

INFLUENCE DE L'IRRADIATION SUR LE PIC DES JOINTS DE GRAINS DE L'ALUMINIUM ET D'UN ALLIAGE ALUMINIUM-LITHIUM

J. Woirgard, J. Gacougnolle, S. Sarrazin, J. Amirault, J. de Fouquet, A.

Silvent

► To cite this version:

J. Woirgard, J. Gacougnolle, S. Sarrazin, J. Amirault, J. de Fouquet, et al.. INFLUENCE DE L'IRRADIATION SUR LE PIC DES JOINTS DE GRAINS DE L'ALUMINIUM ET D'UN AL-LIAGE ALUMINIUM-LITHIUM. Journal de Physique Colloques, 1971, 32 (C2), pp.C2-87-C2-92. 10.1051/jphyscol:1971219. jpa-00214545

HAL Id: jpa-00214545 https://hal.science/jpa-00214545

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INFLUENCE DE L'IRRADIATION SUR LE PIC DES JOINTS DE GRAINS DE L'ALUMINIUM ET D'UN ALLIAGE ALUMINIUM-LITHIUM

J. WOIRGARD, J. L. GACOUGNOLLE, S. SARRAZIN, J. P. AMIRAULT, J. de FOUQUET et A. SILVENT (*)

Laboratoire de Mécanique et Physique des Matériaux,E. N. S. M. A., rue Guillaume-le-Troubadour, 86, Poitiers Equipe de Recherche associée au C. N. R. S. nº 123

Résumé. — L'influence de l'irradiation, par neutrons lents, sur la relaxation des joints de grains dans l'aluminium et un alliage d'aluminium lithium a été étudiée par frottement intérieur. Nous avons opéré à basse fréquence en sollicitant en torsion, à faible amplitude, des éprouvettes se présentant sous forme de lamelles. Nous avons admis l'existence d'un spectre gaussien de relaxation et utilisé le formalisme dû à Nowick et Berry. Il a été trouvé que l'irradiation a pour effet :

1) Une diminution du terme d'entropie τ_o .

2) Une augmentation de l'énergie d'activation apparente.

3) Une décroissance de l'intensité de relaxation.

Nous montrons ensuite que les résultats obtenus peuvent s'interpréter qualitativement au moyen du modèle de Roberts et Barrand. Ce modèle suppose que la relaxation est due au mouvement de réseaux de dislocations situés dans les joints ; ce mouvement étant gêné par la coalescence des défauts d'irradiation au cours du recuit que subit l'éprouvette sur le pendule. L'effet est plus marqué pour l'aluminium-lithium ce qui laisse supposer que l'hélium y contribue de façon notable.

Un essai sur le cuivre a montré une influence plus nette de l'irradiation.

Abstract. — The effect of irradiation on grain boundary relaxation in Al and an Al-Li alloy has been investigated by internal friction. The specimens, in the form of flat bars, were sollicited in torsion at low frequencies and amplitudes. The existence of a lognormal distribution law was assumed and we used the formalism due to Nowick and Berry.

It was found that with increasing irradiation doses :

1) The entropy factor τ_o decreases.

2) The activation energy H_m increases.

3) The relaxation strength Δ_j decreases.

Then it will be shown that the results may be interpreted in terms of the model for grain boundary damping in C. F. C. metals proposed by Roberts and Barrand. This model supposes that the relaxation is due to the migration of grain boundary dislocations. The decrease in τ_o may be attributed to pinning of dislocations in some boundaries after segregation of defects due to irradiation and the relaxation strength will decrease with the dislocations migration distance. The defects will also slow down vacancies and, thus, the activation energy will increase.

One experiment on irradiated copper showed a very marked effect on the relaxation strength, so it is thought that it will be possible to find similar effets on other C. F. C. metals.

I. Introduction. — Nous avons étudié, par frottement intérieur, l'influence de l'irradiation par neutrons thermiques sur la relaxation des joints de grains de l'aluminium et de l'aluminium 0,1 % lithium. Nous avons choisi l'aluminium pour sa désactivation très rapide après irradiation qui permet de le manipuler sans précaution particulière. Nous avons ajouté du lithium pour augmenter notablement la quantité d'hélium fourni par irradiation et essayé de mettre en évidence l'action propre de cet hélium.

L'irradiation a 2 effets principaux : d'une part la création de défauts ponctuels qui en se regroupant

donnent naissance à des défauts plus importants, d'autre part la formation d'éléments nouveaux par transmutation des corps irradiés. Dans le cas présent l'aluminium réagit suivant :

$${}^{27}\text{Al} + n \rightarrow {}^{24}\text{He} + {}^{24}\text{Na}$$

 ${}^{24}\text{Na} \rightarrow {}^{24}\text{Mg} + \beta$

la production d'hélium par ce processus est assez faible.

L'isotope ⁶Li dont la proportion est importante dans le lithium utilisé nous donne :

$${}^{6}\text{Li} + n \rightarrow {}^{4}\text{He} + {}^{3}\text{H}$$

(*) Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

qui fournit une grande quantité d'hélium.

Nous avons aussi constaté que sur le cuivre l'irradiation produit des effets de même nature que dans l'aluminium mais beaucoup plus marqués (Fig. 11). Aucune étude quantitative n'a été faite sur ce métal.



FIG. 11. — Spectre obtenu sur une éprouvette de cuivre irradiée et non irradiée.

II. Méthode expérimentale. — Les mesures de frottement intérieur ont été effectuées sur un pendule de torsion inversé à des fréquences de 1,25 ou 0,25 cycle/ seconde. Les éprouvettes étaient des lames de $1 \times 8 \times 70$ mm, nous les chauffions à 50 °C/heure sous un vide de 10^{-5} torr. Nous opérions en oscillations libres la déformation maximale imposée à l'éprouvette étant toujours inférieure à 10^{-5} . Nous disposions d'Al 99,99 % et d'un alliage Al-O, 1 % Li élaboré à partir de l'Al précédent.

Les éprouvettes ont été irradiées au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble à des taux de 10^{16} , 10^{18} et 10^{20} neutrons/cm², en cours d'irradiation elles étaient maintenues dans de l'eau à température ambiante. Pour les taux de 10^{18} et 10^{20} les éprouvettes ont été assez déformées par l'irradiation, nous avons dû les redresser légèrement avant de les monter sur le pendule. Il ne semble pas que cet écrouissage postérieur à l'irradiation ait eu une influence sur nos expériences puisque les résultats sont reproductibles pour des éprouvettes qui au cours d'une même irradiation avaient été déformées différemment.

III. Résultats expérimentaux. — On sait que le pic des joints de grains se situe au début de la montée du fond continu. Cette montée vient du mouvement des défauts au voisinage du joint, on peut l'évaluer comme une fonction exponentielle de l'inverse de la température absolue [1]. Cette évaluation est cependant malaisée sur un graphique et son imprécision entraîne une certaine erreur sur les caractéristiques du pic proprement dit.

Un pic de frottement intérieur dont l'origine est un processus unique peut se mettre sous la forme :

$$Q^{-1} = Q_m^{-1} \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

 Q_m^{-1} étant la hauteur du pic, ω la fréquence de l'essai. τ le temps de relaxation du processus considéré est fonction de la température :

$$\tau = \tau_o \, \exp \frac{H}{RT}$$

 τ_0 est le terme entropique et *H* l'énergie d'activation apparente liée au déplacement du pic. On appellera T_o la température du maximum.

Dans le cas du pic de joints de grains on admet, après Nowick et Berry [2] qu'il n'y a pas un temps de relaxation unique mais un spectre gaussien de temps de relaxation défini par τ_m le temps de relaxation le plus probable et β la largeur du spectre. Dès lors le pic est plus large que le pic normal et il faut introduire la notion d'intensité de relaxation Δ_i liée à sa surface, et sa largeur à mi-hauteur, A(1/T), pour le caractériser. Ces différents paramètres sont regroupés dans les tableaux I, II, III.

Nous étudierons successivement l'influence du recuit puis l'influence de l'irradiation sur le spectre de frottement intérieur en distinguant le fond continu du pic proprement dit.

I. Influence du recuit. — A la suite de l'écrouissage subi par les éprouvettes au cours des irradiations importantes de nombreux défauts s'éliminent quand on décrit le spectre de frottement intérieur. Nous avons d'abord étudié l'effet du recuit sur le pendule afin de pouvoir définir ultérieurement un état de référence reproductible. Nous avons fait subir à une éprouvette d'aluminium irradiée à 10^{20} neutrons/cm² des recuits successifs de 2 heures à des températures de 350 °C, 420 °C et 600 °C (Fig. 1).

a) FOND CONTINU. — Quand la température de recuit augmente le fond continu baisse. Cette chute peut être attribuée à l'élimination par le recuit des défauts situés à l'intérieur des grains et dus à l'irradiation et au montage. Pendant le premier essai la recristallisation commence et perturbe beaucoup le spectre. On peut penser que la recristallisation secondaire qui intervient au cours des recuits joue un rôle important dans l'évolution du pic.

b) PIC PROPREMENT DIT. — Le pic est très sensible à la température de recuit, il se restaure pendant les recuits à températures croissantes : sa hauteur augmente et il se déplace vers les basses températures. Le recuit de 15 h à 500 °C d'une éprouvette irradiée à 10^{20} neutrons/cm² (Fig. 2) ainsi que les essais 14 et 15 effectués après un séjour de 1 an à l'ambiante montrent que l'élargissement du pic, constaté, toutes choses égales par ailleurs est sans doute dû à une élimination des défauts créés, ce qui en débloquant un certain nombre de joints doit entraîner une aug-



FIG. 1. — Influence de températures croissantes de recuit sur le spectre d'une éprouvette d'aluminium irradiée à 10²⁰ neutrons/cm².



FIG. 2. — Influence de temps de recuit croissants pour une éprouvette d'aluminium irradiée à 10²⁰ neutrons/cm².

mentation du nombre de mécanismes donnant lieu à la relaxation.

Nous avons par la suite fait recuire toutes les éprouvettes, irradiées ou non, pendant 2 h à 500 °C après montage sur le pendule : c'était notre état de référence.

II. Influence du taux d'irradiation. — a) FOND CONTINU. — Les taux d'irradiation croissants abaissent le fond continu de l'Al (Fig. 3) et de l'Al-Li (Fig. 8, 9, 10). Cet effet peut s'expliquer par le blocage des défauts mobiles dû à la coalescence au cours du recuit, des défauts causés par l'irradiation qui tendent à bloquer les dislocations situées au voisinage des intersections de joints et responsables, pour un part, du fond continu d'après William et Leak [3]. C'est ainsi que dans le cas de l'Al-Li nous avons mis en évidence par microscopie électronique la présence de bulles d'hélium dans des éprouvettes recuites à 600 °C au cours des essais de frottement intérieur (Fig. 4).



FIG. 3. — Influence de taux d'irradiation croissants pour une éprouvette d'aluminium recuite 2 h à 500 °C.



FIG. 4. — Bulle d'hélium dans une éprouvette d'Al-Li irradiée à 10^{20} neutrons/cm². G = 35000.

b) PIC PROPREMENT DIT. — L'évolution des principales caractéristiques du pic de l'Al sont rassemblées dans le tableau I et résumées sur les figures 5, 6 et 7, on voit surtout :

- Une diminution de la hauteur du pic (Fig. 5).

— Une diminution de la largeur du pic à mi-hauteur (Fig. 6).

— Un déplacement du pic vers les hautes températures (Fig. 7).

Il faut remarquer que la présence de lithium dans une éprouvette Al-Li non irradiée porte T_p de 224° à 327°, augmente Q_m^{-1} de 0,04 à 0,055 et diminue $\Delta(1000/T)$ de 0,45 à 0,35 ce qui est normal lorsqu'on ajoute de faibles quantités d'éléments d'alliages à un corps pur.

	TABLE	AU]	E
Résultats	obtenus	sur	l'aluminium

	essai nº	$T_p ^{\mathrm{o}}\mathrm{C}$	$\varDelta\left(\frac{1\ 000}{T}\right)$	$Q_{\rm ma}^{-1}$. 10^4	v
Al non irradié brut	1	239	0,5	428	1,25
Al non irradié recuit 30 mn 500 °C	2	237	0,45	508	1,25
Al non irradié recuit 2 h 500 °C	3	224	0,5	394	1,25
Al non irradié recuit 30 mn 500 °C	4	212	0,45	485	0,25
Al irradié $10^{16} + 2 h 600 \circ C$	5	234	0,46	370	1,25
Al irradié $10^{18} + 2 h 500 \circ C$	6	233	0,44	335	1,25
Al irradié 10 ²⁰ , brut	7	273	0,27	318	1,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 350 \circ C$	8	271	0,41	276	1,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 420 \circ C$	9	257	0,36	315	1,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 500 \text{ °C}$	10	246	0,38	284	1,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 500 \text{ °C}$	11	246	0,4	270	1,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 500 \circ C$	12	224	0,44	262	0,25
Al irradié $10^{20} + 2 h 600 ^{\circ}\text{C}$	13	253	0,4	332	1.25
Al irradié $10^{20} + 1 h 160 \circ C + 1 an à l'ambiante$	14	273	0,35	317	1.25
Al irradié 10^{20} + 1 h 400 °C + 1 an à l'ambiante	15	263	0,46	330	1,25

TABLEAU II

Résultats obtenus sur l'aluminium-lithium

	essai nº	<i>T_p</i> (°C)	$\Delta\left(\frac{1000}{T}\right)$	$Q^{-1}.10^{4}$	v
Al-Li non irradié					
+ 2 h 500 °C	16	327	0,34	548	1,25
Al-Li non irradié					
+ 2 h 500 °C	17	327	0,34	548	1,25
Al-Li non irradié					-
+ 2 h 500 °C	18	297	0,32	436	0,25
Al-Li irradié 1016			-		-
+ 2 h 500 °C	19	327	0,335	400	1,25
Al-Li irradié 1016			-		
+ 2 h 500 ℃	20	297	0,335	400	0,25
Al-Li irradié 1020					
+ 2 h 500 °C	21	363	0,275	200	1,25
Al-Li irradié 1020					,
+ 2 h 500 °C	22	337	0.275	180	0.25

Les 3 effets principaux de l'irradiation sur le pic de l'Al pur se retrouvent et sont même amplifiés par la présence de lithium (tableau II).

— La largeur du pic $\Delta(1\ 000/T)$ est réduite à 0,275. — La chute de hauteur du pic qui est de 75 % avec l'aluminium atteint ici 300 %.

- Le pic se déplace de 36° sur l'Al-Li au lieu de 22° sur l'Al.

Enfin le tableau III nous indique les variations dues à l'irradiation des 4 paramètres déduits du dépouillement des pics en utilisant la méthode de Nowick et Berry. Nous noterons :

Effet A : Une augmentation de l'énergie d'activation H accentuée par la présence de lithium.

Effet B : Une diminution du terme d'entropie τ_o . Effet C : Une décroissance de l'intensité de relaxation Δ_j , augmentée aussi par l'addition de lithium.

TABLEAU III

Influence de l'irradiation sur les paramètres de la relaxation

	(kcal/mole)	$- \log_{10} \tau_o$	\varDelta_j	β
Al pur non irradié	33,8	15	0,225	4
Al pur irradié 10 ²⁰	38,9	16,9	0,155	4
Al-Li non irradié	36,6	13,9	0,270	3,2
Al-Li irradié 1016	36,4	13,8	0,182	3,1
Al-Li irradié 10 ²⁰	46.9	16.6	0.075	3.2

Effet D : Pas d'influence sur β . Par contre ce paramètre est nettement réduit par l'introduction de lithium.



FIG. 5. — Influence de l'irradiation sur la hauteur du pic dans le cas de l'aluminium.



FIG. 6. — Influence de l'irradiation sur la largeur à mi-hauteur du pic dans le cas de l'aluminium.



FIG. 7. — Influence de l'irradiation sur la température du pic dans le cas de l'aluminium.



FIG. 8. — Spectre obtenu sur une éprouvette d'Al + 0,1 % Li non irradiée.

III. **Discussion.** — Pour interpréter ces résultats nous nous appuierons sur le modèle proposé par Roberts et Barrand qui explique l'existence du pic de joints de grains dans les métaux CFC. [4].

Ce modèle repose sur la présence dans le joint de grains d'un réseau de dislocations. C'est le mouvement de ces dislocations qui permet la relaxation de la contrainte. Par glissement et montée successis elles permettent le déplacement du joint. Leur glissement n'absorbe pas d'énergie, seule leur montée entre en jeu. Or d'après la théorie de Thomson et Balluffi [5] la montée d'une dislocation coin se fait par création de paires de crans et par éloignement de ces crans. L'énergie de faute d'empilement est alors prépondérante ce qui est montré expérimentalement par Cordea et Spetnak [6]. Dans l'aluminium où cette énergie est élevée les dislocations seront peu dissociées et elles pourront monter et descendre facilement, suivant le flot de lacunes qu'elles pourront absorber. L'énergie d'activation du phénomène est alors l'énergie d'autodiffusion volumique du métal H_v.



FIG. 9. — Spectre obtenu sur une éprouvette d'Al + 0,1 % Li irradiée à 10¹⁶ neutrons/cm².



FIG. 10. — Spectre obtenu sur une éprouvette d'Al $+ 0.1_2$ % Li irradiée à 10^{20} neutrons/cm².

D'après Nowick le temps de relaxation du phénomène est relié à la densité du réseau de dislocations considéré [7]. La distribution de temps de relaxation observée dépendra de la distribution de désorientation dans l'échantillon polycristallin étudié, le terme d'entropie τ_o variant comme la surface de l'interface où a lieu la relaxation.

On en conclut que :

1° L'intensité de relaxation Δ_j sera proportionnelle à l'énergie dissipée au cours d'un cycle donc :

- à la distance de montée,

7

— au nombre de dislocations impliquées,

- à la contrainte maximale de cisaillement au niveau du joint.

2º L'énergie d'activation sera liée à l'énergie d'autodiffusion en volume.

3° Le maximum de frottement intérieur aura lieu lorsque la période de migration du joint sera comparable au temps de relaxation des sauts de lacunes.

4º La largeur de la distribution de temps de relaxation dépendra de la distribution de désorientations des joints intervenant dans la relaxation.

- Les effets A, B, C et D mis en évidence dans nos expériences peuvent alors s'interpréter de la façon suivante.

En bloquant certains joints par création de défauts (bulles d'hélium), qui ségrègent aux joints, l'irradiation tend à diminuer la surface totale de l'interface qui contribue à la relaxation ce qui explique la diminution de τ_o (Effet B). On doit admettre que les défauts agissent de la même façon sur tous les joints puisque le taux d'irradiation est sans effet sur le paramètre β . Par contre le lithium en diffusant préférentiellement dans les joints de forte énergie d'interface bloquera ceux-ci. Il en résultera une modification de la distribution des réseaux de dislocation intervenant dans la relaxation d'où la diminution observée de β (Effet D).

En créant des défauts qui piégeront les *lacunes*, l'irradiation gênera leur migration et par conséquent augmentera l'énergie d'activation du processus (Effet A). On pourrait s'attendre au même effet de la part du lithium; on constate cependant, sur le tableau III, que cet effet n'est pas très net.

Enfin les défauts créés par irradiation auront pour conséquence de gêner le mouvement des *dislocations*, de réduire leur distance de montée, donc de diminuer l'intensité de relaxation (Effet C). Si l'épinglage est bien dû aux bulles d'hélium il est logique que la présence de lithium accentue cet effet.

Conclusion. — L'hélium intervient certainement de façon prépondérante dans la modification du pic de joints de grains après irradiation puisque cette modification est bien plus marquée dans le cas de l'Al-Li que dans le cas de l'Al pur mais l'absence d'un modèle quantitatif du pic de joints de grains gêne l'interprétation des résultats.

Bibliographie

- [1] POSTNIKOV (V. S.), Societ Phys. Usp. (English Transl.), 1958, 66, nº 1.
- [2] NOWICK (A. S.) and BERRY (B. S.), I. B. M. J. Res. Developp, 1961, 297.
- [3] WILLIAMS (T. M.), LEAK (G. M.), Acta Met., 1957, 15, 1111.
- [4] ROBERTS (J. T. A.) and BARRAND (P.), *Trans. of AIME*, 1968, **242**, 2299.
- [5] THOMSON (R. M.) and BALLUFFI (R. W.), J. Appl. Physic, 1962, 33, 803.
- [6] CORDEA (J. N.) and SPETNAK (J. W.), Trans. TMS AIME, 1966, 236, 1685.
- [7] NOWICK (A. S.), Metal Interface, ASM Publication, 1952.