
PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

8.4

CONTRIBUTION A L'ETUDE
DES DEFAUTS PONCTUELS
CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE
DANS LE NICKEL

par

Jean-Louis ODDOU

Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble

Rapport CEA - R - 3605

1968

Fa

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

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

CEA-R-3605 - ODDOU Jean-Louis

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS
CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE
NICKEL

Sommaire. - Après avoir brièvement rappelé les techniques expérimentales que nous avons utilisées pour cette étude, nous exposons les résultats expérimentaux obtenus sur des échantillons de nickel pur.

Les stades successifs d'annihilation des défauts ponctuels créés par bombardement électronique sont mis en évidence par traitements thermiques isochrones ; les cinétiques de disparition, et les énergies d'activation correspondantes sont déterminées. Nous étudions également l'effet de la dose des particules incidentes.

CEA-R-3605 - ODDOU Jean-Louis

CONTRIBUTION TO THE STUDY OF POINT DEFECTS
FORMED IN NICKEL BY ELECTRON BOMBARDMENT

Summary. - After a short account of the experimental techniques employed in our studies, the experimental results obtained on pure nickel samples are exposed.

The apparition of the successive annihilation stages of point defects created by electron bombardment is established by isochronal heat treatments ; the annihilation kinetics and the corresponding activation energies are determined. The effect of the incident particle dosis is also studied.

The experimental results are then compared with R. A. JOHNSON's theoretical calculations of the stability and the migration of point defects in nickel, and taking into account the results obtained by PERETTO in magnetic after

Les résultats expérimentaux sont ensuite comparés avec les calculs théoriques de R.A JOHNSON sur la stabilité et la migration des défauts ponctuels dans le nickel, en tenant compte des résultats de traçage magnétique obtenus par P. PERETTO. Nous en déduisons un modèle en bon accord avec les calculs et les résultats expérimentaux au niveau des premiers stades.

Dans une seconde partie, nous étudions le nickel contenant certaines impuretés. Nous exposons d'abord les résultats concernant le taux d'accroissement de la résistivité, fonction de la pureté de l'échantillon. Deux explications possibles du phénomène observé sont proposées : déviation à la règle de Matthiessen ou augmentation du nombre de défauts créés en présence d'impuretés. Ensuite, une étude de la

effect measurements. This leads us to a model in good agreement with calculations and experiment for the first stages.

In a second chapter the behaviour of nickel doped by certain impurities is studied. First, the results concerning the rate of increase of resistivity (function of sample purity) is investigated. Two possible explanations of the observed phenomenon are proposed : either a deviation with respect to Matthiessen's law, or an increase of the number of defects formed in the presence of impurity atoms. Finally, a study of the resistivity recovery of the doped samples

restauration de la résistivité des échantillons impurs permet de proposer un ordre de grandeur de l'énergie de liaison interstitiel-impureté dans le nickel.

1968

65 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

permits us to suggest an order of magnitude for the binding energy interstitial/impurity atom in the nickel matrix.

1968

65 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

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

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS
CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE NICKEL

par

Jean-Louis ODDOU
Thèse de Docteur du 3ème cycle
Spécialité : Physique du Solide

- Décembre 1968 -

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, en a suivi le développement avec attention et bienveillance, et m'a accordé toutes les facilités pour la poursuivre.

Monsieur le Professeur SOUTIF, mon Directeur d'Enseignement, Monsieur le Professeur BARBIER et Monsieur P. AVERBUCH, Maître de Recherches au C.N.R.S. ont bien voulu faire partie du Jury. Je les en remercie.

Madame C. MINIER, par ses conseils et sa compétence, a été en permanence un guide précieux dans l'élaboration de ce travail. Qu'elle trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je remercie sincèrement Monsieur P. MOSER pour ses conseils éclairés dans la réalisation des expériences, et ses critiques très objectives dans la discussion des résultats.

J'adresse également mes vifs remerciements à Monsieur P. PERETTO pour les nombreuses, amicales et fructueuses discussions que nous avons eues.

Les expériences n'auraient pu être réalisées sans la collaboration des Sections des "Basses Températures" et des "Accélérateurs". Je tiens à remercier le personnel de ces Sections et en particulier Monsieur J. MUEL.

Je remercie également le personnel du Pool Dactylographique et de l'Imprimerie ainsi que celui du Secrétariat du Service de "Physique du Solide et Résonance Magnétique", et en particulier Madame S. LAFFON et Mademoiselle M. SALVI.

Enfin, je voudrais remercier tous mes amis et le personnel de "Physique du Solide et Résonance Magnétique" qui me sont toujours venus en aide avec sympathie et efficacité.

Parmi eux, je tiens à remercier particulièrement Monsieur F. VANONI qui a élaboré les échantillons, et Monsieur G. BAUDRAND pour son aide compétente et l'habileté dont il a fait preuve lors de la réalisation des expériences.

TABLE DES MATIERES

- I - INTRODUCTION
- II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES
 - II.1 - Elaboration des échantillons
 - II.2 - Techniques d'irradiation
 - II.3 - Techniques de recuits et de mesures de résistance
- III - NICKEL PUR - RESULTATS EXPERIMENTAUX
 - III.1 - Création de défauts
 - III.2 - Mise en évidence des stades de restauration
 - III.3 - Restauration de la résistivité par traitements isothermes
 - III.3.1 - Sous-stade I_B
 - III.3.2 - Sous-stade I_C
 - III.3.3 - Sous-stade I_D
 - III.3.4 - Sous-stade I_E
 - III.3.5 - Récapitulation
 - III.4 - Restauration de la résistivité par traitements thermiques isochrones -
Largeur naturelle des stades
 - III.5 - Effet de la dose et de l'énergie des électrons incidents
 - III.5.1 - Effet de la dose
 - III.5.2 - Effet de l'énergie des électrons incidents
- IV - NICKEL PUR - DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX
 - IV.1 - Stade I
 - IV.1.1 - Interprétation du stade I par P. PERETTO
 - IV.1.2 - Sous-stades I_B et I_C
 - IV.1.3 - Sous-stade I_D
 - IV.1.4 - Sous-stade I_E
 - IV.1.5 - Remarques sur l'analyse du stade I

- IV.2 - Stade II
 - IV.2.1 - Interprétation du stade II par P. PERETTO
 - IV.2.2 - Sous-stade II_A
 - IV.2.3 - Sous-stade II_B
 - IV.2.4 - Sous-stades II_C et II_D
 - IV.2.5 - Remarques sur l'analyse des sous-stades II_B, II_C et II_D
 - IV.3 - Stade III
 - IV.4 - Conclusion
- V - NICKEL FAIBLEMENT ALLIÉ - RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION
- V.1 - Production de défauts
 - V.1.1 - Hypothèse de base
 - V.1.2 - Si nous acceptons cette hypothèse, ...
 - V.1.3 - Si nous rejetons cette hypothèse, ...
 - V.1.4 - Conclusion
 - V.2 - Restauration de la résistivité par traitements thermiques isochrones
 - V.2.1 - Mise en évidence des stades de restauration
 - V.2.2 - Modification des stades de restauration du nickel pur
 - V.2.3 - Apparition des stades supplémentaires
 - V.2.3.1 - Nickel contenant du fer
 - V.2.3.2 - Efficacité de piégeage des diverses impuretés
 - V.2.4 - Conclusion
- VI - CONCLUSION

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS CREES PAR BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE DANS LE NICKEL

CHAPITRE I

INTRODUCTION

Nous avons entrepris ce travail dans le but d'apporter une contribution à l'étude des défauts ponctuels créés par irradiation. Ce problème intéresse de nombreux chercheurs depuis 1942, date de l'accident survenu à une pile uranium-graphite, accident qui a conduit à la découverte de l'effet WIGNER.

Ce sujet n'est donc pas nouveau et de très nombreuses publications ont été écrites sur cette question. Dans le cadre des études sur les métaux, il a été montré qu'une irradiation entraîne une augmentation de la résistivité, cette augmentation s'éliminant au cours d'un traitement thermique (annihilation des défauts). Avec un recuit isochrone, cette élimination s'effectue en cinq stades naturellement dénommés I, II, III, IV et V ; le stade I correspond à la température la plus basse.

Les métaux les plus étudiés ont été les cubiques à faces centrées, en particulier le cuivre. Signalons les remarquables travaux de R.M. WALKER (réf. [1]) sur le cuivre dont la qualité des mesures n'a pu être égalée que récemment. Ce chercheur a montré que le stade I du cuivre irradié à 4°K présente une structure fine. Plus précisément, ce stade est divisé en différents sous-stades :

- les sous-stades I_A, I_B, I_C, nets mais peu importants, respectivement situés aux températures de 17°K, 28°K et 32°K dans ses conditions expérimentales ;
- le sous-stade I_D, très important, centré à 40°K ;
- enfin, le sous-stade I_E, net mais peu important, centré à 50°K pour une dose moyenne d'irradiation aux électrons, mais dont le domaine de température augmente si la dose diminue.

R.M. WALKER interprétait ses résultats en imaginant que les sous-stades I_A, I_B et I_C représentent l'annihilation des paires proches (interstitiel attiré par sa lacune-mère et retombant dans celle-ci après un très petit nombre de sauts), le sous-stade I_D l'annihilation de l'interstitiel migrant au hasard et retombant dans sa lacune-mère, et le sous-stade I_E l'annihilation de l'interstitiel libre retombant dans une lacune quelconque.

Mais parallèlement aux études de WALKER, d'autres travaux entrepris sur le même sujet conduisaient à une interprétation tout à fait différente. C'est ainsi que certaines écoles (MEECHAN, SOSIN et BRINKMAN (réf. [2]), SEEGER (réf. [3])) ont affirmé que l'interstitiel libre migre non pas au niveau du sous-stade I_E, mais au niveau du stade III, c'est-à-dire au voisinage de la température ambiante.

C'est dans ce contexte que le Laboratoire de Physique du Solide a commencé ses tra-

vaux en 1958. Afin de rattraper le retard, il fallait aborder le problème d'une manière nouvelle qui permette éventuellement de trancher entre les interprétations divergentes de ces écoles. Il apparaissait que tous ces chercheurs étrangers utilisaient chacun une seule technique, qui, le plus souvent, était la mesure de la résistivité. Ainsi, l'orientation choisie a été l'accumulation de techniques le plus variées possible sur un problème unique. Au début, le choix du Laboratoire s'est porté sur le fer, métal cubique centré, peu étudié et il a été décidé d'étudier ce métal simultanément par deux méthodes : la résistivité et le traînage magnétique (ainsi le Laboratoire pouvait profiter de l'héritage des connaissances en magnétisme accumulées antérieurement à Grenoble).

Les premières expériences d'irradiation aux neutrons ont révélé l'existence d'un défaut bien défini, susceptible de se réorienter et de s'annihiler au bout de 100 ± 20 sauts au niveau du stade I. Ces arguments conduisent à identifier ce défaut à l'interstitiel libre. Aucun défaut équivalent n'a pu être retrouvé au niveau du stade III (Réf. [4] et [5]). A l'aide de cet ensemble d'expériences, s'est développé un modèle beaucoup plus proche de celui proposé par WALKER que du modèle M-S-B - SEEGER.

D'autres techniques ont été adjointes, et elles ont confirmé et complété ce modèle (frottement interne (réf. [6]), énergie stockée (réf. [7]), mesures de longueurs (réf. [8]).

Ce genre d'études a été poursuivi sur le nickel, métal ferromagnétique, comme le fer, et de structure cubique à faces centrées, comme le cuivre.

Dans ce mémoire, nous présentons un travail sur la résistivité du nickel bombardé par des électrons. Les premiers résultats obtenus en résistivité, comparés aux expériences de traînage magnétique, ont d'ailleurs contribué à l'élaboration d'un modèle par P. PERETTO (réf. [9]). Nous avons tenté de préciser, ou du moins de confirmer ce modèle grâce à de nouvelles expériences de résistivité sur des échantillons de nickel pur irradiés par des électrons. Nous avons également essayé de voir les modifications apportées par la présence d'impuretés, délicat problème dont nous nous proposons de continuer l'étude au moyen d'autres techniques expérimentales.

CHAPITRE II

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II.1 - ELABORATION DES ECHANTILLONS

Le matériau de base utilisé est du nickel Lights purifié par la méthode de la fusion de zone (20 passes). La teneur en impuretés est ainsi de l'ordre de quelques 10^{-4} % atomiques (cf. tableau I). Nous pouvons alors incorporer une concentration connue d'atomes étrangers, l'alliage étant homogénéisé par chauffage sous atmosphère d'hélium.

Par passage dans des filières en diamant, les échantillons sont mis sous forme de fils de 0,2 mm de diamètre.

Un recuit ultérieur à 880°C sous atmosphère d'hydrogène ou d'hélium restaure les propriétés mécaniques de l'échantillon.

II.2 - TECHNIQUES D'IRRADIATIONS

Les échantillons sont irradiés par le faisceau d'électrons produit par un accélérateur Van de Graff (énergie des électrons comprise entre 1 et 3 MeV). Le cryostat d'irradiation à la température de l'hydrogène liquide a été conçu à la section "Physico-Chimie Basses Températures" du C.E.N.-G. (réf. [10]).

Le porte-échantillon utilisé consiste en un cadre léger en inox, soudé à un tube mince de même matière. Les échantillons sont placés entre deux feuilles de mica attachées au cadre et les fils de mesure (intensité, tension et thermocouple) remontent à l'intérieur du tube.

Ce porte-échantillon présente plusieurs avantages. Il est très simple et néanmoins permet de protéger très bien les échantillons (et en particulier les soudures fragiles) lors des diverses opérations de défournement et de traitements thermiques. Il est possible également d'irradier plusieurs échantillons rassemblés en utilisant plusieurs feuilles de mica superposées : il nous a été nécessaire de procéder ainsi lorsque nous avons voulu effectuer des recuits simultanés d'échantillons afin de réaliser une étude comparative correcte.

Mais ce porte-échantillon présente l'inconvénient de ne pas mettre les fils à irradier directement en contact avec l'hydrogène liquide. De ce fait, la température au niveau des échantillons peut, en cours d'irradiation, être supérieure à celle de l'hydrogène liquide de quelques 5 à 7 degrés. Cela nous a gênés pour l'étude du premier sous-stade de restauration.

L'emploi de ce porte-échantillon nous a permis de réaliser un dispositif d'irradiation particulièrement adapté aux études en fonction de la dose ou de l'énergie des électrons inci-

Elément	Concentration en ppm at.	Elément	Concentration en ppm at.
Li	0,065	Ca	0,35
C	20	Sc	< 0,035
N	0,17	Ti	0,1
O	20	V	< 0,035
F	1	Cr	0,08
Na	0,1	Mn	< 0,035
Mg	0,3	Fe	3
Al	4	Co	< 0,75
Si	< 1	Cu	< 0,07
S	< 1	Zn	< 0,12
Cl	0,6	Ag	0,15
K	0,6		

TABLEAU I - Analyse par spectrométrie de masse à étincelles d'un échantillon de nickel Lights préparé par la méthode de la zone fondue. Analyse faite par Melle M. BOISSIER.

dents. Une glissière peut recevoir trois porte-échantillons placés l'un derrière l'autre (fig. 1) et dont les tubes réunis par des bagues peuvent coulisser verticalement les uns par rapport aux autres. Il est ainsi possible de présenter successivement devant le faisceau électronique plusieurs échantillons (étude en fonction de l'énergie) ou de faire varier la durée d'exposition (étude en fonction de la dose). Ces échantillons sont ensuite placés ensemble et simultanément à l'intérieur d'un four et peuvent ainsi subir des traitements thermiques identiques, ce qui offre une garantie certaine pour une étude comparative.

II.3 - TECHNIQUES DE RECUITS ET DE MESURES DE RESISTANCE

Pour effectuer les traitements thermiques, nous utilisons le cryostat déjà employé par Mme MINIER (réf. [4]), avec un four analogue. Notons d'ailleurs que pour les basses températures (< 100°K), ce four sert uniquement d'enceinte isotherme : les recuits se font unique-

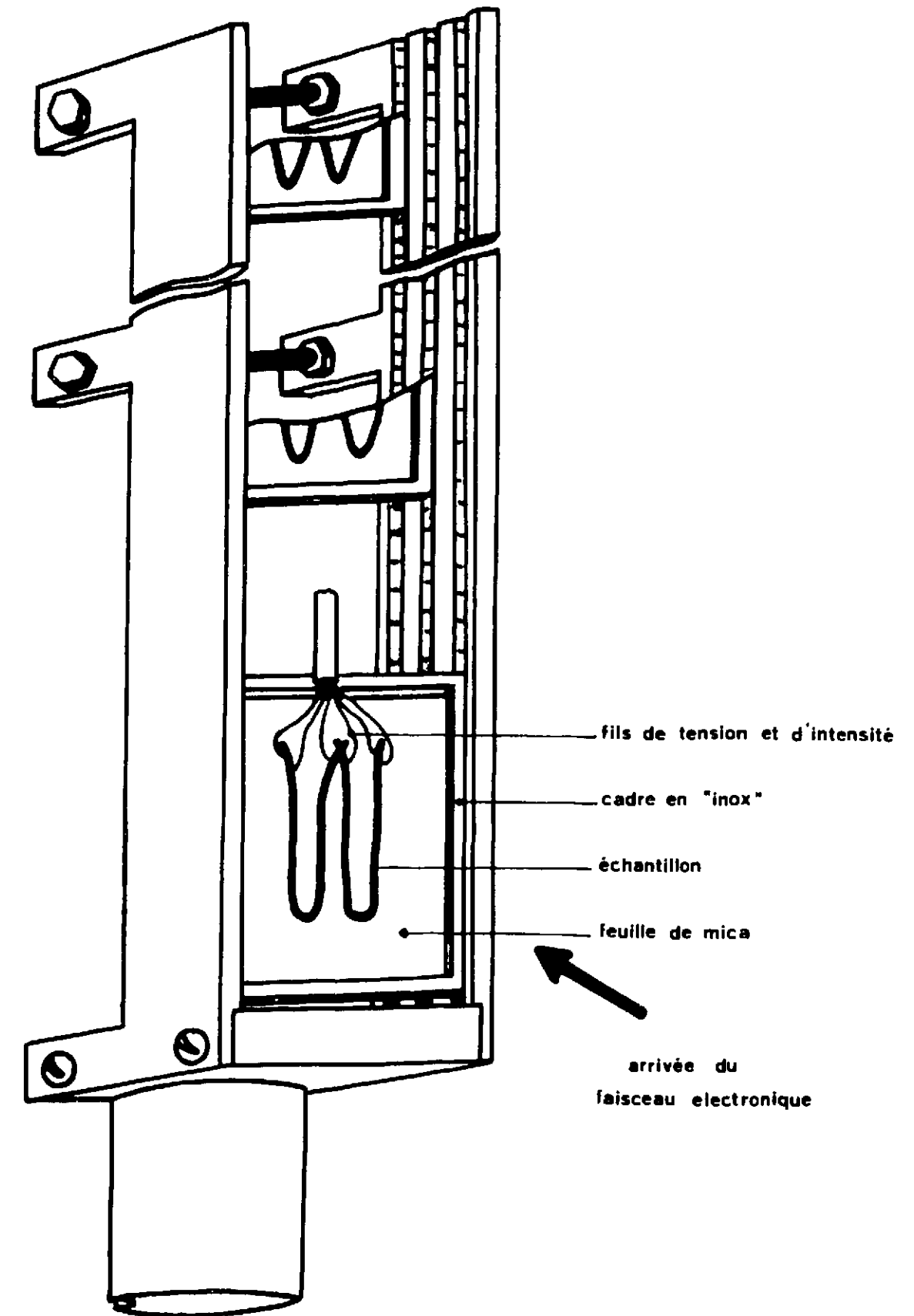


Figure 1 - Glissière et porte-échantillons pour étude en fonction de la dose ou de l'énergie des électrons incidents

ment en le positionnant à une altitude convenable au-dessus de l'hydrogène liquide.

Les mesures de résistance sont effectuées par une méthode d'opposition classique, à l'aide d'un pont potentiométrique Cambridge permettant d'atteindre le 1/10ème de microvolt. La précision de nos mesures nécessite l'élimination des forces électromotrices parasites susceptibles d'apparaître, par exemple au niveau des prises de tension (jonction cuivre-nickel). Nous procédons pour cela à deux mesures successives, avec inversion du sens de passage du courant entre les deux.

Au cours des recuits, nous suivons la température de l'échantillon à l'aide d'un thermocouple Or-Cobalt-Cuivre. Ce thermocouple présente l'inconvénient de ne pas être très fidèle : un étalonnage est nécessaire avant chaque manipulation. Mais c'est celui qui présente la plus grande sensibilité aux très basses températures, et la proximité des températures de deux paliers successifs (3 degrés) nous a conduits à le préférer à d'autres thermocouples plus fidèles.

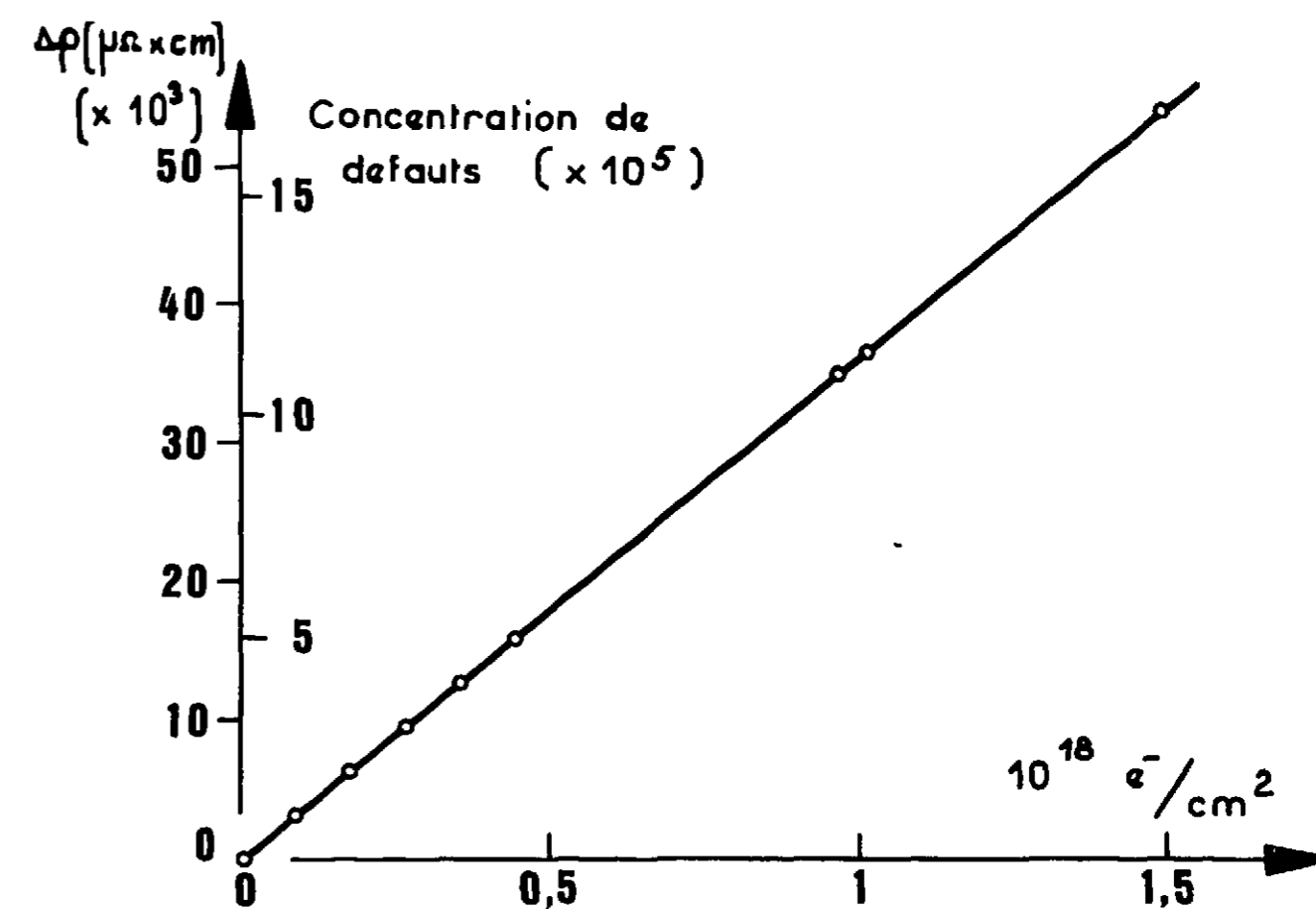


Figure 2 - Accroissement de résistivité et concentration de défauts créés dans un échantillon de nickel pur en fonction de la dose d'électrons incidents (énergie égale à 3 MeV)

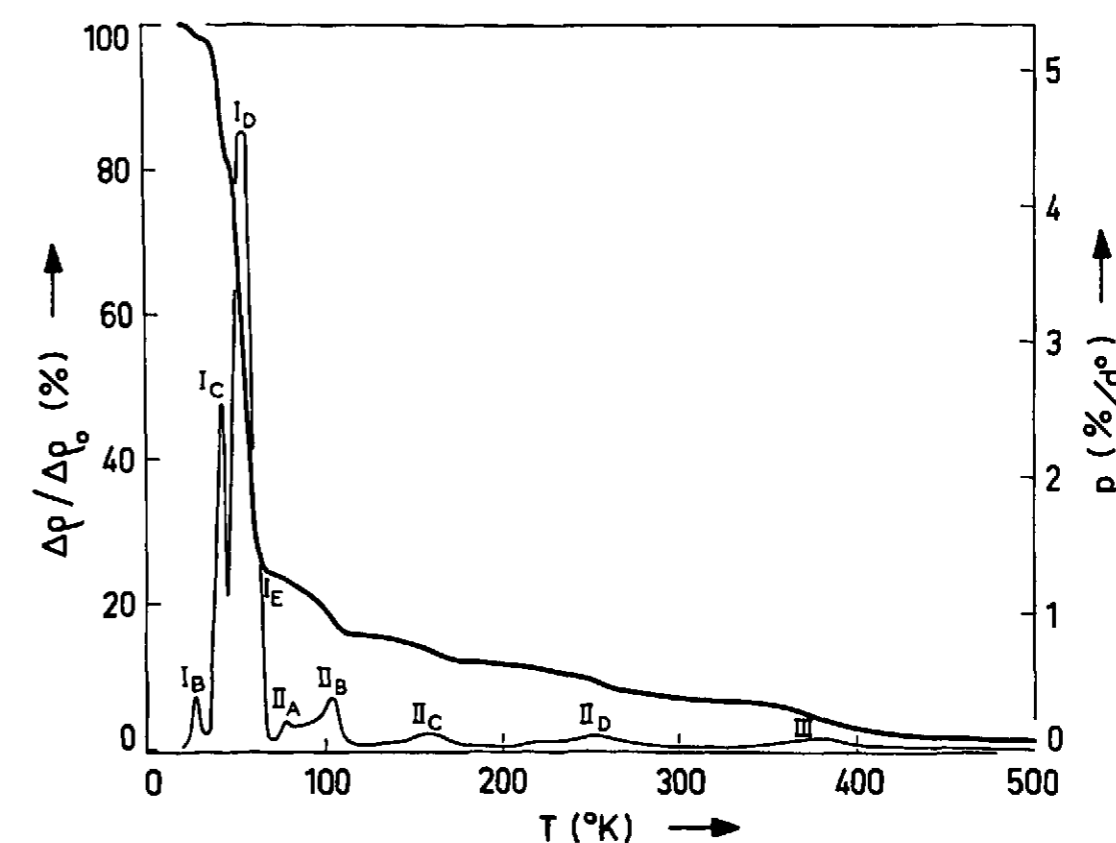


Figure 3 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon de nickel pur irradié par $1,5 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 . La courbe dérivée met en évidence les divers stades (traitements thermiques isochrones de durée $\tau = 10$ mn, à des températures séparées par des intervalles de 3° jusqu'à 80°K , 5° de 80°K à 130°K , 10° au-delà de 130°K)

CHAPITRE III

NICKEL PUR - RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1 - CREATION DE DEFAUTS

Nos expériences ont montré que la résistivité du nickel irradié à la température de l'hydrogène liquide augmente linéairement en fonction de la dose d'électrons. Ce résultat apparaît sur la figure 2. Dans la limite des doses d'électrons utilisées, cela signifie que les interactions entre un défaut nouvellement créé et un défaut antérieurement créé peuvent être négligées.

Nous pouvons, en outre, atteindre ainsi la concentration de défauts. En effet, la figure 2 indique qu'une irradiation de $1,5 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ (dose la plus couramment employée dans nos expériences) provoque une augmentation de la résistivité de $54 \cdot 10^{-3} \mu\Omega \cdot \text{cm}$. En admettant, comme LUCASSON (réf. [11]) que l'accroissement de résistivité dû à 1 % de paires de Frenkel est égal à $3,2 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ dans le nickel, nous trouvons que cette irradiation crée 0,017 % (ou 170 ppm) de défauts. Si nous imaginons pour ces défauts une distribution au hasard, ce qui est probablement le cas dans nos échantillons, nous obtenons ainsi en fin d'irradiation une distance moyenne entre défauts d'un type donné (par exemple des lacunes) de l'ordre de 12 à 15 a (a : paramètre de la maille).

III.2 - MISE EN EVIDENCE DES STADES DE RESTAURATION

La figure 3 présente les stades de restauration de l'accroissement initial de résistivité que nous avons observés sur du nickel pur irradié à 21°K avec des électrons de 3 MeV et recuit par traitements thermiques isochrones (voir les conditions exactes dans la légende).

En première approximation, nous pouvons distinguer trois stades, définis par leur domaine de température :

- Stade I $T < 71^\circ\text{K}$
- Stade II $71^\circ\text{K} < T < 320^\circ\text{K}$
- Stade III $320^\circ\text{K} < T < 420^\circ\text{K}$

D'une manière plus détaillée, le stade I peut être divisé en quatre sous-stades que nous noterons par analogie avec les résultats obtenus sur un autre métal c.f.c., le cuivre (réf. [1]). Le sous-stade I_E a été introduit, bien qu'il ne soit nettement différencié que par les expériences de traînage magnétique (réf. [12]) et n'apparaisse ici que sous la forme d'un épau-

lement sur le flanc haute température du pic I_D . Le sous-stade I_A n'existe pas, ou se trouve à une température inférieure à 21°K. Nous adopterons ainsi la subdivision suivante :

- Sous-stade I_B $21^\circ\text{K} < T < 33^\circ\text{K}$
- Sous-stade I_C $33^\circ\text{K} < T < 45,5^\circ\text{K}$
- Sous-stades $I_D + I_E$ $45,5^\circ\text{K} < T < 71^\circ\text{K}$

De même, le stade II se divise en quatre sous-stades pour lesquels nous utiliserons une nomenclature analogue.

- Sous-stade II_A $75^\circ\text{K} < T < 82,5^\circ\text{K}$
- Sous-stade II_B $82,5^\circ\text{K} < T < 125^\circ\text{K}$
- Sous-stade II_C $125^\circ\text{K} < T < 200^\circ\text{K}$
- Sous-stade II_D $200^\circ\text{K} < T < 320^\circ\text{K}$

Nous avons rassemblé dans un tableau le pourcentage de restauration attribué à chaque sous-stade :

Stade I 76 %	I_B	2 %	Stade II 17,5 %	II_A	2 %	Stade III 5 %
	I_C	15 %		II_B	6,5 %	
	$I_D + I_E$	59 %		II_C	4 %	
		II_D	5 %			

De ce tableau, nous tirons la remarque suivante, extrêmement importante pour la suite de notre modèle : le stade I représente à lui seul 76 % de l'accroissement de résistivité. Au contraire, le stade III est d'importance mineure (5 % du total), comparable aux stades II_C et II_D . Nous n'étudierons donc pas de façon plus approfondie que ces stades le stade III.

III.3 - RESTAURATION DE LA RESISTIVITE PAR TRAITEMENTS ISOTHERMES

Pour préciser notre modèle, nous avons exploré les stades I_B , I_C , I_D , I_E au moyen d'expériences de recuit isotherme. La figure 4 montre les résultats d'isothermes à 28°K, 39°K, 47°K et 60°K.

Pour confronter nos expériences à la théorie, nous avons essayé de superposer à nos courbes expérimentales des courbes théoriques correspondant à différents modèles. Nous partons de l'expression générale :

$$\frac{dc}{dt} = -Af(c) \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

- c est la concentration de défauts dont nous étudions la disparition,
- E l'énergie d'activation du processus de guérison,
- f(c) une fonction quelconque continue de la concentration.

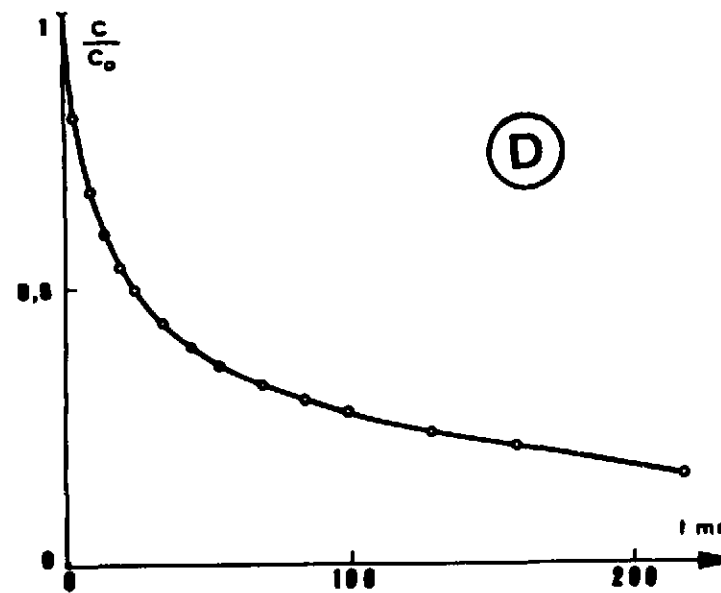
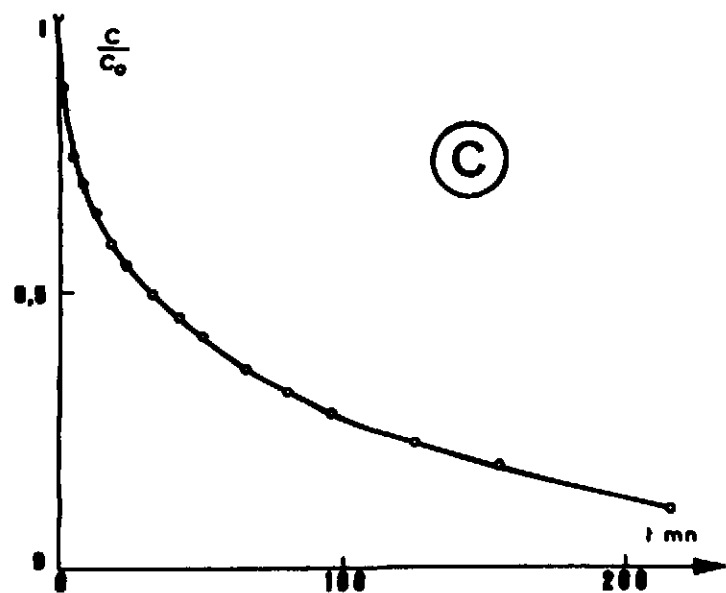
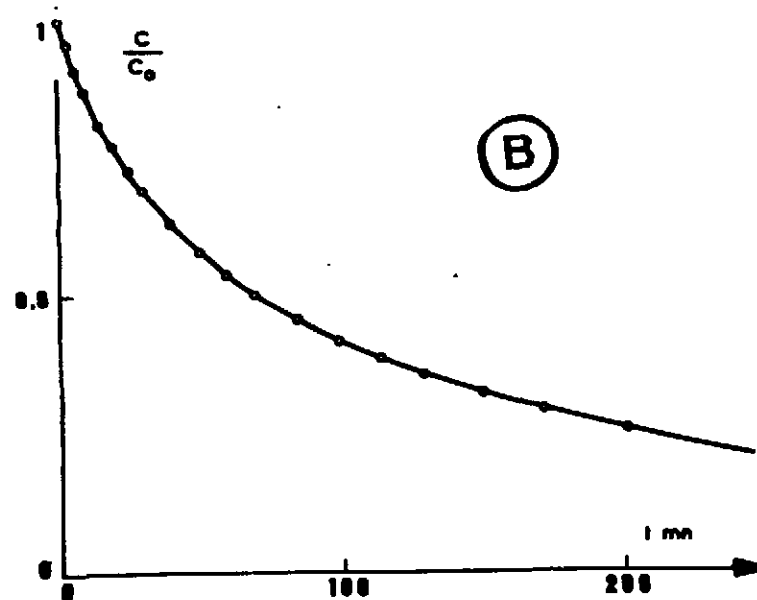
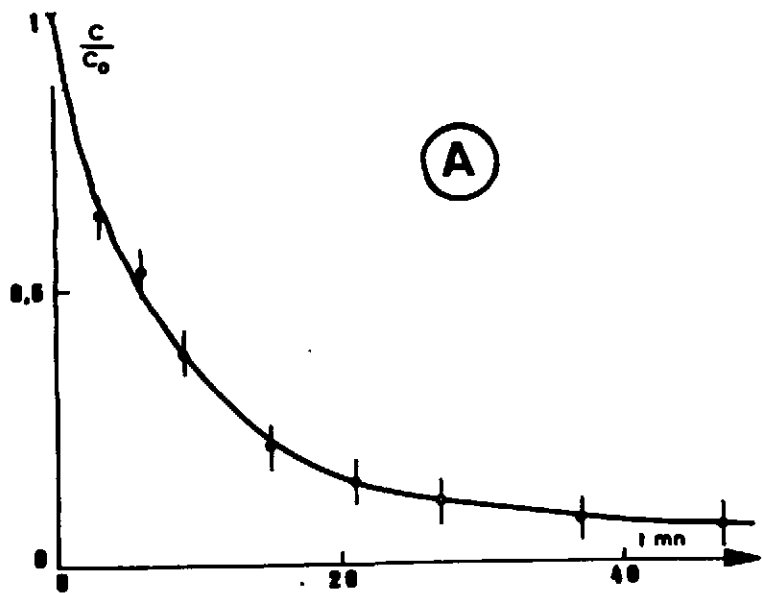


Figure 4 - Traitements isothermes d'un échantillon de nickel pur irradié avec $0,9 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 :

- | | | | | | |
|----|------------------------|-------------|----|------------------------|-------------|
| A) | $T = 28^\circ\text{K}$ | stade I_B | B) | $T = 39^\circ\text{K}$ | stade I_C |
| C) | $T = 47^\circ\text{K}$ | stade I_D | D) | $T = 60^\circ\text{K}$ | stade I_E |

Le plus souvent, la fonction $f(c)$ se présente sous la forme simple $f(c) = c^\gamma$ où γ est l'ordre de la réaction. La détermination de A , E et γ , à partir des courbes expérimentales, permet de préciser le rôle des défauts correspondants.

Ainsi, si nous trouvons $\gamma = 1$, la réaction correspond à une disparition spontanée (par exemple, annihilation d'une paire proche interstitiel-lacune, éclatement d'un diinterstitiel), ou d'une réaction monomoléculaire (par exemple, arrivée d'un défaut dans un puits non saturable).

Au contraire, $\gamma = 2$ indique une réaction bimoléculaire, c'est-à-dire nécessitant la réalisation de deux conditions (par exemple, annihilation, après migration au hasard, d'interstitiels dans des lacunes en concentration égale).

L'énergie d'activation E du processus de guérison envisagé se détermine au moyen de la classique méthode des tangentes (réf. [4]). L'échantillon est soumis successivement à deux traitements isothermes, l'un à la température T_1 , l'autre à la température T_2 (T_1 et T_2 sont dans l'intervalle de température où se guérit le défaut). Si p_1 et p_2 sont les pentes des tangentes au point anguleux, il vient :

$$p_1 = - A f(c) \exp \left(- \frac{E}{kT_1} \right)$$

$$p_2 = - A f(c) \exp \left(- \frac{E}{kT_2} \right)$$

$$\text{Soit } E = \frac{kT_1 T_2}{T_2 - T_1} \text{Log} \frac{p_2}{p_1}$$

Cette méthode a le mérite de n'utiliser qu'un échantillon et donne l'énergie d'activation sans hypothèses préalables. Elle présente l'inconvénient d'être peu précise, car elle n'utilise que les points expérimentaux placés au voisinage immédiat du point anguleux.

D'autres méthodes (réf. [13]) ont la prétention d'être plus précises ou plus générales. Mais elles nécessitent l'emploi de deux échantillons identiques, c'est-à-dire contenant la même concentration initiale de défauts et qui sont soumis à des traitements différents : par exemple deux isothermes à des températures T_1 et T_2 , ou deux réchauffements linéaires en fonction du temps à des vitesses différentes, ou la combinaison d'un traitement isotherme et d'un traitement thermique isochrone. Cette dernière méthode en particulier (réf. [14]) est fréquemment employée car elle permet de suivre l'évolution de l'énergie d'activation tout au long d'un recuit. Enfin, il est également possible, en utilisant un seul échantillon, d'essayer de superposer à la courbe expérimentale une courbe théorique calculée en présupposant un ordre de réaction (réf. [9]).

En pratique, la meilleure méthode reste encore la méthode des tangentes proposée initialement. Le nombre de points expérimentaux participant à la détermination des pentes pourra alors être augmenté en utilisant un artifice mathématique susceptible de redresser les courbes, lorsque les cinétiques sont proches d'un ordre simple. Nous verrons que ceci est malheureusement difficilement applicable à nos résultats, exception faite du stade I_B .

La recherche de cet ordre γ s'effectue par des essais d'identification avec des ordres simples intervenant fréquemment. Ainsi, si nous obtenons une variation linéaire en fonction du temps de la quantité $\text{Log} \frac{c}{c_0}$ (c_0 : concentration initiale du défaut étudié), la réaction est d'ordre 1. De même, une variation linéaire des quantités $\frac{c_0}{c}$ et $\left(\frac{c_0}{c}\right)^2$ permettent de penser que la réaction est respectivement d'ordre 2 et d'ordre 3.

Connaissant l'énergie d'activation et l'ordre réactionnel du processus de guérison étudié, une estimation de la constante A pourra être effectuée.

Le nombre N de sauts nécessaires pour l'annihilation est également une donnée particulièrement intéressante. Un ordre de grandeur de celui-ci peut être obtenu dans le cas d'une réaction d'ordre 1 susceptible d'être considérée comme une guérison de paires proches lacune-interstitiel. En effet, l'annihilation de ces paires est régie par la loi :

$$-\frac{dc}{dt} = A c \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \\ = \nu_0 cz p_I \exp\left(\frac{-E}{kT}\right)$$

où ν_0 est un facteur de fréquence ($= 10^{12}$ à 10^{13} s^{-1})

z le nombre de sites autour de la lacune conduisant à une annihilation certaine si l'interstitiel est sur l'un de ces sites.

p_I la probabilité pour qu'un de ces sites soit effectivement occupé par l'interstitiel.

Pour ces paires proches, nous avons :

$$z p_I \approx \frac{1}{N}$$

d'où
$$A \approx \frac{\nu_0}{N}$$

et N peut ainsi être atteint.

III.3.1 - Sous-stade I_B

Les essais d'identification à des cinétiques du premier et du deuxième ordre (fig. 5) nous conduisent à une loi du premier ordre.

Les résultats également obtenus pour une isotherme à 26°K permettent d'évaluer l'énergie de guérison à $0,085 \pm 0,02 \text{ eV}$; le manque de précision sur cette valeur est dû à la proximité des températures T_1 et T_2 et à l'incertitude sur les pentes des deux isothermes. Toutefois, ce résultat est en accord avec la valeur déduite d'expériences de traînage magnétique (réf. [12] qui donnent 0,08 eV comme énergie de réorientation et une énergie de guérison légèrement supérieure.

En prenant $E = 0,085 \text{ eV}$, nous obtenons pour A la valeur $3,10^{12 \pm 1} \text{ s}^{-1}$. De l'expression $A = \frac{\nu_0}{N}$, il est difficile d'obtenir pour N une valeur précise, A et ν_0 étant entachés d'une grande incertitude. Néanmoins, nous pouvons affirmer que le nombre de sauts effectués par le défaut I_B est très petit.

III.3.2 - Sous-stade I_C

Nous avons essayé d'identifier la cinétique de guérison avec un ordre 1 et un ordre 2 (fig. 6 et 7). Nos mesures ne nous permettent pas d'arriver à un accord avec l'une ou l'autre de ces possibilités.

Nous avons alors essayé de décomposer l'isotherme en une superposition de processus du premier ordre :

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\sum_{i=1}^n c_i}{c_0} = \frac{\sum_{i=1}^n a_i e^{-\frac{t}{\theta_i}}}{\sum_{i=1}^n a_i}$$

Les a_i donnent la concentration initiale de chaque type de défaut à 39°K ($\sum_{i=1}^n a_i = 1$),

chacun de ceux-ci étant caractérisé par la constante de temps $\theta_i = A_i^{-1} \exp \frac{E_i}{kT}$ où E_i est l'énergie de guérison (nous supposons que $A_i = A = \text{Cte}$). Notre méthode de décomposition a déjà été utilisée par A.J. BOSMAN (réf. [15]) : pour des temps t suffisamment grands, on a :

$$\frac{c}{c_0} \approx a_1 e^{-\frac{t}{\theta_1}}$$

θ_1 étant la plus grande des θ_i .

Dans notre cas (fig. 6), pour $t > 95 \text{ mm}$, $\text{Log} \frac{c}{c_0}$ est pratiquement linéaire en fonction du temps, c'est-à-dire que nous avons alors :

$$\text{Log} \frac{c}{c_0} \approx \text{Log} \frac{c_1}{c_0}$$

Nous en déduisons : $a_1 = 0,68$ (en extrapolant vers $t = 0$)

$$\theta_1 = 12\,270 \text{ s.}$$

La différence entre la courbe $\text{Log} \frac{c}{c_0}$ et la droite $\text{Log} \frac{c_1}{c_0}$ correspondra à

$\text{Log} \frac{\sum_{i=2}^n c_i}{c_0}$. Nous constatons que le résidu est une droite, ce qui signifie que le développement est limité à deux termes. Nous obtenons ainsi :

$$a_2 = 0,32$$

$$\theta_2 = 1\,450 \text{ s}$$

d'où :
$$\frac{c}{c_0} = 0,68 \exp\left(-\frac{t}{12\,270}\right) + 0,32 \exp\left(-\frac{t}{1\,450}\right) \quad (t \text{ en secondes})$$

et il n'y a pas lieu de considérer d'autres termes.

Nous proposons donc que le sous-stade I_C corresponde à l'annihilation de deux défauts, dont les énergies de guérison diffèrent de :

$$\Delta E = kT \text{Log} \frac{\theta_1}{\theta_2}, \text{ soit } \Delta E \approx 7 \cdot 10^{-3} \text{ eV.}$$

La superposition de la courbe expérimentale $\frac{c}{c_0} = f(t)$ (fig. 4) avec la courbe théorique (fig. 8) $\frac{c}{c_0} = 0,68 \exp\left(-\frac{t}{12\,270}\right) + 0,32 \exp\left(-\frac{t}{1\,450}\right)$ est effectivement excellente.

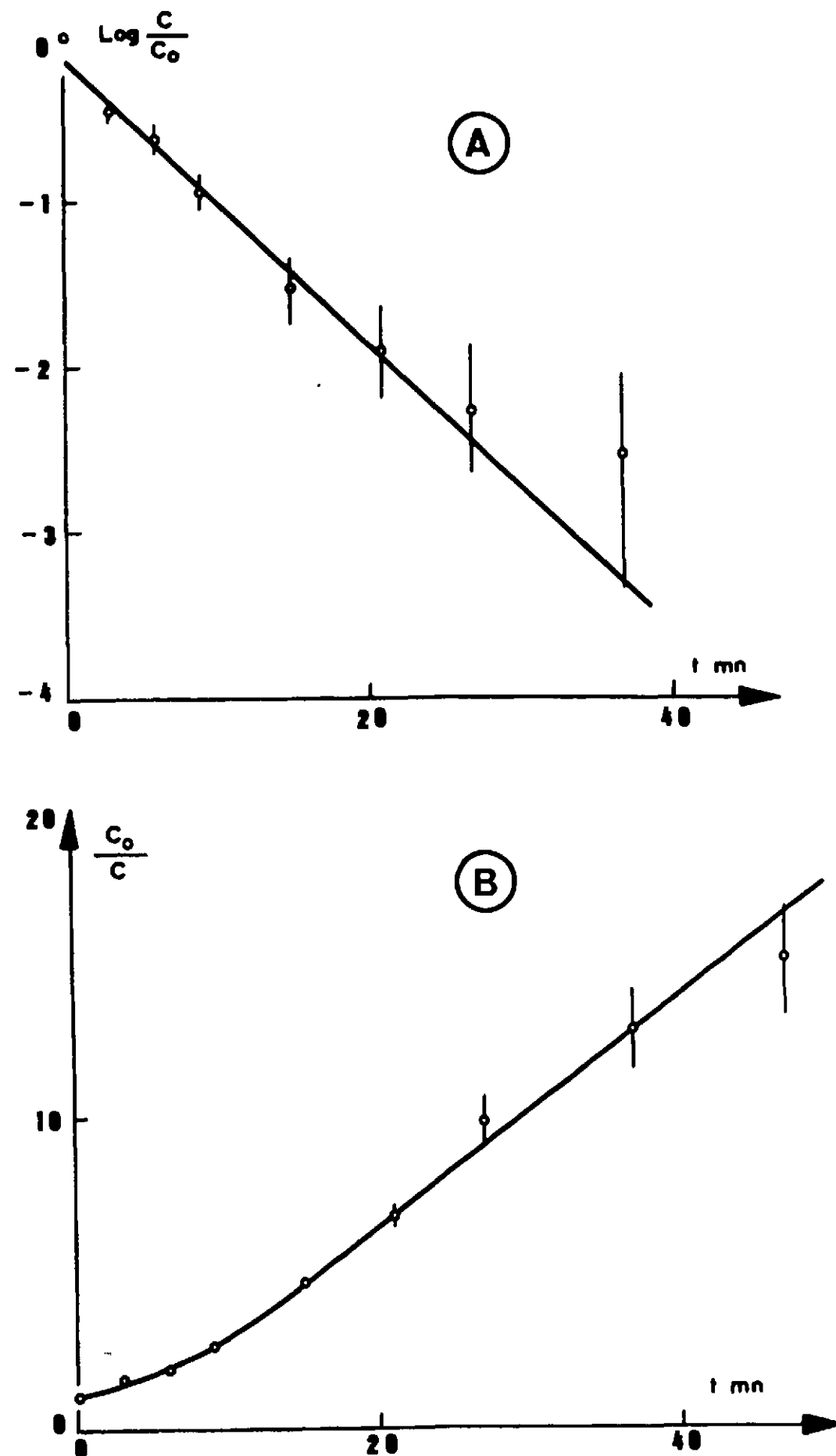


Figure 5 - Essais d'identification du stade I_B avec diverses cinétiques :

- A - cinétique d'ordre 1
- B - cinétique d'ordre 2

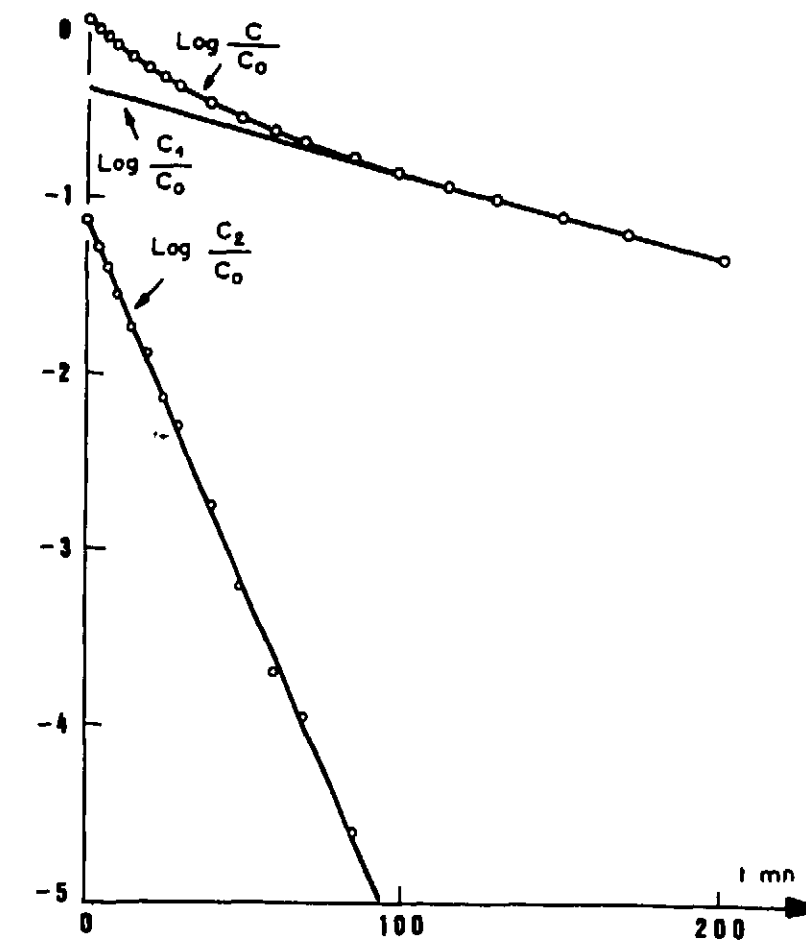


Figure 6 - Essai d'identification du stade I_C avec une cinétique d'ordre 1 montrant la décomposition possible en deux cinétiques d'ordre 1

La méthode des deux tangentes conduit à une énergie de guérison de $0,135 \pm 0,03 \text{ eV}$, à l'aide des résultats obtenus pour une autre isotherme à 38°K . Celle-ci étant prise en début de guérison, nous l'attribuerons au défaut disparaissant le premier (32 % de I_C) et nous écrivons donc :

$$E_1 = 0,135 \pm 0,03 \text{ eV}$$

$$E_2 = E_1 + 0,007 \text{ eV.}$$

Des expériences de traînage magnétique (réf. [12]) mettent en évidence un seul type de défauts pour le sous-stade I_C , dont l'énergie de réorientation, légèrement inférieure à l'énergie de guérison, serait de $0,13 \text{ eV}$ et dont l'annihilation interviendrait vers 41°K . Il s'agit certainement de l'un des deux défauts mis en évidence par nos expériences.

III.3.3 - Sous-stade I_D

Des essais d'identification avec des cinétiques d'annihilation d'ordre 1 ou 2 (fig. 9) donnent des résultats analogues au sous-stade précédent, les écarts avec ces lois simples étant de même nature, mais nettement plus marqués.

Nous avons donc tenté comme précédemment des essais de décomposition en une suite d'exponentielles. Mais nous n'avons pas obtenu de résultats simples (fig. 10) : deux ou

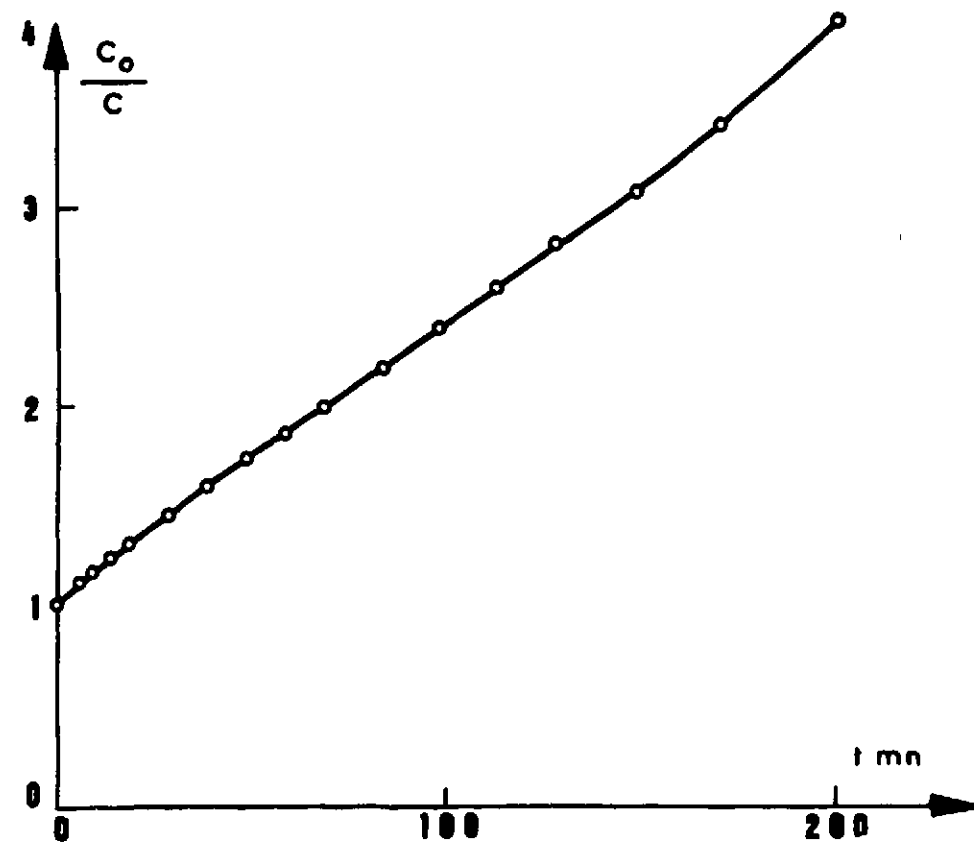


Figure 7 - Essai d'identification du stade I_C avec une cinétique d'ordre 2

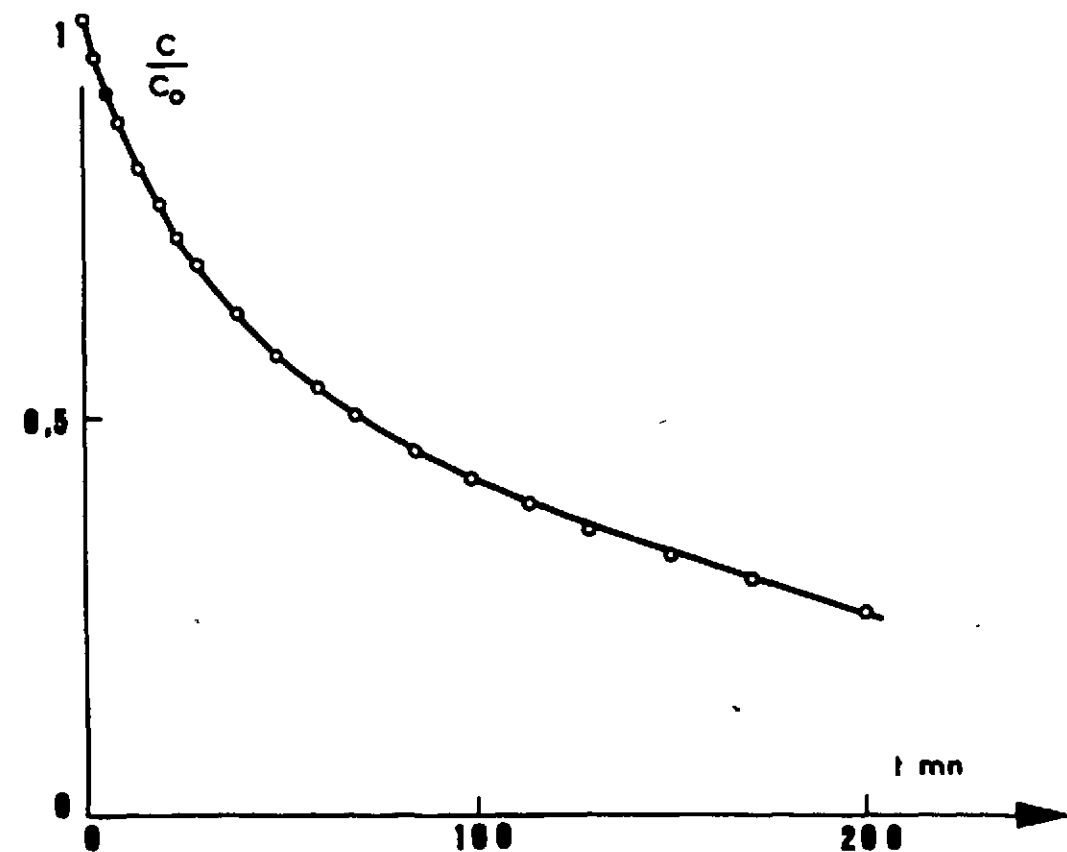


Figure 8 - Courbe théorique $\frac{C}{C_0} = 0,68 e^{-\frac{t}{204,5}} + 0,32 e^{-\frac{t}{24,2}}$ (t en mn), montrant un bon accord avec les résultats expérimentaux (°) pour le stade I_C

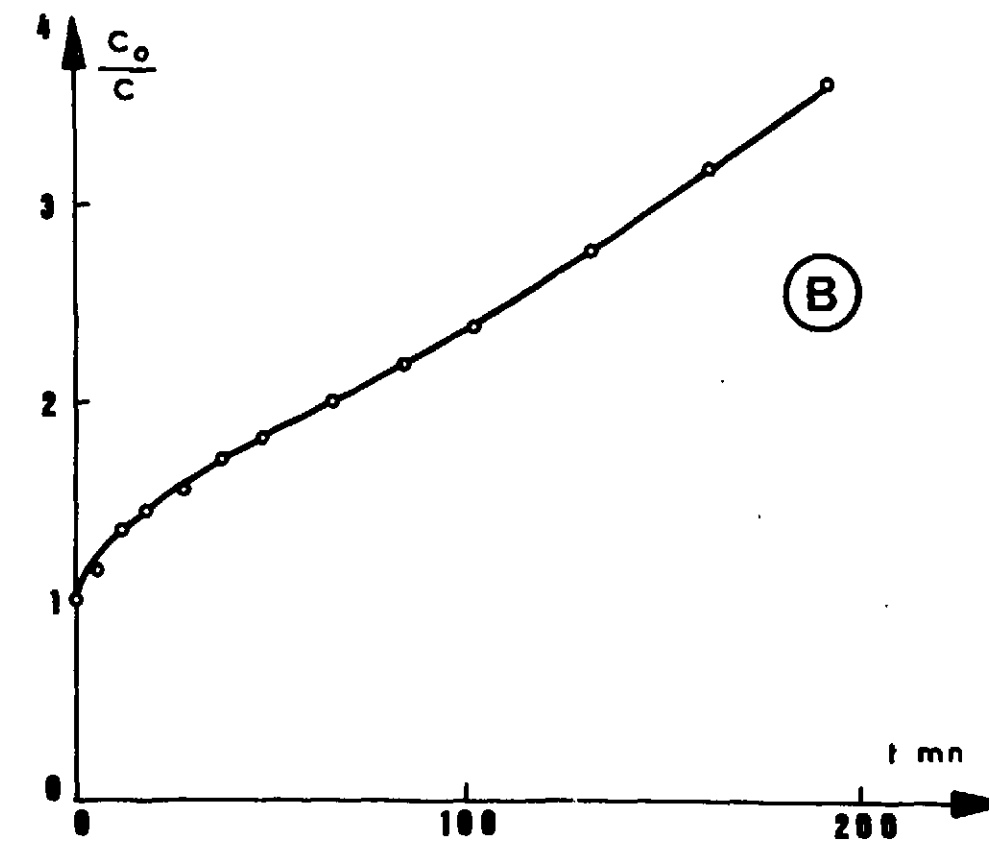
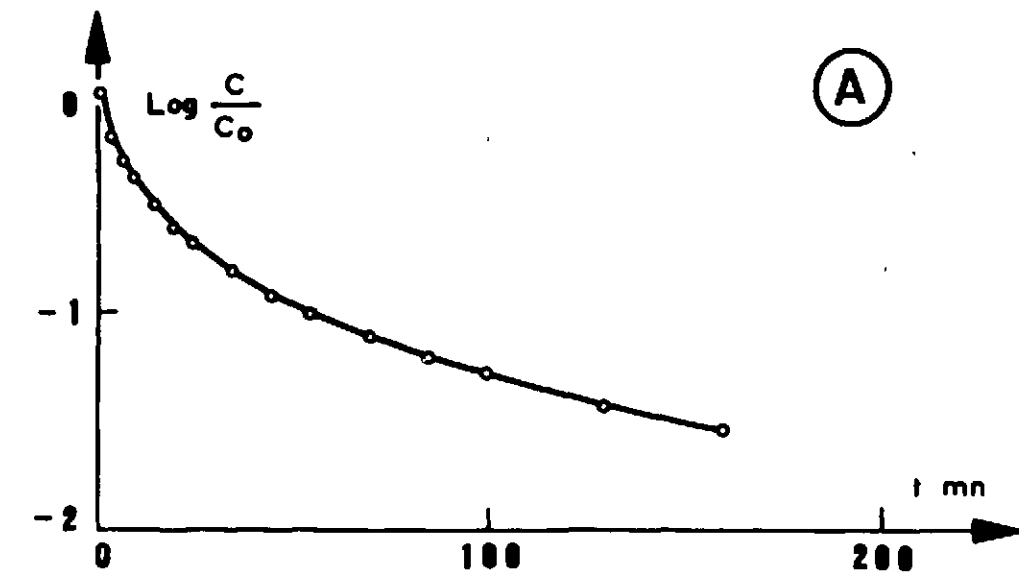


Figure 9 - Essais d'identification du stade I_D avec diverses cinétiques :

- A) cinétique d'ordre 1
- B) cinétique d'ordre 2

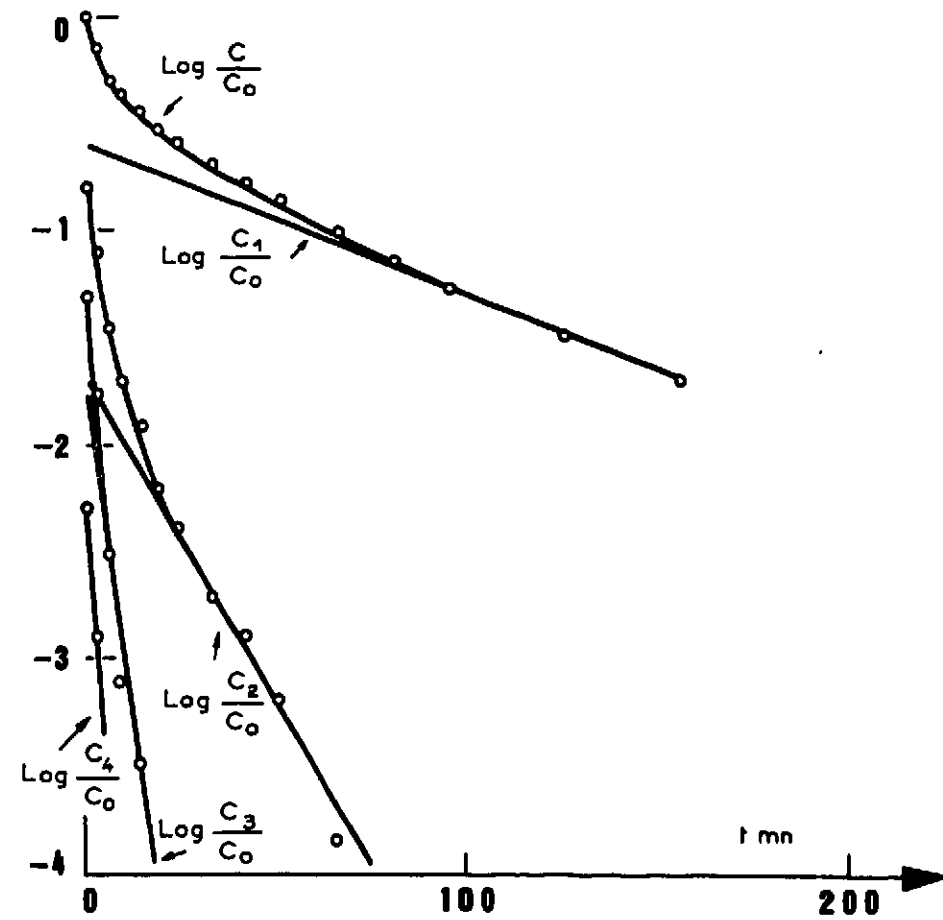


Figure 10 - Essai de décomposition du stade I_D en plusieurs cinétiques d'ordre 1

trois termes ne suffisent pas. La décomposition devient ensuite sujette à caution, car nous disposons d'un nombre insuffisant de points expérimentaux entachés d'une trop grande incertitude.

Néanmoins, nous pouvons affirmer que ce stade est constitué au minimum de quatre défauts distincts, ou plutôt d'un continuum de défauts d'énergie de guérison légèrement différente.

La méthode des deux tangentes permet de leur attribuer une énergie de guérison moyenne de $0,15 \pm 0,03$ eV, et aucun de ces défauts n'est susceptible de donner lieu à une bande de traînage magnétique (réf. [12]).

III.3.4 - Sous-stade I_E

Parce qu'il se réduit à l'épaule décrite plus haut, une étude isotherme de ce stade est difficile, les défauts le caractérisant ne pouvant être étudiés isolément.

Les essais d'identification avec des cinétiques du premier et du deuxième ordre (fig. 11 A et B) ne donnent pas un accord satisfaisant. Par contre, un troisième ordre convient très bien à nos résultats expérimentaux (fig. 11 C). Nous verrons que les expériences en fonction de la dose ne confirment pas ce résultat.

Beaucoup plus significatifs pour ce sous-stade sont les résultats obtenus en traînage magnétique. En effet, la bande de traînage associée à I_E peut effectivement être étudiée isolément, I_D ne donnant lieu à aucune zone de traînage. Une énergie de réorientation du défaut de l'ordre de 0,15 eV, égale à l'énergie de guérison, a, en particulier, ainsi pu être obtenue (réf. [6]).

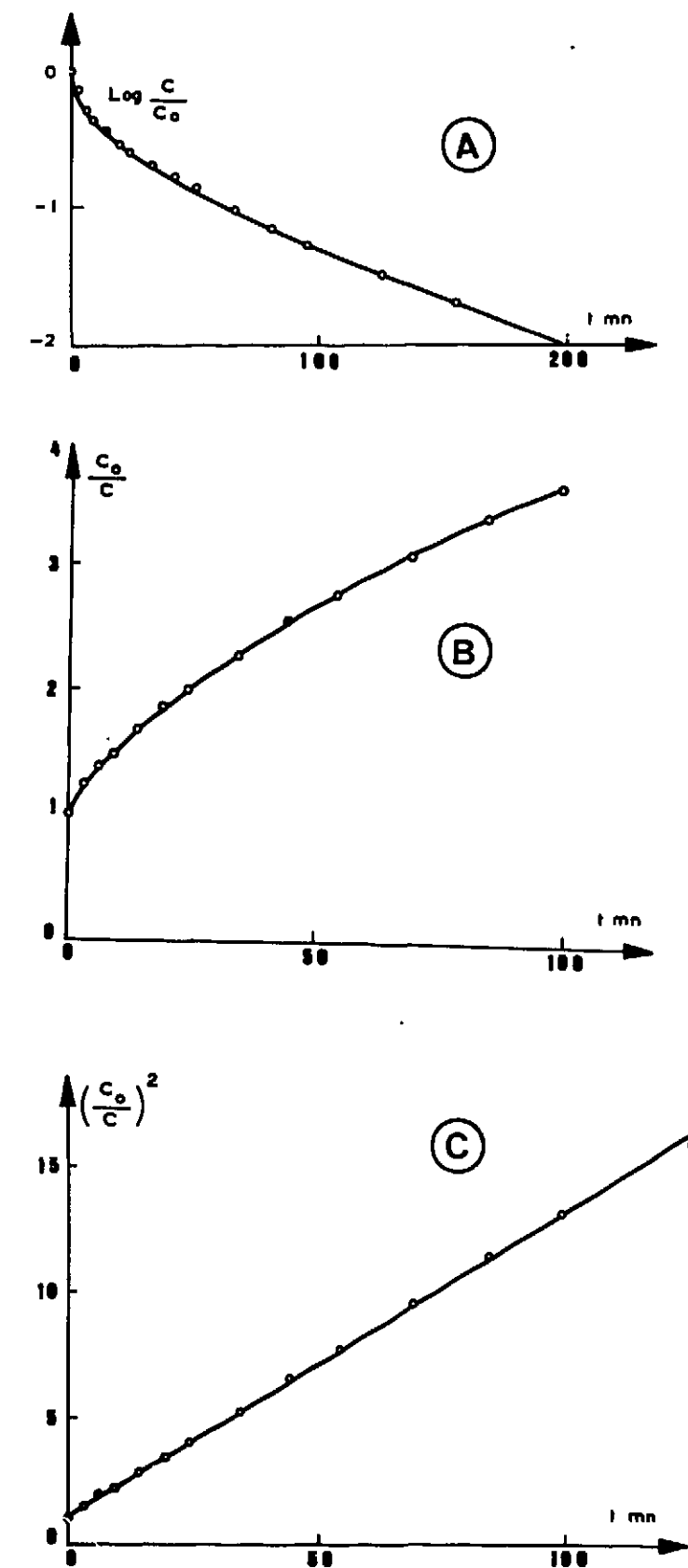


Figure 11 - Essais d'identification du stade I_E avec diverses cinétiques

A - cinétique d'ordre 1

B - cinétique d'ordre 2

C - cinétique d'ordre 3

III.3.5 - Récapitulation

En résumé, cette étude isotherme des sous-stades I de restauration de la résistivité conduit aux résultats suivants :

Sous-stade I_B : un seul type de défaut

- cinétique de disparition d'ordre I (petit nombre de sauts)
- énergie de guérison $E = 0,085 \pm 0,02$ eV

Sous-stade I_C : deux types de défauts

- cinétique de disparition d'ordre 1 pour chacun
- énergies de guérison $E_1 = 0,135 \pm 0,03$ eV

$$E_2 = E_1 + 0,007 \text{ eV}$$

Sous-stade I_D : n types de défauts

- cinétique de disparition d'ordre 1 pour chacun d'eux
- énergie de guérison moyenne $E = 0,15 \pm 0,03$ eV.

III.4 - RESTAURATION DE LA RESISTIVITE PAR TRAITEMENTS THERMIQUES ISOCHRONES - LARGEUR NATURELLE DES STADES

La mesure de la largeur naturelle des stades permet de distinguer si un stade correspond soit à un défaut simple, soit à une famille de défauts. Mathématiquement, ces largeurs peuvent se calculer relativement aisément si le traitement thermique correspond à une montée linéaire (réf. [16]).

Mais les courbes obtenues correspondent à des traitements thermiques isochrones à des intervalles fixes de température. Il n'est possible d'assimiler un traitement isochrone à une montée linéaire en température que si le nombre de points expérimentaux décrivant un stade de restauration est suffisamment grand.

L'étude de la largeur des pics de la courbe dérivée est particulièrement intéressante pour les stades I_C et I_D . Si le maximum de la courbe dérivée est à la température T_m , la largeur $\Delta T \frac{1}{2}$ du pic à mi-hauteur est donnée, pour une réaction d'ordre 1, par la formule :

$$\frac{\Delta T \frac{1}{2}}{T_m} \approx 2,4 \frac{k T_m}{E}$$

(indépendante de la vitesse de la montée en température)

où k est la constante de Boltzmann
 E l'énergie de guérison.

Si un seul type de défaut participe au stade, nous obtenons ainsi :

$$\begin{array}{ll} \text{pour } I_C, T_m \approx 43^\circ\text{K}, E \approx 0,135 \text{ eV} & \Delta T \frac{1}{2} \approx 3^\circ \\ \text{pour } I_D, T_m \approx 55^\circ\text{K}, E \approx 0,15 \text{ eV} & \Delta T \frac{1}{2} \approx 4,5^\circ \end{array}$$

Nous avons également construit les pics théoriques correspondant à la guérison d'un seul type de défaut par traitements isochrones (nous avons utilisé pour cela les résultats vus ci-dessus pour les traitements isothermes) : l'écart avec ces résultats reste faible - inférieur à 10 % - .

Or, expérimentalement, les largeurs obtenues sont les suivantes :

$$\Delta T \frac{1}{2} \approx 5,5^\circ \text{ pour } I_C$$

$$\Delta T \frac{1}{2} \approx 11,5^\circ \text{ pour } I_D$$

Il apparaît donc impossible d'attribuer ces stades à un seul type de défaut avec une énergie de guérison unique.

L'annihilation de deux types de défauts, avec des énergies d'activation différentes de 0,007 eV et dont les températures de demi-guérison seraient 41°K et 43°K, est compatible avec la largeur expérimentale de I_C .

Pour expliquer la largeur du pic I_D , il est nécessaire de faire intervenir un nombre plus grand d'annihilations distinctes. Chacun des divers types de défauts disparaît à une certaine température, avec une énergie particulière.

Cette étude des largeurs de pics confirme ainsi le résultat obtenu précédemment au cours des traitements isothermes.

III.5 - EFFET DE LA DOSE ET DE L'ENERGIE DES ELECTRONS INCIDENTS

Les effets recherchés sont de faible amplitude. Il a fallu réaliser les manipulations correspondant à ces études avec le maximum de soins.

Les échantillons sont irradiés par groupe de trois dans le dispositif décrit précédemment et traités simultanément dans un même four. La température de chaque échantillon est suivie au cours des traitements.

Dans le cas de l'étude de l'effet de la dose, seule la durée d'exposition varie, toute chose restant égale par ailleurs, en particulier la géométrie du faisceau.

Une difficulté supplémentaire est survenue pour l'étude en fonction de l'énergie des particules incidentes : par suite des interactions répulsives entre électrons du faisceau et de l'action du champ magnétique terrestre, nous obtenons une divergence variable en fonction de l'énergie de ceux-ci. En conséquence, nos échantillons ont été irradiés non pas pendant la même durée, mais de manière à présenter des accroissements de résistivité identiques entre eux.

III.5.1 - Effet de la dose

Nous avons déjà signalé l'augmentation linéaire de la résistivité en fonction de la dose.

L'étude de la restauration, au cours d'un traitement thermique isochrone, a été entreprise dans le but de mettre en évidence d'éventuels retards dans le processus de restauration. On sait que cette technique donne des résultats intéressants sur les ordres de réaction. Rappelons, en effet, qu'une réaction d'ordre 1 n'entraîne aucun déplacement en température des zones de restauration. Au contraire, dans l'hypothèse d'une répartition homogène des défauts,

une réaction d'ordre plus élevé sera caractérisée par un déplacement vers les basses températures, quand la concentration de défauts augmente. Celui-ci est donné par la relation (réf. [16]):

$$\frac{\beta_1}{\beta_2} = \frac{\exp \left[\frac{U}{kT_1} - \frac{U}{kT_2} \right]}{\left(\frac{T_1}{T_2} \right)^2}$$

où U est l'énergie de migration du défaut,

T_1 et T_2 les températures des maximums des pics pour les concentrations C_1 et C_2 .

$$\frac{\beta_1}{\beta_2} = \frac{C_1}{C_2} \quad \text{pour une cinétique d'ordre 2}$$

$$\frac{\beta_1}{\beta_2} = \left(\frac{C_1}{C_2} \right)^2 \quad \text{pour une cinétique d'ordre 3.}$$

Nos résultats sont présentés sur les courbes (fig. 12 et 13). A la précision des mesures près, nous pouvons affirmer que les stades I_B , I_C et I_D ne se déplacent pas en fonction de la dose. Le stade I_E se déplace mais d'une quantité infime comme le montre le tableau ci-dessous :

$\frac{C_1}{C_2}$	$(T_1 - T_2)$ exp (déplacement observé expérimentalement)	$(T_1 - T_2)$ ordre 2 (déplacement déduit d'une réaction d'ordre 2)	$(T_1 - T_2)$ ordre 3 (déplacement déduit d'une réaction d'ordre 3)
9	3,5° - 4°	5° - 5,5°	11° - 11,5°

Ainsi se trouvent confirmés les résultats précédents pour les stades I_B , I_C et I_D : les défauts correspondant à ces stades se guérissent suivant une cinétique d'ordre 1. Pour le stade I_E , un ordre 3 ne convient certainement pas : s'il fallait préciser un ordre de réaction correspondant au déplacement observé, on trouverait $\gamma \approx 1,7$.

Pour les stades ultérieurs, aucun déplacement du stade II_A n'est observé, tandis que le stade II_B se déplace vers les basses températures quand le nombre de défauts initialement créés croît : ce déplacement est compatible avec un ordre 2. Les autres stades sont si petits et si mal définis pour les faibles irradiations qu'il est difficile d'étudier leurs déplacements.

Les variations d'amplitude des stades donnent également des renseignements qui seront utilisés pour la construction de notre modèle. Sur la figure 14, apparaissent les variations en fonction de la dose des pourcentages de restauration pour les stades I_B , I_C , $I_D + I_E$, II_B ; nous avons utilisé pour cette figure les résultats fournis aussi par d'autres de nos expériences. Un tableau donne les résultats obtenus lors de l'étude simultanée des trois échantillons :

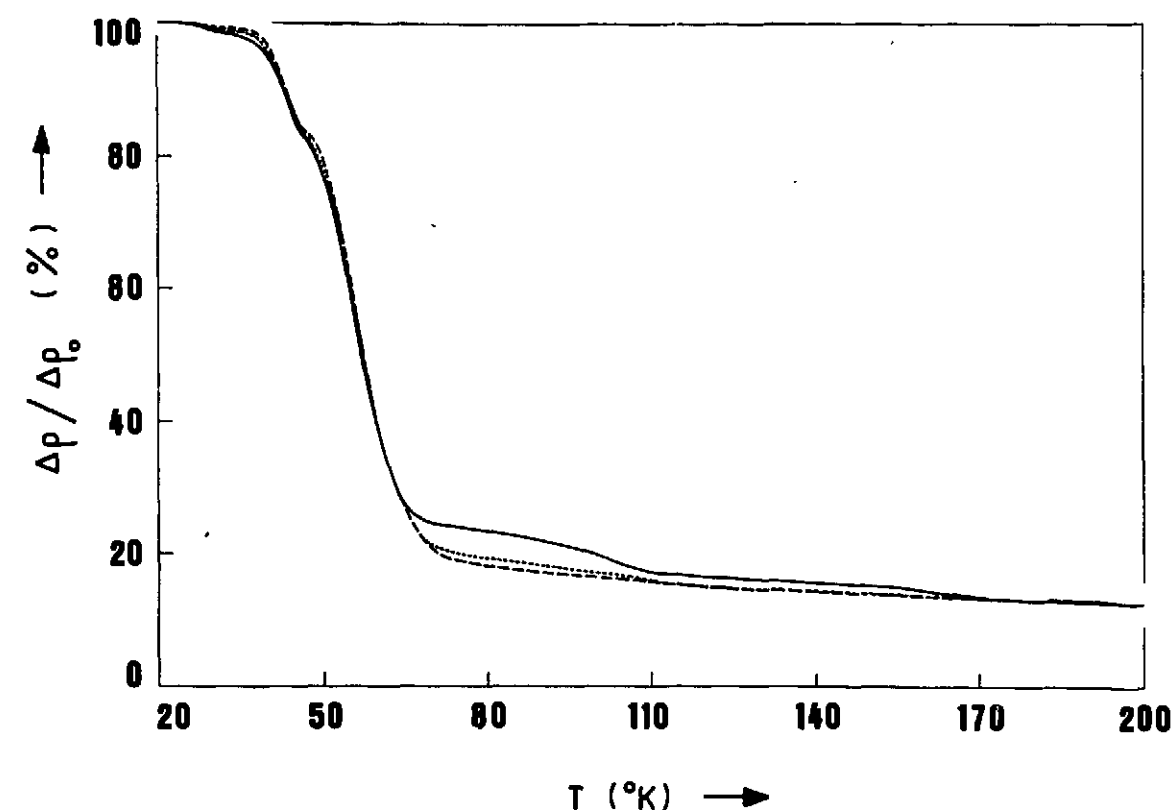


Figure 12 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour des échantillons de nickel pur irradiés avec des électrons de 3 MeV

— 1,6 · 10¹⁸ e⁻/cm²
 0,55 · 10¹⁸ e⁻/cm²
 - - - - - 0,18 · 10¹⁸ e⁻/cm²

(traitements thermiques analogues à ceux décrits figure 3)

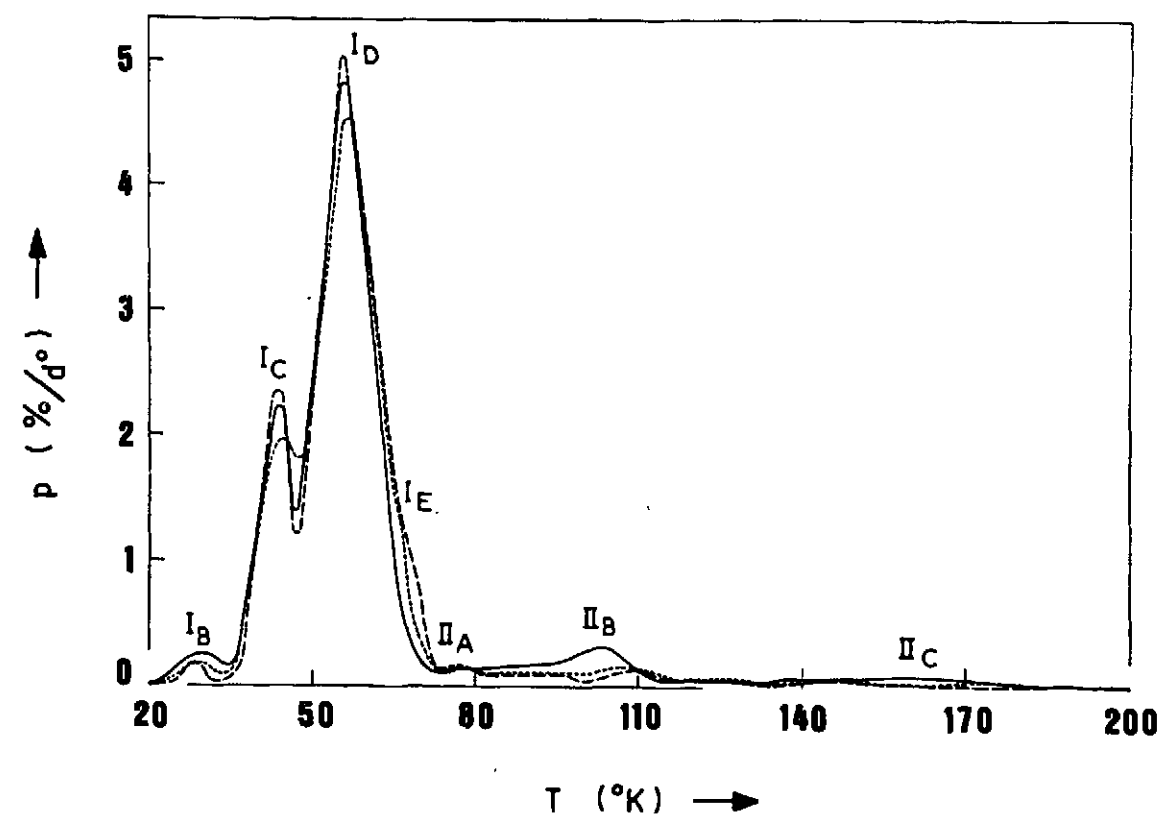


Figure 13 - Courbes dérivées de celles de la figure 12

RESTAURATION DE LA RESISTIVITE EN %			
Dose	$0,18 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$	$0,55 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$	$1,6 \cdot 10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$
I	81,1	80,1	76,0
I_B	0,8	1,3	1,9
I_C	15,6	17,6	15,6
$I_D + I_E$	64,7	61,2	58,5
II	13,6	13,4	17,2
II_A	0,9	0,9	0,9
II_B	3,4	4,4	6,8
II_C	2,2	2,5	3,9
II_D	7,1	5,6	5,6
III	2		

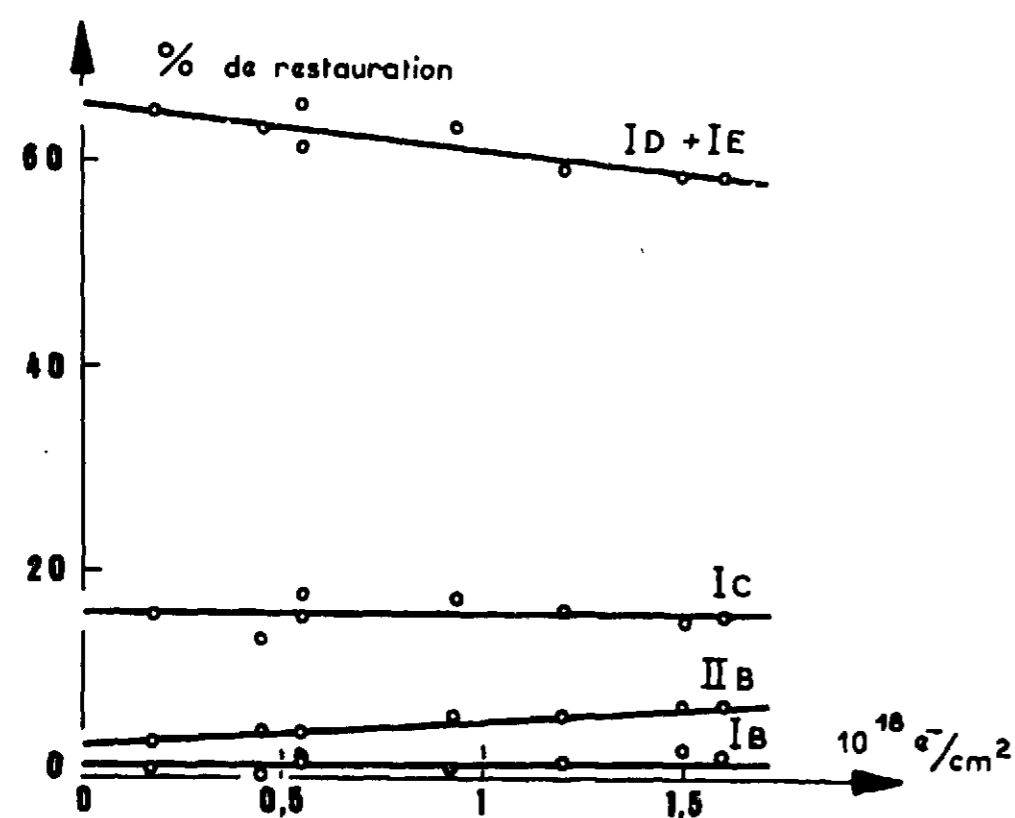


Figure 14 - Variation des pourcentages de restauration attribués aux stades apparaissant à basse température, en fonction de la dose d'électrons de 3 MeV incidents

Malgré tous les soins apportés à ces mesures, l'erreur expérimentale reste relativement grande. Néanmoins, les caractères suivants se distinguent nettement quand la dose croît : l'ensemble du stade I diminue. Cette diminution globale est essentiellement due aux sous-stades $I_D + I_E$, I_C étant pratiquement constant, ainsi, sans doute, que I_B . A l'opposé, l'ensemble du stade II augmente : cette augmentation est essentiellement due au stade II_B ; elle est moins sensible pour le stade II_C et II_D semble, au contraire, diminuer. Mais le stade II_A est pratiquement inchangé. Le stade III augmente légèrement.

III.5.2 - Effet de l'énergie des électrons incidents

Deux échantillons de nickel ont été irradiés avec des électrons de 2 MeV et 3 MeV, de manière à présenter le même accroissement de résistivité. Ils ont été recuits simultanément et nous avons tenté d'observer les effets produits sur l'amplitude des stades.

Malheureusement, nous nous sommes aperçus que les résultats obtenus n'étaient pas très reproductibles. Il semble alors difficile d'en tirer des conclusions sûres, sinon une diminution du stade II_B et des sous-stades $I_D + I_E$ quand l'énergie des électrons incidents diminue.

Le manque de reproductibilité de nos résultats peut être dû à des variations, même légères, de l'énergie des électrons incidents, surtout lorsque nous travaillons aux faibles énergies pour lesquelles l'accélérateur employé n'est pas très approprié. Le système d'étalonnage qui permet de connaître l'énergie des électrons n'est, en effet, pas très fidèle. Nous pouvons ainsi avoir des variations de l'ordre de 5 à 10 % sur sa valeur. Or, des discontinuités notables et non monotones dans les amplitudes des divers sous-stades I du cuivre lorsque l'énergie des électrons incidents varie légèrement ont déjà été observés lors de l'étude de monocristaux irradiés (réf. [17]). Mais nous ne voyons pas comment expliquer un tel phénomène.

CHAPITRE IV

NICKEL PUR - DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

La discussion des résultats expérimentaux que nous allons faire nous conduira à rappeler le modèle proposé dans notre Laboratoire par P. PERETTO pour la restauration des défauts dans le nickel (réf. [9]). Mais nous nous servirons plutôt comme fil conducteur des résultats des calculs numériques de R.A JOHNSON sur les défauts ponctuels dans les corps cubiques faces centrées. Les hypothèses de base pour ces calculs sont spécialement appropriées au cas du nickel (réf. [18] et [19]). Nous serons ainsi amenés à modifier quelque peu l'interprétation de P. PERETTO.

IV.1 - STADE I

IV.1.1 - Interprétation du stade I par P. PERETTO

P. PERETTO a élaboré ce modèle en tenant compte de ses expériences de traînage magnétique et de nos premières expériences de résistivité. Il propose que ce stade I rende compte de l'annihilation de paires lacune-interstitiel.

Les stades I_B et I_C suivraient l'annihilation de paires proches de structure bien définie ; ces défauts pourraient évoluer d'une structure à une structure équivalente avant de s'annihiler.

Le stade I_D suivrait l'annihilation de paires proches qui se recombineraient directement dans les lacunes, sans réorientation.

Le stade I_E , enfin, suivrait l'annihilation des interstitiels les plus éloignés, jusqu'à l'interstitiel libre inclus.

IV.1.2 - Sous-stades I_B et I_C

Tous les résultats expérimentaux obtenus en résistivité suggèrent, pour ces sous-stades, une annihilation de paires proches en accord avec les différents modèles actuels. Nous supposons, à cause de l'existence d'un phénomène de relaxation (traînage), que l'interstitiel se présente sous la forme dissociée (ce que montrent tous les calculs (réf. [18], [20] et [9])) et non sous forme de crowdion en interaction avec sa lacune-mère qui ne rendrait pas compte du type de relaxation magnétique observé. Nous supposons aussi que l'axe de cet interstitiel coïncide avec l'une des trois directions cristallographiques [100] (réf. [9]).

Nous allons essayer de comparer nos résultats expérimentaux aux calculs de JOHNSON sur les interactions lacune-interstitiel des paires de Frenkel proches (réf. [18] et fig. 15). Il nous faut, pour cela, définir d'abord les dénominations qu'il utilise :

- paires instables : se recombinent spontanément ;
- paires liées (bound pairs) : se recombinent avec une énergie inférieure à l'énergie de migration de l'interstitiel libre ;
- paires piégées (trapped pairs) : énergie nécessaire à la migration vers un site voisin supérieure à l'énergie de migration de l'interstitiel libre, et ce, quel que soit le chemin suivi ;
- paires répulsives : sont plutôt repoussées par la lacune.

Ces calculs ont montré que l'interaction entre lacune et interstitiel devient inférieure à 0,01 eV à partir d'une distance entre ces composantes correspondant à une position de cinquième voisin. La figure 16 montre quelles sont ainsi les diverses paires proches à envisager et leurs configurations possibles. Parmi celles-ci, seules peuvent, d'après P. PERETTO (réf. [9] et [12]), donner lieu à une bande de traînage magnétique les paires 1a, 1b, 3a, 3b, 5a, 5c.

Le stade I_B et une partie du stade I_C doivent donc correspondre chacun à une de ces paires puisqu'une bande de traînage leur est associée. Les configurations 1b, instable et 1a, répulsive (réf. [18]) sont écartées. De même, sont écartées la paire 3a, piégée et la paire 5a que la migration vers la lacune conduit en cette position de paire piégée 3a. Il ne nous reste plus que les configurations 3b et 5c auxquelles nous associerons les défauts s'annihilant respectivement aux stades I_B et I_C (pour une partie de celui-ci). Nous sommes alors en désaccord avec les résultats de JOHNSON pour le stade I_B puisqu'ils conduisent à l'instabilité du défaut 3b.

Pour le deuxième défaut s'annihilant au stade I_C , nous avons le choix entre les paires 2, 4 et 5b. Les paires 2a, répulsives et 4a, instables, sont repoussées. La paire liée 2b peut donner lieu à un stade de restauration de la résistivité : ce stade est sans doute situé à très basse température, car l'interstitiel n'a qu'un saut à faire pour s'annihiler (passage en 1b instable). Il pourrait s'agir d'un stade I_A apparaissant à une température inférieure à 20°K. Il ne reste plus que les paires 4b et 5b. Nous préférons la paire 5b, défaut peu différent de la paire 5c. La paire 4b est d'ailleurs située sur une ligne dense du réseau et VINEYARD (réf. [20]) a montré l'instabilité de ces sites.

Il est donc possible d'interpréter correctement nos résultats expérimentaux sans s'écarter grandement des résultats de JOHNSON. Le modèle ci-dessus n'est d'ailleurs pas en contradiction avec l'existence de quatre sous-réseaux de diffusion déconnectés pour la migration de l'interstitiel (fig. [17]) : chaque site du réseau cristallin ne peut être atteint que par trois sous-réseaux et aucun des interstitiels disparaissant aux stades I_B et I_C ne se trouve sur le quatrième sous-réseau avec notre modèle.

Notons que les configurations de paires proches proposées par P. PERETTO pour les défauts associés aux bandes de traînage I_B et I_C (réf. [9]) correspondent aux paires 3b et 5a. Les calculs de JOHNSON nous ont conduit à préférer à la paire 5a la paire 5c, tandis que le choix de P. PERETTO a été suggéré par le mode de migration qu'il adopte, légèrement différent de celui de R. A. JOHNSON.

IV.1.3 - Sous-stade I_D

Aucune zone de traînage ne lui est associée et, en conséquence, les résultats obte-

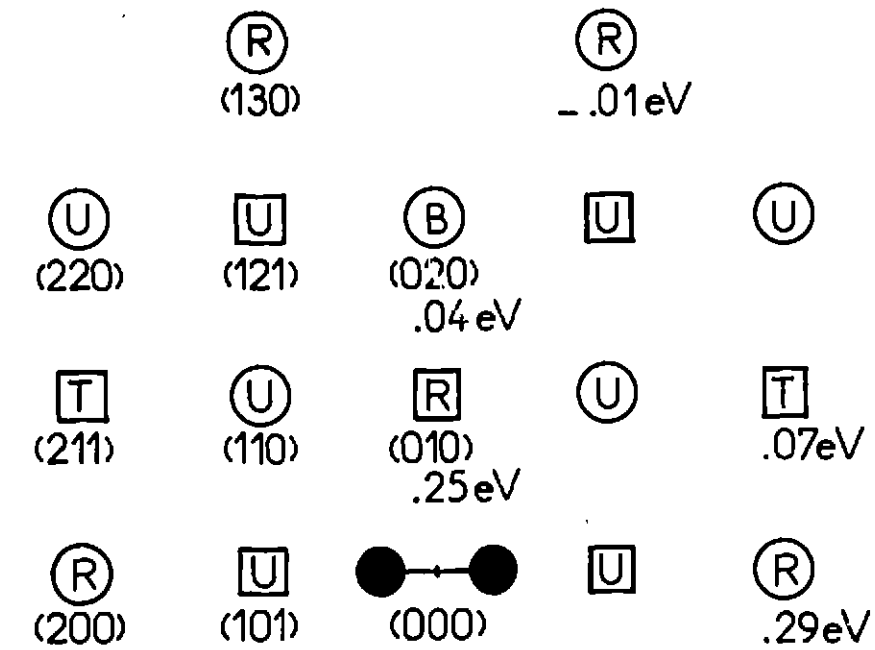


Figure 15 - Energie d'interaction entre lacune et interstitiel dans le nickel, d'après R. A. JOHNSON (réf. 13). Les cercles représentent les sites lacunaires situés dans le plan (100) de l'interstitiel, les carrés ceux qui sont dans les plans parallèles voisins. U = site instable, R = site répulsif, T = site piégeant ($E_g > E_m$), B = site lié ($E_g < E_m$)

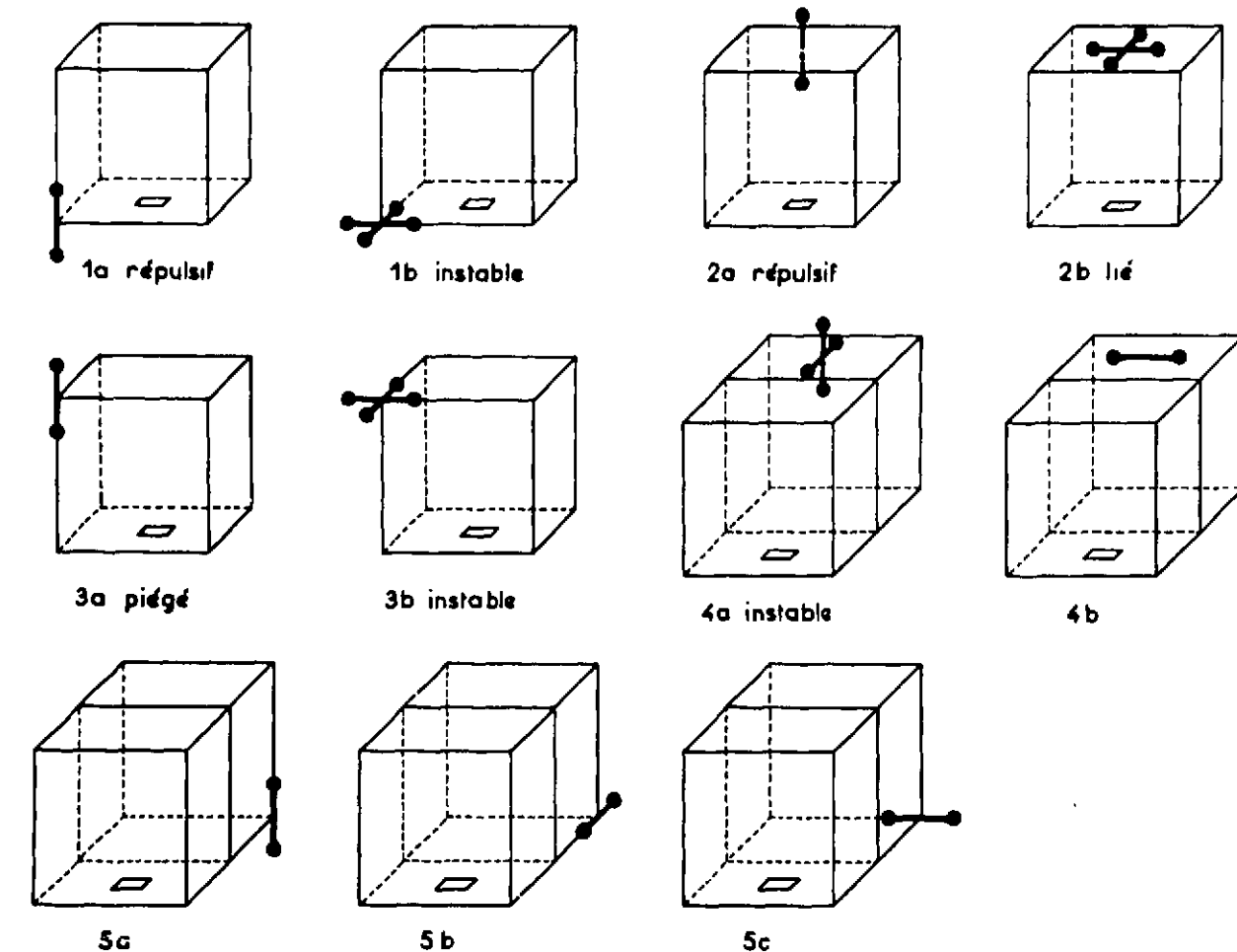


Figure 16 - Structures possibles des diverses paires proches jusqu'en position de cinquième voisin par rapport à la lacune : avec la nomenclature utilisée sont également notés les résultats de R. A. JOHNSON (cf. figure 15)

nus en résistivité sont précieux pour l'élaboration d'un modèle. Nous avons vu que son domaine de température ne dépend pas de la concentration de défauts. Sa cinétique de guérison n'est pas simple, mais il est possible de décomposer l'isotherme correspondante en plusieurs isothermes du premier ordre. La largeur anormalement grande du pic I_D ne permet d'ailleurs pas d'expliquer ce stade par l'annihilation d'un défaut bien défini suivant une seule cinétique du premier ordre.

Ce stade est attribué à un ensemble d'interstitiels suffisamment proches de la lacune-mère pour être en interaction avec elle et qui migreraient sur des sites instables proche voisins (réf. [12]). Les énergies de guérison de ces défauts s'échelonnent de 0,12 eV à 0,15 eV, énergie de guérison de l'interstitiel libre, et ils ne pourraient se réorienter, leur migration s'effectuant dans une vallée de potentiel assez profonde pour interdire toute réorientation.

Cette interprétation est en accord avec les calculs de VINEYARD sur la dynamique de création des défauts dans le cuivre ; les chocs focalisés [100] laissent de nombreux interstitiels près de la lacune-mère, et, d'autre part, la zone d'instabilité peut s'étendre à une assez longue distance suivant les lignes denses du réseau [110].

IV.1.4 - Sous-stade I_E

Une zone de traînage magnétique lui est associée et le défaut correspondant se réoriente avec une énergie de réorientation de l'ordre de 0,15 eV, égale à son énergie de guérison.

Comme nous l'avons vu, les expériences de résistivité mettent en évidence un déplacement régulier vers les basses températures quand la dose croît, qui conduit à une cinétique de disparition du défaut, comprise entre 1 et 2.

A la suite de MOSER, dans le fer (réf. [5]) et comme PERETTO (réf. [12]), nous attribuerons le revenu de résistivité associé à ce stade à l'annihilation de l'interstitiel libre. Dans ce cas, nous devrions trouver un ordre 2, comme dans le cuivre (réf. [1]). Mais PERETTO (réf. [9]) explique les résultats obtenus avec nos échantillons en résistivité comme en traînage magnétique, en tenant compte de la topographie des défauts créés lors d'irradiations avec des électrons.

IV.1.5 - Remarques sur l'analyse du stade I

Tous les auteurs, qui ont étudié les défauts créés par irradiation dans les métaux cubiques faces centrées, sont d'accord pour associer l'ensemble des sous-stades I à des défauts simples de nature interstitielle. En particulier, l'attribution des sous-stades I_B et I_C à des paires de Frenkel proches ne semble plus devoir être remise en question.

Mais, comme nous l'avons signalé dans le chapitre I, le domaine de température dans lequel migre et s'annihile l'interstitiel libre reste encore un sujet de controverse. Ainsi, dans le cas du cuivre, cette annihilation est associée au stade III par M-S-B (réf. [2]) et SEEGER (réf. [3]), aux sous-stades I_D et I_E par CORBETT, SMITH et WALKER (réf. [1] et [21]), au sous-stade I_E par GRANATO et NILAN (réf. [16]). Pour ces derniers, le stade I_D serait un continuum correspondant à l'annihilation de diverses paires assez lointaines, mais où l'interstitiel est soumis à une forte interaction de la part de la lacune.

Nos résultats expérimentaux nous ont conduits à attribuer le sous-stade I_E à la disparition de l'interstitiel libre, le stade I_D à un ensemble d'interstitiels disparaissant dans

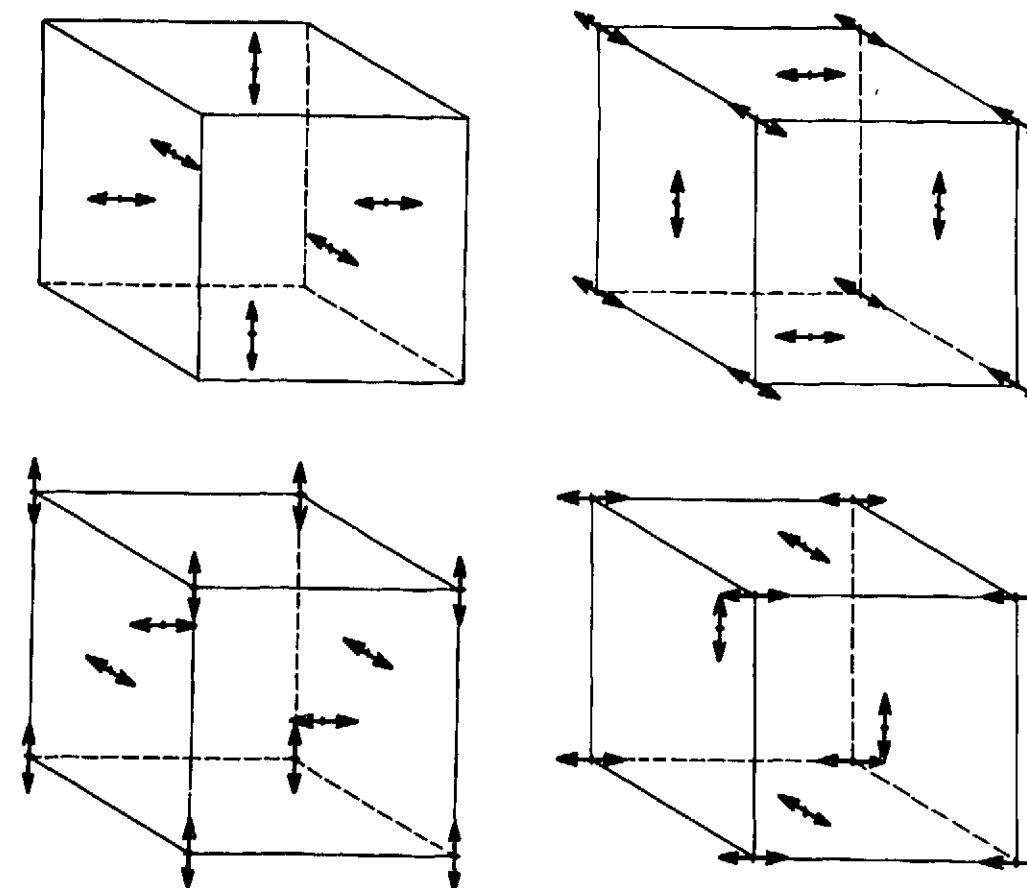


Figure 17 - Sous-réseaux de diffusion pour l'interstitiel dissocié (100)

leur lacune-mère, chacun suivant une cinétique d'ordre 1. Cette interprétation se rapproche donc grandement de celle proposée pour les mêmes sous-stades du cuivre par GRANATO et NILAN.

La subdivision du stade I_D en de nombreux pics d'ordre 1 a été confirmée par les résultats obtenus sur le cuivre et l'aluminium par l'équipe de J.W. KAUFFMAN (réf. [22] et [23]), à l'aide de traitements thermiques isochrones à paliers très rapprochés (0,75°).

Une subdivision analogue est également observée par ces chercheurs au stade I_E . Les premiers résultats semblaient montrer que ce stade ne se déplace pas en température avec la dose, mais que ce sont les variations d'amplitude des pics d'ordre 1 le composant qui font croire à un tel déplacement.

Mais une récente analyse (réf. [24]) de la cinétique de restauration du stade I_E conduit à un ordre variant de 1,2 à 1,6 (valeur asymptotique) quand croît la concentration de défauts : ce comportement est expliqué à l'aide de cinétiques du second ordre (annihilation de l'interstitiel libre) influencées par un excès de concentration lacunaire dû au piégeage d'interstitiels par des impuretés résiduelles.

Avec nos expériences, nous avons obtenu un ordre voisin de 1,7 pour la cinétique de restauration du stade I_E , alors que, d'après WALKER, il serait nécessaire d'observer un ordre 2 pour que notre interprétation soit valable. Le correctif proposé par P. PERETTO permet toutefois de penser que cette valeur 1,7 est en bon accord avec cette interprétation. La cinétique d'annihilation du défaut I_E tend d'ailleurs vers un ordre 2 quand croît la concentration de défauts (très fortes irradiations aux électrons par exemple). Cette variation s'explique, sans faire intervenir comme ci-dessus (réf. [24]) l'influence des impuretés résiduelles, par le fait

que l'on tend ainsi vers une répartition plus homogène des défauts.

IV.2 - STADE II

IV.2.1 - Interprétation du stade II par P. PERETTO

Le stade Π_A , à vrai dire faible (1 % de l'accroissement total de résistivité), n'est pas expliqué par P. PERETTO.

Le stade Π_B est attribué au diinterstitiel : son annihilation se produirait par éclatement (ordre 1 obtenu par disparition du traînage magnétique au cours d'un traitement isotherme), mais il pourrait se réorienter sur place.

Les stades Π_C et Π_D seraient dus à des complexes d'interstitiels de plus en plus compliqués, formés autour d'une impureté : l'ensemble des zones de traînage II suivrait alors la réorientation de ces complexes (de plus en plus importants quand la température augmente) et leur transformation les uns dans les autres. Il est également possible d'observer ces zones sur des échantillons très purs irradiés avec des neutrons. Des complexes d'interstitiels suffisamment importants pourraient être créés pendant l'irradiation même : le phénomène de nucléation pourrait alors se produire autour de ces complexes, comme il se produit autour d'une impureté.

Les stades Π_C et Π_D visibles en résistivité s'expliqueraient par la présence de complexes plus stables, retardant momentanément l'évolution de ces complexes. La décroissance de résistivité serait due à la rencontre de lacunes par des interstitiels libérés par la scission d'un complexe. Cette rencontre aurait lieu au cours de la migration de ceux-ci d'un complexe vers un autre.

IV.2.2 - Sous-stade Π_A

Les expériences de résistivité montrent l'existence d'un stade Π_A même pour des échantillons de nickel très pur, alors que le même nickel ne présente aucune zone de traînage magnétique dans cette région (71°K - 83°K). Mais une zone de traînage magnétique apparaît dans ce domaine de températures pour du nickel contenant du fer. Elle est associée au stade Π'_A de restauration de l'échantillon impur.

Il nous semble impossible d'assimiler le stade Π_A au stade Π'_A du nickel impur : le nickel pur utilisé contient environ 3 ppm de fer qui ne sauraient induire un stade de restauration de résistivité aussi important.

Un défaut de type paire proche, lacune-interstitiel piégés, tel qu'il a été défini plus haut, nous paraît compatible avec nos résultats expérimentaux. Les calculs de JOHNSON (réf. [18]) ont montré que l'interstitiel dédoublé en position de troisième voisin, dans la configuration 3a (fig. 16) correspond à une telle éventualité. Son énergie de guérison serait de 0,22 eV. Cette valeur est en bon accord avec l'énergie de guérison trouvée pour le stade Π_A , si on suppose applicable à nos résultats expérimentaux la loi de WERT et MARX.

Considérons la cinétique de disparition d'un tel défaut. On pourrait penser que l'annihilation de la paire piégée est régie par une cinétique d'ordre 2. En fait, on peut montrer que si l'énergie de guérison de ce défaut est suffisamment supérieure à l'énergie de migration au sein du cristal de l'interstitiel libre, la cinétique d'annihilation est d'ordre 1.

En effet, le temps moyen θ passé dans un site est donné par une loi du type :

$$\theta = \theta^\infty \exp\left(\frac{E_m}{kT}\right)$$

où E_m est l'énergie d'activation du processus de migration,

θ^∞ est la constante de temps limite, correspondant à une température infinie.

L'énergie de guérison de l'interstitiel piégé est 0,22 eV ; l'énergie de migration de l'interstitiel libre est 0,15 eV. A la température de 79°K, on a alors :

$$\theta_1 \approx 30 \cdot 10^4 \theta_2$$

où θ_1 est le temps moyen passé en position piégée

θ_2 est le temps moyen passé sur un autre site.

Le nombre moyen de sauts nécessaires à l'interstitiel dépiégé pour trouver une lacune est très inférieur à $30 \cdot 10^4$ (l'annihilation s'effectue d'ailleurs probablement dans la lacune-mère). La guérison de la paire piégée est commandée uniquement par le premier saut. La cinétique d'annihilation est d'ordre 1.

Expérimentalement, nous avons vu que ce stade ne se déplace pas, quand varie la concentration initiale de défauts. Ce résultat a été confirmé par une irradiation avec des neutrons à la température du néon liquide. Dans cette expérience, la concentration initiale de défauts introduits était plus de quinze fois supérieure à celle correspondant à la plus forte irradiation que nous avons effectuée avec des électrons. L'annihilation du défaut disparaissant au stade Π_A semble donc effectivement être d'ordre 1.

Ainsi, il nous paraît raisonnable d'attribuer le stade Π_A à un défaut du type paire piégée. La paire 3a peut parfaitement convenir à nos résultats expérimentaux.

Notons que, dans ce cas, la nomenclature I_F semble préférable à Π_A : les sous-stades I correspondraient à tous les défauts simples de type interstitiel et les sous-stades II à des défauts plus complexes, comme nous allons le voir.

IV.2.3 - Sous-stade Π_B

On peut penser que l'augmentation de la durée d'irradiation, ou de l'énergie des électrons incidents, favorise la formation de diinterstitiels en cours même d'irradiation et favorise également la rencontre des interstitiels avant leur annihilation au stade I_F . Or, le stade Π_B croît avec la dose et l'énergie des électrons incidents. Nous voyons là un argument en faveur de l'explication du stade Π_B par la disparition des diinterstitiels.

Ce stade Π_B se déplace en température, quand varie la durée d'irradiation et, par suite, la concentration initiale de diinterstitiels : un ordre 2 est compatible avec ce déplacement, ce qui a été confirmé par l'expérience d'irradiation avec des neutrons dont nous avons parlé pour le stade Π_A .

Nous sommes donc ici en désaccord avec les résultats de P. PERETTO (à la condition que le stade de restauration Π_B puisse être associé à la zone de traînage correspondante). Le processus d'annihilation qu'il imagine ne nous semble pas acceptable; le diinterstitiel ne se dissocie pas. Mais s'il est difficile de dissocier le diinterstitiel à la température du stade Π_B , il est, par contre, possible d'expliquer sa disparition par migration à cette température là. Les résultats de R.A. JOHNSON (réf. [19]) vont à l'appui de cette interprétation : l'énergie de

migration obtenue est 0,29 eV et l'énergie de liaison 1,16 eV (dissociation difficile). La première valeur convient bien au domaine de température du stade Π_B . P. PERETTO trouve d'ailleurs une énergie de guérison de 0,30 eV.

Ainsi, à l'opposé des résultats obtenus en traînage magnétique, nos mesures de résistivité semblent montrer que le processus d'annihilation des diinterstitiels est une migration du défaut dans son ensemble vers les lacunes. Notre interprétation est d'ailleurs compatible avec le nombre moyen de sauts de réorientation trouvé par P. PERETTO (de l'ordre de 3 000).

Notons enfin qu'avec notre interprétation, il est préférable d'adopter pour ce diinterstitiel la structure proposée par R.A. JOHNSON (Π_a), qui conduit à une migration avec réorientation, et non celle retenue par P. PERETTO (Π_b) (cf. fig. 18).

IV.2.4 - Sous-stades Π_C et Π_D

Ces stades Π_C et Π_D sont assez bien définis. On peut les distinguer dans la lente décroissance de résistivité qui suit le stade Π_B . Ce phénomène, signalé par BLEWITT (réf. [25]) dans le cas d'irradiation du nickel par des neutrons, a été retrouvé dans nos expériences d'irradiation par des électrons.

Nous pourrions expliquer ces stades de la même manière que P. PERETTO. Mais cette interprétation est plus difficilement applicable aux irradiations électroniques : il faudrait, en effet, alors supposer que lors de telles irradiations, des complexes d'interstitiels suffisamment gros sont déjà formés pour permettre le phénomène de nucléation. Cette interprétation est, d'autre part, en désaccord avec les calculs actuels : plus les amas d'interstitiels sont gros, plus les énergies de liaison sont élevées (de l'ordre de 2,85 eV pour les triinterstitiels, 4,1 eV pour les tétrainterstitiels, d'après JOHNSON (réf. [19])). Il serait donc impossible d'observer la transformation de ces amas les uns dans les autres.

Il nous semble préférable d'interpréter ces stades par la disparition d'interstitiels sous forme de complexes dans les lacunes. Le plus petit de ces complexes (diinterstitiel) a été associé au stade Π_B . La concentration en diinterstitiels peut être suffisamment importante pour permettre, lors de leur migration, la formation simultanée de complexes plus importants. Ainsi, lorsqu'un diinterstitiel rencontre une lacune, l'interstitiel restant peut rencontrer un autre diinterstitiel et former un triinterstitiel. De même, deux diinterstitiels se rencontrant peuvent former un tétrainterstitiel. Lorsqu'ils deviendront libres de se mouvoir, ces amas iront s'annihiler dans des lacunes. L'énergie de migration trouvée par JOHNSON pour le triinterstitiel (0,45 eV) conviendrait d'ailleurs pour le stade Π_C . Elle croît rapidement avec la taille des amas. Les triinterstitiels et les tétrainterstitiels seraient les seuls amas observables en quantité suffisante et correspondraient à ces stades Π_C et Π_D .

Notons, enfin, que ces stades pourraient aussi être assimilés à ceux obtenus par MERKLEN et DIMITROV (réf. [26]) avec des échantillons de nickel laminés dans l'azote ou l'hydrogène liquide : un stade de restauration de la résistivité vers 180°K (énergie d'activation $0,35 \pm 0,05$ eV) et un autre stade à 235°K (énergie d'activation $0,60 \pm 0,1$ eV).

D'autres auteurs, (réf. [27]) ont obtenu par des expériences semblables un stade équivalent au stade Π_D (énergie d'activation $0,54 \pm 0,03$ eV). Ils interprètent ces stades par le dépiégeage d'interstitiels liés plus ou moins fortement à des impuretés ou à des dislocations.

La pureté de nos échantillons et leur faible densité de dislocation ne nous permettent pas de retenir ces interprétations pour les stades que nous avons observés. Nous verrons d'ailleurs plus loin que l'effet des impuretés se manifeste généralement à plus basse température, sans que

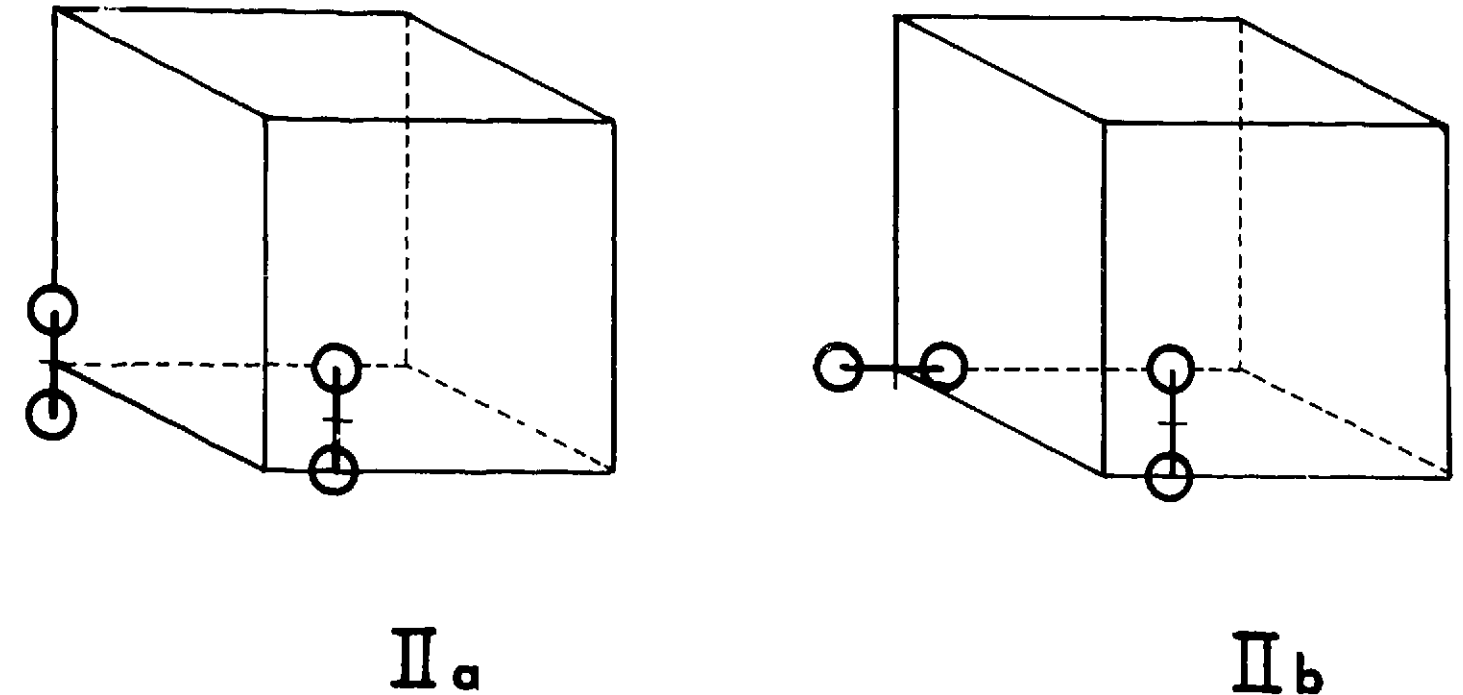


Figure 18 - Deux structures parmi les quatre possibles pour le diinterstitiel (réf. 1)

Π_a - structure proposée par R.A. JOHNSON (réf. 14) et que nous adoptons
 Π_b - structure retenue par P. PERETTO (réf. 1)

ces stades soient grandement affectés. D'autre part, l'étude parallèle d'un échantillon de nickel recuit et d'un échantillon assez fortement écroui, tous deux irradiés avec des électrons de 3 MeV, ne révèle pas de différence de comportement de ces stades.

Bien que nous ne possédions pas d'argument définitif, nous préférons la deuxième interprétation (migration des triinterstitiels au stade Π_C et des tétrainterstitiels au stade Π_D). Nous devrions alors observer un déplacement vers les basses températures de ces stades, quand la concentration de défauts croît. Nous avons dit que ce déplacement est difficile à observer avec nos irradiations par des électrons. Mais l'irradiation par des neutrons à 28°K ne nous a permis d'observer un déplacement que pour le stade Π_D .

IV.2.5 - Remarques sur l'analyse des sous-stades Π_B , Π_C et Π_D

Nous avons interprété ces stades uniquement à l'aide de complexes d'interstitiels qui, devenus libres de migrer, rencontreraient des lacunes au cours de leur migration.

CORBETT, SMITH et WALKER (réf. [1]) pensent que, dans le cuivre, les interstitiels piégés par les impuretés peuvent également prendre part au stade II : il est effectivement possible que ce processus intervienne au cours du stade II du nickel, bien que, comme nous le verrons, le relâchement de ces interstitiels intervienne généralement avant le stade Π_B .

Pour SEEGER (réf. [3]), le stade II du cuivre serait dû à la recombinaison de paires éloignées, à laquelle se superposerait la migration de bilacunes et autres polylacunes. Mais il faudrait alors étendre la zone d'interaction lacune-interstitiel à grande distance (10a par

par exemple, d'après VON JAN (réf. [28]). Cela est en contradiction avec les résultats de VINEYARD (réf. [20]) et JOHNSON (réf. [18]). Quant aux polylacunes, elles migreraient à plus haute température dans le nickel, si l'on se réfère aux calculs de JOHNSON (énergies de migration de 0,90 eV, 1,02 eV et 1,15 eV pour les bilacunes, trilacunes et tétralacunes (réf. [19])).

C'est pourquoi nous estimons que notre interprétation, malgré le peu de résultats expérimentaux sur lesquels elle s'appuie, est actuellement préférable à celles-ci. Notons, cependant, que P. MOSER* pense que les amas d'interstitiels, à partir du tétrainterstitiel, seraient immobiles par les processus classiques, d'où la nécessité d'envisager un autre processus de migration: Ce pourrait être par exemple un déplacement en bloc, analogue au déplacement des dislocations glissiles.

IV.3 - STADE III

Il n'est pas plus important que les sous-stades II_C et II_D précédents, et nous ne pensons donc pas qu'un rôle prépondérant doive lui être dévolu, comme dans le modèle de SEEGER (réf. [3]).

Nos expériences ne permettent pas de faire une étude précise de ce stade, par suite de sa faible amplitude. P. PERETTO (réf. [9]) propose de l'attribuer à l'annihilation des bilacunes qui rencontreraient des monolacunes ou d'autres complexes de lacunes ou des agglomérats d'interstitiels. Cette interprétation est en assez bon accord avec les expériences de SEEGER et al. (réf. [29] et [30]) et avec les calculs de JOHNSON (réf. [19]) : en effet, celui-ci trouve une énergie de migration de 0,90 eV pour la bilacune, tandis que SEEGER obtient des énergies de l'ordre de 0,80 eV et 1,0 pour les deux défauts attribués aux bilacunes par P. PERETTO, à l'interstitiel libre et à une bilacune par lui-même. Aussi n'irons-nous pas à l'encontre de l'interprétation de P. PERETTO.

IV.4 - CONCLUSION

Les expériences systématiques de mesure de résistivité électrique du nickel pur irradié par des électrons nous ont permis de compléter le modèle proposé par P. PERETTO en ce qui concerne les stades I_C et II_A. Nous proposons, par ailleurs, de modifier son interprétation des processus d'évolution et d'annihilation des défauts responsables des stades II_B, II_C et II_D.

Le tableau suivant résume le modèle auquel nous sommes ainsi arrivés :

Nomenclature des stades	Nature du défaut	Structure du défaut (cf. fig. 16 et 18)	Température de demi-guérison	Ordre de réaction γ	Energie de guérison
I _B	paire proche	3 b	28°K	1	$\approx 0,085$ eV
I _C	2 paires proches	5 c et 5 b	43°K	1	$\approx 0,13$ et $0,14$ eV
I _D	ensemble de paires proches	-	55°K	1	$\approx 0,15$ eV
I _E	interstitiel libre	interstitiel dissocié	63°K	$1 < \gamma < 2$	0,15 eV d'après P. PERETTO)
II _A	paire proche piégée	3 a	71°K	1	$\approx 0,22$ eV
II _B	diinterstitiel	II a	105°K	2	$\approx 0,29$ eV
II _C	triinterstitiel		160°K		$\approx 0,45$ eV
II _D	tétrainterstitiel		250°K		
III	bilacunes (d'après P. PERETTO)		375°K		

* Communication personnelle.

CHAPITRE V

NICKEL FAIBLEMENT ALLIÉ RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

V.1 - PRODUCTION DE DEFAUTS

V.1.1 - Hypothèse de base

Dans des conditions d'irradiations identiques à celles utilisées pour le nickel pur, l'accroissement de résistivité observé sur des échantillons de nickel faiblement allié est également une fonction linéaire de la dose d'électrons incidents.

Mais pour une même dose d'électrons incidents cet accroissement est toujours plus important dans le cas du nickel impur.

Ces résultats apparaissent sur la figure 19. Dans le tableau ci-dessous sont consignées les valeurs p du rapport de l'accroissement de résistivité d'échantillons impurs à celui d'un échantillon de nickel pur irradié de manière analogue. L'incertitude sur ces valeurs p est de l'ordre de 5 à 10 %. Elle provient essentiellement du positionnement des échantillons face au faisceau électronique.

Concentration (ppm) ↓	Impuretés →				
	Si	Fe	Co	Cu	Sb
0	1	1	1	1	1
1 000	> 1,2	≈ 1,1	≈ 1,1	≈ 1,1	1,7
5 000	> 3	≈ 1,5	≈ 1,5	≈ 1,5	
10 000		2,2			

Nous voyons sur ce tableau que les différences les plus importantes sont observées lorsqu'on ajoute au nickel pur du silicium ou de l'antimoine. Ces impuretés ont des rayons atomiques différant notablement de celui du nickel. Pour le fer, le cobalt (métaux de transition) et le cuivre, de rayon atomique voisin de celui du nickel, les différences sont encore très importantes. Notons également que, pour une impureté donnée, le rapport p est d'autant plus grand que celle-ci apparaît en concentration plus importante.

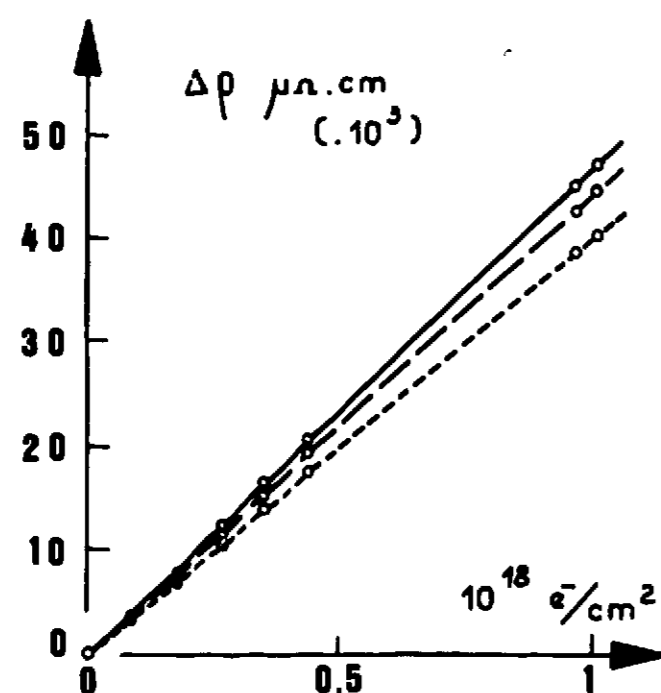


Figure 19 - Accroissement de résistivité en fonction de la dose d'électrons incidents (énergie égale à 3 MeV) :

----- Nickel pur
 Nickel + 1000 ppm de fer
 ——— Nickel + 1000 ppm de cuivre

Cette différence dans les accroissements initiaux de résistivité du nickel pur et du nickel impur peut s'expliquer de deux manières différentes, suivant que l'on accepte ou refuse l'hypothèse suivante :

"une même dose de particules incidentes crée une quantité sensiblement équivalente de paires de Frenkel dans le nickel pur comme dans le nickel impur".

V.I.2 - Si nous admettons cette hypothèse : nous devons alors admettre que, dans le cas du nickel, la contribution à la résistivité d'une paire de Frenkel varie avec la pureté du métal (réf. [31]). L'amplitude de cet effet serait variable suivant la nature de l'impureté, et également croîtrait pour une impureté donnée avec sa concentration.

Une telle interprétation met en cause l'additivité des contributions à la résistivité résiduelle des divers centres diffuseurs (loi de MATTHIESEN - 1864). Mais d'autres auteurs ont mis en évidence des écarts à cette règle. En particulier, CAMPBELL, FERT et POMEROY (réf. [32]) ont montré que la résistivité résiduelle d'échantillons de fer pollués par deux types d'impuretés est supérieure à la somme de chacune des résistivités résiduelles. La différence peut atteindre des valeurs de l'ordre de 50 %. Ils justifient ce phénomène à l'aide d'un modèle à deux courants en parallèle transportés par les électrons de spin positif (ρ_{\uparrow}) et les électrons de spin négatifs (ρ_{\downarrow}). Si deux impuretés telles que $\frac{\rho_{1\uparrow}}{\rho_{1\downarrow}} \neq \frac{\rho_{2\uparrow}}{\rho_{2\downarrow}}$ sont présentes dans l'échantillon, elles apportent à la résistivité résiduelle une contribution plus élevée que ne le prédit la règle de MATTHIESEN.

Nos échantillons de nickel impur contiennent, après irradiation, des impuretés, des lacunes et des interstitiels. Il est possible que la combinaison de ces trois centres diffuseurs induise un phénomène analogue.

V.1.3 - Si nous rejetons cette hypothèse : l'effet observé serait alors dû à une modification apportée par la présence d'impuretés dans le processus de création des défauts. Plusieurs modes d'action peuvent ainsi être envisagés (réf. [32]).

Tout d'abord, une paire instable peut être stabilisée par la présence à proximité d'une impureté ; il s'agit là d'un effet "statique". Mais les calculs de JOHNSON (réf. [18]) nous ont montré qu'il n'existe autour d'une lacune que relativement peu de sites instables (32 configurations de paires proches d'après ses calculs) et qu'ils sont très proches de la lacune (distance maximum $a\sqrt{2}$). La stabilisation de telles paires doit sans doute exiger la présence d'une impureté à moindre distance encore que la lacune. Ce phénomène ne doit donc jouer qu'un rôle mineur. Remarquons d'ailleurs que si de nombreuses paires instables étaient ainsi stabilisées, de nouveaux stades devraient apparaître vers les basses températures. Du moins, les stades I_B et I_C devraient être élargis. Les courbes de restauration de la résistivité du nickel impur ne semblent pas altérées dans ce sens (cf. fig. 22 à 29).

Ensuite, un effet "dynamique", couramment envisagé peut aussi intervenir, qui diminuerait les phénomènes d'autoannihilation susceptibles d'exister dans le nickel pur. Deux modes d'action peuvent être envisagés :

1. Au cours des chocs focalisés, l'interstitiel rencontrant sur son parcours une impureté peut être bloqué par elle. Sans aller jusqu'à un tel effet, le choc peut être défocalisé, ce qui diminue la distance d'excursion de l'interstitiel, et donc sa probabilité d'annihilation. Le stade I_E pourrait ainsi être amplifié. Toutefois, ce mode d'action ne doit pas être très important puisque nous avons vu que dans le nickel pur l'annihilation lors des chocs focalisés est faible. De plus, l'énergie perturbante due à l'impureté est très faible comparée à l'énergie d'un choc focalisé.

2. VINEYARD (réf. [20]) a montré qu'un phénomène d'autoannihilation en anneau ("ring") pouvait intervenir fréquemment (fig. 20) : l'atome éjecté prend la place d'un atome voisin et ainsi de suite jusqu'à former une boucle fermée. Chaque atome a pris la place d'un atome voisin, le dernier prenant la place du premier atome éjecté, si bien qu'aucun défaut n'est finalement créé. Il s'agit là d'un phénomène très localisé et qui, pour nos expériences, n'est sans doute pas altéré par les paires de Frenkel antérieurement créées : la probabilité d'autoannihilation par ce processus serait ainsi constante tout au long de nos irradiations, et il n'y a pas de contradiction avec la linéarité de l'accroissement de résistivité du nickel pur.

Si une impureté se trouve à proximité de l'anneau, le processus d'autoannihilation peut être entravé et un interstitiel peut être créé à quelques distances atomiques de la lacune. Il serait donc susceptible de participer par la suite aux stades I_C ou I_D . Ainsi, VINEYARD donne l'exemple d'un anneau où une paire proche est "créée" en position de cinquième voisin avec un temps de vie d'environ $2 \cdot 10^{-13}$ s (fig. 21) ; une impureté voisine de ce site peut stabiliser cette paire, qui s'annihilerait alors pendant les stades I_C ou I_D .

V.1.4 - En conclusion, nous pensons qu'une explication correcte de nos résultats peut faire intervenir toutes les interprétations exposées ci-dessus. Mais nous accorderons une importance prédominante à la variation de résistivité des défauts due à la présence d'impuretés plutôt qu'à l'augmentation de la production de défauts. En effet, les phénomènes d'autoannihilation restent faibles dans le nickel pur pour nos doses d'irradiations. D'autre part, la présence d'impuretés modifie peu l'allure des courbes de restauration de la résistivité dans la région du stade I, comme nous le verrons. Une expérience couplée de mesures de résistivité et d'énergie libérée pourrait apporter de précieux renseignements : connaissant approxima-

à comparer des résultats de résistivité normés.

Si la règle de MATTHIESEN est parfaitement valable, nous sommes conduits à comparer les résultats de résistivité exprimés en valeur absolue.

Nous ne pouvons choisir entre ces deux systèmes de référence.

Nous avons, pour chacune des impuretés utilisées, reporté dans un tableau les résultats quantitatifs ainsi obtenus dans l'un et l'autre système de référence (pages 55 et 56).

Nous n'étudierons que le cas du nickel pollué par $5 \cdot 10^3$ ppm de fer, et en utilisant les résultats normés. Nous choisissons le fer comme impureté parce que des expériences de traînage magnétique ont été faites sur ces échantillons par P. PERETTO (réf. [5]). Le système de référence utilisé nous semble plus approprié, d'après la conclusion du paragraphe 1.4 de ce chapitre. Nous voyons ainsi que l'apparition des stades supplémentaires II'_A et II''_A se fait au détriment du stade I; le stade $I_D + I_E$ est le plus diminué. L'analyse de la figure 30 montre que ce sont d'ailleurs les paires I_D qui sont le plus affectées par la présence d'impuretés. Les stades I_E sont pratiquement les mêmes sur les deux courbes. L'impureté empêche donc, par sa présence, la guérison d'une grande partie des interstitiels du stade I_D (et également, mais de manière moindre, des stades I_B et I_C). Le fait que les épaulements I_E coïncident confirme les résultats des expériences de traînage magnétique : l'annihilation des interstitiels libres se fait de la même façon dans le nickel pur et dans le nickel allié. La formation des défauts responsables des stades II'_A et II''_A a donc lieu au cours même de l'irradiation et non pendant la migration des interstitiels. Ces résultats sont confirmés par ceux obtenus avec l'échantillon de nickel contenant 10 000 ppm de fer.

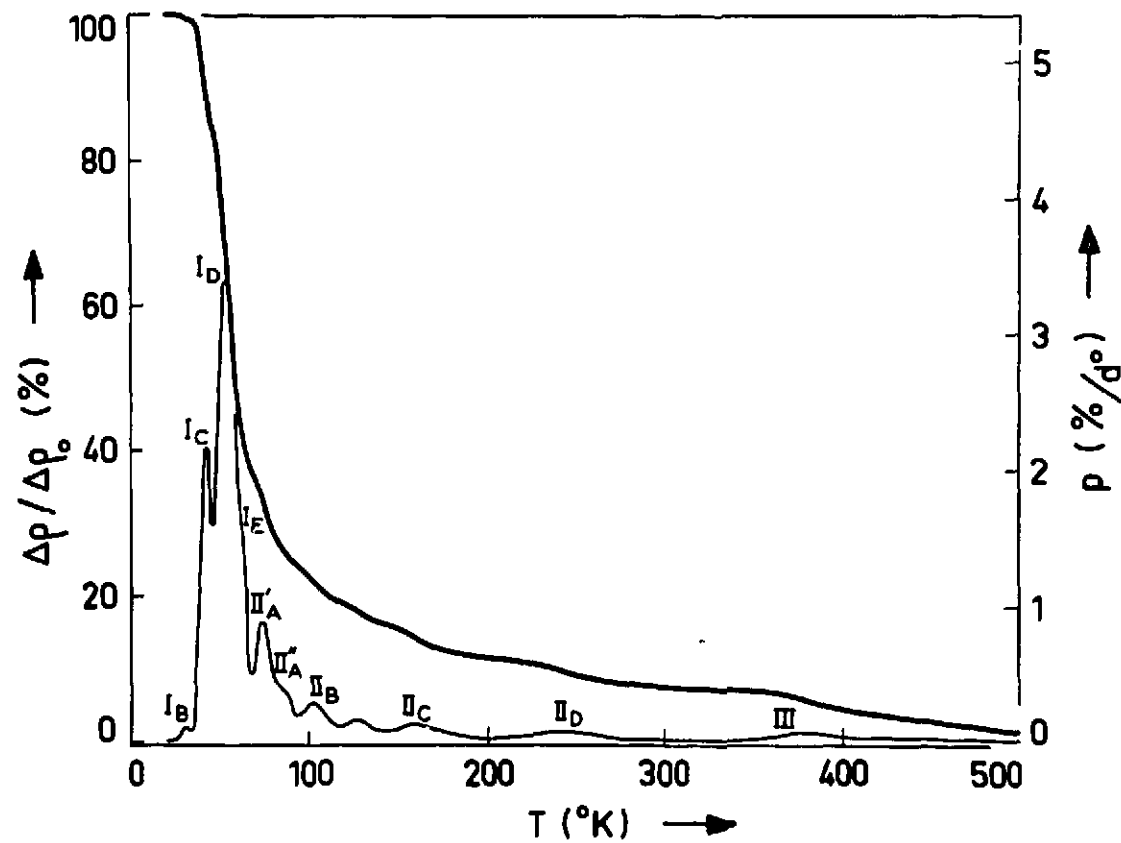


Figure 22 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de fer et irradié par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 (pour cette figure et les suivantes, les traitements thermiques sont analogues à ceux décrits figure 3)

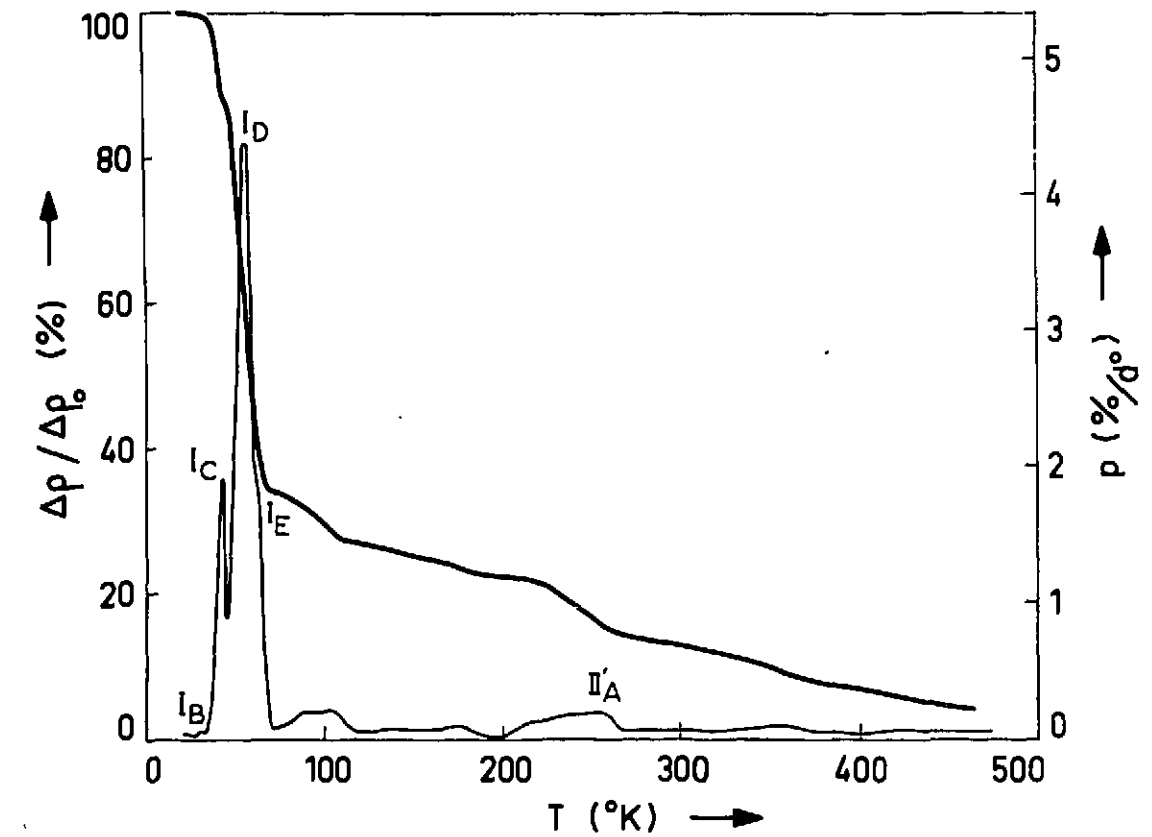


Figure 23 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de silicium et irradié par $1,5 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

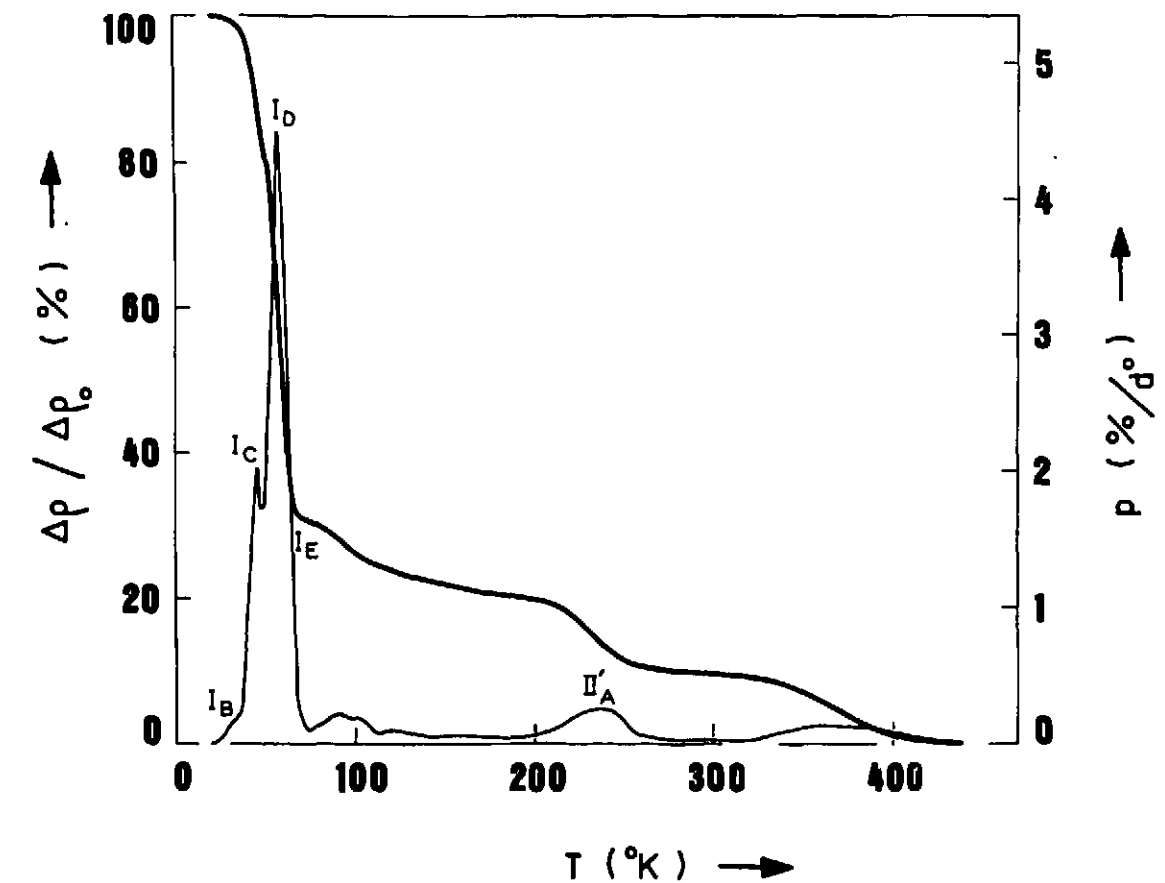


Figure 24 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon de nickel contenant 1000 ppm de silicium et irradié par $1,6 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

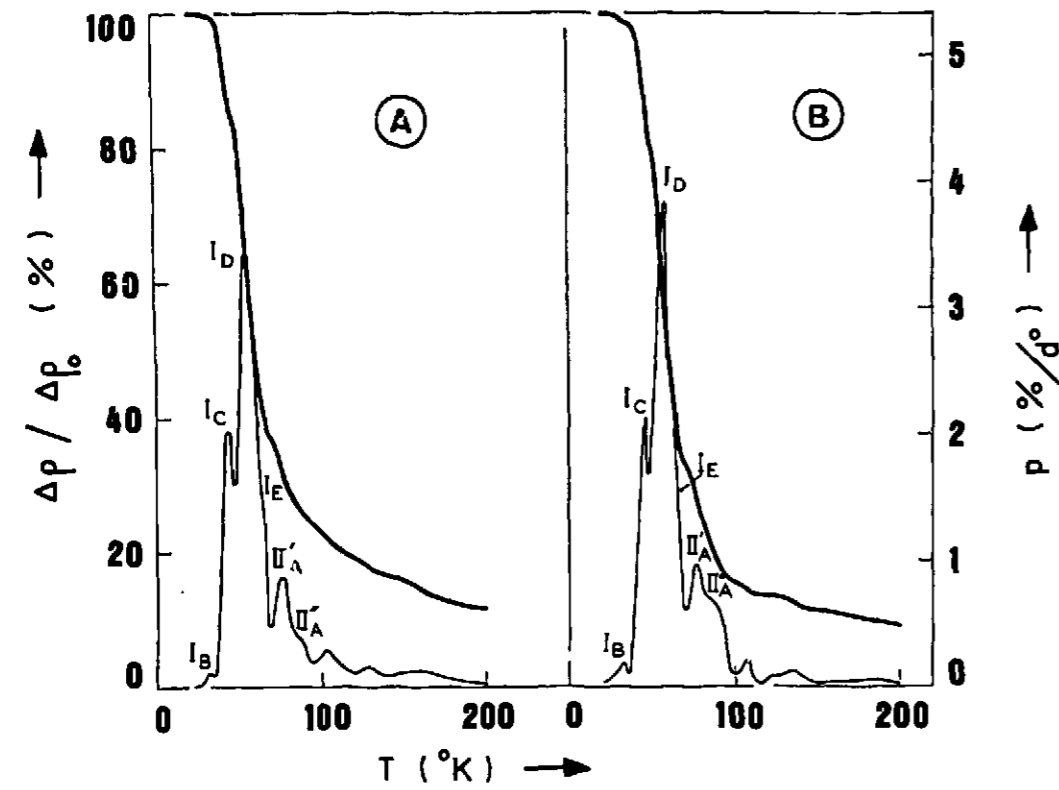


Figure 25 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour :
 A - un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de fer et irradié par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 ,
 B - un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de fer et irradié par $0,18 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

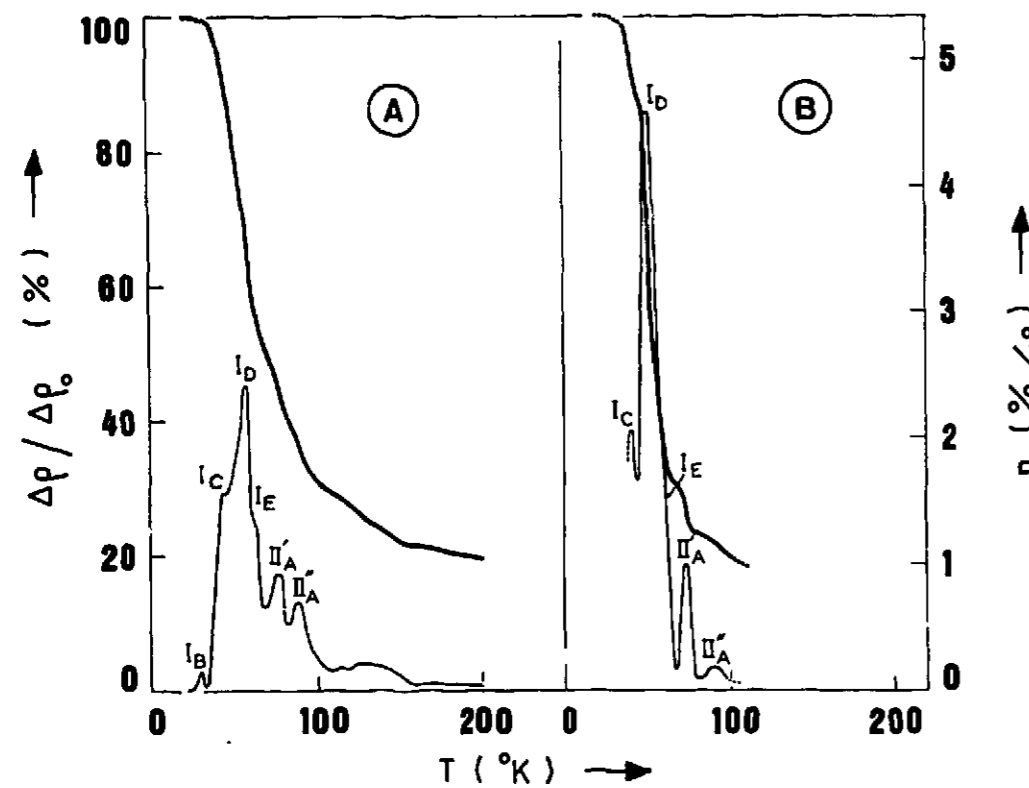


Figure 26 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour :
 A - un échantillon de nickel contenant 10000 ppm de fer et irradié par $1,5 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 ,
 B - un échantillon de nickel contenant 1000 ppm de fer et irradié par $0,9 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

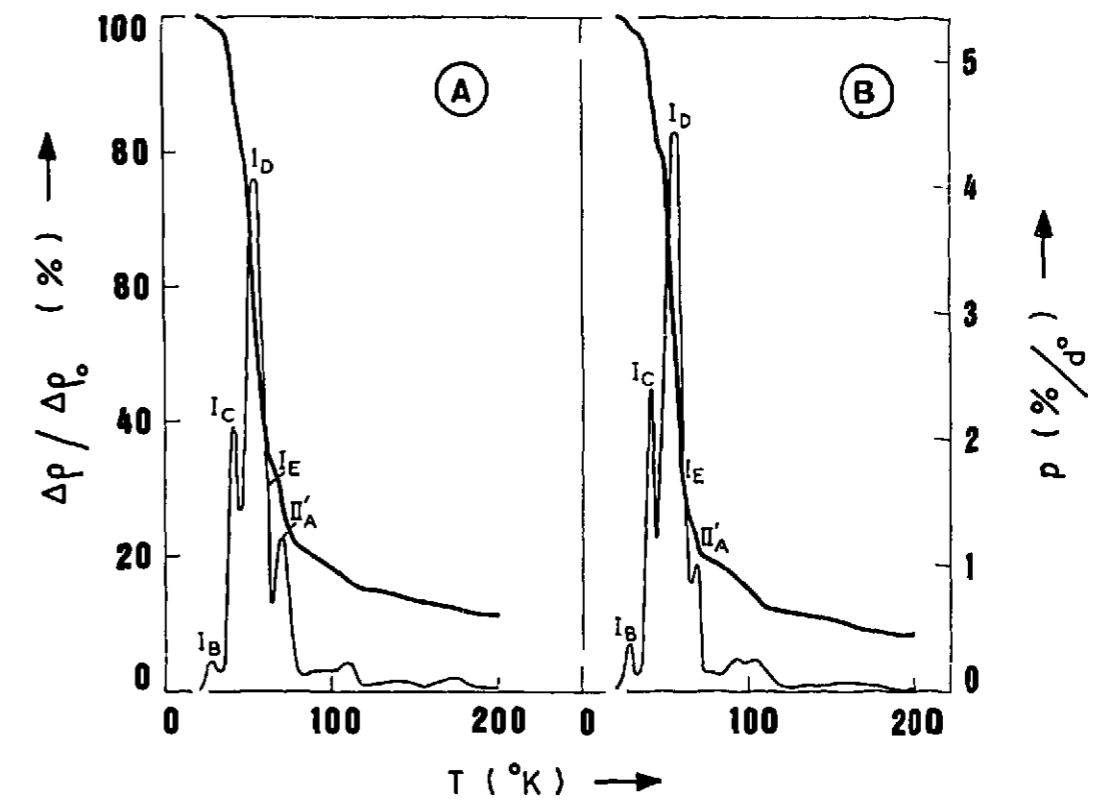


Figure 27 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour :
 A - un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de cobalt et irradié par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 ,
 B - un échantillon de nickel contenant 1000 ppm de cobalt et irradié par $1,5 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

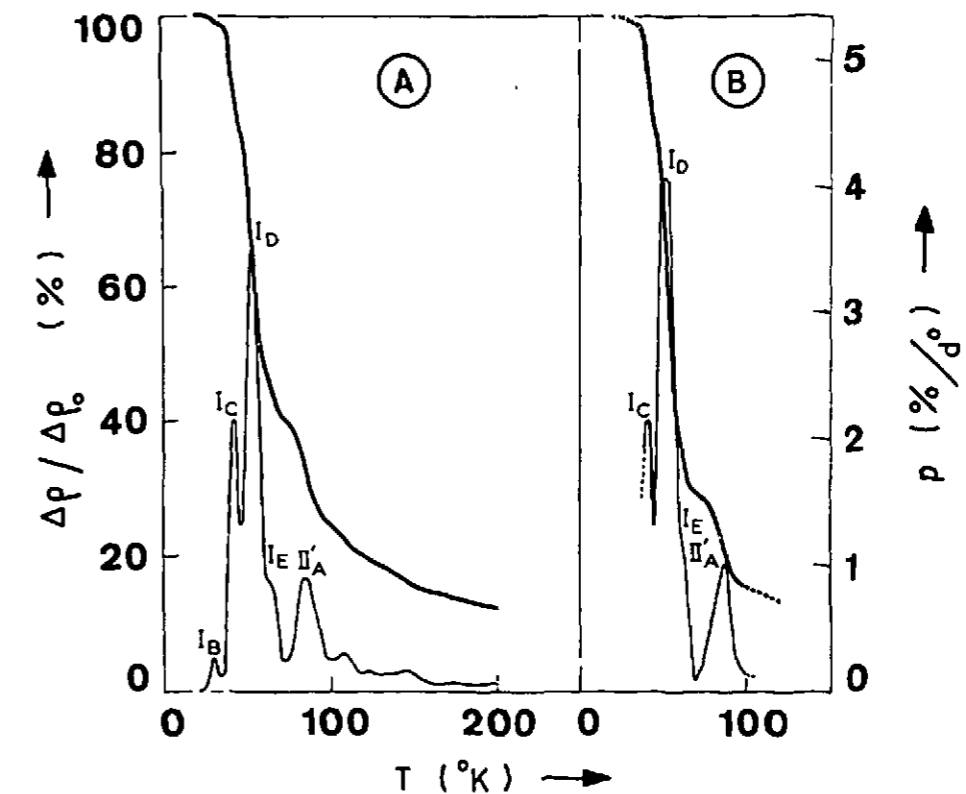


Figure 28 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour :
 A - un échantillon de nickel contenant 5000 ppm de cuivre et irradié par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 ,
 B - un échantillon de nickel contenant 1000 ppm de cuivre et irradié par $0,9 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

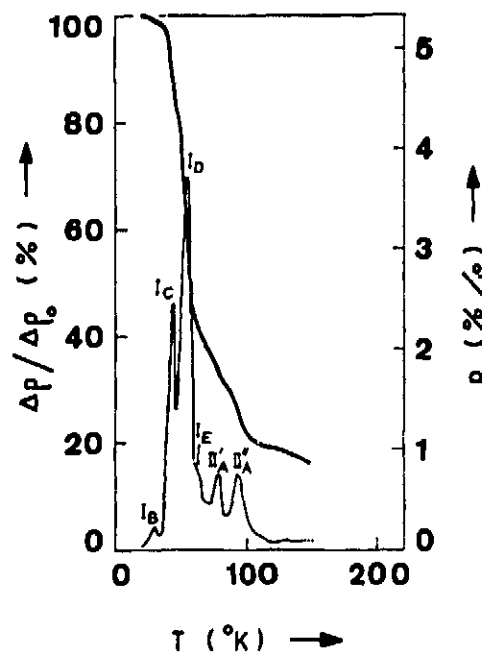


Figure 29 - Restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon contenant 1000 ppm d'antimoine et irradié par $1,5 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2

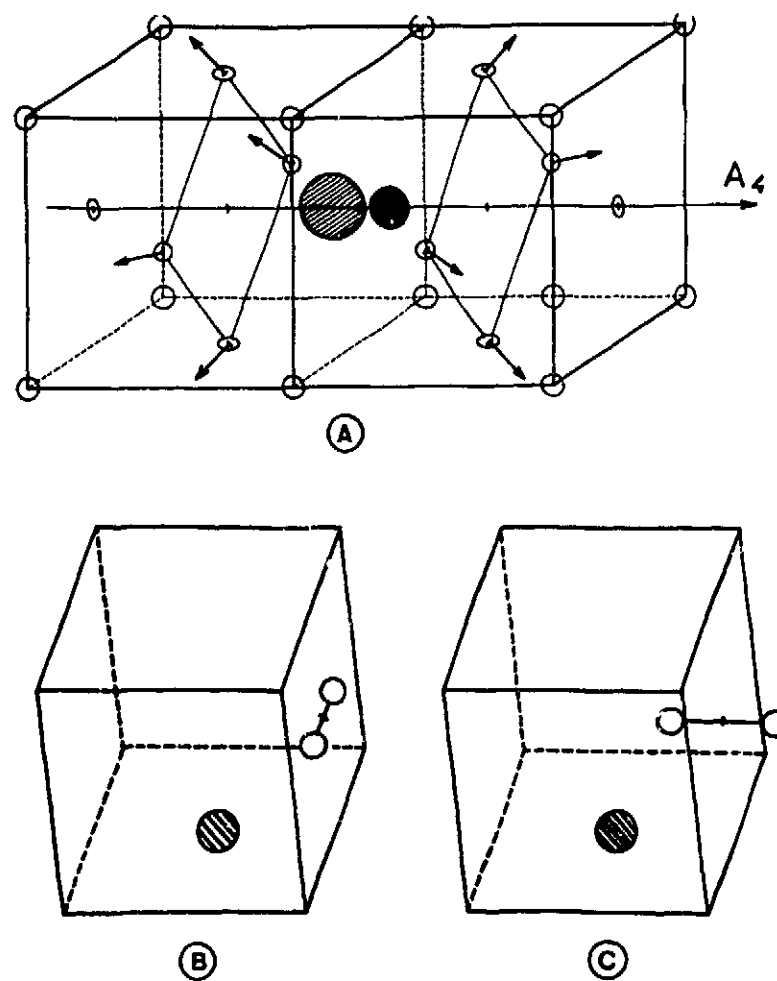


Figure 30 - Comparaison de la restauration de l'accroissement initial de résistivité pour un échantillon de nickel pur et un échantillon de nickel contenant 500 ppm de fer irradiés par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 (traitements thermiques analogues à ceux décrits figure 3)

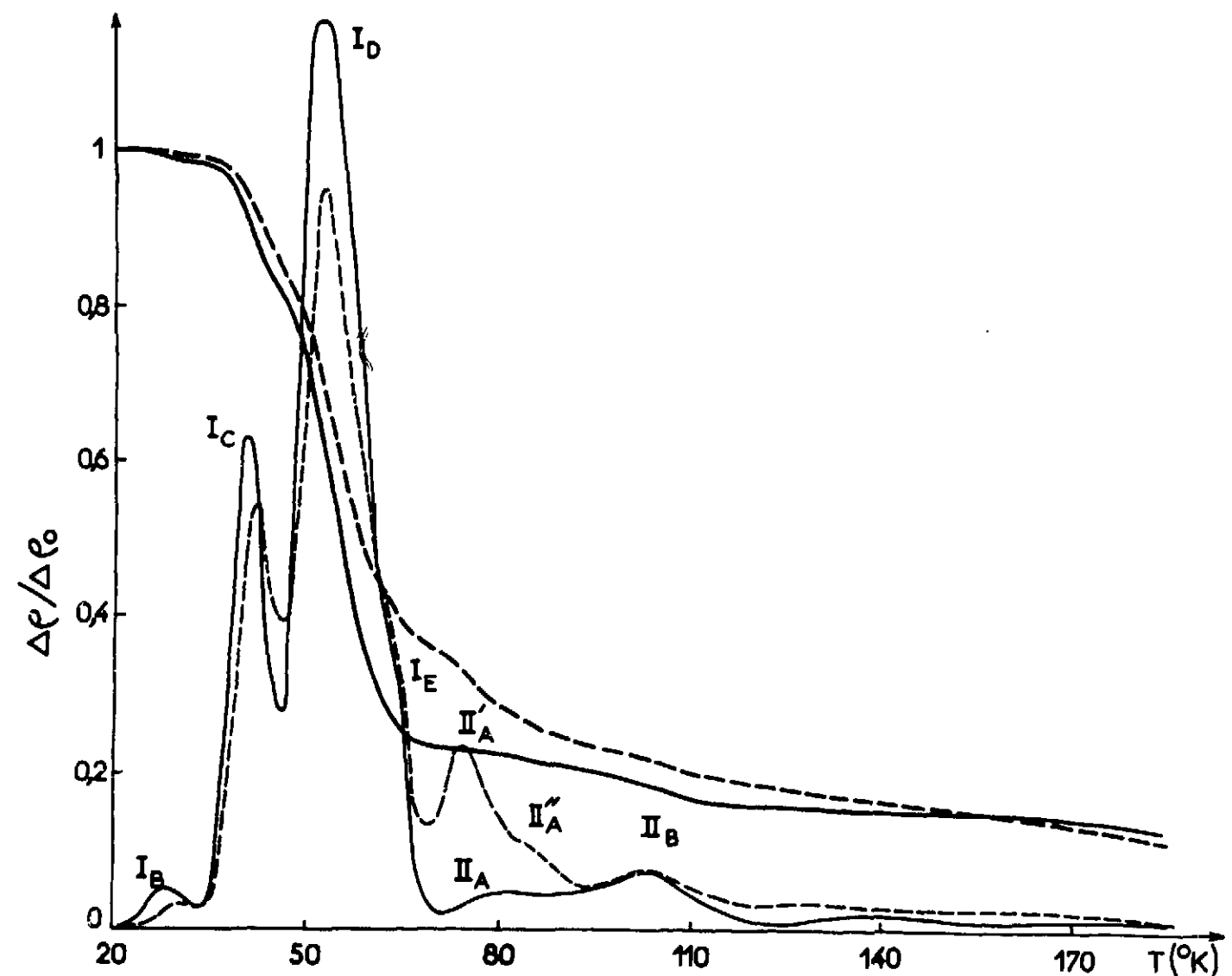


Figure 31 - Structures possibles pour le défaut impureté-interstitiel (l'impureté est représentée par un cercle hachuré)

- A - impureté interstitielle dissociée quadratique
- B - C - défaut impureté substitutionnelle-interstitiel dissocié, en position de premier voisin

Il semble qu'une explication analogue soit généralement acceptable pour les autres impuretés. Toutefois, la présence d'antimoine diminue également le stade I_E (possibilité de piégeage des interstitiels libres) et celle de silicium affecte davantage les premiers sous-stades I_B et I_C .

V.2.3 - Apparition de stades supplémentaires

Nous avons déjà noté (page 47) les domaines de température dans lesquels apparaissent ces stades. Il est difficile d'évaluer exactement le pourcentage de restauration qui leur est associé car ils interfèrent toujours avec des stades du nickel pur : par exemple, le stade II_D pour l'impureté silicium ; les stades II_A et II_B pour les autres impuretés. Toutefois, nous notons une légère augmentation des stades supplémentaires avec la teneur en impureté sans qu'elle soit proportionnelle à cette teneur. L'écart à la proportionnalité peut s'expliquer par un phénomène de saturation, rendu plausible par la concentration relative des impuretés avec les défauts.

Il nous paraît naturel d'interpréter ces stades à l'aide de défauts de nature plus ou moins complexe, dont une impureté au moins serait une composante. Le défaut de ce type le plus simple est le couple interstitiel impureté, susceptible d'exister sous deux formes différentes (réf. [34]). La première correspond à un défaut de structure analogue à l'interstitiel dissocié dont l'une des composantes serait l'impureté. La deuxième à l'ensemble du split interstitiel dissocié premier voisin d'une impureté substitutionnelle (fig. 31). Il existe certainement des défauts stables de nature plus complexe (par exemple, diinterstitiels-impureté en substitution). Sans doute est-il possible que le rayon d'action de certaines impuretés soit suffisamment grand pour qu'elles forment un défaut particulier avec un interstitiel, même s'ils ne sont pas en position de premier voisin, pourvu que celui-ci soit assez éloigné d'une lacune.

Nous allons discuter les résultats obtenus avec du nickel contenant du fer. Les conclusions que nous en tirerons peuvent sans doute s'appliquer aux stades équivalents apparaissant avec d'autres impuretés.

V.2.3.1 - Nickel contenant du fer

Quelle que soit la teneur en impuretés et la durée de l'irradiation, nous voyons apparaître deux stades supplémentaires II'_A et II''_A . Mais alors qu'au stade II'_A peut être associée une fraction à peu près constante de la restauration (de 9 % à 11 %), le stade II''_A varie beaucoup.

C'est ce que montre le tableau ci-dessous (page 57), donnant les pourcentages de restauration imputables à chacun de ces stades pour diverses concentrations d'atomes de fer, et avec les doses d'irradiations indiquées.

La précision sur ces valeurs est faible (environ 20 % d'incertitude), parce que le stade II''_A n'apparaît que sous la forme d'un épaulement sur le flanc haute température du stade II'_A pour les échantillons contenant $5 \cdot 10^3$ ppm de fer, et parce que ce stade II''_A empiète sur le stade II_B lorsqu'il apparaît nettement (échantillons contenant 10^4 ppm de fer). Néanmoins, il est certain que le stade II''_A est plus important pour les faibles concentrations de défauts, à concentration d'atomes de fer constante et qu'il croît avec la teneur en impuretés à concentration de défauts sensiblement équivalente.

Une zone de traînage magnétique est associée au stade II'_A . PERETTO (réf. [9]) a étudié cette zone : le défaut correspondant se réoriente avec une énergie de 0,15 eV, et disparaît suivant une cinétique d'ordre 1. L'énergie de guérison est de 0,20 eV. Celle-ci est en bon accord avec la température du maximum du pic II'_A obtenu en résistivité. Ce pic ne se déplace

Stades		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ Ni pur %		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ Ni + 5 000 ppm Fe %		$\frac{\Delta \rho (\text{Ni} + 5\,000 \text{ ppm Fe})}{\Delta \rho_0 (\text{Ni pur})}$ %	
I	I_B	76,5	1,5	64	1	96	1,5
	I_C		16		14		21
	$I_D + I_E$		59		49		73,5
II	II_A ou $II_A + II''_A$	16,5	1,5	30	12,5	46,25	19,75
	II_B		6		6,5		10,75
	II_C		4		6		9
	II_D		5		4,5		6,75
III			6,5		6		9
Revenu total % ...			99,5		99,5		151,25

Stades		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni + 5 000 ppm Cu		$\frac{\Delta \rho (\text{Ni} + 5\,000 \text{ ppm Cu})}{\Delta \rho_0 (\text{Ni pur})}$		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni + 5 000 ppm Co		$\frac{\Delta \rho (\text{Ni} + 5\,000 \text{ ppm Co})}{\Delta \rho_0 (\text{Ni pur})}$ %	
I	I_B	60	1,5	89,5	2	66	1,5	99,5	2
	I_C		15,5		23		15		22,5
	$I_D + I_E$		43		64,5		49,5		75
II	II'_A	34	15	51,5	22,5	26,5	12,5	40,5	19
	II_B		6		9		6		9
	II_C		6,5		10		3,5		5,5
	II_D		6,5		10		4,5		7
III			9		13,5		7,5		11,5
Revenu total % ...			103		154,5		100		160,5

Echantillons irradiés par $1,2 \cdot 10^{18}$ électrons de 3 MeV par cm^2 .

Stades		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni pur	$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni+10 000 ppm Fe	$\frac{\Delta \rho(\text{Ni}+10000 \text{ ppm Fe})}{\Delta \rho_0}$ % (Ni pur)	
I	I _B	76	2	1	
	I _C		15	11	
	I _D +I _E		58,5	38,5	
II	II _A ou II' _A +II'' _A	18	2	24 (II' _A +II'' _A +II _B)	
	II _B		7	75	
	II _C		4		7
	II _D		5		4
III	5	5	11		
Revenu total % ...		98,5	90,5	194	

Echantillons et dose	% de restauration entre 68°K et 95°K	% attribuables au stade II' _A	% attribuables au stade II'' _A
Ni + 10 ³ ppm Fe 0,93.10 ¹⁸ e ⁻ /cm ²	11	9	2
Ni + 5.10 ³ ppm Fe 0,18.10 ¹⁸ e ⁻ /cm ²	18	11	7
Ni + 5.10 ³ ppm Fe 1,2.10 ¹⁸ e ⁻ /cm ²	13	10	3
Ni + 10 ⁴ ppm Fe 1,5.10 ¹⁸ e ⁻ /cm ²	19	11	8

Stades		$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni+5000 ppm Si	$\frac{\Delta \rho(\text{Ni}+5000 \text{ ppm Si})}{\Delta \rho_0}$ % (Ni pur)	$\frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_0}$ % Ni + 3000 ppm Sb	$\frac{\Delta \rho(\text{Ni}+3000 \text{ ppm Sb})}{\Delta \rho_0}$ % (Ni pur)	
I	I _B	66,5	0,5	1,5	2,5	
	I _C		10,5	14	24	
	I _D +I _E		55,5	47	79,5	
II	II _A ou II' _A +II'' _A	23	1,5	19	32	
	II _B		6	31 (II' _A +II'' _A +II _B)	52,5 (II' _A +II'' _A +II _B)	
	II _C		4,5			7
	II _D		11 (II _D +II' _A)			5
III	5,5	24	3,5			6
Revenu total % ...		95	412	97	164,5	

Echantillons irradiés par 1,5.10¹⁸ électrons de 3 MeV par cm²

pas quand varie la dose d'irradiation, ce qui est compatible avec un ordre 1. Aussi nous adoptons son interprétation : le stade II'_A est associé au complexe interstitiel-fer ; sa structure correspondrait à l'interstitiel dissocié dont l'une des composantes est l'atome de fer, et son annihilation se ferait simplement par séparation de l'atome de nickel.

Le stade II''_A est plus difficile à interpréter. L'échantillon utilisé pour le traînage magnétique (nickel + 3 000 ppm de fer) et la dose d'irradiation employée (1,1.10¹⁸ e⁻/cm² de 2,5 MeV) conduiraient à un petit stade II''_A en résistivité. La zone de traînage, si elle existe, serait difficile à détecter. Elle n'a pas été observée.

Plusieurs défauts peuvent alors être envisagés (réf. [33]). Par exemple, il est possible que nos échantillons contiennent une quantité non négligeable d'atomes de fer substitutionnels voisins, surtout dans le cas du nickel contenant 10 000 ppm de fer. L'énergie de guérison d'un interstitiel de nickel piégé par un tel couple serait supérieure à l'énergie de guérison d'un interstitiel piégé par une impureté unique, d'où la position relative des stades II'_A et II''_A. Mais nous nous expliquons mal l'influence de la concentration des défauts à teneur en impuretés constante sur ce stade II''_A.

Nous pouvons également penser que les défauts correspondant au stade II'_A sont générateurs des défauts s'annihilant au stade II''_A. Deux processus peuvent ainsi être envisagés. Le premier consisterait en une mise en solution au stade II'_A de l'atome de fer. Celui-ci céderait sa place dans le réseau à l'interstitiel de nickel, et irait former un défaut de type fer-interstitiel - fer-substitution qui se dissocierait au stade II''_A. Ce comportement a été proposé par VIGIER (réf. [8]) dans le cas du fer contenant des impuretés de nickel. Mais il ne semble pas devoir convenir au cas du nickel d'après P. PERETTO (réf. [9]).

Le deuxième type de défauts auxquels peut donner lieu la dissociation du couple interstitiel-impureté au stade Π''_A est le diinterstitiel-fer. Il est obtenu par piégeage de l'interstitiel de nickel issu d'un monointerstitiel-fer par un complexe de même type non encore dissocié. Nous pourrions envisager ainsi la formation successive autour d'un complexe fer-interstitiel de complexes plus importants comportant n interstitiels pour une seule impureté. Mais la faible concentration initiale des défauts fer-interstitiel n'autorise certainement pas un tel enchaînement (réf. [35]).

Nous ne choisissons pas entre ces trois possibilités pour le défaut disparaissant au stade Π''_A . Celles-ci ne sont d'ailleurs pas les seules à envisager.

V.2.3.2 - Efficacité de piégeage des diverses impuretés

Les températures des stades de relâchement des interstitiels piégés par les impuretés nous donnent un ordre de grandeur de l'énergie nécessaire au relâchement du complexe interstitiel-impureté.

La différence entre cette énergie et l'énergie de migration de l'interstitiel libre (0,15 eV) donne les énergies de liaison suivantes : 0,03 eV pour le cobalt, 0,04 eV pour le fer et l'antimoine, 0,05 eV pour le cuivre et 0,45 eV pour le silicium. Les quatre premières impuretés de rayon égal ou supérieur à celui du nickel constituent ainsi des pièges peu profonds, tandis qu'au silicium, beaucoup plus petit que le nickel, correspond un très fort piège. Donc un modèle d'interaction élastique tel qu'il a été exposé par ESHELBY (réf. [36]) peut s'appliquer au nickel contenant des impuretés.

V.2.4 - Conclusion

L'étude de la restauration de l'accroissement de résistivité du nickel impur irradié par des électrons nous a permis de mettre en évidence des modifications apportées par la présence d'impuretés.

En première approximation, un modèle d'interaction élastique explique l'ensemble des résultats. Toutefois, il ne suffit pas pour rendre compte de certaines différences dans l'évolution avec la température des complexes interstitiels-impuretés. Ainsi, les impuretés cuivre et cobalt, dont les rayons atomiques sont voisins de celui du fer, conduisent à un seul stade supplémentaire, au lieu de deux dans le cas de l'impureté fer.

Les effets de taille sont le résultat d'interactions entre électrons des couches profondes, et ces différences ne peuvent s'expliquer que par l'effet des électrons des couches peu profondes.

CHAPITRE VI

CONCLUSION

L'étude que nous avons présentée sur le nickel pur, et le nickel faiblement allié, irradiés par des électrons, tout en complétant des travaux antérieurs sur le nickel, a soulevé de nouveaux problèmes fort intéressants.

Ainsi, les accroissements anormaux de la résistivité du nickel pollué et irradié semblent être un moyen d'étude des écarts à la règle de MATTHIESSEN, et, en connexion avec des études d'analyse thermique différentielle, un moyen d'étude de la dynamique de création des défauts.

D'autre part, le problème de la transformation des complexes interstitiels-impuretés reste ouvert. Des expériences de traînage magnétique doivent permettre de trancher entre les diverses interprétations proposées.

Enfin, des études comparatives de mesure de résistivité, de traînage magnétique et de microscopie électronique à basses températures permettront de résoudre le problème de la nucléation et de l'évolution des complexes d'interstitiels dans le nickel pur.

Manuscrit reçu le 31 juillet 1968

REFERENCES

- [1] J.W. CORBETT - R.B. SMITH - R.M. WALKER
Phys. Rev. 114, 1452 (1959)
- [2] C.J. MEECHAN - A. SOSIN - J.A. BRINKMAN
Phys. Rev. 120, 411 (1960)
- [3] A. SEEGER
Symposium on radiation damage ; I.A.E.A., Venise, 7-11 mai 1962
- [4] C. MINIER-CASSAYRE
Thèse Grenoble 1965 (C.E.N. -G., BP 269)
- [5] P. MOSER
Thèse Grenoble 1965 (C.E.N. -G., BP 269)
- [6] D. DAUTREPPE - V. HIVERT - P. MOSER - A. SALVI
Comptes rendus Acad. Sci. 258, 4539 (1964)
- [7] E. BONJOUR - P. MOSER
Comptes rendus Acad. Sci. 257, 1256 (1963)
- [8] P. VIGIER
Thèse Grenoble 1966 (C.E.N. -G., BP 269)
- [9] P. PERETTO
Thèse Grenoble 1967 (C.E.N. -G., BP 269)
- [10] G. MANZAGOL - G. SAUVIGNE - J. VERDIER
Note C.E.A. à paraître
- [11] P.G. LUCASSON - R.M. WALKER
Phys. Rev. 127, 485 (1962)
- [12] P. PERETTO - J.L. ODDOU - C. MINIER-CASSAYRE - D. DAUTREPPE -
P. MOSER
Phys. Stat. Sol. 16, 281 (1966)
- [13] A.C. DAMASK - G.J. DIENES
Point defects in Metals ; p. 145

- [14] C.J. MEECHAN - J.A. BRINKMAN
Phys. Rev., 103, 1193 (1956)
- [15] A.J. BOSMAN
Thèse Amsterdam (1960)
Drukkerij wed. G. Van Soest - Amsterdam
- [16] A.V. GRANATO - T.G. NILAN
Phys. Rev., 137, A 1250 (1965)
- [17] A. SOSIN - K. GARR
Phys. Stat. Sol. 8, 481 (1965)
- [18] R.A. JOHNSON
Phys. Rev., 145, 423 (1966)
- [19] R.A. JOHNSON
Phys. Rev., 152, 629 (1966)
- [20] J.B. GIBSON - A.N. GOLAND - M. MILGRAM - G.M. VINEYARD
Phys. Rev., 120, 1229 (1960)
- [21] J.W. CORBETT
Phys. Rev., 137, A 1806 (1965)
- [22] G.W. ISELER - M.I. DAWSON - A.S. MEHNER - J.W. KAUFFMAN
Phys. Lett., 17, 212 (1965)
- [23] G.W. ISELER - M.I. DAWSON - A.S. MEHNER - J.W. KAUFFMAN
Phys. Lett., 18, 247 (1965)
- [24] C.L. SNEAD Jr - F.W. WIFFEN - J.W. KAUFFMAN
Phys. Rev., à paraître
- [25] T.H. BLEWITT - R.R. COLTMAN - C.E. KLABUNDE
O.R.N.L., 3017 (1960)
- [26] P. MERKLEN - O. DIMITROV
Mem. Sci. Rev. Metall., 10, 871 (1966)
- [27] H. KRESSEL - D.W. SHORT - N. BROWN
Acta Met., 15, 525 (1967)
- [28] R. Von JAN
Phys. Stat. Sol., 17, 361 (1966)
- [29] H. KRONMULLER - H.E. SHAEFFER - M. RIEGER
Phys. Stat. Sol., 9, 863 (1965)
- [30] A. SEEGER - H. KRONMULLER - M. RIEGER
Z. für Ang. Phys. 18, 377 (1965)
- [31] J.L. ODDOU - C. MINIER-CASSAYRE - P. MOSER - P. VIGIER - P. PERETTO
D. DAUTREPPE
Congrès sur les défauts ponctuels dans les métaux.
Readings, 12-13 avril 1967

- [32] J.A. CAMPBELL - A. FERT - A.R. POMEROY
Phil. Mag. 15, 977 (1967)
- [33] J.L. ODDOU - C. MINIER-CASSAYRE - P. MOSER
Phys. Stat. Sol., 17, 793 (1966)
- [34] D.A. GRENNING
Thèse Urbana (Illinois) (1966)
- [35] P. PERETTO - D. DAUTREPPE - P. MOSER
Phys. Stat. Sol., 13, 325 (1966)
- [36] D. ESHELBY
Solid State Physics n° 3, p. 79

FIN