

---

PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

---

8.4

**ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS  
CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE  
DANS LE COBALT**

*par*

*Gaston Sulpice*

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble

**Rapport CEA - R - 3604**

**1968**

Ea

**SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A**

CEA-R-3604 - SULPICE Gaston

ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREES  
PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE COBALT

Sommaire. - Nous présentons une étude des défauts ponctuels créés par bombardement électronique dans le cobalt et comparons nos résultats à ceux obtenus précédemment dans deux autres métaux ferromagnétiques de structure différente, le fer et le nickel.

Dans une première partie nous faisons une mise au point bibliographique comparée sur la création des défauts, leur contribution à la résistivité et leur mode d'annihilation dans les trois types de structure.

Nous décrivons ensuite les techniques expérimentales mises au point, en particulier l'étude du revenu de la résistivité au cours d'une montée linéaire de température. ./.

---

CEA-R-3604 - SULPICE Gaston

STUDY OF THE POINT DEFECTS FORMED IN COBALT  
BY ELECTRON BOMBARDMENT

Summary. - A study of the point defects formed in cobalt by electron bombardment is presented. The results are compared with those previously obtained for two other ferromagnetic metals of different structure, iron and nickel.

In the first part we give a review of the literature concerning the creation of point defects, their contribution to resistivity and their annihilation mode in the three structure types.

We then describe the experimental techniques adapted, in particular the study of the resistivity increase during a linear temperature rise. ./.

Au cours de ce travail, nous avons mis en évidence les stades successifs d'annihilation des défauts ponctuels créés dans le cobalt pur, nous avons étudié les variations avec la dose et l'énergie des particules incidentes et déterminé les cinétiques de guérison et les énergies d'activation correspondantes.

Nous confrontons alors les résultats avec les différents modèles d'annihilation des défauts ponctuels proposés pour d'autres métaux ; aucune de ces interprétations ne s'accorde parfaitement avec nos résultats, ce qui nous conduit dans le cas du cobalt à introduire une variante du modèle soutenu par notre laboratoire pour le fer et le nickel. La différence entre ces trois métaux est expliquée par le caractère anisotrope du cobalt.

1968 - Commissariat à l'Energie Atomique - France 57 p.

Our investigations concern the following essential points : the observation of the successive annihilation stages of the point defects formed in pure cobalt, a study of the variations with respect to the dosis and energy of the incident particles, and the determination of the annealing kinetics and the corresponding activation energies.

The results are finally compared with the various models of point defect annihilation proposed for other metals : none of these interpretations is in perfect agreement with our results. In the case of cobalt we are thus led to modify the model proposed by our laboratory for iron and nickel. The difference between these three metals is explained by the anisotropic character of the cobalt matrix.

1968 - Commissariat à l'Energie Atomique - France 57 p.

- Rapport CEA-R-3604 -

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

ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS  
CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE COBALT

par

Gaston Sulpice

Thèse pour obtenir le titre de Docteur de 3ème cycle

- Décembre 1968 -

# ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE COBALT

Le travail faisant l'objet de ce mémoire a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de GRENOBLE, dans les laboratoires du Service de "Physique du Solide et Résonance Magnétique".

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur L. NEEL, membre de l'Institut, Directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de GRENOBLE, qui a bien voulu m'accueillir dans ce laboratoire.

Je remercie Monsieur D. DAUTREPPE, Chef du Service de "Physique du Solide et Résonance Magnétique" qui m'a proposé cette étude et m'a accordé toutes les facilités pour la poursuivre.

Monsieur le Professeur BARBIER, Monsieur G. AUBERT, Maître de Conférences et Monsieur P. LUCASSON, Maître de recherches au C.N.R.S. qui s'est toujours intéressé de très près aux résultats de notre laboratoire, ont bien voulu faire partie du jury. Je les en remercie vivement.

Je remercie tout spécialement Madame C. MINIER pour le grand intérêt qu'elle a témoigné pendant toute la durée de ce travail ainsi que pour ses judicieux conseils. Sa compétence m'a été d'une aide précieuse pour la discussion des résultats.

Mon initiation à la recherche a été facilitée aussi par Monsieur P. MOSER à qui j'exprime bien sincèrement mes remerciements. Par sa compétence et ses nombreux conseils il fut un guide précieux lors de la réalisation de ce travail.

J'adresse tous mes remerciements à Monsieur H. BILGER pour les fructueuses et amicales discussions que nous avons eues.

Je dois à Monsieur P. LEMERCIER la réalisation d'une régulation électronique, je le remercie.

Je tiens à remercier le personnel des Sections des "Basses Températures" et des "Accélérateurs" pour leur collaboration efficace.

Je remercie également le personnel du secrétariat de Physique du Solide et Résonance Magnétique, en particulier Madame S. LAFON et Mademoiselle A.M. MUNDA, ainsi que le personnel du Pool dactylographique et de l'Imprimerie.

Enfin, que tous mes amis et le personnel de Physique du Solide et Résonance Magnétique, en particulier Monsieur G. BAUDRAND, Monsieur G. GARNIER et Monsieur F. VANONI, trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance pour leur aide efficace et sympathique.

## TABLE DES MATIERES

### INTRODUCTION

#### Chapitre I -- DONNEES BIBLIOGRAPHIQUES SUR LES PHENOMENES D'IRRADIATION DANS LE FER, LE NICKEL ET LE COBALT

##### I.1 - Création de défauts

I.1.1 Modèle isotrope

I.1.2 Modèle anisotrope

##### I.2 - Résistivité d'un défaut

##### I.3 - Annihilation des défauts

I.3.1 Différents modèles d'interprétation

I.3.2 Données particulières sur les métaux à structure hexagonale compacte

I.3.2.1 Rappel de certaines propriétés cristallographiques

I.3.2.2 Cas particulier d'annihilation des défauts

I.3.3 Etat actuel des travaux sur le cobalt

#### Chapitre II -- TECHNIQUES EXPERIMENTALES

##### II.1 - Préparation des échantillons

II.1.1 Purification

II.1.2 Mise en forme

##### II.2 - Technique de bombardement électronique

##### II.3 - Technique de recuit

II.3.1 Recuit isochrone

II.3.2 Recuit linéaire

##### II.4 - Mesures de résistivité

II.4.1 Recuit isochrone

II.4.2 Recuit linéaire

##### II.5 - Régulation électronique

## Chapitre III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

### III.1 - Mesures de résistivité

#### III.1.1 Modes d'étude utilisés

- a) montée linéaire
- b) recuit isochrone
- c) recuit isotherme

#### III.1.2 Résultats

##### III.1.2.1 Bombardement électronique

- a) étude de l'accroissement de résistivité en fonction de la dose d'irradiation
- b) restauration de la résistivité au cours d'un traitement isochrone
- c) effets de la dose d'irradiation
- d) restauration de la résistivité au cours d'un traitement isotherme
- e) effet de l'énergie des particules incidentes
- f) restauration de la résistivité au cours d'une montée linéaire en température

##### III.1.2.2 Bombardement neutronique

### III.2 - Mesure de l'énergie libérée

## Chapitre IV - DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

### IV.1 - Création de défauts-résistivité d'une paire de Frenkel

### IV.2 - Guérison des défauts

#### IV.2.1 Similitude des résultats relatifs au fer, nickel, cobalt

#### IV.2.2 Différences entre les résultats relatifs au fer, nickel, cobalt

#### IV.2.3 Confrontation des résultats expérimentaux avec différents modèles

##### IV.2.3.1 Sous-stades $I_B, I_C$

##### IV.2.3.2 Sous-stade $I_D$

##### IV.2.3.3 Sous-stades $I_E, II_A$

- a) comparaison avec le modèle à deux interstitiels
- b) comparaison avec le modèle proposé dans notre laboratoire pour le fer et le nickel
- c) modèle spécifique du cobalt

#### IV.3.4 Sous-stades $II_B, II_C$

#### IV.3.5 Stade III

## CONCLUSION

## INTRODUCTION

De nombreux auteurs ont étudié les propriétés des métaux après irradiation et leur revenu au cours d'un traitement thermique ultérieur. En particulier, ils ont montré que la résistivité résiduelle d'un métal augmente après bombardement par des particules énergétiques. La restauration de la résistivité initiale a lieu en général au cours de cinq stades distincts lors d'un traitement thermique isochrone.

Certaines études comparatives entre métaux ont été effectuées. Dans de nombreux cas, on peut relier la température du milieu des stades aux températures de fusion  $T_f$  des métaux. Ceci semble généralement vérifié pour les stades III, IV et V situés à environ 0,22  $T_f$ , 0,3  $T_f$  et 0,5  $T_f$ <sup>(1)</sup>. Le stade I cependant ne suit pas cette règle. Aussi certains auteurs<sup>(2)</sup>, après s'être aperçus de la grande similitude existant entre les stades I du revenu de la résistivité du cuivre et de différents métaux, ont-ils trouvé une corrélation entre la température correspondant à 50 % du revenu de la résistivité et certaines constantes physiques. Un modèle unique de guérison pourrait convenir pour différents métaux tels que : Ag, Al, Cu, Ni, Mo, Fe.

D'autres auteurs ont imaginé qu'il devait exister un modèle spécifique de guérison, sinon pour chaque métal, du moins pour chaque structure<sup>(3)</sup>.

Dans le but de tester la validité de ces différentes idées, le laboratoire de Physique du Solide du CEN-G s'est proposé d'étudier différents métaux ayant en commun un caractère fondamental. Afin d'obtenir des renseignements plus fructueux, plusieurs méthodes d'observation complémentaires ont été utilisées pour chaque métal. Le tableau I ci-dessous donne le programme d'étude et les travaux effectués.

Le tableau 2 présente quelques caractéristiques de ces trois métaux ferromagnétiques. On remarque qu'ils ont certaines propriétés physiques très voisines.

Ces métaux sont de structure cristallographique différente. Dans ce travail, nous nous proposons de comparer le comportement des trois métaux sous irradiation, puis nous étudierons l'annihilation des défauts ponctuels créés dans le cobalt et nous montrerons qu'il existe une grande analogie avec celles du fer et du nickel : la structure cristalline n'apporterait que quelques corrections à un mode d'annihilation unique.

	Fer	Nickel	Cobalt
Résistivité	C. MINIER [4]	J. L. ODDOU [9]	G. SULPICE
Trainage	P. MOSER [5]	P. PERETTO [10]	Expériences préliminaires P. VIGIER [13] J. VERDONE [38]
Energie stockée	E. BONJOUR [6] P. MOSER		E. BONJOUR G. SULPICE
Frottement interne	D. DAUTREPPE V. HIVERT [7]	G. de KEATING-HART [11]	
Effet d'impureté	C. MINIER [4] P. VIGIER [8] V. HIVERT [7]	J. L. ODDOU [12]	

TABLEAU 1

	Structure	M	Z	a(Å)	Tf(°C)	L <sub>s</sub> kcal/mole	ρ <sub>20°C</sub> μΩ.cm	θ <sub>D</sub> (°K)	γ.V
F <sub>e</sub>	CCC	56	26	2,48	1540	94	9,7	467	11
N <sub>i</sub>	CFC	59	28	2,49	1455	85	6,8	456	13
C <sub>o</sub>	HC	59	27	2,50	1495	85	6,2	440	12

TABLEAU 2

- M = masse atomique  
 a = distance entre plus proches voisins  
 Tf = température de fusion  
 L<sub>s</sub> = chaleur de sublimation  
 ρ<sub>20°C</sub> = résistivité à l'ambiante  
 θ<sub>D</sub> = température de Debye  
 γ.V = constante de GRÜNEISEN, volume atomique

## CHAPITRE I

 DONNEES BIBLIOGRAPHIQUES SUR LES PHENOMENES  
 D'IRRADIATION DANS LE FER, LE NICKEL ET LE COBALT

## I.1 - CREATION DE DEFANTS

## I.1.1 - Modèle isotrope

Dans un modèle isotrope G.H. KINCHIN et R.S. PEASE [14] envisagent les effets d'une particule animée d'une énergie cinétique E qui frappe un atome occupant un site normal du réseau. Si l'énergie E est inférieure à un certain seuil E<sub>d</sub> l'atome se déplace quelque peu puis revient à sa position d'équilibre. Au contraire, si l'énergie E est supérieure à E<sub>d</sub>, l'atome est éjecté de sa position normale, ce qui forme une lacune et un interstitiel.

Pour le fer et le nickel, P.G. LUCASSON et R.M. WALKER [15] ont déterminé une énergie seuil identique de l'ordre de 24 eV. A notre connaissance, la valeur particulière du cobalt n'est pas déterminée. Nous sommes conduits à émettre l'hypothèse que les énergies seuil moyennes pour les trois métaux sont du même ordre de grandeur en première approximation, les valeurs de la masse atomique du numéro atomique et du facteur de remplissage du cobalt étant tout à fait comparables à celles du nickel.

On sait, de plus, que pour un électron incident d'énergie E et de masse m au repos, l'énergie maximum T<sub>m</sub> transmise à un atome de masse M est  $T_m = \frac{2}{Mc^2} (E + 2mc^2) E$ . Par exemple, pour un électron d'énergie E = 3 MeV, T<sub>m</sub> sera dans l'ordre de 430 eV dans les trois métaux. Dans ce domaine, l'énergie moyenne des primaires (premiers atomes choqués) est  $\bar{E}_p = E_d \log \frac{T_m}{E_d}$ . On peut ainsi calculer le nombre moyen ( $\bar{n}$ ) d'atomes déplacés par un primaire

$$\bar{n} = \frac{\bar{E}_p}{2E_d}$$

Connaissant en plus la section efficace totale de déplacement σ<sub>d</sub> on peut en déduire théoriquement la concentration de paires de Frenkel créées par un flux intégré Φ de particules C<sub>PF</sub> = Φ σ<sub>d</sub>  $\bar{n}$ .

Le tableau 3 montre une grande analogie entre ces trois métaux voisins dans la classification de MENDELEIEFF vis à vis des phénomènes d'irradiation.

Dans l'hypothèse du modèle isotrope, nous pouvons ainsi nous attendre à observer un comportement identique de ces trois métaux.

	Fer	Nickel	Cobalt
$\bar{n}$	1,45	1,4	1,4
$\sigma_d$	68	72	70
$\phi$	$10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ de 3 MeV	$10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ de 3 MeV	$10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ de 3 MeV
$C_{PF}$	98 $10^{-6}$	102 $10^{-6}$	98 $10^{-6}$

TABLEAU 3 [16]

## I.1.2 - Modèle anisotrope

C. ERGINSOY [17] dans un modèle plus élaboré a montré que  $E_d$  variait en fonction de la direction de la particule incidente au moment de l'impact.

Dans le cadre du fer (C. C. C.)

$$E_d = 17 \text{ eV pour la direction } \langle 100 \rangle$$

$$E_d = 34 \text{ eV pour la direction } \langle 110 \rangle$$

$$E_d = 38 \text{ eV pour la direction } \langle 111 \rangle$$

A partir d'un modèle semblable, J.B. GIBSON [18] a déterminé les énergies seuil pour le cuivre (C. F. C.)

$$E_d = 25 \text{ eV pour la direction } \langle 100 \rangle$$

$$E_d = 25 \text{ à } 30 \text{ eV pour la direction } \langle 110 \rangle$$

$$E_d = 85 \text{ eV pour la direction } \langle 111 \rangle$$

Ces valeurs doivent être du même ordre de grandeur pour le nickel de structure identique.

Ces calculs montrent une influence extrêmement grande de la structure cristalline sur les énergies seuil de création et ainsi sur les concentrations de défauts créés. Or, les valeurs des concentrations de défauts créés dans le fer et le nickel donnés dans le tableau 3 sont cohérentes avec les résultats expérimentaux obtenus dans notre laboratoire au sujet de ces deux métaux.

Aussi nous proposerons-nous de répéter sur le cobalt des mesures identiques d'énergie libérée et de résistivité pour déterminer si la structure hexagonale du cobalt conduit à des concentrations de défauts analogues, ou au contraire nettement différentes des autres structures.

## I.2 - RESISTIVITE D'UN DEFAUT

R. WRUCK et C. WERT [19] ont observé après un même bombardement à 120°K par des deutérons de 12 MeV que l'accroissement de la résistivité du cobalt était moins impor-

tant que celui du fer mais plus important que celui du nickel. P. LUCASSON et R.M. WALKER [1, 2] ont déterminé la valeur de la résistivité pour 1 % de paires de Frenkel  $\Delta \rho_F$  pour différents métaux, et se sont aperçus que  $\Delta \rho_F \approx \rho_{0^\circ\text{C}}$  (où  $\rho_0$  est la résistivité à 0°C) pour la plupart des métaux, le fer et le nickel diffèrent légèrement de ces valeurs. Ces auteurs donnent  $\Delta \rho$  pour 1 % de paires de Frenkel = 12,5  $\mu\Omega \cdot \text{cm}$  pour le fer et 3,2  $\mu\Omega \cdot \text{cm}$  pour le nickel.

La résistivité d'une paire de Frenkel n'est pas connue dans le cobalt. Les mesures proposées au paragraphe précédent doivent nous permettre de connaître sa valeur approximative.

Cependant, en considérant la loi empirique  $\Delta \rho_F \approx \rho_{0^\circ\text{C}}$  [2] nous devons trouver 3  $\mu\Omega \cdot \text{cm} < \Delta \rho_F < 8 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ . Nous discuterons cette valeur à la lumière de nos résultats.

## I.3 - ANNIHILATION DES DEFANTS

## I.3.1 - Différents modèles d'interprétation

L'interprétation de l'annihilation des défauts a fait l'objet de nombreuses publications. Certaines écoles représentées par G.J. MEECHAN, A. SOSIN, J.A. BRINKMAN [20] ou A. SEEGER [3] s'appuyant sur des études effectuées sur des métaux à structure cubique face centrée (Al-Cu-Ni) affirment que l'interstitiel libre migre au niveau du stade III. Au niveau du stade  $I_E$  un interstitiel métastable pourrait dans certaines conditions se convertir en interstitiel stable [21] ce qui nécessiterait une énergie d'environ 0,7 eV pour sa migration libre, seulement possible au niveau du stade III.

Dans le cuivre, R.M. WALKER [22] attribue la migration de l'interstitiel libre au sous-stade  $I_E$ .

Par la suite, en employant différentes méthodes complémentaires comme nous l'avons vu précédemment un modèle convenant au fer et au nickel a été proposé par notre laboratoire [5], [10], [9]. Les sous-stades  $I_A$ ,  $I_B$ ,  $I_C$ ,  $I_D$  correspondent à l'annihilation des paires proches, points sur lesquels les différentes interprétations concordent. Au sous-stade  $I_E$  une importante zone de traînage magnétique est associée révélant l'existence d'un défaut susceptible de se réorienter et de s'annihiler au bout d'une centaine de sauts; ce défaut est identifié à l'interstitiel libre.

Les complexes d'interstitiels se guérissent au stade II. Au stade III correspond la migration des bilacunes et au stade IV celle des lacunes.

## I.3.2 - Données particulières sur les métaux à structure hexagonale compacte [23].

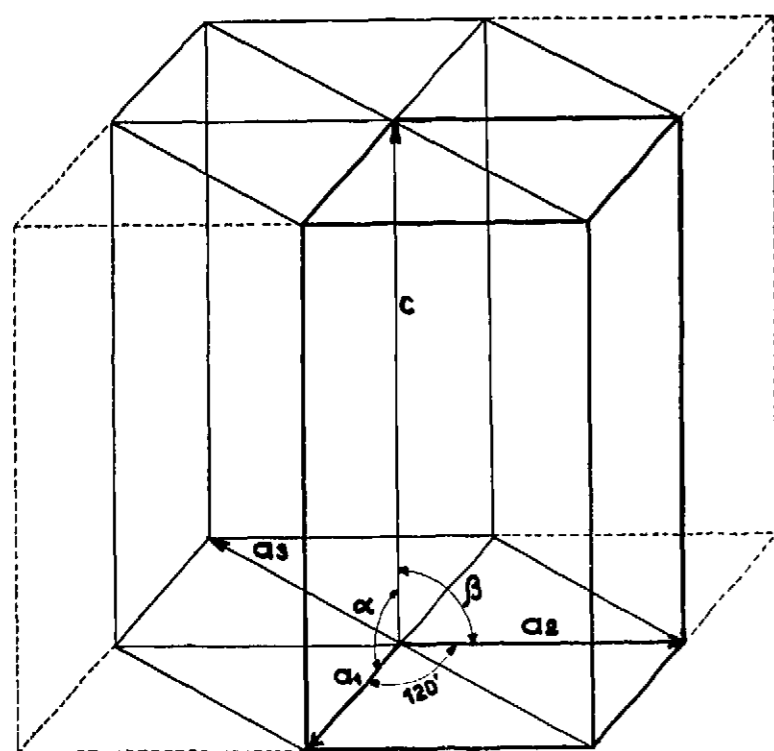
## I.3.2.1 - Rappel de certaines propriétés cristallographiques

La cellule primitive d'une structure hexagonale compacte est définie par les vecteurs de base  $|\vec{a}_1| = |\vec{a}_2| \neq |\vec{c}|$  et les angles  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ,  $\gamma = 120^\circ$  (figure 1.a). Cette cellule contient 2 atomes.

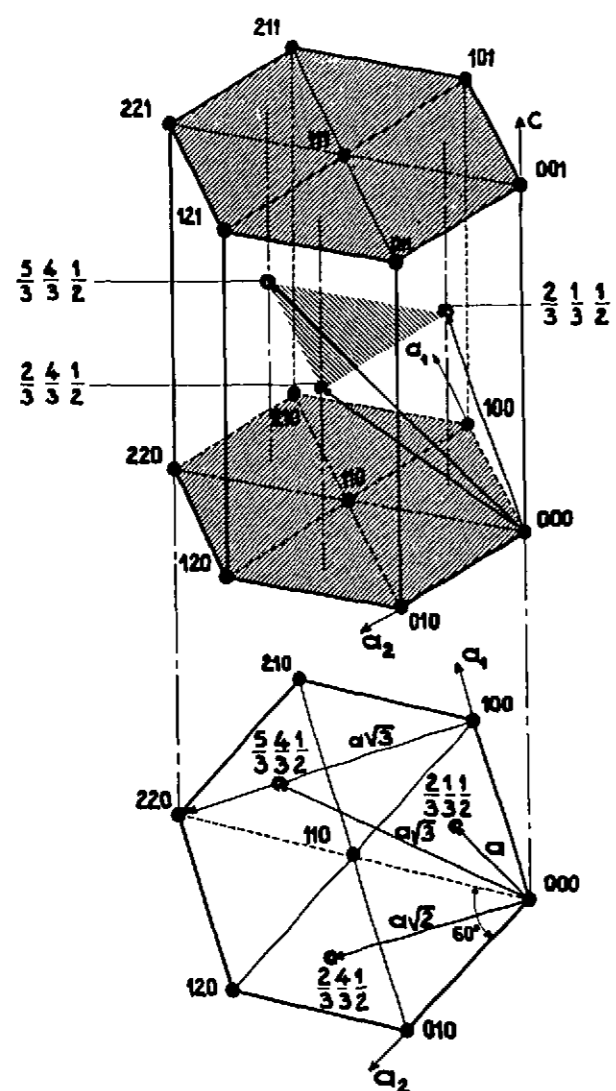
La position des atomes est indiquée sur la figure 1.b. Les atomes sont situés aux noeuds du réseau et aux coordonnées  $(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{2})$ . La valeur théorique de  $\frac{c}{a}$  avec le modèle des sphères dures est de  $\frac{c}{a} = \sqrt{\frac{8}{3}} = 1,633$ . Parmi les douze premiers voisins, six se trouvent dans le plan de base le long des six directions  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ , les six autres se trouvent le long de six des douzes directions  $\langle 20\bar{2}3 \rangle$  à une distance de

$$\frac{a}{2\sqrt{3}} \sqrt{4 + 3\left(\frac{c}{a}\right)^2}$$





A



B

Figure 1 : a) prisme hexagonal  
b) position des atomes dans une structure hexagonale compacte

Les seconds voisins seront dans les six directions  $\langle 40\bar{4}3 \rangle$  à une distance de

$$\frac{a}{2\sqrt{3}} \sqrt{16+3\left(\frac{c}{a}\right)^2}$$

c'est-à-dire les atomes en position  $\left(\frac{2}{3}, \frac{4}{3}, \frac{1}{2}\right)$ .

En ce qui concerne le cobalt  $\frac{c}{a} = 1,623$  à  $20^\circ\text{C}$ . Les atomes situés en-dessus et en dessous du plan de base  $\left(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{2}\right)$  sont légèrement plus proches voisins ( $d = 0,9918 \cdot a$ ) que les six atomes situés dans le plan de base ( $d=a$ ).

Pour la structure idéale ( $\frac{c}{a} = 1,633$ ) les interstitiels peuvent se placer dans les sites octaédriques qui sont entourés par des atomes arrangés sur un octaèdre régulier. Ces sites ont pour coordonnées  $\left(\frac{1}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{4}\right)$  ;  $\left(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{3}{4}\right)$ , le long d'une direction  $\frac{1}{12} (0\bar{4}43)$  à  $\frac{a}{12}$  de l'origine. On trouve aussi 4 sites tétraédriques par cellule aux coordonnées  $\left(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{8}\right)$  ;  $\frac{2}{3} \sqrt{2} \frac{1}{8} \frac{7}{4}$  ;  $00\frac{3}{8}$  ;  $00\frac{5}{8}$ . (figure 2). Il est également possible d'envisager plusieurs possibilités d'interstitiels dédoublés.

En prenant le modèle des sphères dures de rayon  $r$  en contact, les sites octaédriques et tétraédriques ont respectivement  $0,41 r$  et  $0,22 r$  de rayon. Les facteurs de remplissage maximum sont identiques pour les structures cubiques faces centrées et hexagonales compactes ( $0,74$ ) tandis que la valeur maximale pour un cubique corps centré est de  $0,68$ .

### I.3.2.2 - Cas particulier d'annihilation des défauts

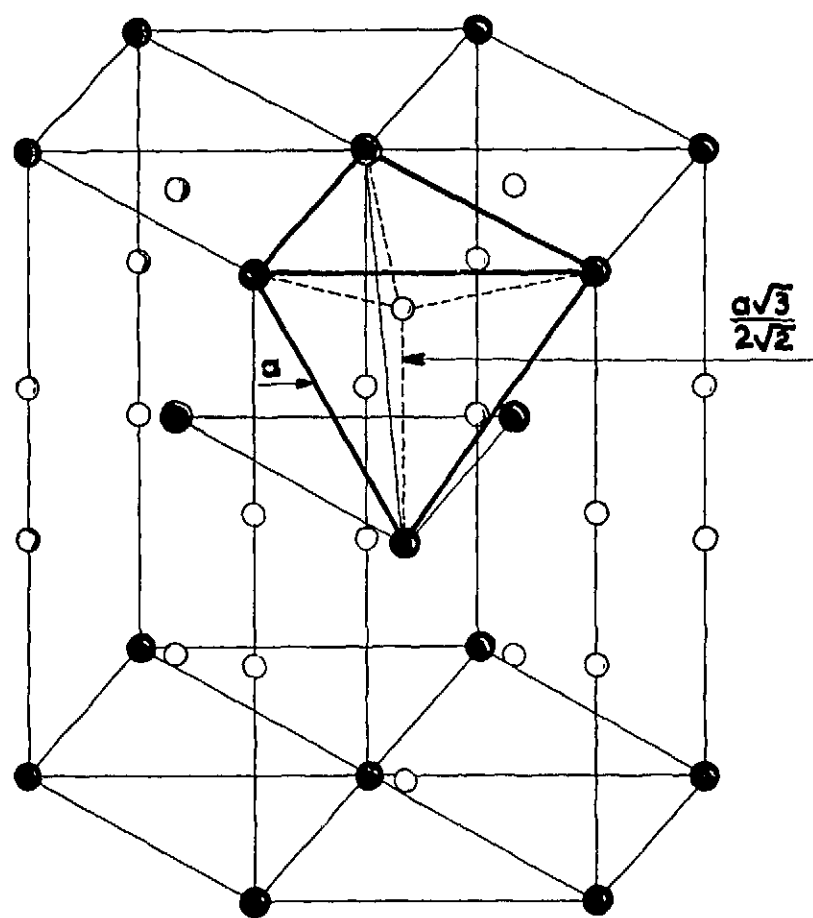
A. LUCASSON et P. LUCASSON [1] proposent une relation dans certains métaux non cubiques, entre le stade de guérison des paires de Frenkel et les propriétés élastiques du cristal.

Une étude du coefficient de dilatation linéaire à basse température d'un monocristal de zinc (H.C.) [24] a montré que le coefficient de dilatation linéaire  $\alpha_{\perp}$  mesuré perpendiculairement à l'axe C devient négatif en-dessous de  $70^\circ\text{K}$ , (figure 3). Cette valeur négative résulterait d'une anisotropie des constantes élastiques. Le module d'élasticité  $S_{33}$  ( $\parallel$  à l'axe C) est beaucoup plus grand que  $S_{11}$  ( $\perp$  à l'axe C) ceci provenant de la valeur importante du rapport  $\frac{c}{a} = 1,86$ . Le revenu du stade I du zinc après irradiation aux électrons observé par P. LUCASSON [1] entre  $10^\circ\text{K}$  et  $35^\circ\text{K}$  correspond à l'intervalle de température où le coefficient de dilatation linéaire du zinc  $\alpha_{\perp}$  présente cette anomalie.

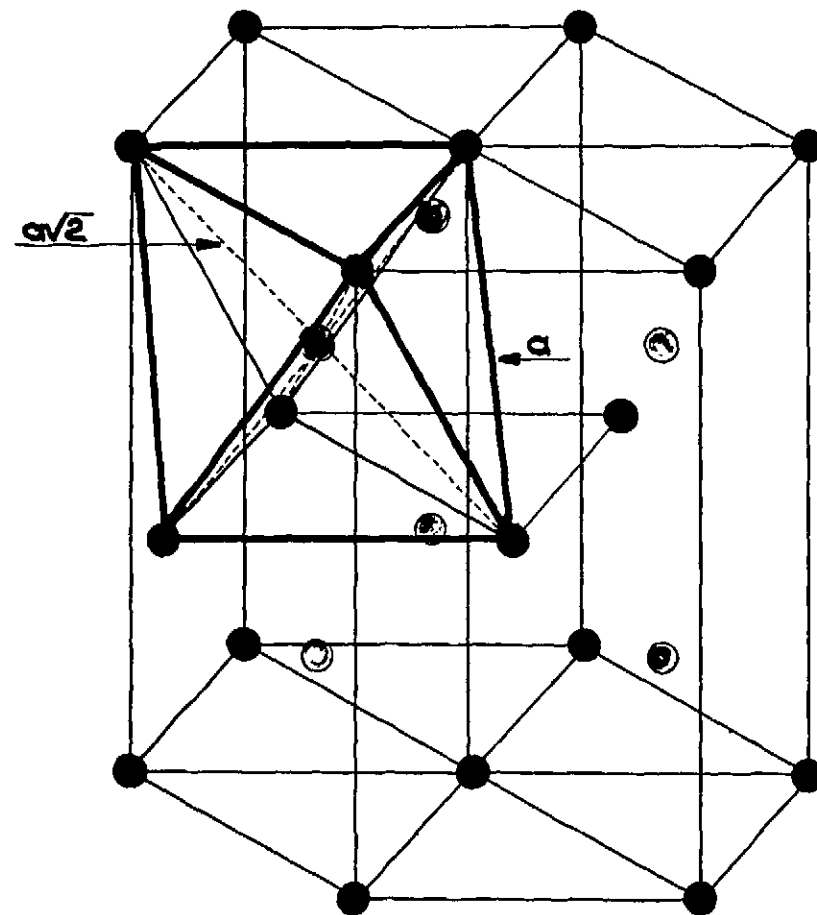
Dans cet intervalle de température, les vibrations d'atomes dans la direction de l'axe C sont généralement de plus basses fréquences et, lorsque le solide s'échauffe, ces mouvements se produisent les premiers. Le long de l'axe C a lieu une rapide croissance du cristal accompagnée d'une contraction dans la direction perpendiculaire à l'axe C. Selon les auteurs, une telle propriété pourrait alors favoriser le mouvement des interstitiels soit dans les plans, soit entre les plans de base et accroître l'interaction élastique existant entre les paires de Frenkel dans ces plans car les distances interatomiques sont plus petites.

Dans le cas du cadmium (H.C.)  $\frac{c}{a} = 1,89$   $\alpha_{\perp}$  présente une anomalie identique, et d'après les études de R. COLTMAN [42] après irradiation, la même analogie peut être faite. Par contre, pour le magnésium ( $\frac{c}{a} = 1,623$ ) et le béryllium ( $\frac{c}{a} = 1,523$ ) tous deux aussi de structure hexagonale compacte, aucune valeur négative pour  $\alpha_{\perp}$  n'a été remarquée.

Il serait intéressant de connaître les valeurs de  $\alpha_{\perp}$  à basse température pour le cobalt, malheureusement, à notre connaissance, aucune étude n'a été faite sur des monocristaux. Cependant, le rapport  $\frac{c}{a}$  étant très proche du rapport idéal  $1,633$ , les valeurs  $S_{11}$  et  $S_{33}$  étant

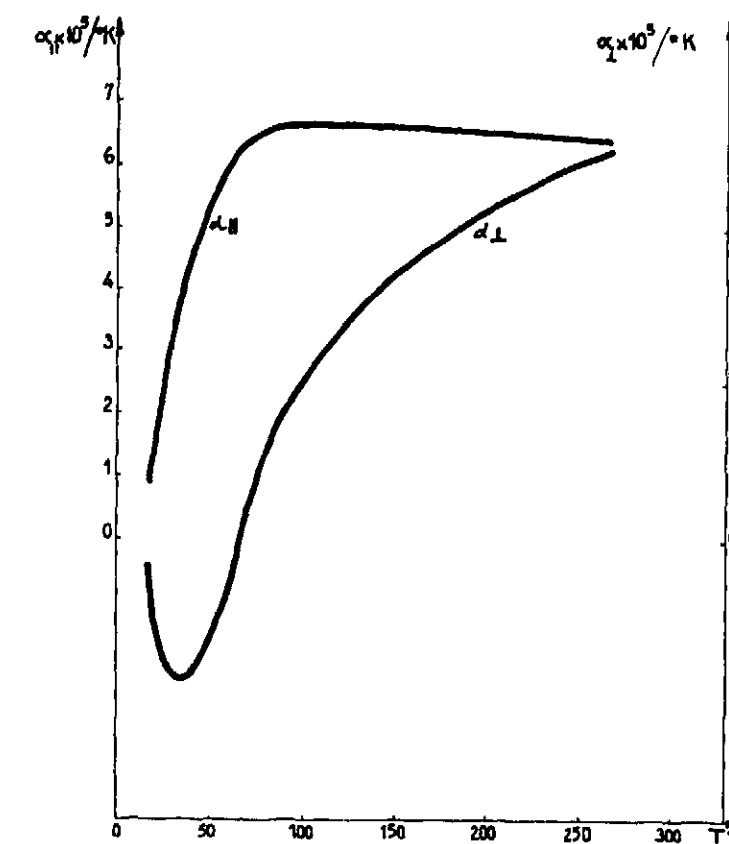


A



B

Figure 2 : Sites d'interstitiels  
 a) sites tétraédriques 0  
 b) sites octaédriques 0



- Figure 3 -

Variation en fonction de la température des coefficients de dilatation linéaire d'un monocristal de zinc :  $\alpha_{\parallel}$  et  $\alpha_{\perp}$  (d'après D.A. CHANNING [24])

en plus très voisines, l'analogie pourrait ne pas être valable pour le cobalt.

### 1.3.3 - Etat actuel des travaux sur le cobalt

En nous inspirant d'un travail déjà effectué par H. BILGER [26] nous résumerons dans le tableau 4 les différentes études effectuées sur les défauts ponctuels dans le cobalt.

Comme on peut le voir, un désaccord existe entre les différents auteurs.

H. BILGER a essayé d'interpréter le spectre de guérison du cobalt en fonction du modèle établi par A. SEEGER pour les métaux à structure C.F.C. en comparant ses travaux avec ceux des autres auteurs. Il pense ainsi qu'au stade II se guérissent les paires de Frenkel éloignées, au stade III, l'interstitiel libre, puis les bilacunes, et au stade IV les lacunes.

Ces auteurs ont surtout utilisé la déformation à froid ou l'irradiation à température supérieure à celle du stade I du revenu de la résistivité (R. COLTMAN [25] excepté) pour la création des défauts ponctuels. Leurs résultats sont donc limités et il leur est en particulier très difficile sinon impossible d'étudier le stade I.

Nous nous efforcerons donc d'apporter une contribution à l'étude des défauts ponctuels dans le cobalt, et si possible d'adapter un modèle aux résultats observés. Nous étudierons les défauts dans le cobalt après bombardement électronique principalement. Deux techniques seront employées : mesure de résistivité et mesure de l'énergie libérée.

ETUDES EFFECTUEES SUR LE COBALT									
Mode de création des défauts ponctuels	Moyen d'étude	STADE I		STADE II		STADE III		STADE IV	
		Résultats expérimentaux	Interprétation	Résultats expérimentaux	Interprétation	Résultats expérimentaux	Interprétation	Résultats expérimentaux	Interprétation
Bombardement par neutrons thermiques à 4°K [25]	Résistivité	15°K 32°K 44°K 52°K	Migration interstitiels libres	Nombreux sous-stades		Non étudié		Non étudié	
Bombardement par deutérons de 12 MeV à 120°K [19]	Résistivité			150°K 280°K	Défauts intrinsèques			Non étudié	
Bombardement par neutrons rapides > 1 MeV à 28°K [13]	Trainage magnétique	45°K à 65°K $E_r = E_m \neq 0,1 \text{ eV}$						Non étudié	
Déformation à 90°K [27]	Résistivité			90°K à 110°K 230°K	Migration de lacunes				
Déformation à 90°K [28]	Résistivité			150°K à 310°K Cinétique $\neq 1$ $E_{act.} \begin{cases} 0,46\text{eV} \\ 0,68\text{eV} \\ 0,84\text{eV} \end{cases}$				400°K à 600°K Cinétique = 2 $E \approx 1,03 \text{ eV}$	
Déformation à 150°K [29]	Trainage magnétique			130°K à 300°K		305°K à 320°K $E \approx 1\text{eV}$ Cinétique = 1			
Déformation à 4°K [26]	Résistivité	4°K à 15°K 45°K à 50°K		160°K 200°K à 240°K 280°K	Paires de Frenkel éloignées	300°K à 350°K	Interstitiels libres + bilacunes	400°K à 550°K	lacunes

TABLEAU 4

## CHAPITRE II

### TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Dans ce chapitre, nous décrivons la partie technologique de notre travail.

Nous montrerons comment certaines difficultés expérimentales furent résolues, en particulier l'élaboration et la mise en forme des échantillons de cobalt qui n'est pas malléable à température ambiante. Les phénomènes physiques observés étaient environ dix fois moins importants que ceux observés habituellement dans le laboratoire, nous avons été conduits à modifier la technique des mesures et à repenser la qualité des traitements thermiques.

#### II.1 - PREPARATION DES ECHANTILLONS

##### II.1.1 - Purification

Les quantités de défauts ponctuels introduites dans les échantillons par irradiation ne dépassent pas 0,017 %. Ces défauts créent une forte perturbation locale du réseau cristallin et de ce fait vont interagir fortement avec tout autre défaut ponctuel. La présence d'impuretés peut modifier les valeurs des accroissements de résistivité pour une irradiation donnée [ 9 ], la position des stades de revenu de la résistivité [ 4 ] et le nombre et l'amplitude des bandes de traînage magnétique [ 5 ] [ 8 ].

Pour avoir négligé cette précaution, certains chercheurs ont attribué a des défauts intrinsèques des phénomènes qui résultaient d'interaction défauts-impuretés.

Il était donc nécessaire de disposer d'échantillons de la plus grande pureté puisque nous nous intéressions uniquement dans cette étude aux stades intrinsèques du cobalt.

Dans ce but, M. F. VANONI, du laboratoire de Physique du Solide a préparé du cobalt très pur par la technique de la zone fondue. Il utilise du cobalt en poudre d'origine LIGHTS dont la teneur en principales impuretés métalliques est indiquée dans le tableau 5 .

Il le purifie en 30 passes de fusion de zone par haute fréquence à raison de 2 cm/heure, sous atmosphère d'hydrogène ou d'hélium.

Par ce traitement, les impuretés métalliques telles que : argent, magnésium, silicium sont éliminées par migration en tête du barreau. Au contraire, le platine, le tungstène se retrouvent en queue du barreau par le phénomène inverse [ 30 ]. Les impuretés telles que le carbone, l'azote et l'oxygène sont éliminées par évaporation et combinaison avec l'hydrogène.

COBALT 5 N 99,999	
Impuretés	Concentration en ppm poids
Ca	-
Si	1
Cu	< 1
Na	-
Fe	2
Ag	< 1
Mg	< 1
Ni	2

### II.1.2 - Mise en forme

La mise en forme posait un grave problème. Il est difficile d'obtenir des fils de cobalt de haute pureté car la structure hexagonale compacte rend ce métal peu malléable et le tréfilage à température ambiante est impossible. Un tréfilage à chaud au-dessus de 415°C, où le cobalt est en phase C.F.C. donc plus malléable, pollue irrémédiablement le métal de haute pureté.

Il a donc été nécessaire d'envisager une autre solution. Nous préparons des éprouvettes de 18 mm x 1 mm x 0,5 mm en découpant le lingot par électroérosion, puis les échantillons sont amincis à 0,1 mm par polissage mécanique. Nettoyés superficiellement au moyen d'ultra-sons, ces échantillons subissent ensuite un traitement à 950°C sous atmosphère d'hydrogène pendant 24 h. (refroidissement en 20 h).

Il eut été intéressant d'analyser nos échantillons après ces divers traitements pour observer une pollution éventuelle, malheureusement une telle analyse très délicate pour le cobalt n'a pas encore été entreprise. Cependant, ce cobalt doit être de très grande pureté puisque le rapport des résistivités mesurées à l'ambiante et à l'hydrogène liquide est élevé

$A = \frac{\rho_{293^{\circ}\text{K}}}{\rho_{20^{\circ}\text{K}}} = 120$ . Après un traitement thermique identique sous ultra-vide ( $10^{-9}$  Torr) nous avons obtenu  $A = 60$ . Avec du cobalt JOHNSON-MATTEY, ROSENBERG H.M. [31]a obtenu  $A = 30$ .

### II.2 - TECHNIQUE DE BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE

Les électrons sont produits par l'accélérateur Van de Graaf de 3 MeV du CEN-G et les irradiations s'effectuent dans le cryostat à hydrogène conçu par la Section "Physico-Chimie Basses Températures" [32].

Les échantillons placés entre deux fines plaques de mica (30 microns) sont fixés sur un cadre en acier inoxydable surmonté par un tube dans lequel passent les fils de mesure et

le thermocouple. Afin d'irradier simultanément 3 échantillons (étude en fonction de l'énergie ou de la dose d'électrons) nous avons employé le porte échantillon utilisé par J.L. ODDOU et décrit dans sa thèse [9]. Par la suite, afin de réduire la consommation d'hydrogène liquide durant les irradiations, nous avons évidé toute la partie inférieure du dispositif située dans le faisceau électronique permettant aussi de porter à cinq le nombre d'échantillons à bombarder sans aucun risque de caléfaction (fig. 4). Lors de l'irradiation, la température des échantillons s'élève de 1° à 2° au-dessus de la température de l'hydrogène liquide. Le flux de particules traversant l'échantillon est évalué à partir de la mesure du courant d'électrons recueillis par la paroi interne du cryostat supportant le porte-échantillon et isolée électriquement de la masse. Les flux les plus importants obtenus pour des durées d'irradiations de 18 h sont de l'ordre de  $1,5 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ .

### II.3 - TECHNIQUES DE RECUIT

#### II.3.1 - Recuit isochrone

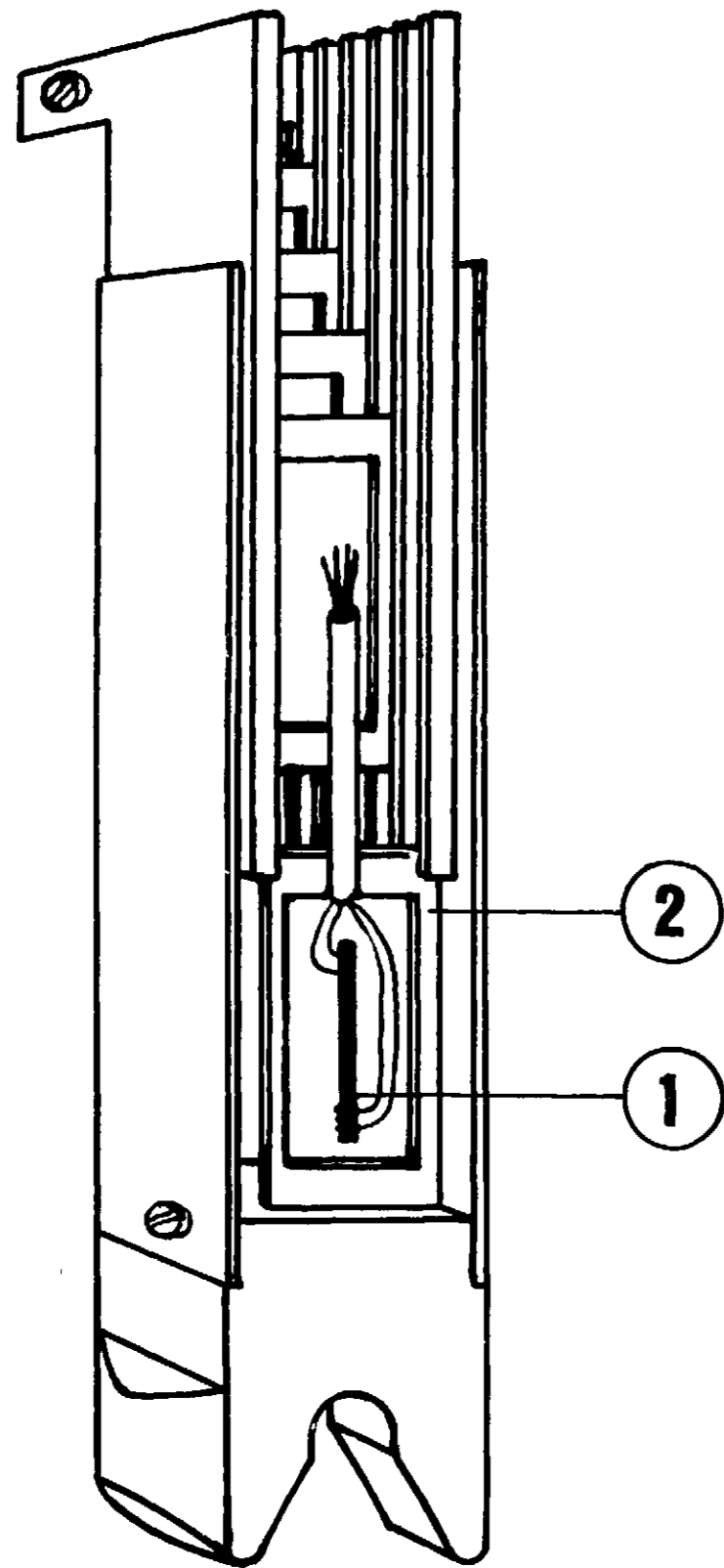
Tout d'abord nous avons effectué des traitements isochrones. Comme des différences très faibles entre des effets d'irradiation devaient être mises en évidence, il a été nécessaire d'améliorer les performances de l'appareillage. Le problème principal est celui de l'homogénéité de la température de l'échantillon durant les recuits. Nous nous sommes inspirés des techniques utilisées en calorimétrie pour réaliser le four (fig. 5).

L'échantillon est placé dans deux fours concentriques au-dessus de l'hydrogène liquide. Il est donc séparé de l'atmosphère gazeuse turbulente par un premier écran régulé grossièrement à environ 5° en-dessous de la température désirée, puis le deuxième four permet, par l'intermédiaire d'une régulation que nous décrirons plus loin, de porter l'échantillon à la température désirée. Le rôle de l'écran est de réaliser un volume isotherme dans lequel ne se produit ni convection ni rayonnement important vers l'échantillon. L'homogénéité de la température est bonne et au niveau de l'échantillon le gradient de température est inférieur à 1/10°.

#### II.3.2 - Recuit linéaire

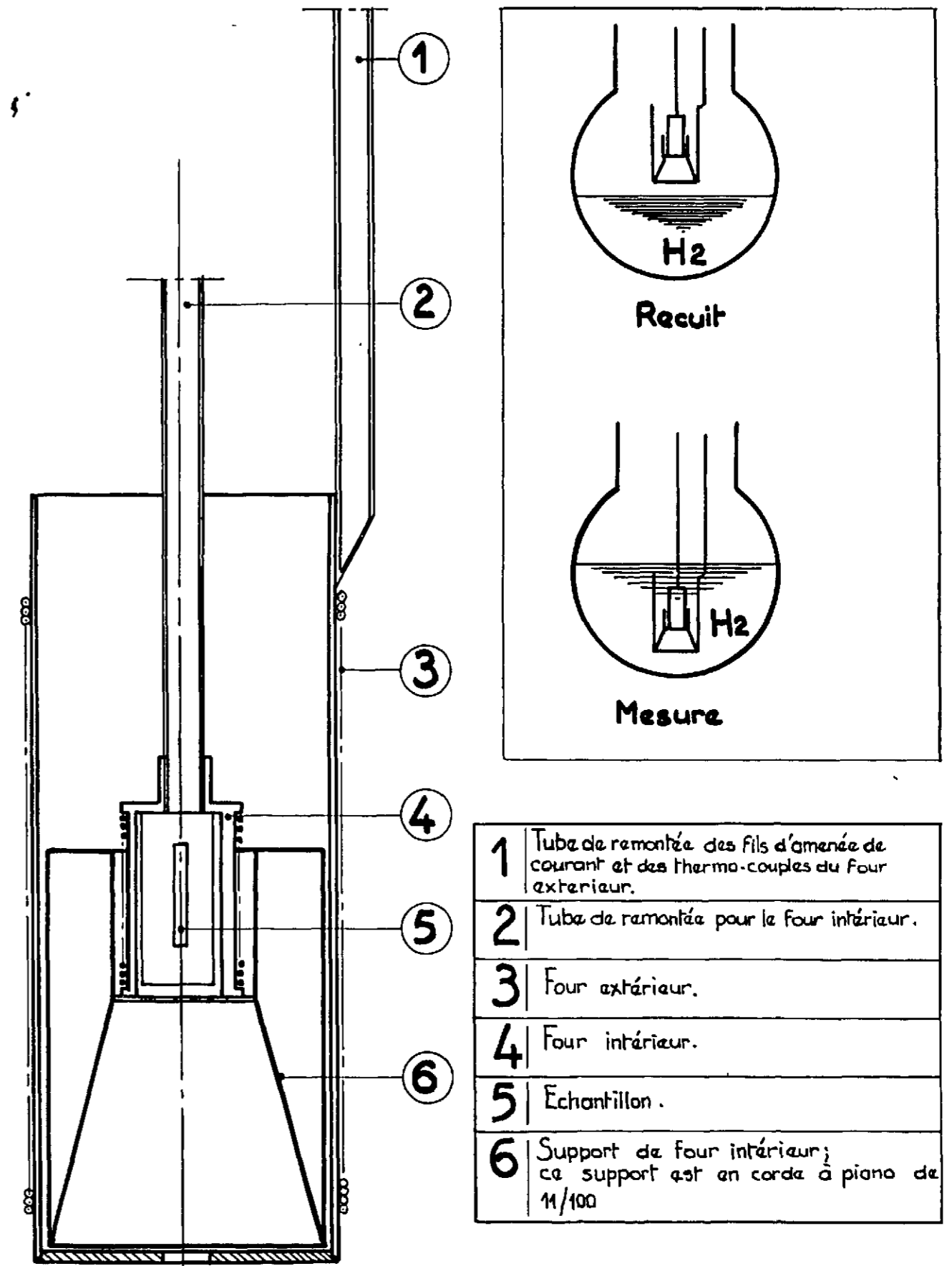
Cependant, parallèlement à ce type de recuit isochrone, nous avons effectué des recuits avec élévation linéaire de la température. Le recuit isochrone est extrêmement brutal puisqu'il est accompagné d'un grand nombre de trempes. Dans le cas du cobalt polycristallin fortement anisotrope, on redoute un fort écrouissage aux joints de grain à cause du caractère uniaxial du cobalt. Certaines expériences [34] ont montré qu'un écrouissage survenant après irradiation entraîne une disparition des défauts créés, ceux-ci étant balayés par les dislocations.

L'observation au cours d'une montée linéaire, au contraire, est beaucoup plus douce, et elle présente l'énorme avantage de délivrer un enregistrement continu de la variation de la résistivité. De plus, l'erreur principale sur les points expérimentaux d'un recuit isochrone est due à l'incertitude sur l'intervalle de température  $\Delta T$  séparant deux recuits. Pour étudier une éventuelle structure fine par paliers isochrones  $\Delta T = 1^\circ$  nous aurions par exemple une précision trois fois plus faible que dans les expériences où  $\Delta T = 3^\circ$ , et le tracé de la courbe est alors très délicat. A l'avantage de la montée linéaire, nous pouvons encore porter la rapidité des mesures qui sont faites en trois heures au lieu de deux jours, au cours desquels des variations incontrôlées de certains facteurs peuvent intervenir. Cependant, ce traitement peut présenter



- Figure 4 -

Glissière et porte échantillons (d'après J.L. ODDOU [9])  
 1 ) échantillon  
 2 ) cadre en acier inoxydable du porte-échantillon



- Figure 5 -

Dispositif pour un recuit isochrone

l'inconvénient de délivrer des mesures de résistance à différentes températures, ce qui altèrera certainement toute étude de la cinétique d'annihilation.

Le schéma du dispositif utilisé est représenté sur la figure 6. Il est basé sur le principe de la cloche à plongeur. Nous avons conservé l'idée d'un écran isotherme réglé indépendamment. Il est nécessaire d'avoir un four à forte inertie thermique et l'enceinte contenant ce four ne devant exercer aucune influence sur l'échantillon, doit avoir une température homogène.

En conséquence, nous avons effectué un montage nous permettant d'assurer ces impératifs : un premier four massif en cuivre contient l'échantillon irradié et l'échantillon témoin, le tout est ensuite placé dans un deuxième four en aluminium et ajusté à l'intérieur d'une cloche en acier inoxydable à double paroi (un vide d'isolement de  $2 \cdot 10^{-6}$  mm de Mg est réalisé). L'ensemble est plongé dans un cryostat rempli d'hydrogène liquide. Nous chauffons d'abord le four en aluminium, ce qui permet d'établir une surpression à l'intérieur de l'enceinte et d'en évacuer l'hydrogène liquide ; (l'aluminium a été choisi pour sa faible inertie thermique nécessaire pour une commande plus directe du chauffage), ensuite le four de cuivre est réglé et l'échantillon s'échauffe lentement ( $60^\circ/\text{h}$  environ).

#### II.4 - MESURES DE LA RESISTANCE

Vu les dimensions de nos échantillons, les résistances à mesurer sont très faibles, de l'ordre de  $10^{-4} \Omega$  à la température de l'hydrogène.

##### II.4.1 - Recuit isochrone

Un courant de 200 mA fourni par une batterie d'accumulateur crée aux bornes des échantillons une tension de l'ordre de quelques dizaines de microvolts. Ces tensions sont environ dix fois plus petites que celles mesurées dans le laboratoire précédemment lors d'expériences analogues sur d'autres métaux.

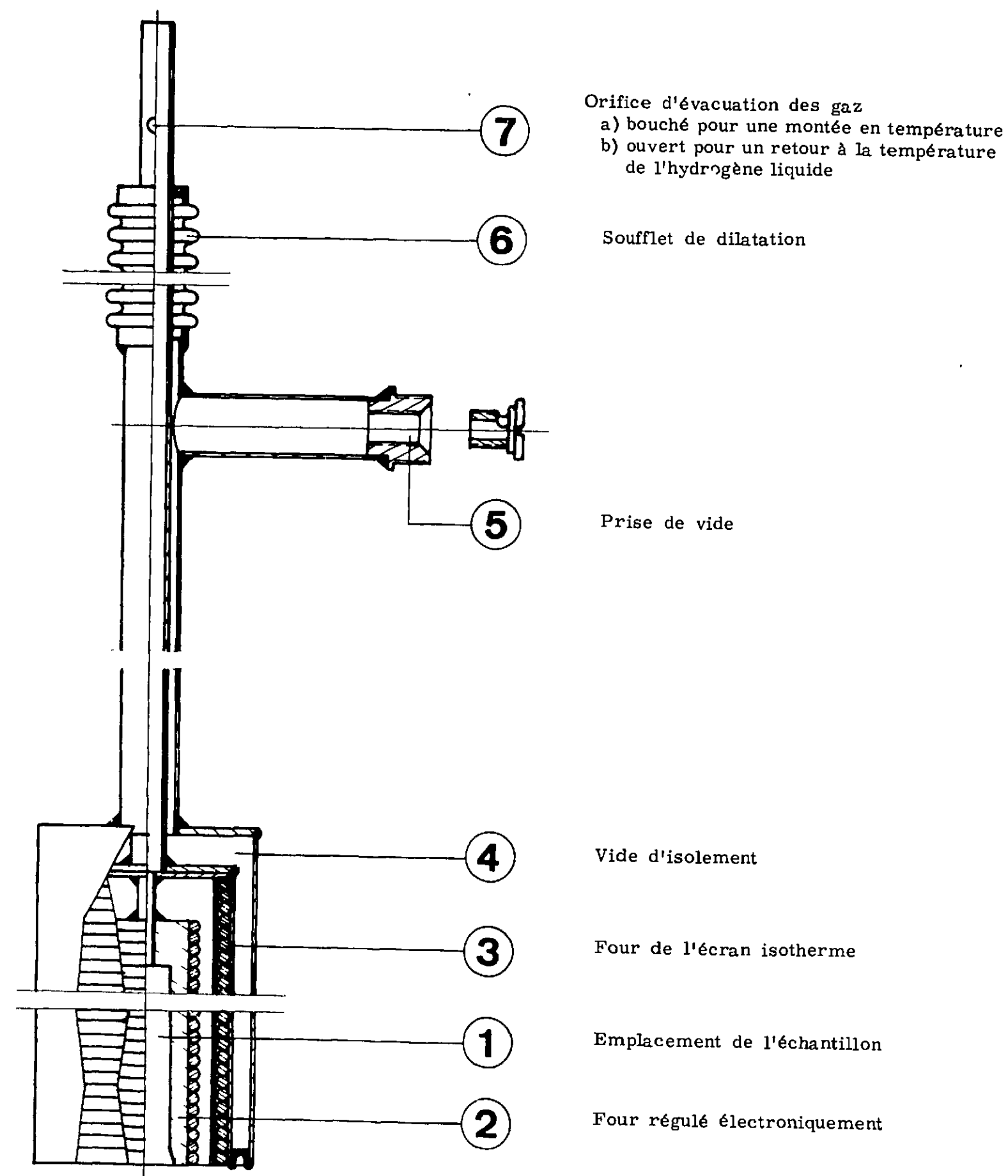
L'intensité est donc mesurée sur un enregistreur potentiométrique MECI durant toute la durée de l'expérience donnant ainsi instantanément l'intensité correspondant à la tension mesurée. Les forces électromotrices parasites sont éliminées le plus possible en employant des inverseurs "Otto-Wolf" ou "Tinsley". Pour chaque valeur mesurée, trois mesures sont effectuées avec une inversion de courant. Un pont potentiométrique "Cambridge" est utilisé pour la mesure de la tension. Comme détecteur de zéro, nous avons repris l'appareil utilisé par Mme MINIER [4]. Le déséquilibre du pont mesuré par un galvanomètre SEFRAM très sensible est amplifié au voisinage du zéro par le système de deux cellules photorésistantes montées en opposition (fig. 7).

Une différence de potentiel de l'ordre de  $\frac{5}{100}$  de microvolt peut être détectée ;  
comme  $\frac{\Delta I}{I} = 5 \cdot 10^{-4}$ , l'erreur relative  $\frac{\Delta R}{R}$  est alors de  $3 \cdot 10^{-3}$ .

Les prises de tension et d'intensité sont en fils de cuivre de 12/100 mm.

##### II.4.2 - Recuit linéaire

Pour les mesures en montée linéaire, les tensions mesurées aux bornes des échantillons sont amplifiées au moyen d'un amplificateur "LEEDS et NORTHRUP" puis enregistrées sur l'appareil MECI. Sur la sensibilité maximum nous pouvons apprécier le  $1/8$  de microvolt.



- Figure 6 -  
Dispositif pour un recuit linéaire

De même la force électromotrice du thermocouple chromel-constantan amplifiée et enregistrée continuellement nous permet d'apprécier facilement le 1/10 de degré ; l'intensité est réglée électroniquement  $\frac{\Delta I}{I} = 210^{-4}$  [ 33 ].

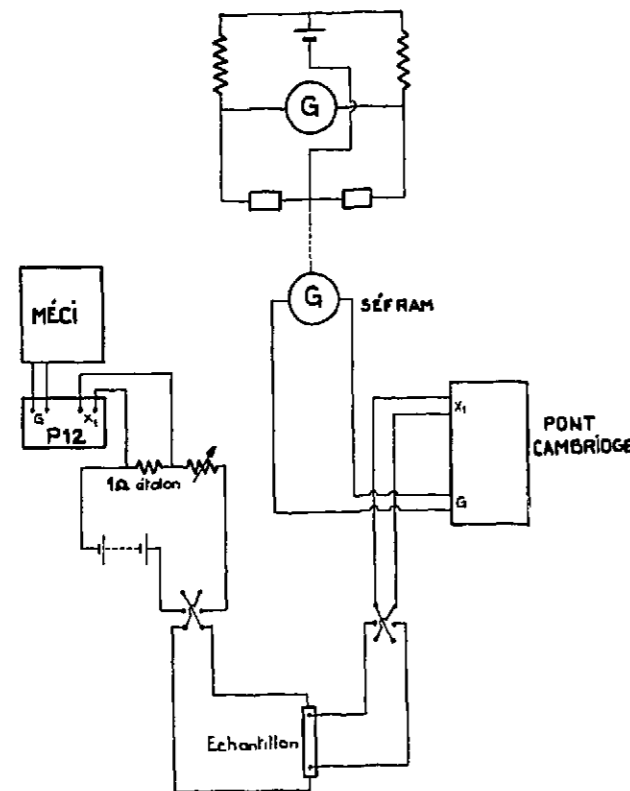
## II.5 - REGULATION ELECTRONIQUE

Il faut obtenir rapidement la température désirée lors d'un recuit isochrone et avoir une isotherme stable pendant des durées de 10 minutes. Dans ce but, nous utilisons une régulation construite par P. LEMERCIER du laboratoire d'Electronique de Physique du Solide (fig. 8). Cet appareil nous permet d'effectuer des paliers isothermes à  $T \pm 2/10$  de degré.

### - Principe

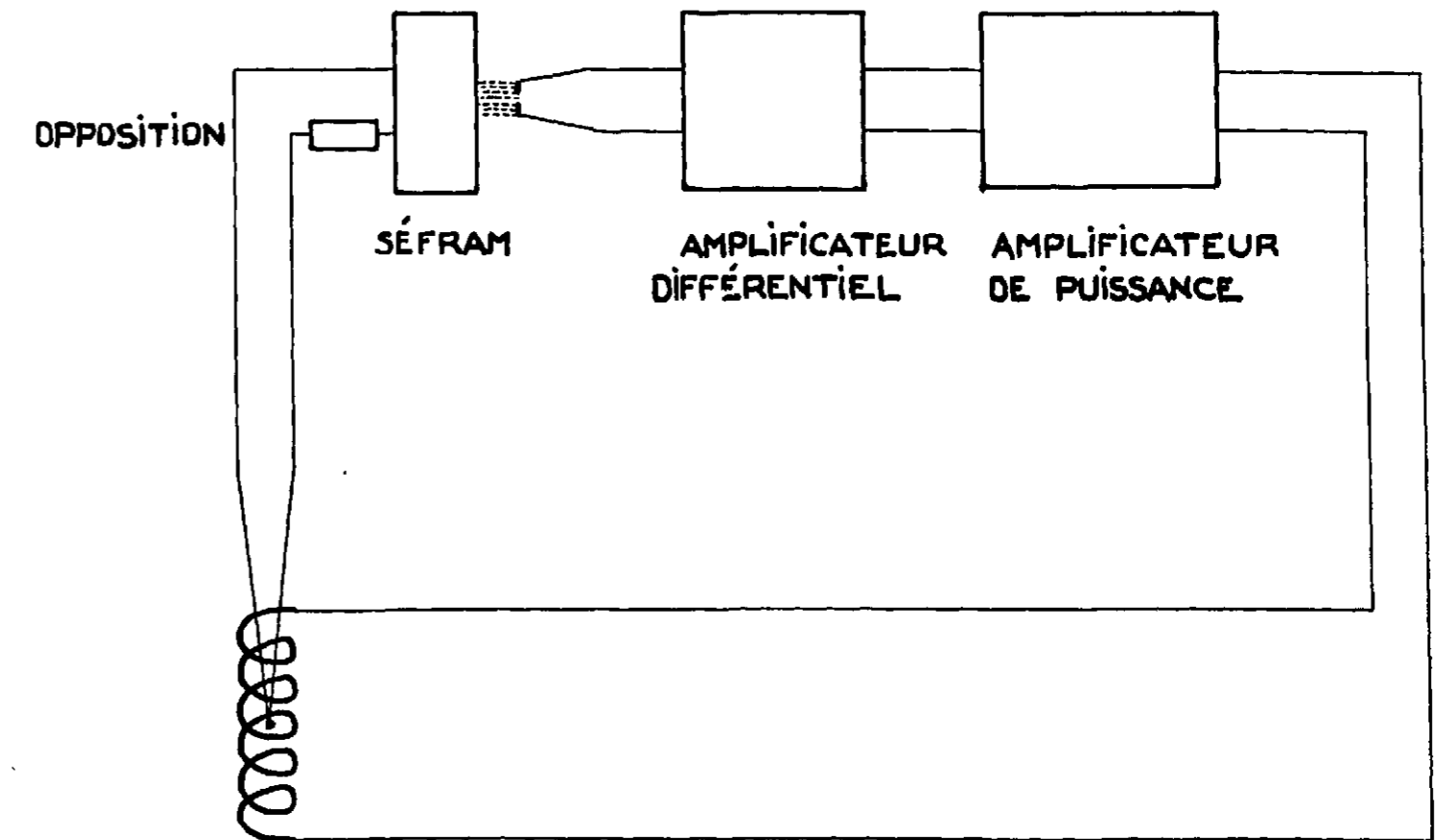
Un potentiomètre type "spirohm" branché en opposition avec le thermocouple de régulation placé entre le bobinage et le four est réglé sur la force électromotrice correspondant à la température désirée. La tension de déséquilibre branchée aux bornes d'un galvanomètre SEFRAM, est encore amplifiée par une cellule photoélectrique double ; à la sortie un amplificateur différentiel suivi d'un amplificateur de puissance alimente le four afin de rétablir l'équilibre initial.

Pour l'utilisation en montée linéaire, un moteur asynchrone équipé d'un réducteur, fait varier l'opposition du potentiomètre de 15 microvolts/mn permettant ainsi un chauffage régulier de l'échantillon.



- Figure 7 -

Croquis de montage électrique pour les mesures de résistance d'un échantillon après recuit isochrone



- Figure 8 -

Schéma de régulation électronique (d'après P. LEMERCIER)



## CHAPITRE III

### RESULTATS EXPERIMENTAUX

Après bombardement électronique à 20°K les échantillons sont étudiés suivant deux méthodes d'investigation,

- mesures de résistivité
- mesure de l'énergie libérée.

#### III.1 - MESURES DE RESISTIVITE

##### III.1.1 - Modes d'étude utilisés

###### a) Montée linéaire en température

La température de l'échantillon croît en moyenne de 60° par heure. Nous étudions simultanément le comportement de deux échantillons, l'un irradié, l'autre non ; ce dernier servant de témoin ; rappelons que le courant dans les échantillons est très stable durant toute la montée en température ( $\frac{\Delta I}{I} = 210^{-4}$ ). Nous enregistrons la différence de potentiel  $V_I$  aux bornes de l'échantillon et  $V_0$  aux bornes du témoin en fonction de la température  $T$  (fig. 9a). Le rapport

$$\frac{(R_I - R_O)_{T^{\circ}K}}{(R_I - R_O)_{20^{\circ}K}} = f(T)$$

est relié à la présence de défauts ponctuels dans l'échantillon irradié (fig. 9b).

###### b) Recuit isochrone

Nous procédons par paliers isochrones de durée 10 minutes et de 3 en 3 degrés. La précision sur les températures de palier étant de 2/10 de degré, ceci nous permet de déterminer avec précision la position et la grandeur des pics d'accélération du revenu de la résistivité (fig. 9c).

Ces deux méthodes sont complémentaires, la première est préférable pour l'étude d'une structure fine, mais la différence de  $R_I - R_O$  entre les deux échantillons ne doit pas être reliée quantitativement à la concentration de défauts car les mesures de la résistivité sont faites à température variable et la résistivité idéale dépend de la pureté de l'échantillon [35]. La seconde méthode impliquant une mesure à température fixe 20°K est alors préférable mais elle est moins précise.

## c) Recuit isotherme

Par recuits isothermes nous étudions la décroissance de la concentration de défauts et nous traçons  $\frac{\Delta R}{\Delta R_0}$  en fonction de  $t$  durée du recuit pour deux isothermes consécutives (fig. 9d).

L'équation de diffusion pour un type bien déterminé de défauts et de concentration  $C$  homogène est  $\frac{dC}{dt} = -KC^\gamma e^{-E/kT}$  où  $\gamma$  = ordre de la réaction,  $k$  = constante de BOLTZMAN,  $T$  = température,  $E$  = énergie d'activation du processus de diffusion.

Par la méthode classique des tangentes, nous déterminons l'énergie d'activation :

$$E = \frac{k T_1 T_2}{T_2 - T_1} \text{Log} \frac{R_2}{R_1}$$

$T_1, T_2$  = température des deux isothermes consécutives prises dans l'intervalle où se guérit le défaut,

$R_1, R_2$  = pentes respectives des isothermes au point anguleux A.

Traçant les différentes courbes de cinétique pour chaque processus

$$\text{Log} \frac{C}{C_0} = -Kt e^{-E/kT} \text{ pour un ordre 1}$$

$$\frac{1}{C} - \frac{1}{C_0} = Kt e^{-E/kT} \text{ pour un ordre 2}$$

nous essayons d'identifier les courbes expérimentales aux courbes théoriques.

La pente des différentes courbes nous donne la valeur de la constante de diffusion  $K$

$$K = V_0 Z P_i$$

$V_0$  = facteur de fréquence  $10^{12}$  à  $10^{13} \text{ S}^{-1}$

$Z$  = nombre de sites autour de la lacune où la présence d'un interstitiel entraîne une annihilation certaine

$P_i$  = probabilité pour qu'un interstitiel soit sur un des  $Z$  sites

## III.1.2 - Résultats

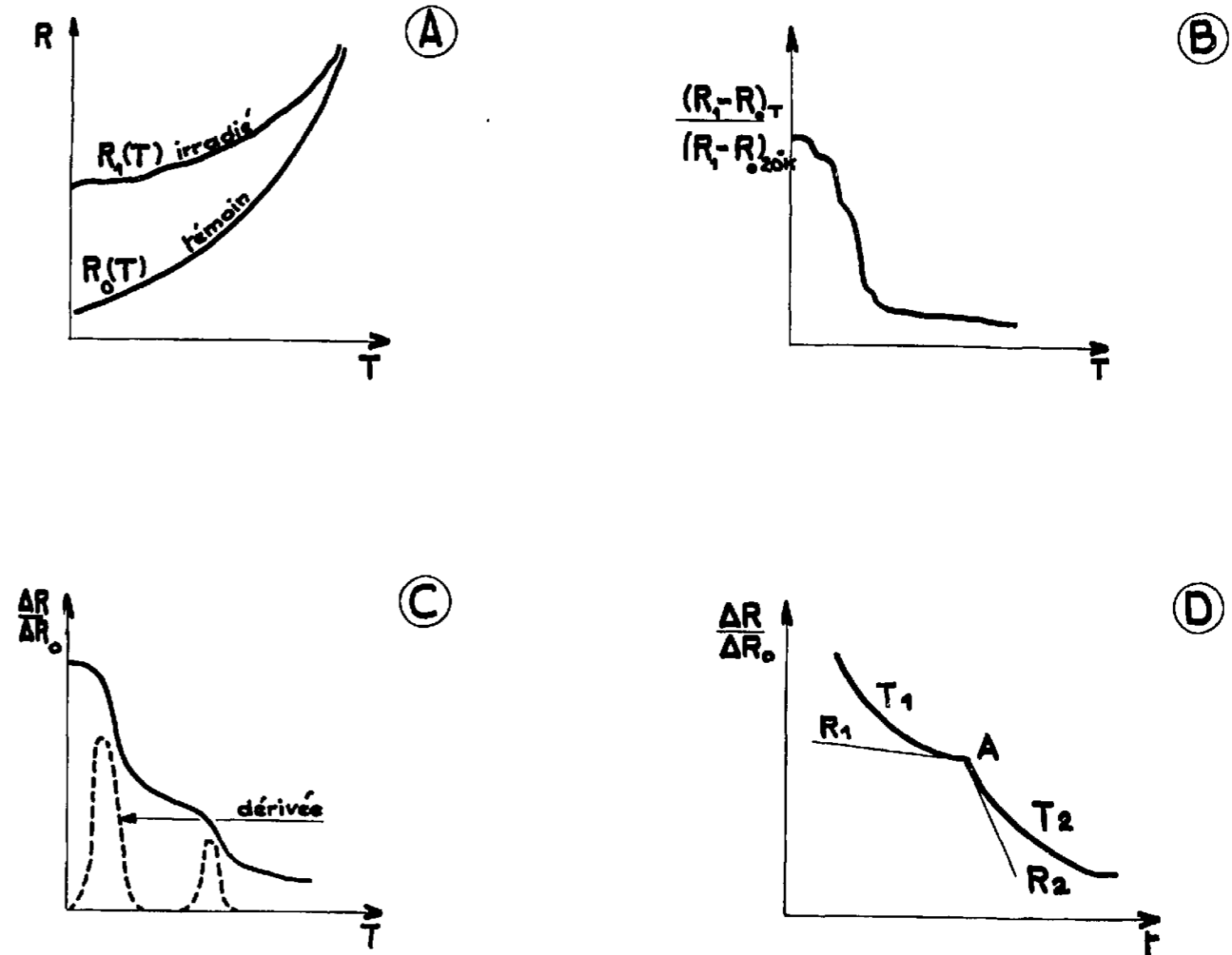
## III.1.2.1 - Bombardement électronique

## a) Etude de l'accroissement de résistivité en fonction de la dose d'irradiation

Les mesures de résistivité effectuées pendant les irradiations indiquent que cet accroissement est linéaire avec la durée d'irradiation dans la limite des doses utilisées (doses  $1,5 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ ).

Afin d'essayer d'apprécier l'accroissement de résistivité produit par 1 % de paires de Frenkel dans le cobalt, nous avons fait une manipulation simultanée avec le nickel. La figure 10 représente les accroissements de résistivité en fonction de la durée d'irradiation de deux échantillons de nickel et cobalt bombardés simultanément à 20°K par des électrons de 1,4 MeV.

Si on suppose qu'un même bombardement par des électrons de 1,4 MeV crée la



- Figure 9 -

- a) Principe du recuit linéaire  
 b) Type de restauration de la résistivité après un recuit linéaire  
 c) Type de restauration de la résistivité après un recuit isochrone  
 d) Type de restauration de la résistivité après un recuit isotherme

$$\frac{\Delta R}{\Delta R_0} = \frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$$

$\Delta \rho_0$  : accroissement de la résistivité initiale

$\Delta \rho$  : accroissement de la résistivité après un recuit

même concentration de paires de Frenkel dans les deux métaux en adoptant la valeur  $\Delta\rho = 3,2 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  par % de paires de Frenkel dans le nickel proposée par LUCASSON et WALKER [15], nous en déduisons  $\Delta\rho = 5,5 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  pour le cobalt.

b) Restauration de la résistivité au cours d'un traitement isochrone

Pour chaque échantillon nous avons procédé à des recuits isochrones d'une durée de 10 mn tous les 3 degrés jusqu'à 80°K, tous les 5 degrés jusqu'à 120°K, puis tous les dix degrés.

La figure 11 montre la courbe de restauration de l'accroissement de résistance  $\Delta R/\Delta R_0$  en fonction de la température. La dérivée par rapport à T permet de mettre en évidence plusieurs stades de restauration.

Stade I	$T < 60^\circ\text{K}$	80 % du total
Stade II	$60^\circ\text{K} < T < 300^\circ\text{K}$	17,5 %
Stade III	$T > 300^\circ\text{K}$	2,5 %

Le stade I est divisé en quatre sous-stades. Par analogie avec le fer et le nickel [5][9] le sous-stade correspondant à une bande de traînage magnétique sera appelé  $I_E$ .

Nous aurons donc

$I_B$	$22^\circ\text{K} < T < 28^\circ\text{K}$
$I_C$	$28^\circ\text{K} < T < 37^\circ\text{K}$
$I_D$	$37^\circ\text{K} < T < 49^\circ\text{K}$
$I_E$	$49^\circ\text{K} < T < 60^\circ\text{K}$

Le stade II est divisé en trois sous-stades

$II_A$	$65^\circ\text{K} < T < 80^\circ\text{K}$
$II_B$	$125^\circ\text{K} < T < 160^\circ\text{K}$
$II_C$	$160^\circ\text{K} < T < 200^\circ\text{K}$

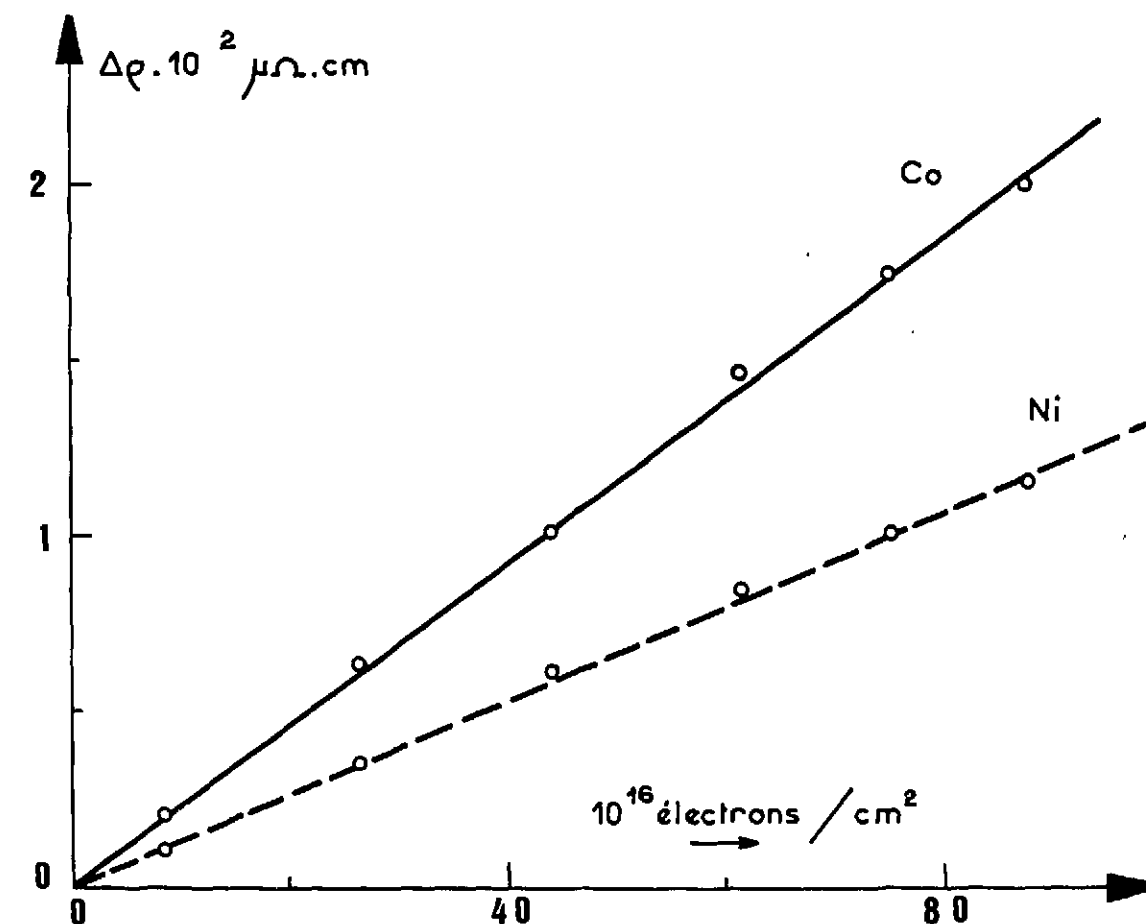
c) Effet de la dose d'irradiation

Nous avons entrepris cette expérience dans le but d'étudier par les déplacements en température des stades les ordres des cinétiques de disparition.

En effet, on sait qu'un défaut s'annihilant suivant une cinétique d'ordre un présente une courbe de revenu indépendante de la dose. Au contraire, pour une cinétique d'ordre 2, on peut s'attendre à un déplacement de  $1,8^\circ$  vers les basses températures, pour le stade de revenu d'un défaut s'annihilant aux environs de 50°K, lorsqu'on double la dose.

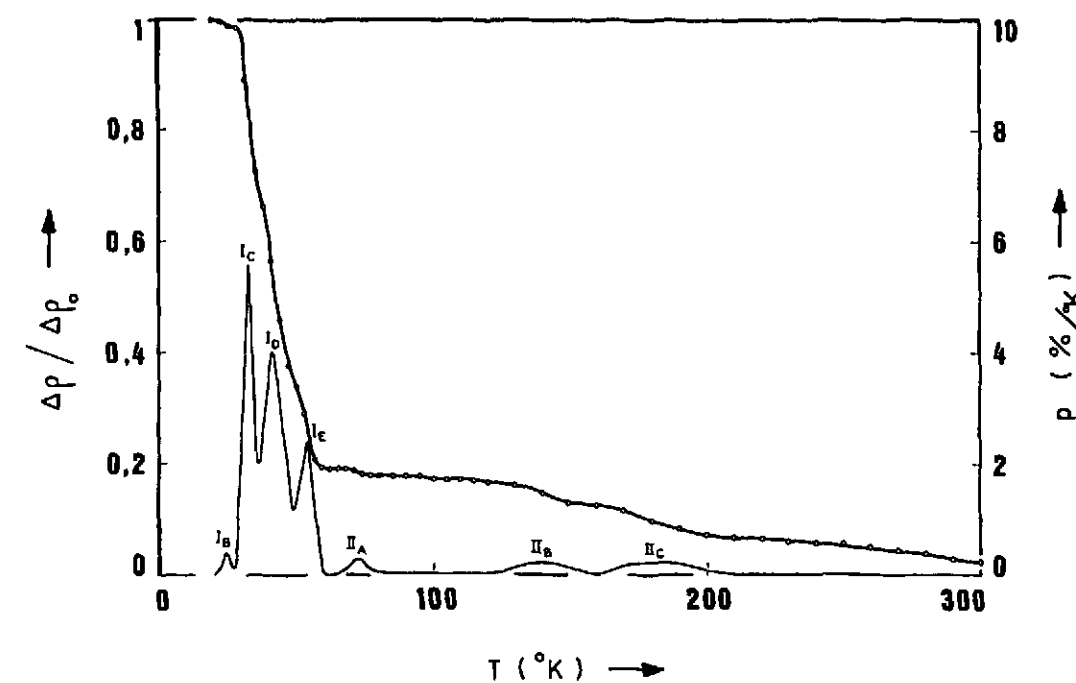
Nous irradiions à des doses variant dans un rapport de 1 à 9 des échantillons identiques qui sont soumis par la suite au même traitement thermique (fig. 12, 13). Dans la limite des erreurs expérimentales ( $\Delta T < 0,25^\circ$ ), il n'apparaît aucun déplacement en température des sous-stades I. Ceci prouve que ces sous-stades I correspondent tous à des processus obéissant à une cinétique d'ordre un ou très proche d'un ordre un.

Le stade  $II_A$  se déplace de  $2^\circ$  vers les basses températures pour les doses multipliées par 2,5 et de  $5^\circ$  pour les doses multipliées par 9, ce qui correspond sensiblement à une cinétique du second ordre. Quant à  $II_B$  et  $II_C$  ils se déplacent environ de  $3^\circ$  et  $4^\circ$  vers les basses températures pour des doses multipliées par 9. Ces déplacements sont inférieurs à ceux que l'on calculerait pour une cinétique d'ordre deux. En outre, si la dose croît, les amplitudes relatives des stades  $I_C$  et  $I_D$  augmentent, tandis que celle de  $I_E$  et  $II_A$  diminuent.  $II_B$  et  $II_C$  semblent



- Figure 10 -

Accroissement de la résistivité du nickel (d'après [9]) et du cobalt en fonction de la dose d'électrons incidents (énergie égale à 1,4 MeV)



- Figure 11 -

Restauration de la résistivité pour un échantillon de cobalt bombardé par  $25 \cdot 10^{16} \text{ e/cm}^2$  de 3 MeV. Les divers stades sont mis en évidence par la courbe dérivée.

peu affectés (fig. 14).

d) Restauration de la résistivité au cours d'un traitement isotherme

L'examen détaillé de chaque processus de guérison du stade I nous conduit à une étude de la restauration de la résistivité par recuits isothermes (fig. 15).

Sous-stade I<sub>C</sub>

Une loi du premier ordre convient parfaitement (fig. 16). Les isothermes effectuées à 31°K et 33°K nous permettent d'évaluer l'énergie d'activation de I<sub>C</sub> à  $E = 0,065 \pm 0,02$  eV.

Sous-stade I<sub>D</sub>

L'accord n'étant pas parfait pour l'identification avec un ordre un ou un ordre deux (fig. 17, 18), les expériences en fonction de la dose d'irradiation nous conduisent à essayer la superposition de plusieurs cinétiques d'ordre un comme l'ont déjà fait A. J. BOSMAN [36] et J. L. ODDOU [9] (fig. 17).

$$\frac{C}{C_0} = \sum_{i=1}^n \frac{C_i}{C_0} = \frac{\sum_{i=1}^n a_i e^{-t/\theta_i}}{\sum_{i=1}^n a_i}$$

avec  $\sum_{i=1}^n a_i = 1$  ;  $a_i$  = concentration initiale de chaque type de défauts à 41°K ;

$\theta_i = K_i^{-1} e^{E_i/KT}$  Pour des temps suffisamment grands  $\frac{C}{C_0} \approx a_1 e^{-t/\theta_1}$ ,  $\theta_1$  étant le plus grand des  $\theta_i$ .

Pour des temps supérieurs à 70 minutes nous pouvons identifier  $\text{Log } \frac{C}{C_0}$  à  $\text{Log } \frac{C_1}{C_0}$  ce qui donne  $a_1 = 0,36$ ,  $\theta_1 = 5360$  sec. La différence entre la courbe  $\text{Log } \frac{C}{C_0}$  et la droite  $\text{Log } \frac{C_1}{C_0}$  est une droite  $\text{Log } \frac{C_2}{C_0}$  ; nous en déduisons :  $a_2 = 0,64$ ,  $\theta_2 = 1505$  sec. Nous limitons donc notre développement à deux termes  $\frac{C}{C_0} = 0,36 e^{-t/5360} + 0,64 e^{-t/1505}$  (t en secondes). La superposition de cette courbe avec la courbe expérimentale est excellente (fig. 19). L'isotherme effectuée à 41°K permet donc d'affirmer que nous annihilons deux types de défauts dont les énergies de guérison diffèrent de  $\Delta E = kT \text{Log } \frac{\theta_1}{\theta_2} = 2 \cdot 10^{-3}$  eV. L'incertitude de 25 % sur E permet de connaître  $\Delta E$  à  $0,5 \cdot 10^{-3}$  eV près.

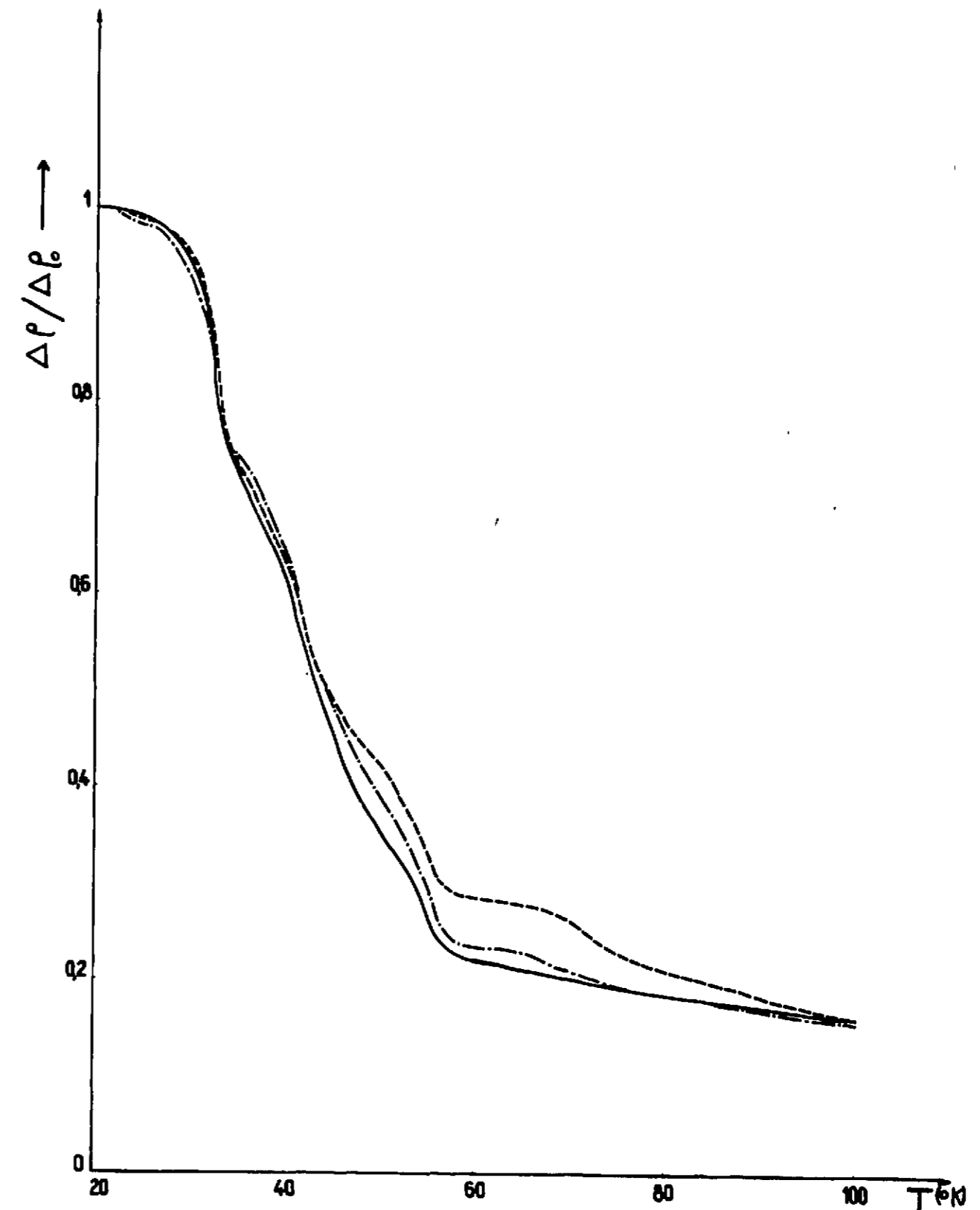
Avant cette isotherme à 41°K nous avons effectué un recuit à 38°K. Les expériences de montée linéaire montreront qu'au cours de ce recuit disparaît un troisième type de défaut qui participe au sous-stade I<sub>D</sub>. Dans le recuit isotherme à 41°K il ne reste que les deux derniers défauts.

L'énergie d'activation moyenne trouvée par la méthode des tangentes est  $E = 0,08 \pm 0,02$  eV.

Sous-stade I<sub>E</sub>

La cinétique de ce sous-stade est difficile à établir par la méthode des recuits isothermes ni l'ordre I ni l'ordre II ne sont satisfaisants (fig. 20).

Nous avons observé que ce pic ne se déplace pas en fonction de la dose d'irradiation, c'est-à-dire sa température de guérison serait indépendante de la concentration ; I<sub>E</sub> obéirait



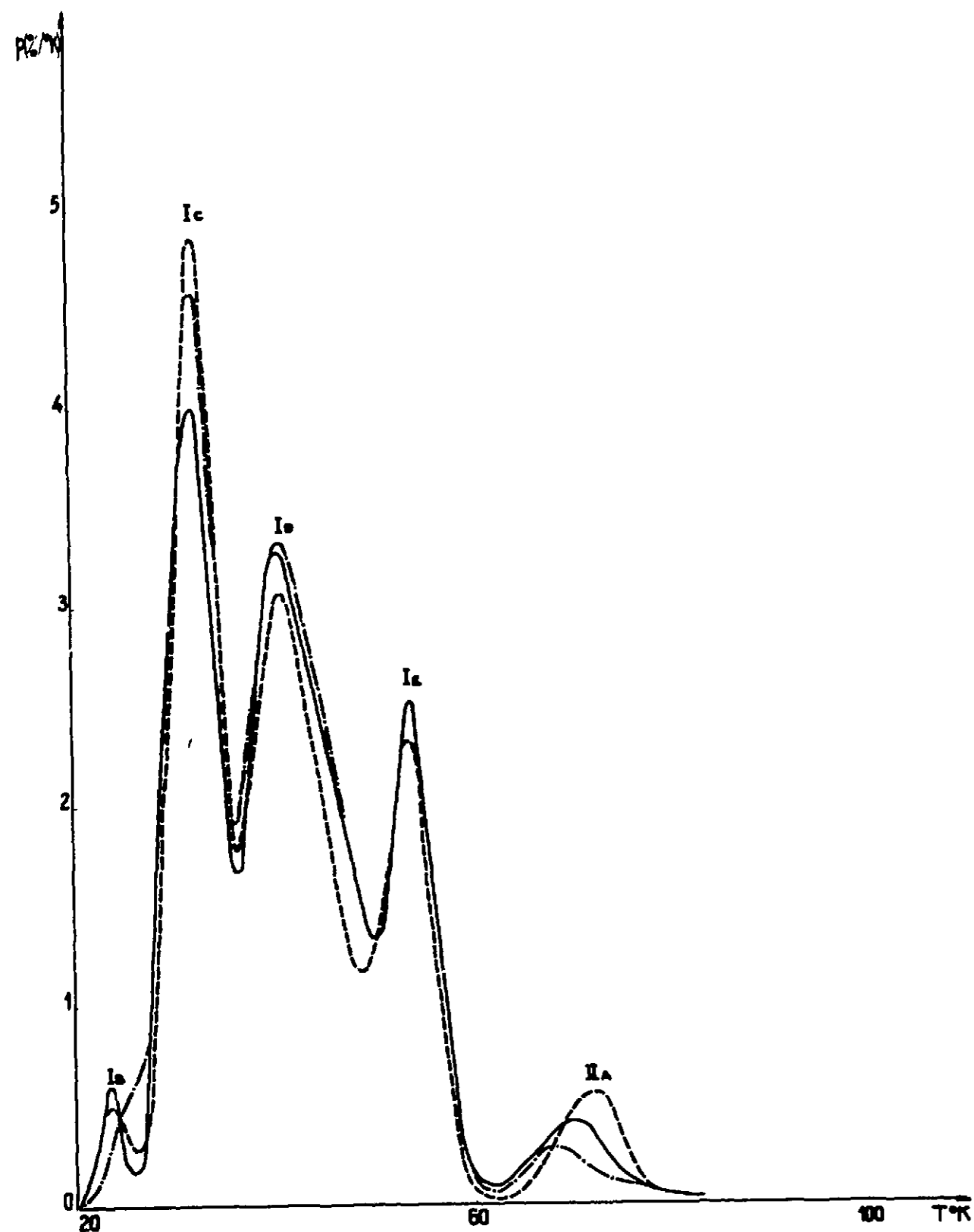
- Figure 12 -

Restauration de la résistivité pour les échantillons de cobalt bombardés par des électrons de 3 MeV.

-----  $0,16 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$

-----  $0,5 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$

-----  $1,5 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$



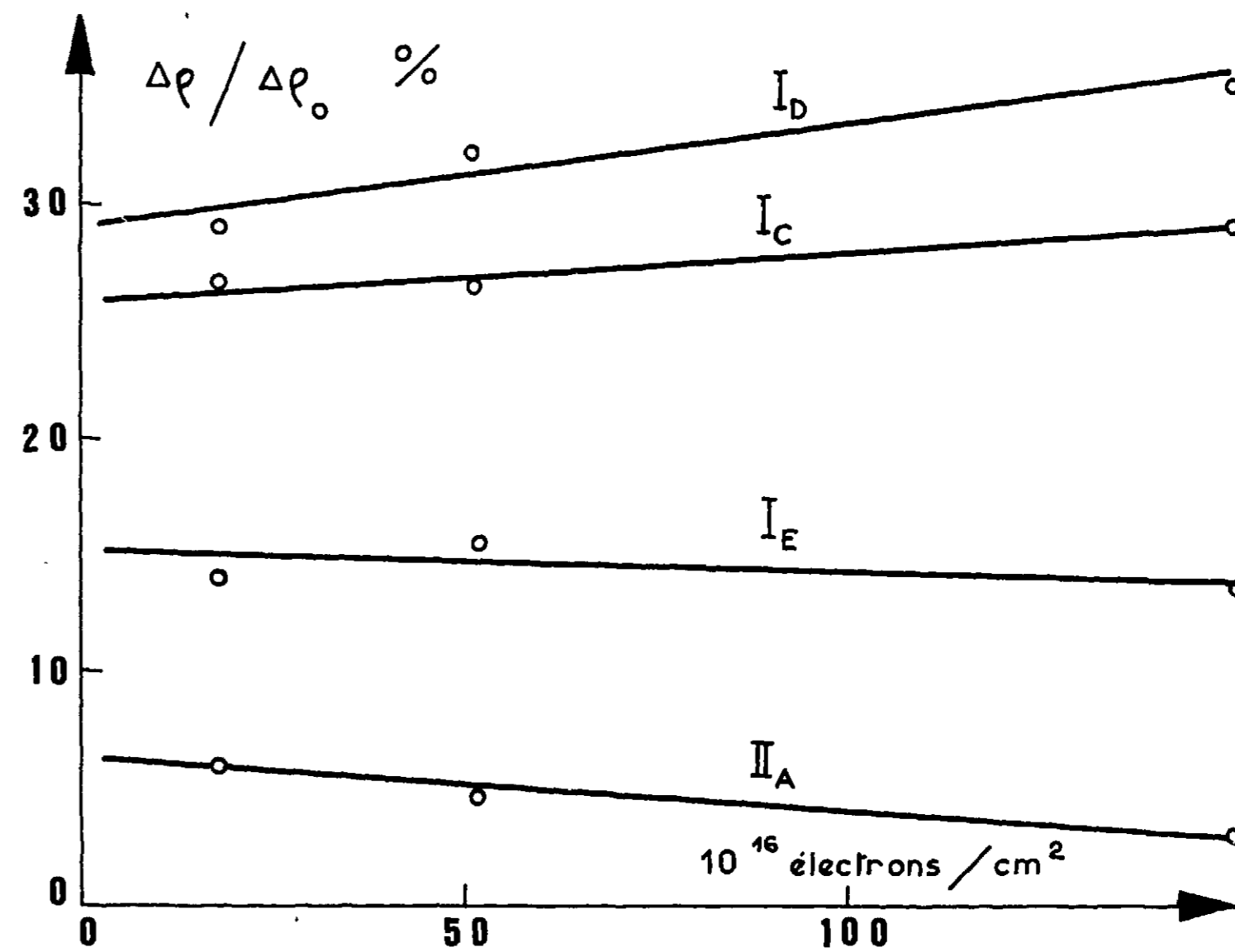
- Figure 13 -

Courbes dérivées de celles de la figure 12

-----  $0,16 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$

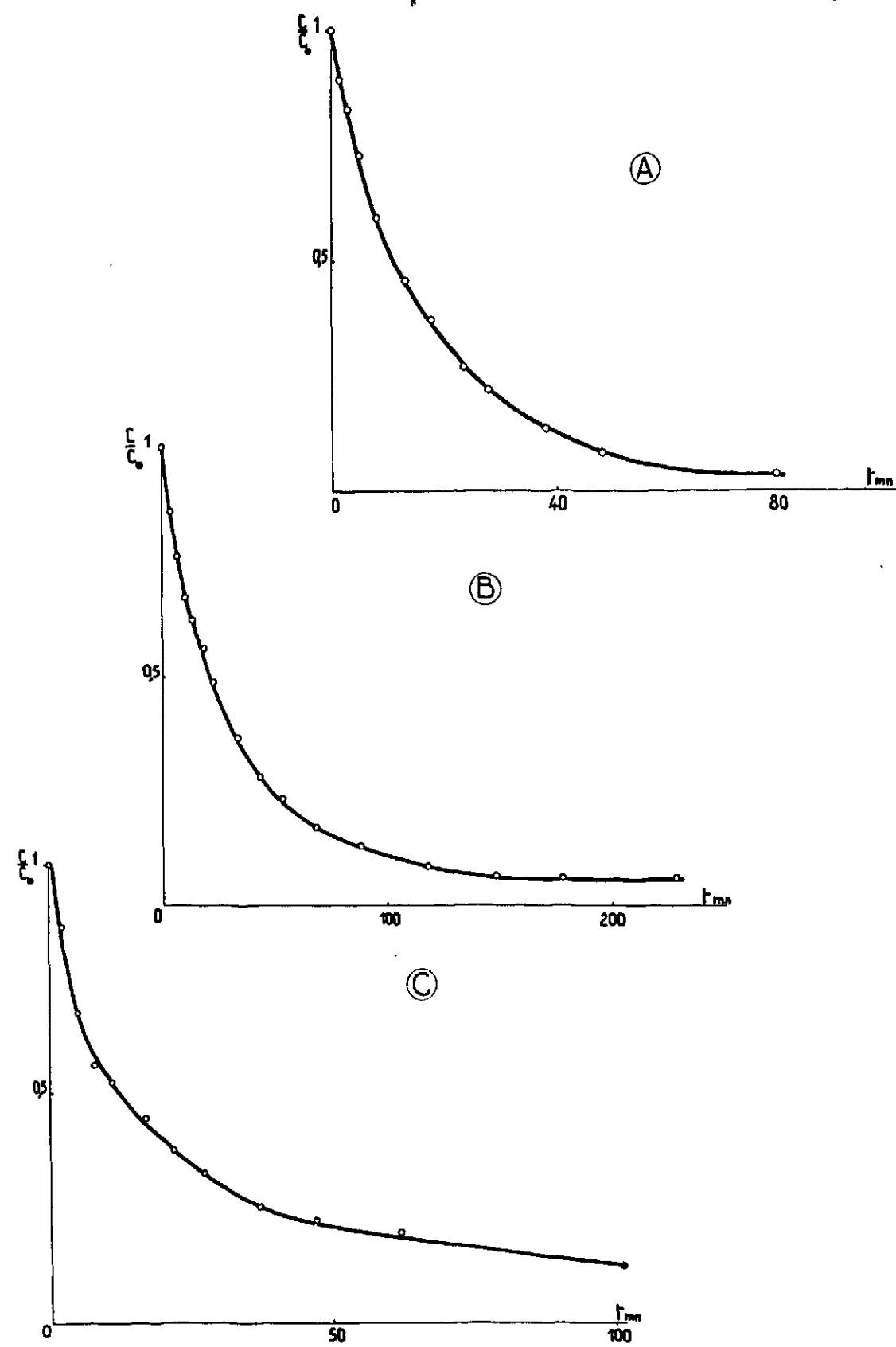
—  $0,5 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$

- · -  $1,5 \cdot 10^{18} \text{ e/cm}^2$



- Figure 14 -

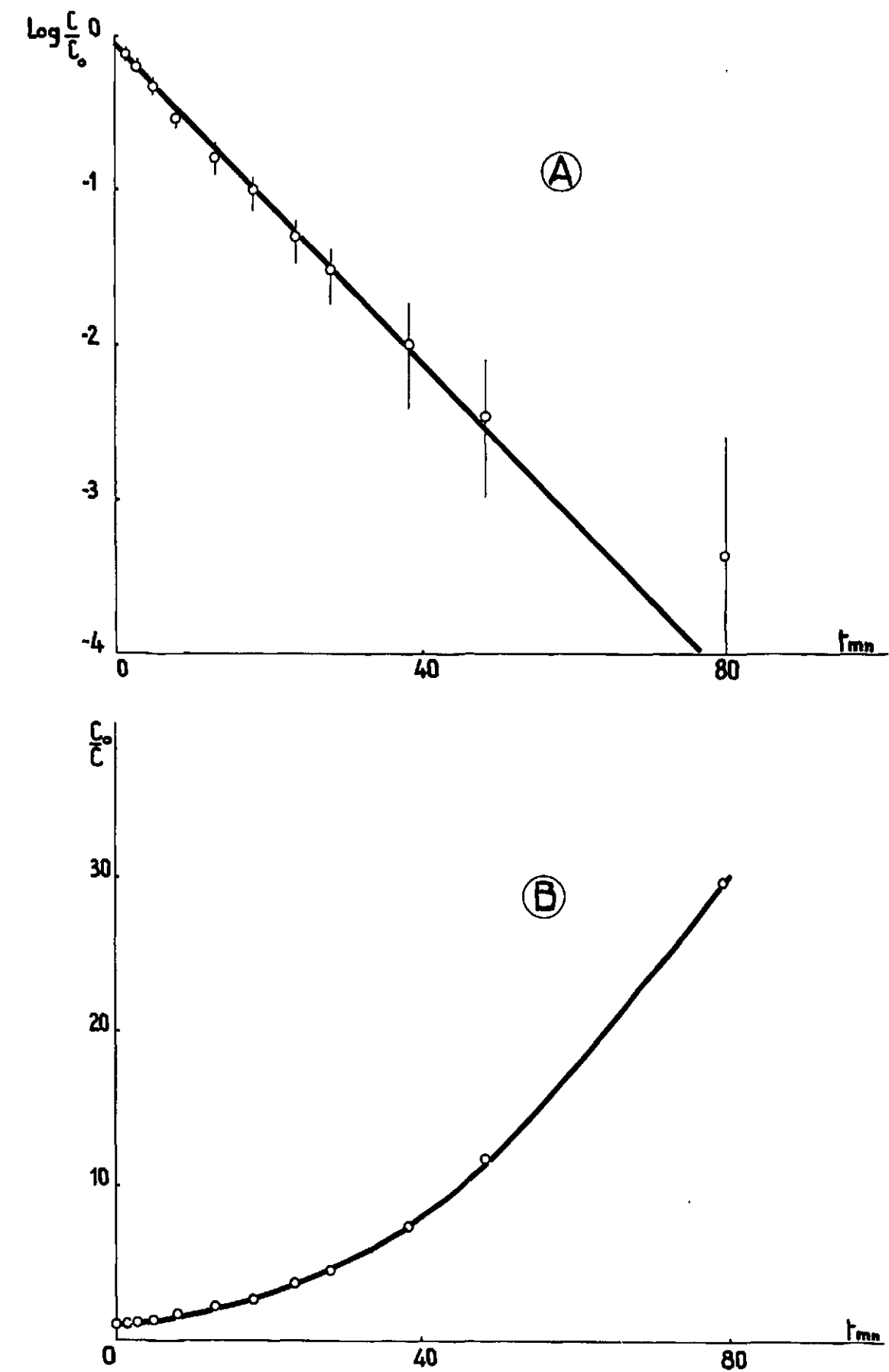
Amplitude relative des différents sous stades en fonction de la dose d'irradiation



- Figure 15 -

Traitements isothermes d'un échantillon de cobalt bombardé par  $1,5 \cdot 10^{18}$   $\text{é}/\text{cm}^2$  de 3 MeV

- a)  $T = 33^\circ\text{K}$  stade  $I_C$
- b)  $T = 41^\circ\text{K}$  stade  $I_D$
- c)  $T = 55^\circ\text{K}$  stade  $I_E$



- Figure 16 -

Identification du stade  $I_C$  avec diverses cinétiques

- a) cinétique d'ordre 1
- b) cinétique d'ordre 2

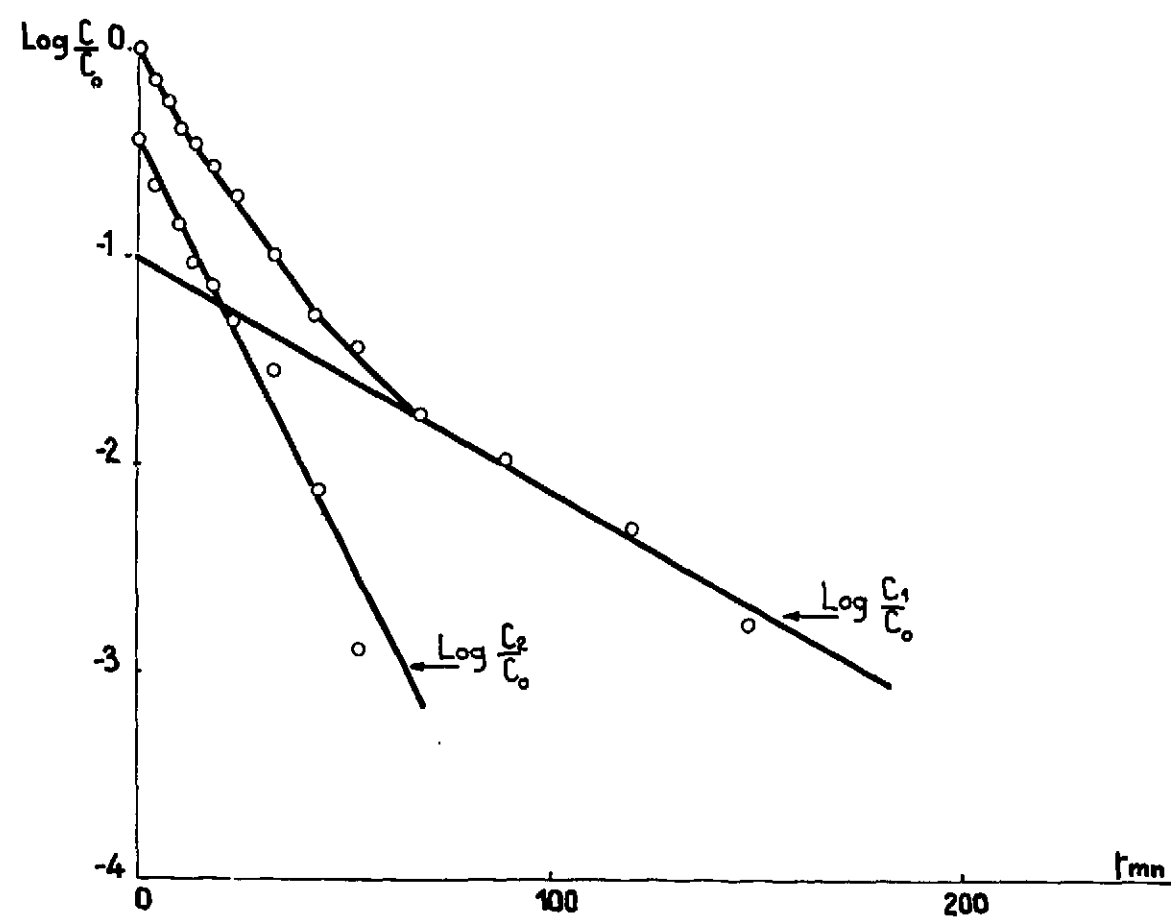
donc à une cinétique d'ordre un ou très proche d'un ordre un.

L'énergie d'activation trouvée est de l'ordre de 0,12 eV.

#### Aspect théorique des différents stades

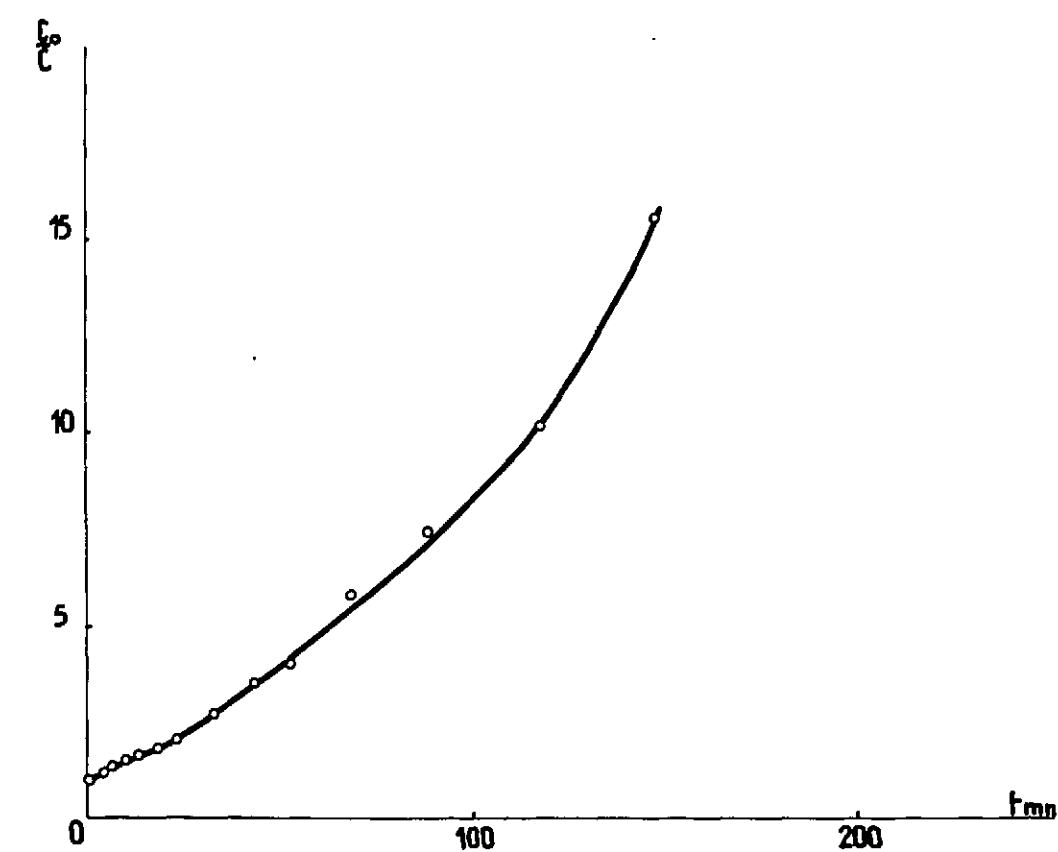
En prenant les valeurs de K et E trouvées expérimentalement par recuits isothermes, nous traçons la courbe théorique de guérison isochrone d'un défaut disparaissant suivant une cinétique d'ordre un pour chaque stade. La dérivée donne un pic bien déterminé dont nous mesurons la largeur à mi-hauteur que nous comparons à la valeur expérimentale (les résultats expérimentaux sont obtenus en déduisant la contribution des stades voisins au stade étudié).

$\Delta T_{1/2}$	Théorique	Expérimentale
$I_C$	4°5	5°
$I_D$	6°	8°5
$I_E$	5°5	6°



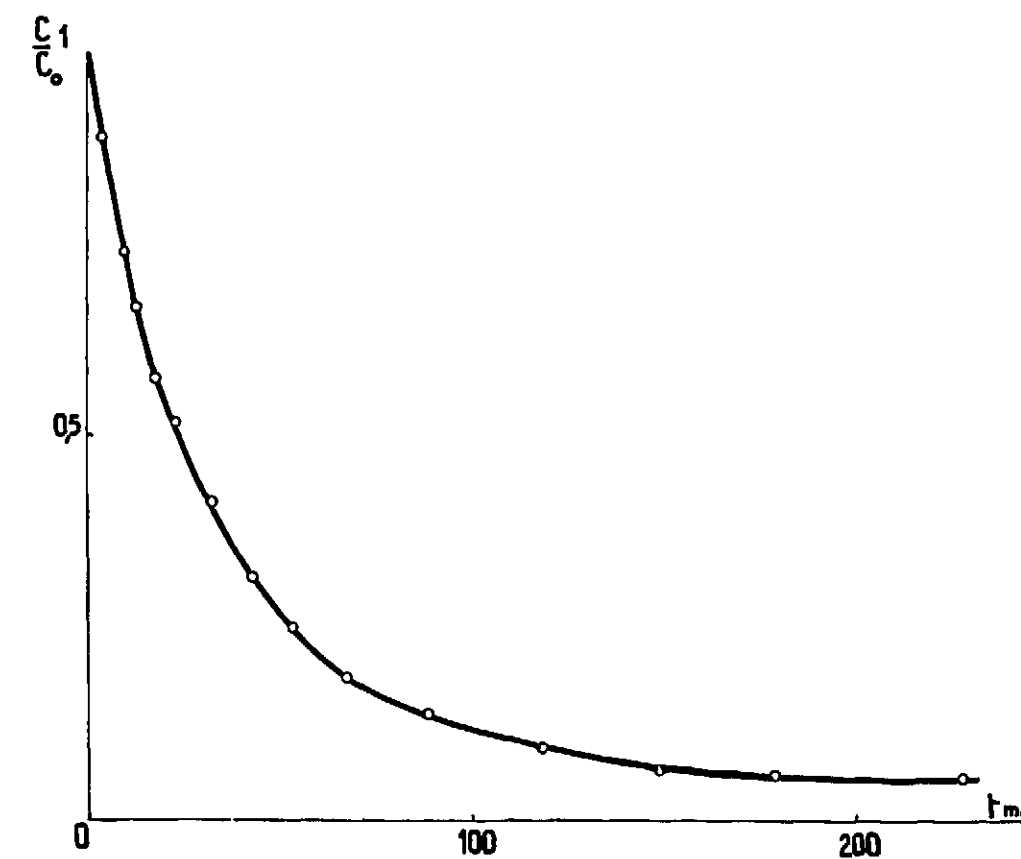
- Figure 17 -

Identification du stade  $I_D$  avec une cinétique d'ordre 1 et décomposition possible en deux cinétiques d'ordre 1



- Figure 18 -

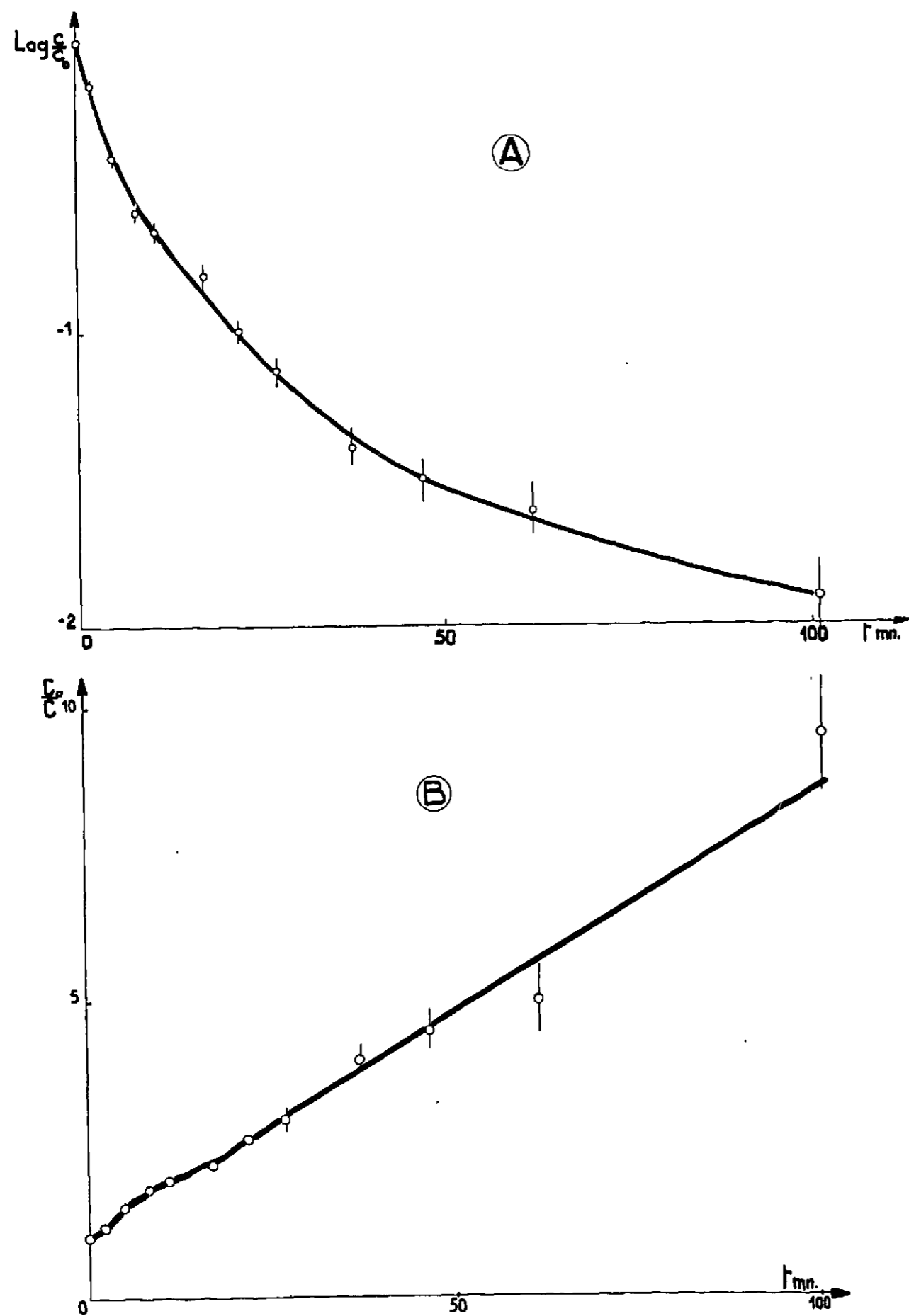
Identification du stade  $I_D$  avec une cinétique d'ordre 2



- Figure 19 -

Courbe théorique :  $\frac{C}{C_0} = 0,36 e^{-\frac{t}{5360}} + 0,64 e^{-\frac{t}{1505}}$

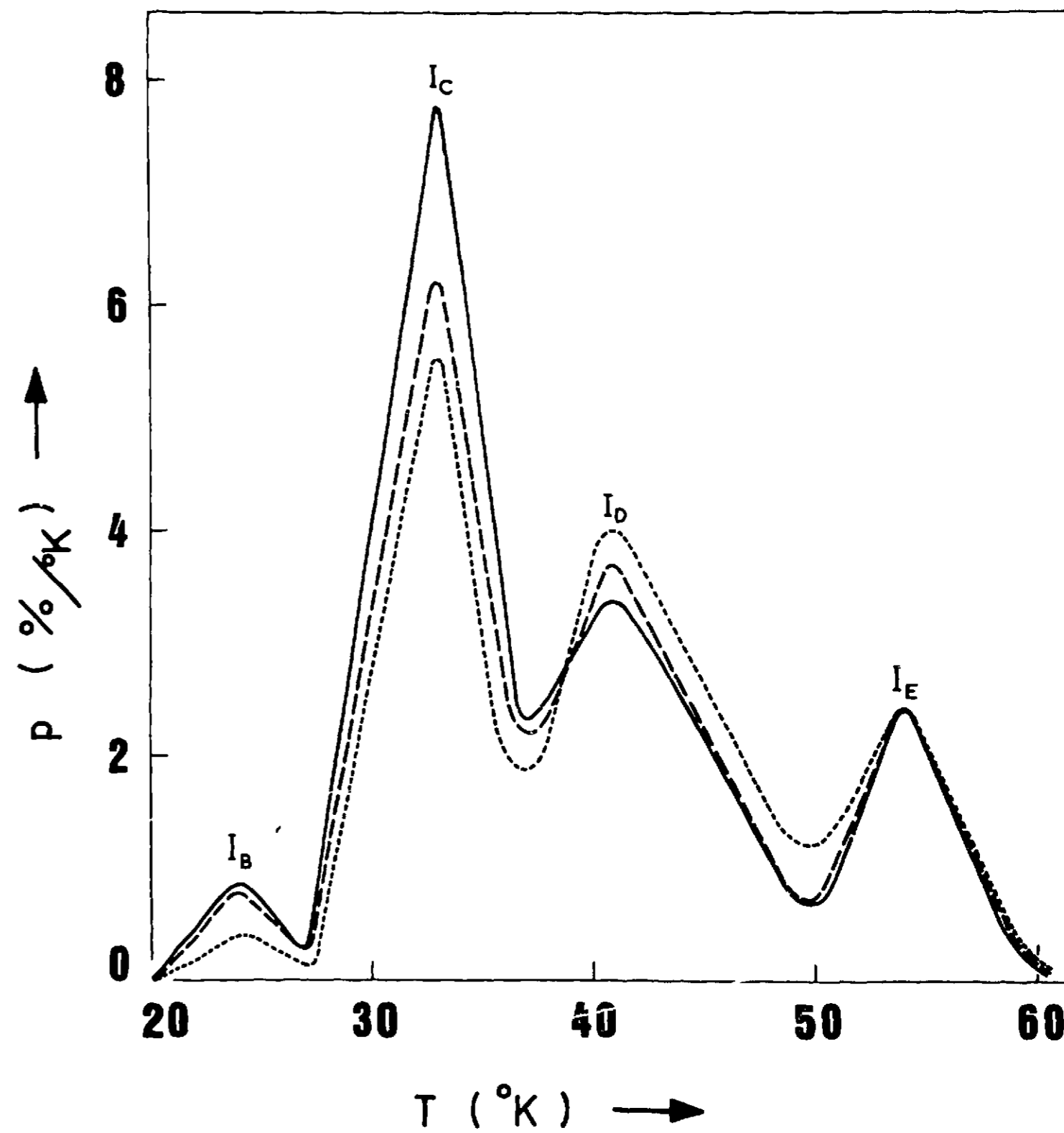
o = points expérimentaux pour le stade  $I_D$



- Figure 20 -

Identification du stade  $I_E$  avec diverses cinétiques

- a) ordre 1
- b) ordre 2



- Figure 21 -

Courbes dérivées de celles de la restauration de la résistivité pour des échantillons de cobalt bombardés par des électrons à des énergies différentes (dose  $0,5 \cdot 10^{18} \text{ é/cm}^2$ )

- 1,4 MeV
- - - 2,2 MeV
- · · 3 MeV



## e) Effet de l'énergie des particules incidentes

Suivant l'énergie incidente des particules choquant un atome du réseau, l'interstitiel est créé plus ou moins loin de sa lacune mère. Les particules de forte énergie favorisent ainsi la production de paires éloignées et la production d'interstitiels libres.

Trois échantillons identiques sont bombardés par des électrons de 1,4 MeV, 2 MeV, 3 MeV. Les durées d'irradiation sont telles que l'accroissement de résistivité  $\Delta\rho_0$  soit le même dans les trois cas. Les résultats sont représentés sur la figure 21. Nous ne pouvons nous prononcer sur le stade  $I_B$  trop proche de la température d'irradiation, mais nous constatons que si l'énergie des électrons incidents augmente  $I_C$  diminue,  $I_E$  semble peu affecté et  $I_D$  augmente.

## f) Montée linéaire en température

Nous avons effectué une étude du revenu de la résistivité en montée linéaire en température (fig. 22).

Seul le stade I peut être étudié car après 80°K la résistivité du cobalt augmente trop rapidement, masquant ainsi l'effet de la décroissance due à la guérison des défauts.

Les sous-stades sont décalés du côté des hautes températures par rapport aux expériences effectuées en montée isochrone, ceci provenant de la vitesse différente des montées en température,

- 3° en 10 minutes pour les expériences en isochrone
- 10° en 10 minutes pour les expériences en montée linéaire.

Nous avons en plus observé une structure fine pour le pic  $I_D$ , ce qui confirme la largeur anormale observée en étude par paliers isochrones, et la superposition de plusieurs processus de guérison obéissant à une cinétique d'ordre un observé en étude isotherme. Le pic  $I_D$  observé à 45°K en montée linéaire se décompose en 3 sous-pics situés respectivement à 42°5 K, 45°5 K et 48°5 K.

## III. 1. 2. 2 - Irradiation par des neutrons rapides

Une irradiation à 77°K par un flux intégré de neutrons rapides de  $2 \cdot 10^{17}$  n.v.t.H d'énergie supérieure à 1 MeV a été effectuée dans la pile Siloé du C.E.N.G.

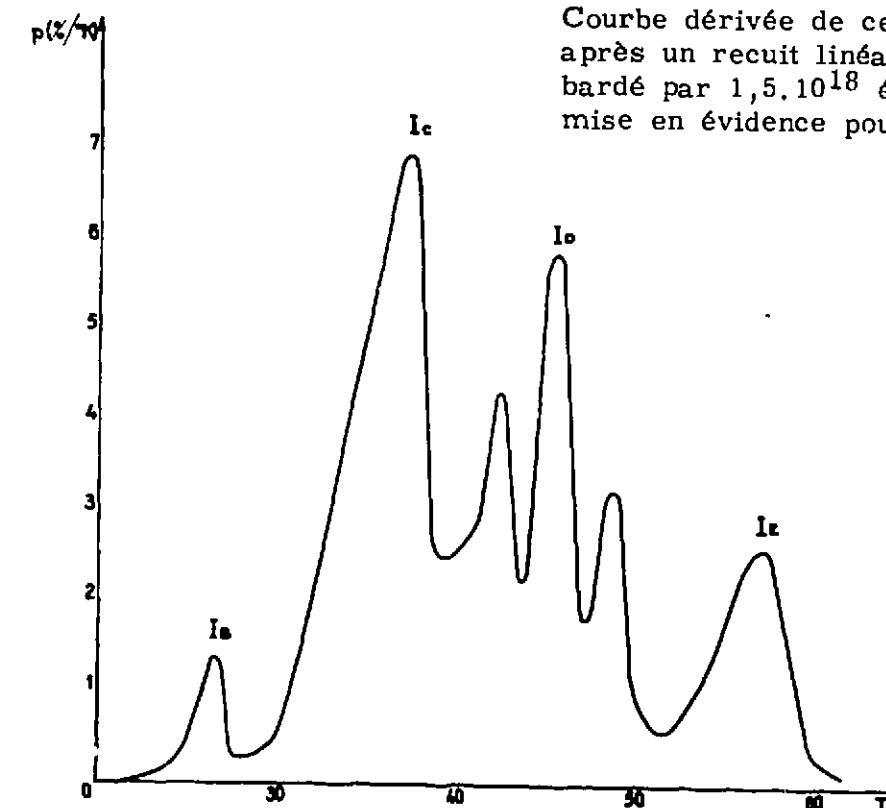
Les stades  $II_B$  et  $II_C$  observés après irradiation par des électrons apparaissent nettement cependant qu'un stade supplémentaire apparaît à 268°K, région où après bombardement électronique, le manque de précision de nos mesures ne permet pas d'affirmer la présence d'un stade.

## III. 2 - MESURE D'ENERGIE LIBEREE

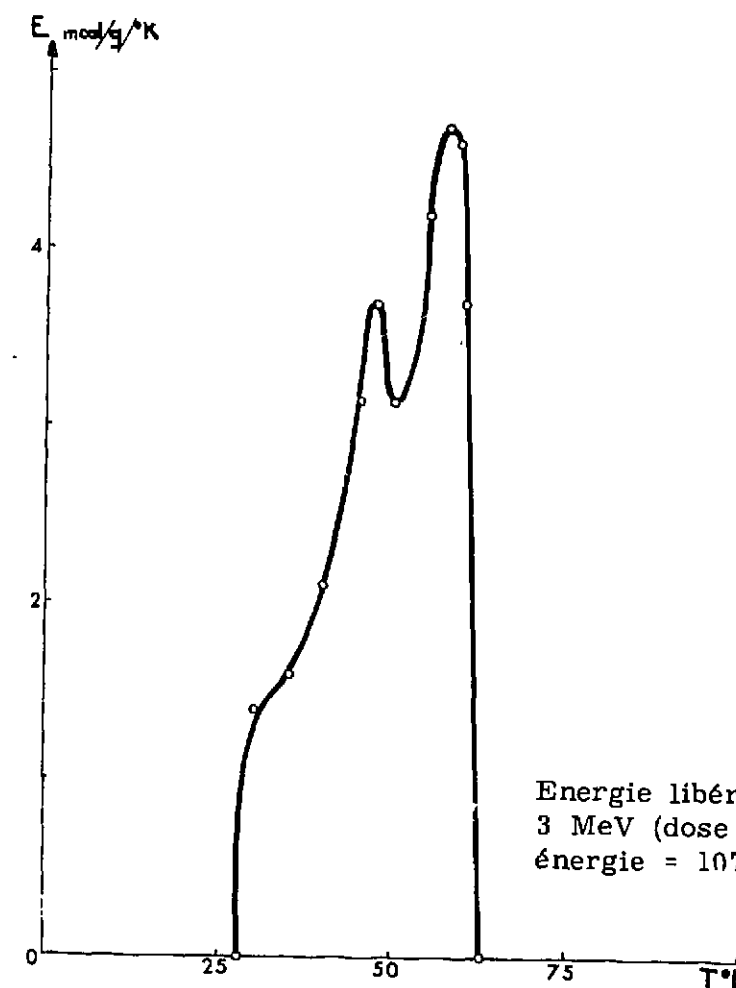
Nous avons utilisé le calorimètre différentiel de la section P.C.B.T. du C.E.N.G. [37].

Deux échantillons de même masse, l'un irradié, l'autre non irradié servant de témoin, sont montés à 28°K (néon liquide) dans le calorimètre. Une montée linéaire en température est programmée sur le témoin. La température de l'échantillon irradié est maintenue identique à celle du témoin par asservissement de la puissance de chauffage. La différence de puissance fournie aux échantillons est égale à l'énergie libérée par la guérison des défauts créés

- Figure 22 -



Courbe dérivée de celles de la restauration de la résistivité après un recuit linéaire pour un échantillon de cobalt bombardé par  $1,5 \cdot 10^{18}$  é/cm<sup>2</sup> de 3 MeV. Une structure fine est mise en évidence pour le stade  $I_D$ .



- Figure 23 -

Energie libérée après une irradiation par des électrons de 3 MeV (dose  $10^{18}$  é/cm<sup>2</sup>, échantillon de 1,006 g., énergie = 107 mcal/g).

dans l'échantillon irradié.

Nous apercevons sur la figure 23 des pics de libération d'énergie seulement en-dessous de 80°K, et ces pics correspondent bien aux pics de résistivité du stade I. L'énergie totale libérée est de 107 mcal/gr, pour une dose d'environ  $10^{18}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>2</sup>. Les doses d'irradiation ne sont pas suffisantes pour permettre de détecter d'éventuels pics de libération d'énergie stockée au-dessus de 80°K.

### RESULTATS GENERAUX

	I				II			III
	I <sub>B</sub>	I <sub>C</sub>	I <sub>D</sub>	I <sub>E</sub>	II <sub>A</sub>	II <sub>B</sub>	II <sub>C</sub>	III
Restauration de la résistivité en %	80 %				17,5 %			2,5 %
	2 %	28 %	36 %	14 %	2,5 %	5 %	10 %	2,5 %
Cinétique de guérison	1	1	3 x 1	1				
E activation	0,05 eV	0,065 eV	0,08 eV	0,12 eV				
ΔT pour doses croissantes variant dans un rapport de 1 à 9	0	0	0	0	-5°	-3°	-4°	
Amplitude relative pour doses croissantes		→	↗	→	→	→	→	
Effet de l'énergie croissante		→	→	→	→	→		
Energie libérée	—————							

### CHAPITRE IV

#### DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

##### IV.1 - CREATION DE DEFAUTS - RESISTIVITE D'UNE PAIRE DE FRENKEL

Les mesures d'énergie libérée peuvent nous donner une idée de la concentration de défauts créés par irradiation dans le cobalt. Celle-ci s'obtient en faisant le quotient de l'énergie totale libérée au cours d'une élévation linéaire de la température par l'énergie libérée lors de la recombinaison d'une paire de Frenkel. Cette dernière valeur est égale à l'énergie de formation et on admet communément qu'elle est environ de 4 eV et qu'elle varie peu d'un métal à un autre.

Après une irradiation de  $10^{18}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>2</sup> de 3 MeV, nous avons obtenu un dégagement de 107 mcal/g, ce qui conduit à une concentration de paires de Frenkel de  $(70 \pm 20) 10^{-6}$ . La grande imprécision provient essentiellement des incertitudes sur le flux. Dans les mêmes conditions d'irradiation et de mesures, un échantillon de fer libère une énergie de 165 mcal/g, ce qui correspond avec les mêmes hypothèses à une concentration de  $(100 \pm 30) 10^{-6}$  [40]. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles obtenues théoriquement.

Ainsi aux incertitudes expérimentales près, nous serions amenés à conclure que la concentration de défauts créés est sensiblement la même dans le cobalt, le fer et vraisemblablement dans le nickel, pour une même dose d'électrons incidents.

En admettant cette hypothèse, nous obtenons la valeur de la contribution à la résistivité d'une paire de Frenkel dans le cobalt. En comparant les accroissements de résistivité, durant une même irradiation, du nickel et du cobalt, nous obtenons  $\Delta\rho_F \simeq 5,5 \mu\Omega.cm$  pour 1 % de paire de Frenkel. Cette valeur est très proche de celle que l'on pouvait estimer d'après la loi empirique proposée par P. LUCASSON. Les valeurs de  $\Delta\rho_F$  sont très différentes dans le fer ( $\Delta\rho_F = 12,5 \mu\Omega.cm$  [15]) le nickel ( $\Delta\rho_F = 3,2 \mu\Omega.cm$  [15]) et le cobalt, ce qui n'a rien d'étonnant vu la structure électronique de ces trois métaux.

##### IV.2 - GUERISON DES DEFAUTS

###### IV.2.1 - Similitude des résultats relatifs au fer, nickel, cobalt

En comparant les résultats obtenus avec des échantillons de fer, nickel et cobalt étudiés au laboratoire dans des conditions analogues, nous remarquons une grande analogie des expériences de résistivité et de celles de traînage magnétique.

Les courbes de revenu de l'accroissement de la résistivité présentent une première

phase de décroissance très rapide, divisée en trois parties (fig. 24,

- la première (sous-stades  $I_A$ ,  $I_B$ ,  $I_C$ ) est associée à de petites bandes de traînage très visibles dans le nickel, moins visibles mais nettes dans le fer, probables mais non détectées dans le cobalt,
- la seconde ne présente jamais de bande de traînage (sous-stade  $I_D$ ),
- la dernière (sous-stade  $I_E$ ) coïncide toujours avec une bande de traînage très nette et très profonde.

Après une brusque rupture de pente, la seconde phase présente des zones de revenu associées à des zones de traînage troubles (bandes larges se déformant en cours de recuit), correspondant à un défaut dont l'énergie de réorientation augmente au cours du traitement thermique.

La restauration de la résistivité est pratiquement terminée à la température ambiante (à 2 % pour le fer et le cobalt, à 5 % près pour le nickel). Le stade III est très faible et aucune bande aussi nette que celle associée au sous-stade  $I_E$  n'a été observée, même en tenant compte d'un facteur de réduction raisonnable.

#### IV.2.2 - Différences entre les résultats relatifs au fer, nickel et cobalt

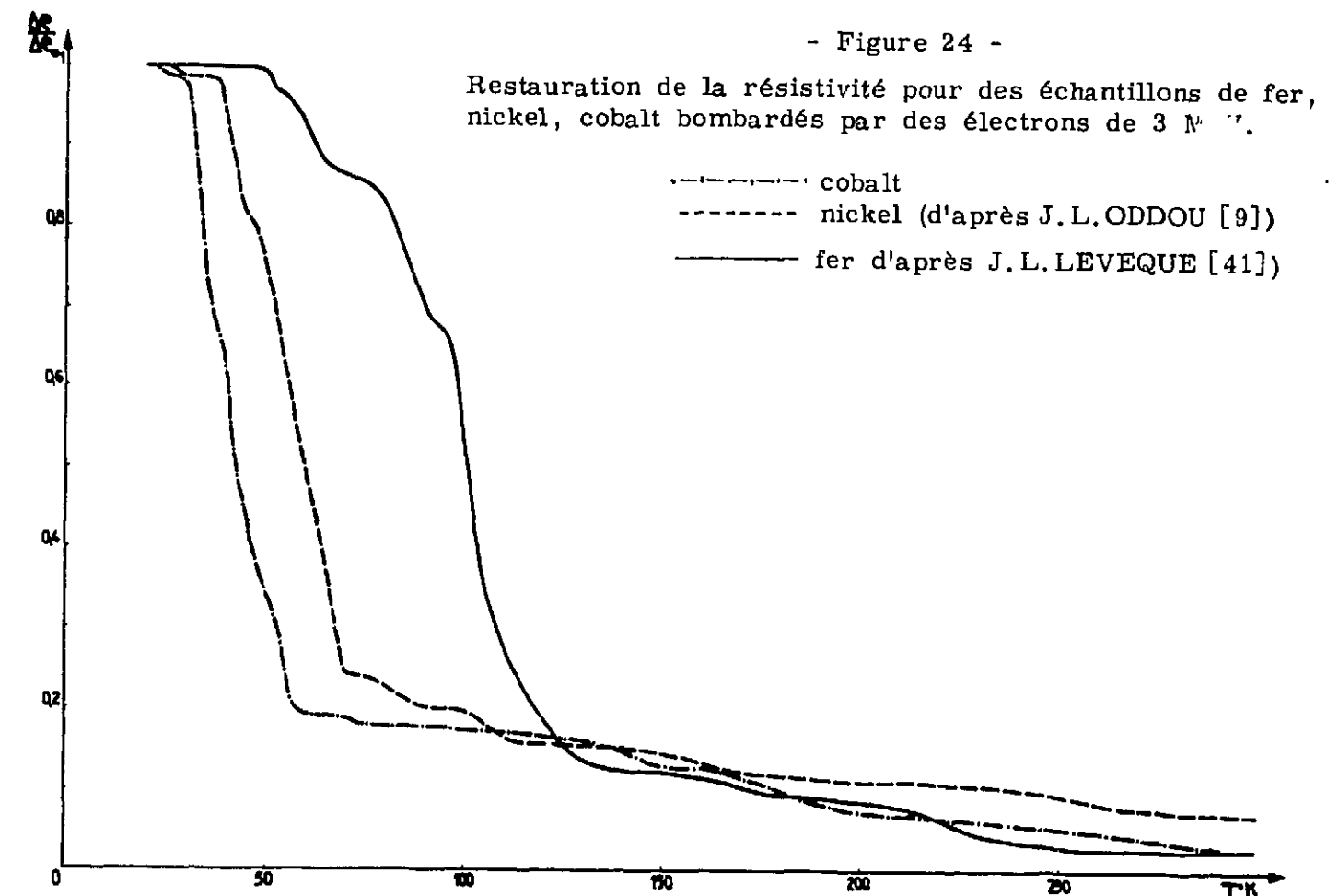
Le cobalt, cependant, présente quelques caractères originaux. Le sous-stade  $I_E$  y est nettement caractérisé ; dans le fer et le nickel, il ne constitue qu'un épaulement noyé dans le stade  $I_D$ . Les expériences en fonction de la dose donnent une cinétique d'ordre un pour la guérison du stade  $I_E$  alors que dans le fer et le nickel cette cinétique est toujours d'ordre supérieur à un. Le stade  $II_A$  semble bien défini et obéit à une cinétique d'ordre deux, il diminue relativement quand la dose augmente, contrairement aux stades II de cinétique supérieure à un dans le fer et le nickel.

#### IV.2.3 - Confrontation des résultats expérimentaux avec différents modèles

Nous examinerons tout d'abord si nos résultats sont explicables par le modèle à deux interstitiels [3, 21], ensuite, nous les confronterons avec le modèle établi antérieurement dans notre laboratoire pour le fer et le nickel, et nous montrerons qu'il est possible de proposer un modèle légèrement différent propre au cobalt et cohérent. Peu de difficultés surviennent au niveau des sous-stades  $I_B$ ,  $I_C$ ,  $I_D$  car les différents modèles sont en bon accord. Les divergences se présentent au niveau des sous-stades  $I_E$  et  $II_A$  et du stade III.

##### IV.2.3.1 - Sous-stades $I_B$ , $I_C$

Ces sous-stades sont habituellement interprétés en supposant qu'ils correspondent à des annihilations de paires de Frenkel proches. Dans le cobalt les résultats convergent dans ce sens. En effet  $I_B$  et  $I_C$  correspondent à des phénomènes simples ; les études de cinétique au cours d'un traitement isotherme donnent un ordre un (fig. 16), et aucun déplacement en température n'est observé quand la dose d'irradiation varie dans un rapport de 1 à 9 (fig. 11, 12). Ces études de cinétique nous permettent de déduire qu'au niveau du stade  $I_C$  l'interstitiel s'annihile dans sa lacune mère au bout d'une dizaine de sauts environ. Lorsque l'énergie des électrons incidents décroît, l'amplitude relative de  $I_B$  et  $I_C$  croît. Un plus grand nombre de paires très



proches sont créées par des électrons de faible énergie. De même, une concentration totale plus grande de défauts augmente l'amplitude relative de ces différents stades.

##### IV.2.3.2 - Sous-stade $I_D$

Le sous-stade  $I_D$  diffère des précédents par sa largeur à mi-hauteur qui est beaucoup plus importante. Un processus unique du premier ordre donnerait  $\Delta T_{1/2} = 6^\circ$  alors que la largeur à mi-hauteur est égale à  $8,5^\circ$ . Toutes les études effectuées sur ce sous-stade (fig. 17, 18, 19, 20) permettent d'affirmer qu'il est la superposition d'au moins trois processus simples d'ordre un. Nous pouvons interpréter  $I_D$  en supposant qu'il correspond à la guérison de différents types de paires proches de plus en plus stables avec des énergies d'activation voisines ainsi que A.V. GRANATO [39] l'avait proposé précédemment. Comme pour  $I_C$  une concentration croissante de défauts augmente son amplitude relative et l'on peut remarquer sur la figure 21 qu'une irradiation à énergie faible (1,4 MeV) produit un basculement de  $I_D$  explicable par une augmentation des paires les plus proches au dépens des paires les plus lointaines.

##### IV.2.3.3 - Sous-stades $I_E$ et $II_A$

Au sous-stade  $I_E$  nettement détaché de  $I_D$  une importante bande de traînage est associée. P. VIGIER [8], après irradiation aux neutrons rapides a observé dans le cobalt une importante bande dont les caractéristiques principales sont les suivantes (fig. 25) :

- température de la zone de réorientation  $42^\circ\text{K}$ - $55^\circ\text{K}$ ,

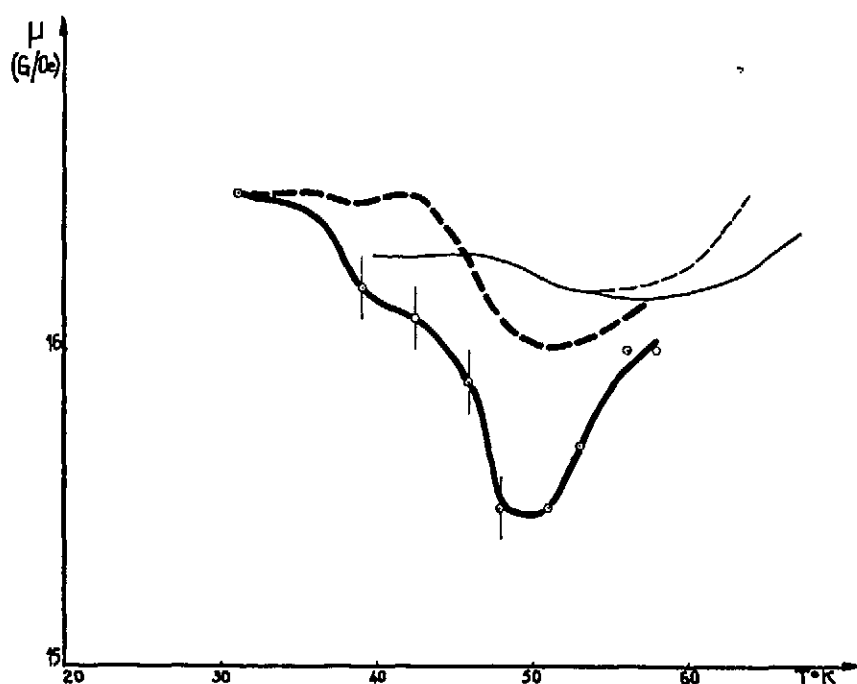
- température de la zone de disparition 45°K - 65°K,
- énergie de réorientation du défaut peu différente de l'énergie de guérison  $E \approx 0,1$  eV,
- profondeur de la bande 6 mOe/gauss.

Une bande analogue a été observée après bombardement électronique [38]. On sait que l'apparition d'une bande de traînage correspond à la réorientation quasi-libre d'un défaut doué d'une anisotropie cristalline. Les calculs de P. MOSER effectués sur les expériences de P. VIGIER indiquent que le nombre de sauts avant annihilation serait d'environ 200.

#### a) Comparaison avec le modèle à deux interstitiels

A partir de ce sous-stade, le modèle à deux interstitiels [3, 21] ne semble pas correspondre à nos résultats.

Une première forme de l'interstitiel se convertirait au niveau du stade  $I_E$  dans une seconde forme plus stable qui se guérirait elle-même au niveau du stade III. Le sous-stade  $I_E$  nous semble bien important pour correspondre à ce phénomène qui ne doit pas provoquer une forte variation de résistivité. Si une seconde forme apparaît alors, une bande de traînage pourrait lui être associée, naissant quand la bande principale I disparaît et s'éliminant au niveau du stade III. Or, nous n'avons rien vu d'équivalent, on peut en conclure que ce deuxième interstitiel n'existe pas ou bien que cette deuxième bande est trop faible pour être détectée par nos moyens de mesure. Par ailleurs, avec ce modèle qui propose au stade II l'annihilation de paires de Frenkel plus éloignées ou le relâchement des complexes formés avec les impuretés, ne peut expliquer des cinétiques d'ordre supérieur à un.



- Figure 25 -

Bande de traînage magnétique observée sur un échantillon de cobalt bombardé par des neutrons rapides (dose  $1,6 \cdot 10^{17}$  n.v.t > 1 MeV. Les courbes en traits fins donnent l'aspect de la bande après un recuit à 58°K) (d'après Pierre VIGIER [8])

#### b) Comparaison avec le modèle proposé dans notre laboratoire

Le modèle établi par P. MOSER [5] dans le fer, puis par P. PERETTO [10] dans le nickel, attribuant le stade  $I_E$  et la bande de traînage associée à l'interstitiel libre, les stades II à la formation de complexes d'interstitiels, conviendrait beaucoup mieux. Il est remarquable en effet de constater une grande similitude entre la bande de traînage principale du fer, du nickel et du cobalt. Nous avons vu qu'après irradiation aux neutrons le défaut se réorientait 200 fois environ avant de disparaître un chiffre identique est observé dans le nickel, et dans le fer, après une irradiation plus forte, il est très peu différent. Il s'agirait ainsi de l'interstitiel se réorientant un grand nombre de fois avant de s'annihiler dans une lacune quelconque ou de former des di-interstitiels qui disparaîtraient essentiellement par agglomération au stade suivant. Nous devons cependant résoudre un premier problème. J.W. CORBETT [22] dans le cuivre, et J.L. ODDOU [9] dans le nickel ont montré que la cinétique de guérison du stade  $I_E$  est d'ordre supérieur à un. Comment expliquer que, dans le cobalt, les résultats expérimentaux indiquent une cinétique d'ordre un pur ?

Dans les conditions habituelles d'irradiation ( $1,510^{18}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>2</sup>) les concentrations de défauts sont estimées à  $15010^{-6}$ . Les distances moyennes entre lacunes sont de 15 à 20a (a = paramètre du réseau).

Nous émettrons deux hypothèses :

La zone d'attraction de la lacune est assez grande de l'ordre de 5 à 10 a.

Les chocs focalisés sont de portée assez faible légèrement supérieure à la zone d'attraction de la lacune.

Ainsi au stade  $I_E$  migrerait librement un interstitiel susceptible de se réorienter, dont la probabilité de retour dans la lacune mère serait plus importante que celle d'une migration dans une autre lacune. Ce phénomène rendrait compte de l'ordre un de la cinétique de guérison et de l'effet de diminution de l'amplitude relative de  $I_E$  au profit de celle de  $I_C$  et  $I_D$  lorsque la concentration de défauts augmente. Aux doses croissantes, la superposition aléatoire des zones d'interaction réduirait le nombre d'interstitiels libres au profit des paires proches.

Pour vérifier définitivement l'hypothèse de l'interstitiel libre en  $I_E$  il est nécessaire de compléter les expériences de traînage magnétique, de mesurer précisément le nombre de réorientation effectuées par l'interstitiel au cours de sa vie et d'en étudier la variation en fonction de l'énergie et de la dose des particules incidentes ; de plus, des mesures de résistivité aux très fortes doses montreraient peut-être un déplacement de la température du stade  $I_E$ .

Le deuxième problème à résoudre est celui posé par le stade  $II_A$ . Ce stade présente dans le cobalt un caractère net de stade pur, et sa cinétique de guérison déterminée par le déplacement en température lorsque la dose augmente semble être du second ordre ; par ailleurs, son amplitude relative diminue lorsque la dose augmente, ce qui est difficile à interpréter si  $II_A$  est relié aux di-interstitiels. Ce modèle ne s'adaptant pas parfaitement au cas du cobalt, nous avons donc été conduits à modifier légèrement ce modèle.

#### c) Proposition d'un modèle propre au cobalt

Le stade  $II_A$  est attribué à l'interstitiel libre migrant sans se réorienter, impossibilité due au caractère uniaxial du cobalt. (A titre d'exemple, deux structures possibles de cet interstitiel sont présentées sur la figure 26. Dans ces deux exemples, l'interstitiel libre ne peut donner lieu à du traînage puisque, avant et après saut de migration, il garde la même direction d'anisotropie par rapport à l'aimantation spontanée). La cinétique et la variation en fonction

de la dose du stade sont alors bien expliquées.

Au stade  $I_E$  s'annihile, une paire proche de type bien particulier puisqu'elle est reliée à une bande de traînage magnétique. Sur la figure 27, nous montrons un couple de deux défauts ne présentant pas individuellement de traînage. Ce couple peut présenter une direction d'anisotropie A susceptible de se réorienter car inclinée par rapport à l'axe C et ainsi donner lieu à du traînage. Le grand nombre de réorientations (200) avant annihilation dans la lacune mère serait expliqué par une migration plus facile dans les plans perpendiculaires à l'axe C que le long de cet axe.

Signalons que FEDERIGHI [43] dans le cas de l'aluminium a déjà attribué la migration libre de l'interstitiel au stade  $II_A$ . Au niveau du stade I par contre, nos deux interprétations diffèrent car il affecte ce stade à la migration du crowdion alors que nous pensons qu'il s'agit de la même forme d'interstitiel qui est, cette fois-ci, en interaction avec sa lacune mère.

#### Sous-stades $II_B - II_C$

Après bombardement électronique, deux sous-stades apparaissent à 140°K et 180°K environ, et après bombardement par des neutrons rapides, nous avons vu qu'un troisième sous-stade apparaissait vers 270°K correspondant probablement au sous-stade observé vers 250°K par R. WRUCK et C. WERT [19] après bombardement par des deutérons de 12 MeV ;

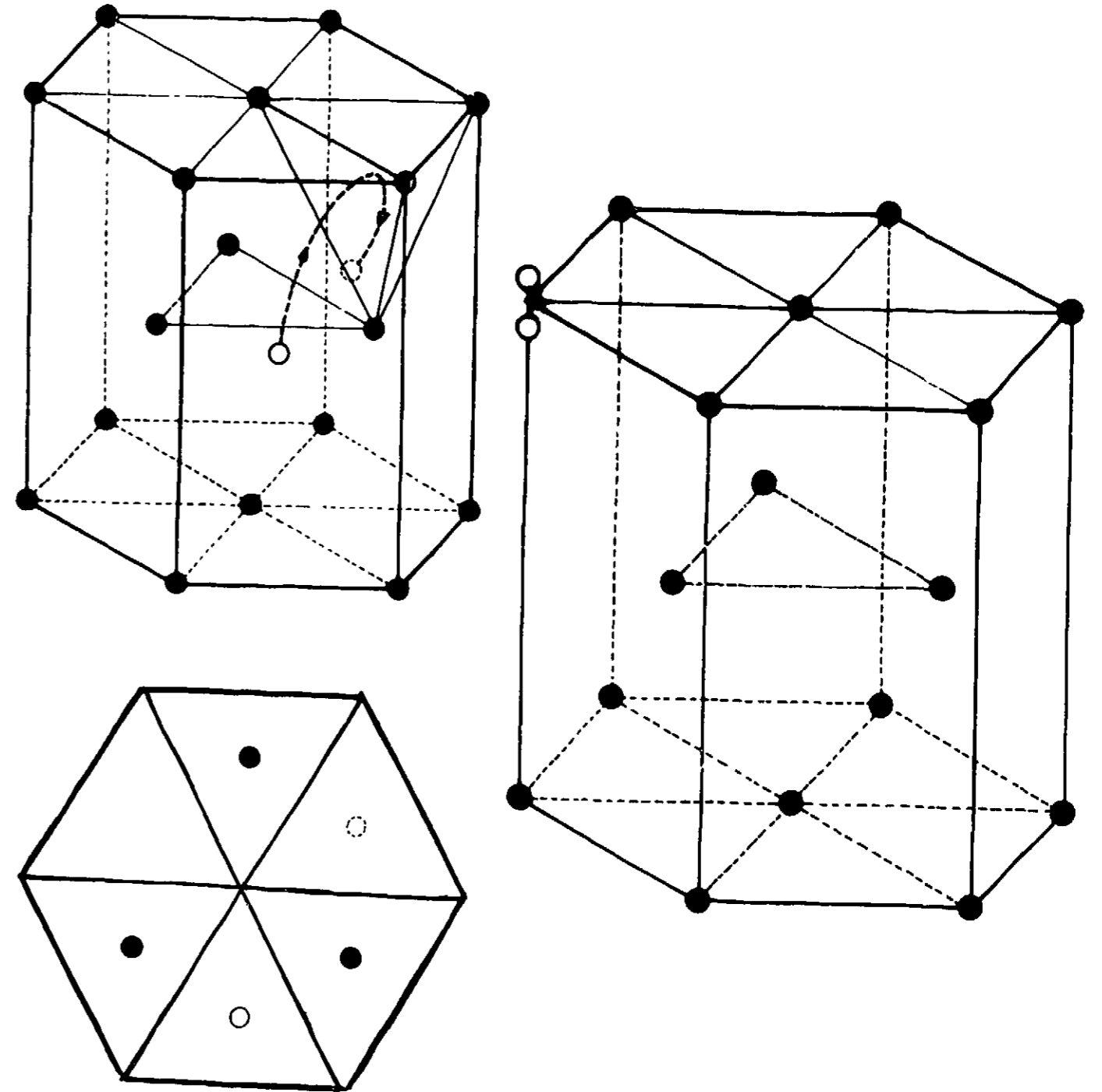
Nous pouvons, comme le propose ROSER, admettre un processus de formation, réarrangement et destruction continue d'agglomérats de défauts élémentaires et plus précisément, au stade  $II_B$  pourrait correspondre la migration de di-interstitiels vers les lacunes [9]. Le déplacement en température de -3° à -4° lors d'une irradiation à dose croissante est explicable.

#### Stade III

Le stade III très faible dans le cobalt irradié par des électrons (2 % de l'accroissement total) est donc difficile à interpréter.

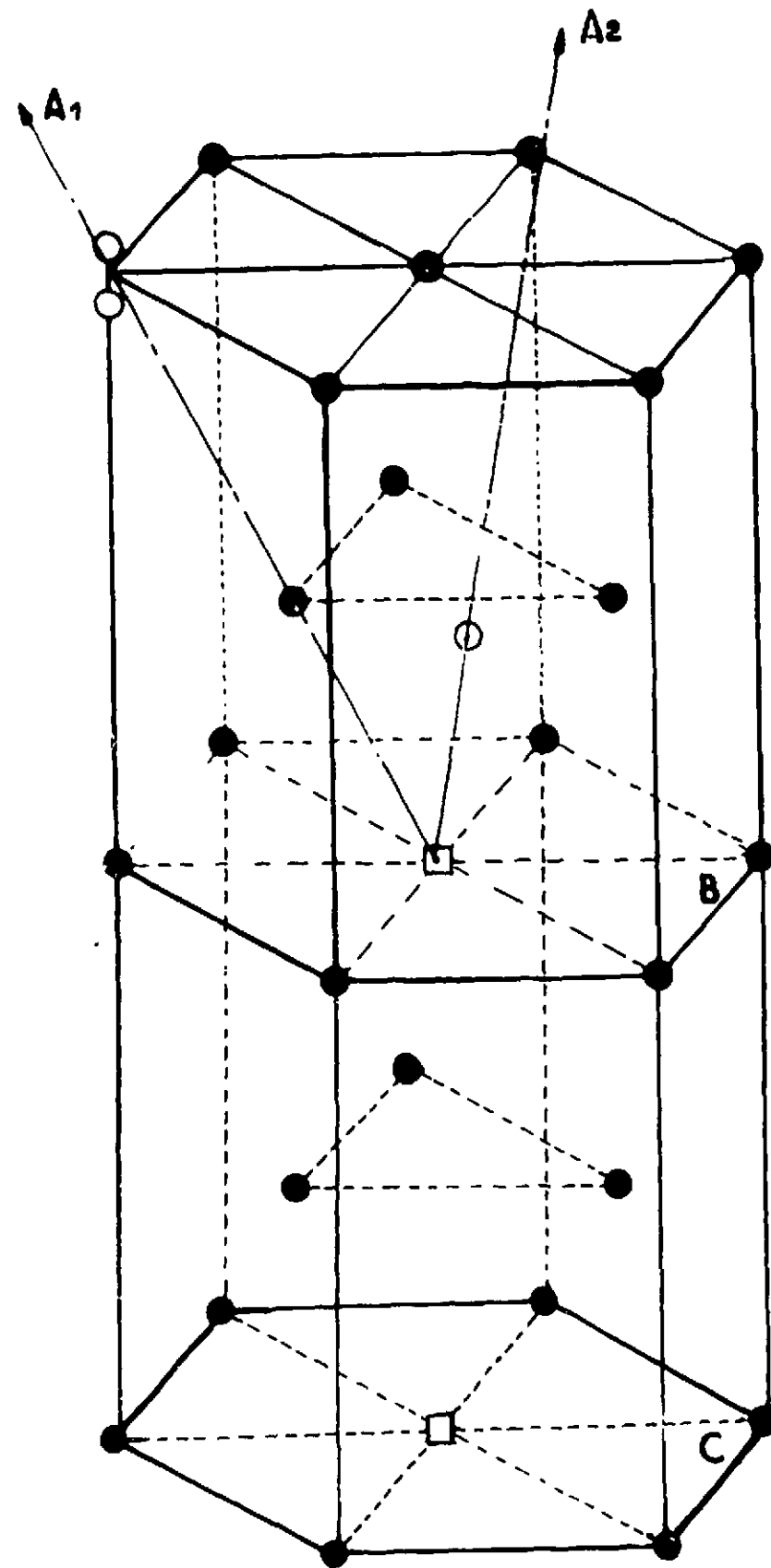
A.A. ZWETAEW [28] et L. GERWARD [29] par des mesures différentes, après déformation à froid, observent une énergie d'activation de l'ordre de 1 eV au-dessus de 300°K. Or, R. KAMEL et K.S. BOTROS [44] donnent la valeur de 1,27 eV comme énergie d'activation des lacunes qui migreraient donc à température plus élevée.

Le stade III pourrait peut-être s'expliquer par la disparition des bilacunes qui rencontraient des monolacunes ou d'autres complexes de lacunes ou des agglomérats d'interstitiels comme le propose P. PERETTO dans le nickel [10].



- Figure 26 -

Deux structures possibles d'un interstitiel ne donnant pas lieu à du traînage magnétique



- Figure 27 -

Deux paires proches possibles (0 : interstitiel, □ : lacune) présentant une direction d'anisotropie A susceptible de se réorienter et de donner lieu ainsi à du traînage magnétique. La lacune peut se trouver soit dans le plan B soit dans le plan C.

## CONCLUSION

La grande similitude de comportement après irradiation, du fer, du nickel et du cobalt, nous a conduit à essayer d'adapter le modèle déjà proposé dans les deux premiers métaux, au cas du dernier. Moyennant un certain nombre d'hypothèses supplémentaires dans le cobalt, nous interprétons alors les stades  $I_B$ ,  $I_C$ ,  $I_D$  comme guérison de paires de Frenkel proches et le stade  $I_E$  comme l'annihilation de l'interstitiel libre. De petites difficultés se présentent alors pour l'interprétation du stade II.

Une variante de ce modèle nous permet de les résoudre : l'interstitiel libre dans le cobalt, ne provoquerait pas de traînage magnétique du fait du caractère uniaxial de ce métal, qui n'existe ni dans le fer, ni dans le nickel. A proximité d'une lacune, l'anisotropie locale donnerait lieu dans certains cas à un phénomène de traînage magnétique. Dans cette optique, le stade  $I_E$  serait rattaché à l'annihilation d'une paire de Frenkel proche et le stade  $II_A$  à la migration de l'interstitiel libre.

Un choix définitif entre ces interprétations nécessite encore des renseignements supplémentaires qui seront apportés par des mesures de frottement interne, traînage magnétique, après irradiation ou trempe sur des polycristaux, mais également des monocristaux.

*Manuscrit reçu le 30 juillet 1968*

## REFERENCES

- [ 1 ] A. LUCASSON, P. LUCASSON  
J. Phys. Chem. Solids 27, p. 1423 (1966)
- [ 2 ] P.G. LUCASSON, R.M. WALKER  
Phys. Rev. 127, n° 4, p. 1130 (1962)
- [ 3 ] A. SEEGER  
Symposium on radiation damage ; L.A.E.A., Venise 7-11 mai 1962
- [ 4 ] C. MINIER-CASSAYRE  
Thèse Grenoble 1965 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [ 5 ] P. MOSER  
Mémoire Scientifique de la revue de Métallurgie 63, 4 et 5, (1966)
- [ 6 ] E. BONJOUR, P. MOSER  
C.R. Acad. Sc. 257, 1256 (1963)
- [ 7 ] D. DAUTREPPE, V. HIVERT, P. MOSER, A. SALVI  
C.R. Acad. Sc. Paris, 258, p. 4539 (1964)
- [ 8 ] P. VIGIER  
Thèse Grenoble 1966 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [ 9 ] J.L. ODDOU  
Thèse Grenoble 1967 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [10] P. PERETTO  
Thèse Grenoble 1967 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [11] G. DE KEATING-HART  
Thèse Grenoble, 1968 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [12] J.L. ODDOU, C. MINIER CASSAYRE, P. MOSER  
Phys. Stat. Sol. 17, p. 793 (1966)
- [13] P. MOSER, P. PERETTO, D. DAUTREPPE, P. VIGIER  
J. Appl. Phys. 36, 3 (part 2) p. 1227 (1965)
- [14] G.H. KINCHIN, R.S. PEASE  
Rept. Progr. in Phys. 1955, 18, p. 1

- [15] P.G. LUCASSON, R.M. WALKER  
Phys. Rev. 127, 2, p. 485 (1962)
- [16] O.S. OEN  
O.R.N.L., 3813, U.C. 34 - Physics 1965
- [17] C. ERGINSOY, G.H. VINEYARD, A. SHIMIZU  
Phys. Rev. 139, I.A. p. 118 (1965)
- [18] J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, M. MILGRAM, G.M. VINEYARD  
Phys. Rev. 120, 1229 (1960)
- [19] R. WRUCK, C. WERT  
Acta Met., 3, 115 (1955)
- [20] G.J. MEECHAN, A. SOSIN, J.A. BRINKMAN  
Phys. Rev. 120, 411 (1960)
- [21] G. DUESING, H. HEMMERICH, D. MEISSNER, W. SHILLING  
Phys. Stat. Sol. 23, 481 (1967)
- [22] J.W. CORBETT, R.B. SMITH, R.M. WALKER  
Phys. Rev. 114, 1452 (1959)
- [23] P.G. PARTRIDGE  
Met. Rev. 1, p. 169 (1967)
- [24] D.A. CHANNING, S. WEINTROUB  
Can. J. Phys. 43, p. 1328 (1965)
- [25] R.R. COLTMAN, C.E. KLABUNDE, J.K. REDMAN  
Phys. Rev., 150, 715 (1967)
- [26] H. BILGER, H. KRONMÜLLER  
Phys. Stat. Sol., 22, p. 683 (1967)
- [27] J.V. SHARP, A. MITCHELL, J.W. CHRISTIAN  
Acta. Met., 13, p. 965 (1965)
- [28] A.A. ZWETAEW, R.K. TSCHUECHKO, N. GOLOWANOW  
Phys. Stat. Sol. 4, p. 299 (1964)
- [29] L. GERWARD  
Phys. Stat. Sol. 22, p. 659 (1967)
- [30] W. PFANN,  
Zone Melting Wiley  
Series on the Science and Technology of materials (1959)
- [31] H.M. ROSENBERG  
Phil. Trans. Ray. Soc. A., 247, p. 441 (1954-1955)
- [32] G. MANZAGOL, G. SAUVIGNE, J. VERDIER  
Note C.E.A. (à paraître)
- [33] R. PICHON  
Thèse Grenoble à paraître (C.E.N.G., B.P. 269)

- [34] J.V. SHARP  
Phil. Mag. 16, 139, p. 77 (1967)
- [35] P. BOYER  
Thèse Grenoble 1963 (C.E.N.G., B.P. 269)
- [36] A.J. BOSMAN  
Thèse Amsterdam (1960)  
DRUKKERIJ WED. G. VAN, Soest, Amsterdam
- [37] E. BONJOUR  
Note interne P.C.B.T. 88 - C.E.N.G. (1964)
- [38] J. VERDONE, P. PERETTO, P. MOSER, D. DAUTREPPE, J. VERDIER  
C.R. Acad. Sc. 260, p. 5209 (1965)
- [39] A.V. GRANATO, T.G. NILAN  
Phys. Rev. 137, 4A p. 1250 (1965)
- [40] J. VERDONE  
Communication personnelle
- [41] J.L. LEVEQUE  
Thèse C.E.N.G. à paraître (Grenoble B.P. 269)
- [42] R.R. COLTMAN, C.E. KLABUNDE, D.L. Mc DONALD, J.K. REDMAN  
J. Appl. Phys. 33, p. 3509 (1962)
- [43] T. FEDERIGHI, S. CESARA and F. PIERAGOSTINI  
Phil. Mag. 12, 1093 (1965)
- [44] R. KAMEL, K.Z. BOTROS  
Phys. Stat. Sol. 12, 399 (1965)



**FIN**