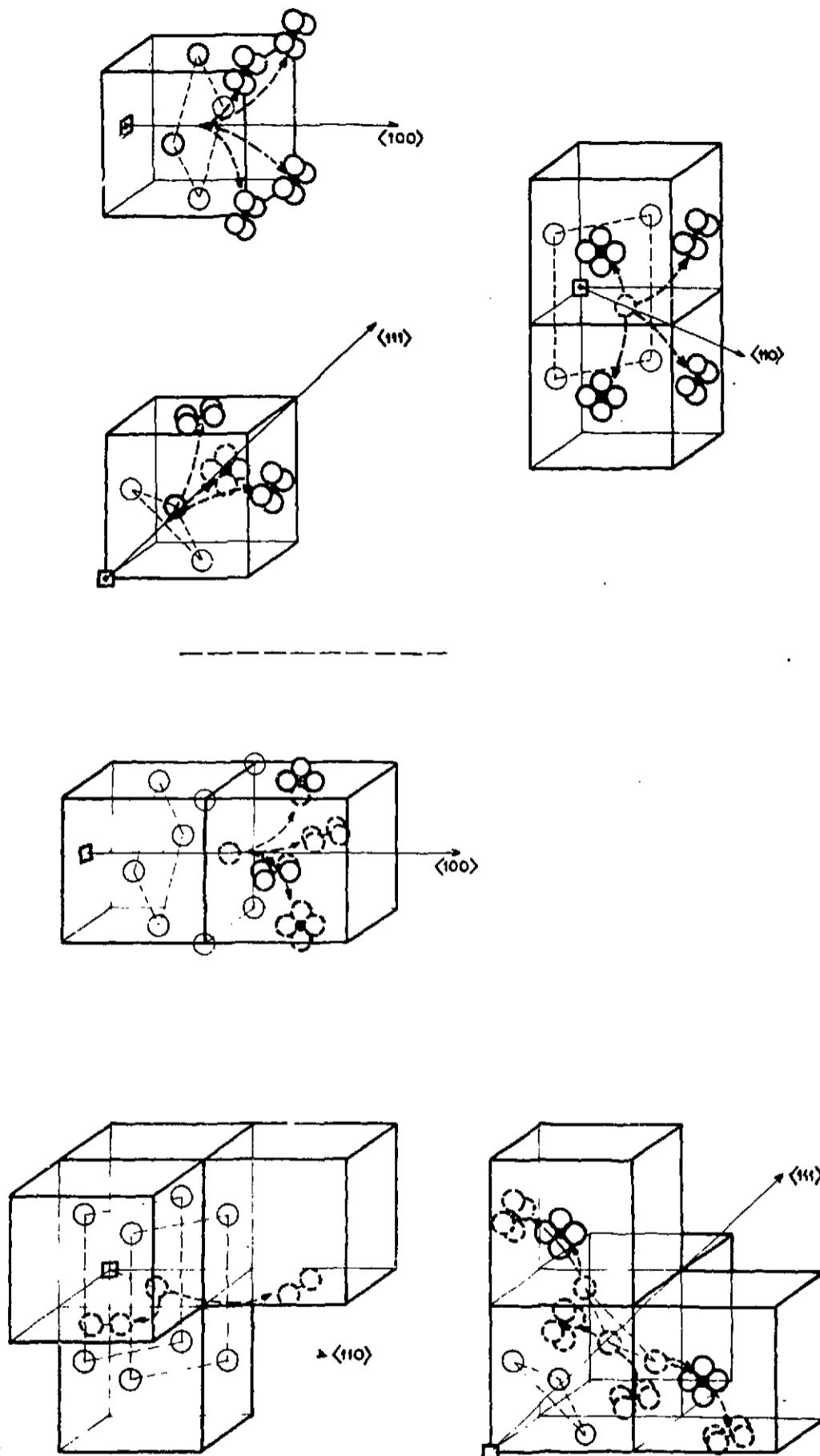


Figure 21-Frottement interne du nickel pur après irradiation :

- polycristal : irradiation neutronique à  $28^{\circ}\text{K}$ .
- monocristal : irradiation électronique à  $20^{\circ}\text{K}$ . (réf 26)



Figures 22, 23-Processus de création des défauts s'annihilant au stade  $I_B$ . (3<sup>o</sup> groupe) et au stade  $I_C$  (5<sup>o</sup> groupe).

Il est admis communément que ces stades sont associés à des défauts complexes de forme interstitielle ou lacunaire favorisés par les chocs à longue portée.

Les calculs théoriques (Réf. 1) montrent que c'est justement dans cette direction  $<110>$  que l'interstitiel sera créé le plus loin de sa lacune mère. En effet, GIBSON évalue à  $2/3$  eV l'énergie perdue par saut par un atome focalisé suivant la direction  $<110>$  alors que cette même énergie est de plusieurs eV suivant les autres directions. Il semble donc qu'il y ait une relation assez directe entre la direction des électrons incidents et celle des défauts créés. C'est dans cette optique que nous essaierons de voir si l'effet observé au niveau du stade  $I_C$  peut s'interpréter par le modèle proposé par P. PERETTO.

#### 2.2.2. - Stade $I_C$

Les variations d'amplitude de ce stade, avec la direction d'irradiation, apparaissent comme un point très net des résultats expérimentaux.

P. PERETTO propose d'associer ce défaut aux sites du groupe 5, c'est-à-dire l'interstitiel se trouvant en position  $(310)$  par rapport à la lacune (Fig. 20).

Un premier argument expérimental peut justifier ce choix : le groupe 5 est caractérisé par 3 structures indépendantes et il est apparu que le stade  $I_C$  est la superposition de plusieurs pics. Remarquons en outre qu'une structure triple apparaît dans ce domaine de température, sur la courbe de frottement interne d'un échantillon de nickel polycristallin irradié aux neutrons, tout comme dans une mesure préliminaire d'un échantillon monocristallin du même matériau, mais irradié aux électrons (Fig. 21) (Réf. 26). Il semble donc alors qu'il faille admettre, contrairement à PERETTO que chacune de ces structures soit stable.

- La position de 5ème voisin est nettement favorisée dans son processus de création par la direction  $<100>$  (Fig. 23) ; en effet l'examen de la maille cristallographi-

que c.f.c. met en évidence quatre sites plus probables pour l'interstitiel, répartis symétriquement autour de cette direction sur un cône de demi-angle au sommet voisin de  $18,5^\circ$ , parmi les 12 positions possibles situées dans le demi-espace favorable (4 sont situés à plus de  $71^\circ$  et les 4 autres à  $90^\circ$ ). L'atome primaire traverse une première fenêtre carrée constituée de 4 atomes situés en (110) (101) ( $1\bar{1}0$ ) ( $10\bar{1}$ ) avant de déplacer l'atome en (200) qui va constituer l'interstitiel dédoublé avec un des atomes situés en (310), (301) ( $30\bar{1}$ ) ou ( $3\bar{1}0$ ).

Autour d'une direction  $\langle 110 \rangle$  parmi les 12 sites possibles, 10 forment un grand angle et 2 seulement se présentent comme probables car ils sont répartis symétriquement autour de  $\langle 110 \rangle$  sur un cône de demi-angle au sommet égal à  $26,5^\circ$ , et ce serait l'atome (110) qui trait constituer l'interstitiel dissocié en (310) (Fig. 23). Ce peut être un point de justification de l'amplitude plus faible du stade pour cette direction d'irradiation.

L'observation suivant la direction  $\langle 111 \rangle$  est plus complexe ; en effet, nous constatons de la même façon que parmi les 12 sites possibles, 6 sont plus probables, étant répartis symétriquement dans un cône de demi-angle au sommet égal à  $43^\circ$ . Après avoir traversé une première fenêtre triangulaire constituée des atomes (110) (101) et (011), l'atome primaire traverse une seconde fenêtre triangulaire constituée des atomes (211) (121) ( $1\bar{1}2$ ) et il est probable que ce soit un de ces atomes qui va former l'interstitiel dissocié en (310).

L'amplitude plus faible que celle du stade correspondant à une irradiation suivant  $\langle 100 \rangle$  se justifierait par le fait que les sites se trouvent assez écartés de la direction la plus probable du premier atome choqué, c'est-à-dire la direction  $\langle 111 \rangle$ , et que les fenêtres triangulaires sont plus difficiles à franchir que les fenêtres carrées.

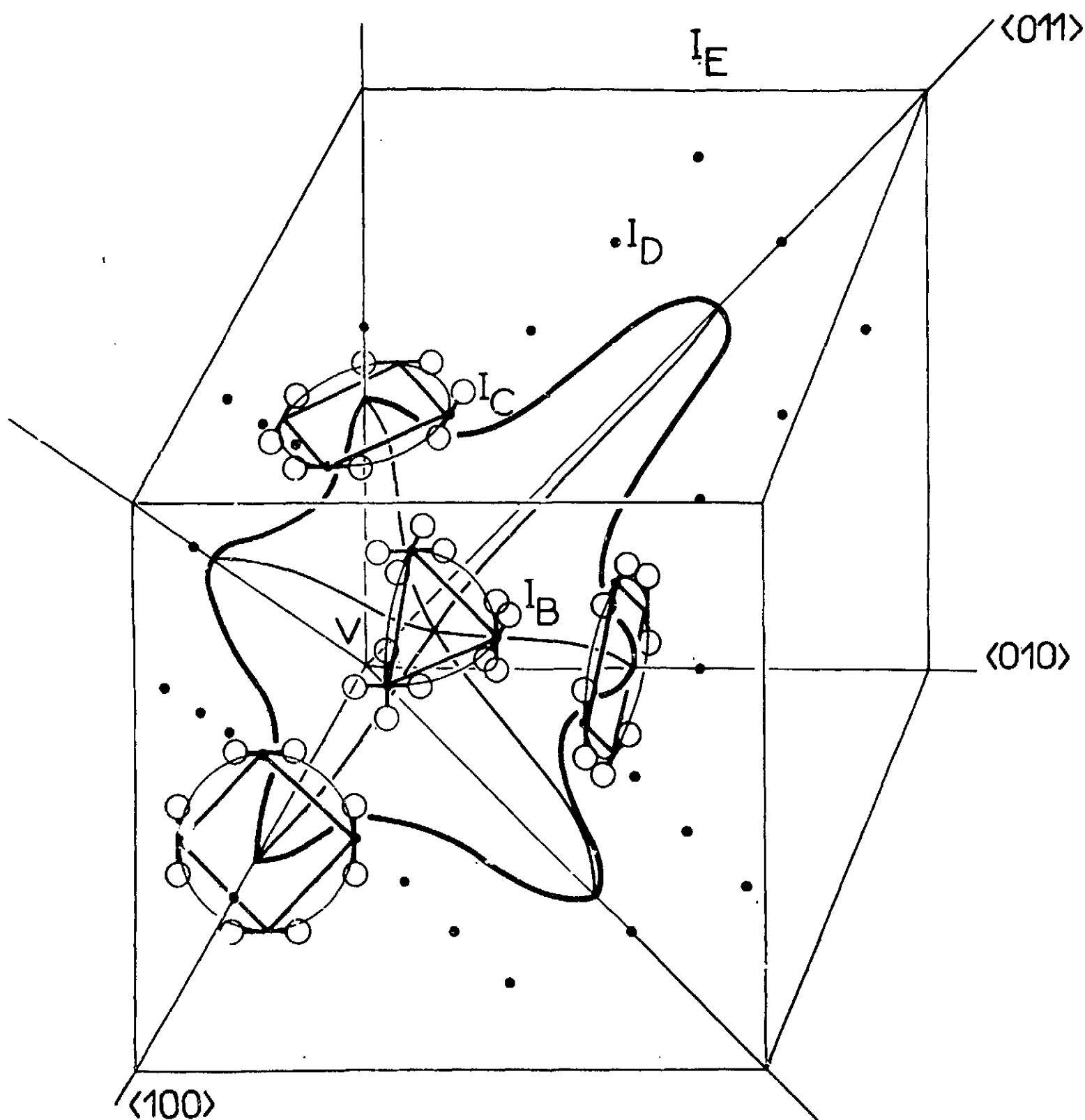


Fig 24 Schéma montrant l'attribution des sites pour les défauts qui s'annihilent au stade I ; les points noirs sont quelques uns des sites attribués au stade  $I_D$  (ref 2).

### 2.2.3. · Stade $I_D + I_E$

Le stade  $I_D$ , de par la forme du pic correspondant, semble résulter de la superposition de plusieurs processus de guérison de défauts. Il peut être associé à des paires plus éloignées sans grande symétrie particulière. Cependant, d'après PERETTO, ces types de défauts devraient être plus fréquents le long de la direction  $<110>$ ; expérimentalement nous n'avons pas observé qu'une irradiation suivant la direction  $<110>$  favorise  $I_D$ . Cette non concordance se justifie par le fait qu'une telle irradiation a tendance à engendrer des défauts beaucoup plus éloignés par l'intermédiaire des chocs focalisés en particulier, et favorisera en outre les interstitiels libres.

Ce dernier point est justifié expérimentalement car le spectre associé à l'échantillon bombardé suivant  $<110>$  présente un épaulement  $I_E$  plus prononcé que dans les autres directions. Remarquons simplement que dans le modèle allemand où  $I_E$  est attribué au crowdion, ce stade devrait également être favorisé par une irradiation dans la direction  $<110>$ .

Pour conclure, nous présentons la figure 24 qui rassemble les sites des défauts créés au niveau du stade I.

/ V - ETUDE DU GADOLINIUM /

L'étude des défauts ponctuels dans le Gadolinium présente un certain intérêt parce qu'elle permet une comparaison avec les résultats précédemment obtenus dans le Cobalt (Réf. 22), autre métal ferromagnétique de structure cristallographique h.c.p. ; cette étude étant poursuivie à l'aide de mesures de résistivité et de traînage magnétique.

A - CARACTERISTIQUES TECHNIQUES

Le Gadolinium provient de LIGHT and Co LTD, sa pureté initiale est de 99,9%. Il est pollué essentiellement par de l'oxygène, du nickel et de l'Yttrium.

Après avoir été recuit à 800°C, pendant 24 H, sous un vide de  $5 \cdot 10^{-9}$  Torr (dans le but d'éliminer les impuretés d'oxygène) le rapport de résistivité est de :

$$\frac{\rho \text{ 300}^\circ\text{K}}{\rho \text{ 20}^\circ\text{K}} \approx 30.$$

Remarquons la faiblesse de ce rapport en comparaison avec les autres métaux étudiés, tels le fer, le nickel ou encore le cobalt, et la pureté limitée du Gadolinium, semblable à celle des terres rares en général.

Les échantillons sont bombardés à 20°K (Hydrogène liquide) par des électrons d'énergie égale à 3 MeV avec différents flux intégrés. De même, nous avons procédé à des irradiations neutroniques à 27°K (néon liquide).

Le revenu de la résistivité est étudié au cours d'un traitement thermique isochrone (de 10 mn tous les 3 degrés puis de 10 mn tous les 5 degrés) ou d'un traitement thermique linéaire (30°K/h). Les techniques expérimentales utilisées sont celles déjà exposées, aussi bien pour les mesures de résistivité (Réf. 22) que pour les mesures de traînage magnétique.

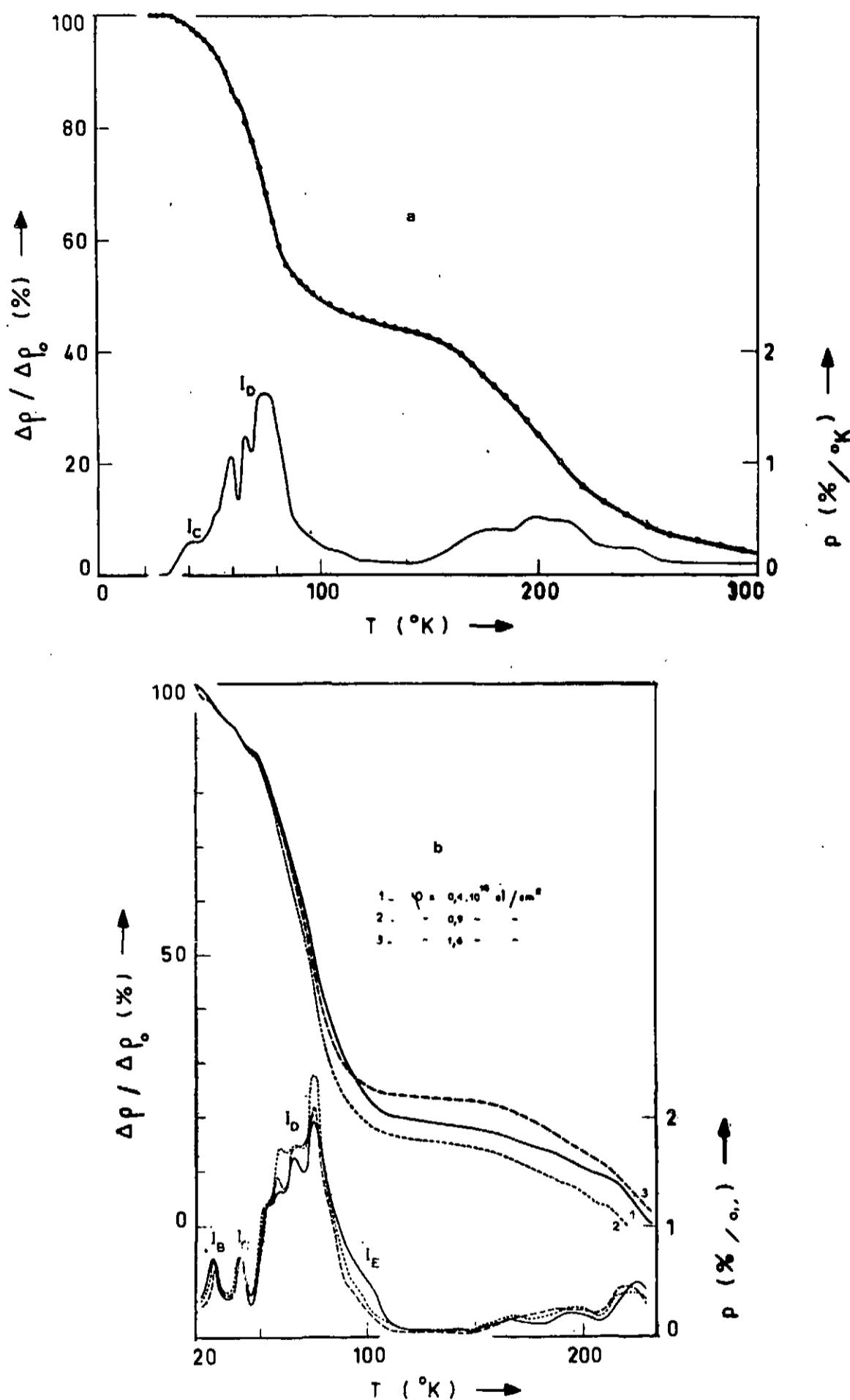


Figure 26-Restauration de la résistivité du gadolinium après irradiation, et au cours d'un traitement thermique isochrone :

a. Irradiation neutronique à  $28^{\circ}K$ .

b. Irradiation électronique avec trois flux intégrés différents

$$\Phi_1$$

$$\Phi_2 = 2\Phi_1$$

$$\Phi_3 = 4\Phi_1$$

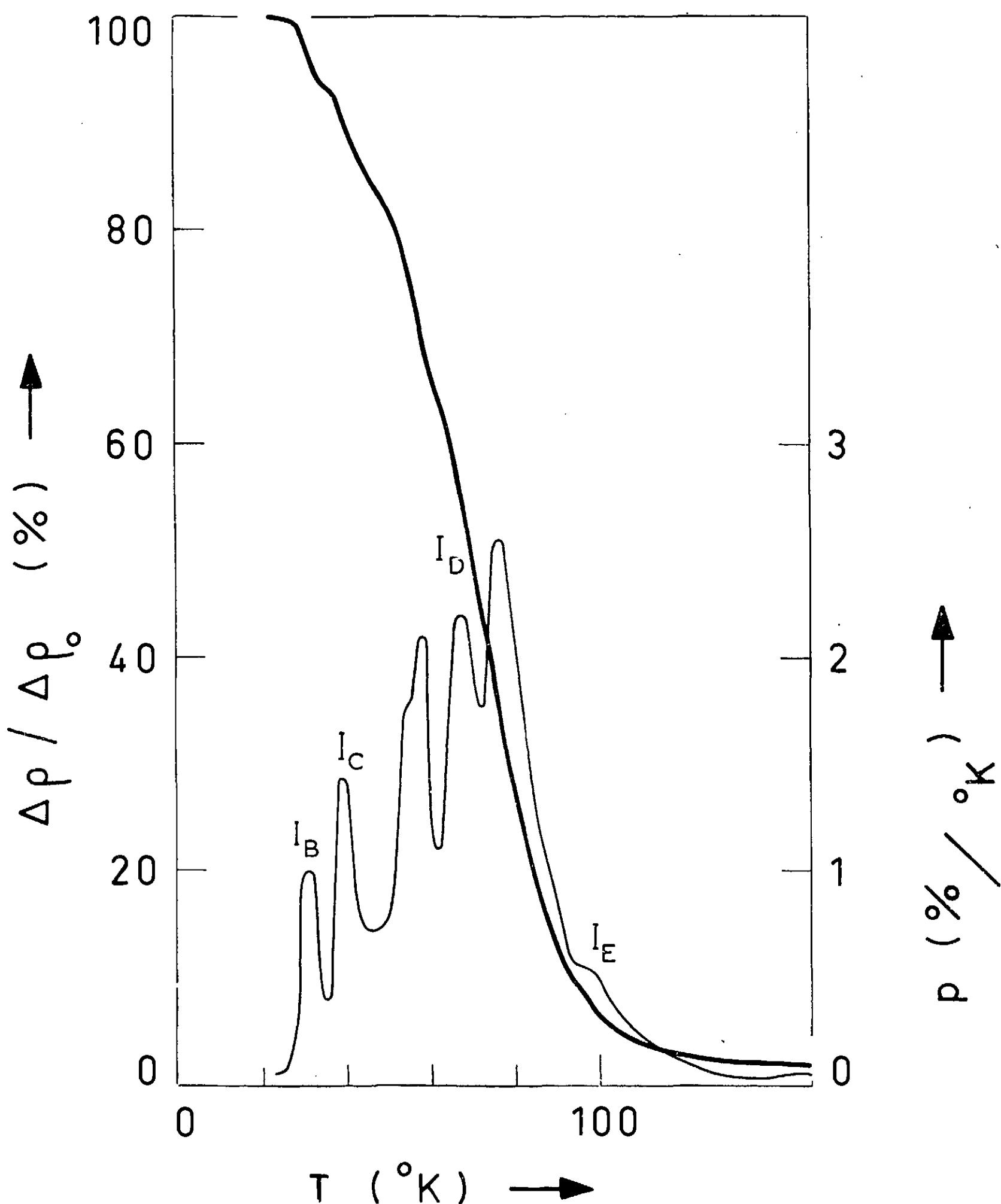


Figure 26-Restauration de la résistivité d'un échantillon de gadolinium irradié aux électrons à 20  $^{\circ}\text{K}$  au cours d'un traitement thermique linéaire.

nage magnétique (Réf. 27).

## B - RESULTATS EXPERIMENTAUX

---

### a - Irradiations aux électrons

- Après une même irradiation électronique, l'accroissement de résistivité est environ 100 fois plus grand dans le Gadolinium que dans le Cobalt. Ceci signifie, en négligeant un éventuel effet des impuretés que, soit le taux de production, soit la résistivité par paire de Frenkel, est sensiblement plus grand dans le Gadolinium que dans le Cobalt. Il faut en outre, remarquer que ce phénomène irait dans le même sens que la loi empirique émise par LUCASSON (Réf. 28)  $\rho_F \sim \rho 300^\circ K$ .

Il sera possible après quelques expériences d'énergie stockée d'approfondir davantage ce point.

- La figure 25 représente la courbe de revenu de la résistivité d'un échantillon au cours d'un traitement thermique linéaire, ainsi que la dérivée correspondante.

- La figure 26 représente les trois courbes de revenu au cours d'un traitement isochrone pour trois flux intégrés différents.

Les principales remarques qui en résultent sont :

1°/ Entre  $20^\circ K$  et  $115^\circ K$ , environ 80% de l'accroissement initial de la résistivité dû à la présence des défauts ponctuels est guéri. Ce domaine de température est suivi d'une zone de faible revenu ( $< 2\%$ ) jusqu'à  $150^\circ K$ . Au-dessus de  $150^\circ K$ , la restauration recommence et, à environ  $240^\circ K$ , la valeur de la résistivité avant irradiation est atteinte. Si le traitement est poursuivi vers des températures plus élevées, la résistivité devient inférieure à sa valeur avant

irradiation ; ce phénomène pouvant être attribué soit à un effet d'impuretés, soit à une oxydation de l'échantillon.

2°/ Par analogie avec les autres métaux irradiés qui présentent également un stade important de revenu de la résistivité à basse température, nous appelons stade I, le domaine de restauration en dessous de 115°K. Pour des raisons semblables, le stade le plus important est appelé I<sub>D</sub> (45°K - 90°K). Les sous-stades I<sub>B</sub> (28°K) et I<sub>C</sub> (41°K) sont bien individualisés. Il est possible que d'autres stades existent en dessous de 20°K, car au cours du traitement thermique, la restauration commence immédiatement au-dessus de la température d'irradiation. Un épaulement apparaît sur le côté hautes températures du stade I<sub>D</sub> comme dans le cas du cuivre, du fer, ou encore du nickel, nous l'appelons I<sub>E</sub>.

3°/ La température associée au stade I<sub>E</sub> est fonction du flux intégré d'électrons incidents. Ainsi le processus de restauration obéit à une cinétique d'ordre supérieur à un, ce qui confirme la dénomination I<sub>E</sub>. Aucun déplacement semblable n'est observé pour les autres stades situés à basses températures.

#### b - irradiation neutronique

- Après irradiation avec des neutrons rapides à 27°K (Fig. 26) la restauration de la résistivité se produit essentiellement en deux stades complexes : le stade I (au-dessous de 115°K) représente 55% du revenu de la résistivité, et par comparaison avec les résultats après irradiation électronique, les sous-stades I<sub>B</sub> et I<sub>C</sub> sont diminués par rapport à I<sub>D</sub>. La seconde zone de revenu se situe entre 150°K et 250°K.

- Un tore de gadolinium irradié aux neutrons rapides, dans les mêmes conditions que l'échantillon de résistivité précédent n'a révélé aucun phénomène de traînage

magnétique, dans le domaine de température du stade I, semblable à ceux observés dans d'autres métaux ferromagnétiques irradiés, tels le fer, le nickel ou le cobalt.

### C - DISCUSSION

Les stades  $I_B$ ,  $I_C$ ,  $I_D$  correspondant à des cinétiques d'annihilation du premier ordre sont associés à la recombinaison de paires proches.

$I_E$  pour sa part, correspondrait à un interstitiel migrant à longue distance (Réf. 29), c'est-à-dire l'interstitiel libre. Nous justifions l'absence de traînage magnétique au niveau de ce stade par le fait que l'interstitiel libre engendrerait dans le gadolinium une perturbation magnétique de direction constante parallèle à l'axe C. Pour cette raison, aucune réorientation entre deux sauts successifs n'est possible.

Notons qu'une étude en cours dans le laboratoire sur le cobalt montre également qu'il n'est pas possible d'associer une bande de traînage magnétique au premier stade  $I_E$  de cinétique d'ordre supérieur à un, et que la même conclusion est proposée (Réf. 30).

Par contre, il semble que dans le cobalt une bande de traînage magnétique soit associée au stade  $I_D$  d'ordre un, attribué à la guérison d'une paire proche particulière. La non concordance avec le gadolinium pourrait provenir des mécanismes de migration qui peuvent être différents pour ces deux métaux hexagonaux dont l'un a une structure sensiblement idéale ( $Co : \frac{c}{a} = 1,623$ ) et l'autre en est assez éloigné ( $Gd : \frac{c}{a} = 1,59$ ).

- CONCLUSION -

Ce travail est composé de deux parties distinctes :

- une première constituée par l'étude de la résistivité de monocristaux de nickel dans laquelle nous avons essayé de mettre en évidence un effet directionnel de l'irradiation électronique.

Un phénomène important a été observé au niveau du stade  $I_C$  de la courbe de revenu de la résistivité. Nous essayons de le justifier à l'aide du modèle précédemment proposé par le laboratoire, car ce travail s'intègre dans l'étude générale du nickel qui est poursuivie à la Section de Physique du Solide du C.E.N. de Grenoble.

- la seconde est constituée par l'étude du gadolinium, métal ferromagnétique h.c.p., à l'aide de mesures de résistivité et de traînage magnétique, afin de fournir un point de comparaison aux résultats relatifs au cobalt.

Quelques points d'interprétation préliminaires ont été avancés pour expliquer la différence notable de comportement entre ces deux métaux, et, leur étude est poursuivie actuellement à l'aide d'autres techniques (frottement interne, traînage magnétique, module élastique, énergie stockée) et sur des échantillons monocristallins.

- BIBLIOGRAPHIE -

- 1.- J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, M. MILGRAM, G.H. VINEYARD  
Phys. Rev. 120, p. 1229 (1960)
- 2.- P. PERETTO  
Thèse Grenoble 1967 (CEN-G, BP 269)
- 3.- J.L. ODDOU  
Thèse Grenoble 1967 (CEN-G, BP 269)
- 4.- A. LUCASSON, P.G. LUCASSON, Y. CUSSON, R.M. WALKER  
Int. Conf. on Prop. of Reactor Materials and the effects  
of Radiat. Damage - Berkeley (1961)
- 5.- A. SOSIN, K. GARR  
Phys. Stat. Sol. 8, p. 481 (1965)
- 6.- R.E. LONGSHORE, R.L. CHAPLIN  
Bulletin of the American Phys. Soc. (Mars 1967)
- 7.- E.J. WILLIAMS  
Rev. Mod. Phys. 17, p. 217 (1945)
- 8.- N.F. MOTT, H.S.W. MASSEY  
"The theory of Atomic collisions" (Clarendon Press -  
Oxford, 1949)
- 9.- P.G. LUCASSON, R.M. WALKER  
Phys. Rev. 127, p. 485 (1962)
- 10.- W. BAUER, A. SOSIN  
J. Appl. Phys. 37, p. 1780 (1966)
- 11.- K. KAMADA, Y. KAZUMATA, S. SUDA  
Phys. Stat. Sol. 7, p. 231 (1964)
- 12.- J.N. LOMER, M. PEPPER  
Phil. Mag. p. 1119 (1967)
- 13.- R.H. SILSBEE  
J. Appl. Phys. 28, p. 1246 (1957)
- 14.- J.C. PFISTER  
Journal de Physique 27, p. 253 (1966)
- 15.- D.K. HOLMES  
"Int. Conf. on Interaction of Radiat. with Solids"  
(MOL 1963)

- 16.- R. FRERE  
"Int. Conf. on Radiat. Damage in Metals" (VENISE 1962)
- 17.- F. SEITZ, J.S. KOEHLER  
Solid State Physics 2, p. 305 (1956)
- 18.- G.H. KINCHIN, R.S. PEASE  
Rept. Progr. in Physics 18, p. 1 (1955)
- 19.- H.H. NEELY, W. BAUER  
Phys. Rev. 149, p. 535 (1966)
- 20.- W.D. LAWSON, S. NIELSEN  
"Preparation of Single Crystals"  
Butterworths Scientific Publications (1958)
- 21.- W.J. McG. TEGART  
"Polyssage électrolytique et chimique des métaux"  
(Dunod 1960)
- 22.- G. SULPICE  
Thèse Grenoble 1968 (CEN-G, BP. 269)
- 23.- F.W. WIFFEN, C.L. SNEAD Jr., J.W. KAUFFMAN  
Physics Letters 23, p. 22 (1966)
- 24.- H.J. DAWSON, G.W. ISELER, A.S. MFHNER, J.W. KAUFFMAN  
Physics Letters 18, p. 247 (1966)
- 25.- R.A. JOHNSON  
Phys. Rev. 152, p. 629 (1966)
- 26.- G. de KEATING-HART, R. COPE, C. MINIER, P. MOSER  
"Int. Conf. on Vacancies and Interstitials in Metals"  
(JULICH 1968)
- 27.- P. MOSER  
Thèse Grenoble 1965 (CEN-G. BP. 269)
- 28.- P.G. LUCASSON, R.M. WALKER  
Phys. Rev. 127, p. 1130 (1962)
- 29.- R. COPE, C. MINIER, H. BILGER, P. MOSER  
Physics Letters (à paraître)
- 30.- R. COPE, G. SULPICE, C. MINIER, H. BILGER, P. MOSER  
"Int. Conf. on Vacancies and Interstitials in Metals"  
(JULICH 1968).

**FIN**