

N° D'ORDRE : 17/2010-M/PH

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE D'ENSEIGNEMENT SUPERIEURE ET
DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
« HOUARI BOUMEDIENE »**

FACULTE DE PHYSIQUE



*Présenté pour l'obtention du diplôme de **MAGISTER***

EN : PHYSIQUE

Spécialité : Sciences Nucléaires

Par : Benyahia Toufik

Sujet

**Caractérisation par Mesures optiques des défauts ponctuels créés dans
L' Al_2O_3 monocristalline irradiée aux neutrons du réacteur**

Soutenu publiquement le 07/11/2010, devant le jury composé de :

Mr. OUICHAOUI Saad, Professeur, USTHB

Président

Mr. IZERROUKEN Mahmoud, Maître de Recherche au CRND

Dteur de Thèse

Mme. MEDKOUR Ghania, Maître de Conférence à l' USTHB

Examineur

Mr. BOUZID Boualem, Maître de Conférence à l' USTHB

Examineur

Mr. SAICHI Bachir, Chargé de Recherche au DRN, CRND

Examineur

Remerciements

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à monsieur Saad Ouichaoui, professeur à la faculté de physique de l'USTHB pour m'avoir accepté la présidence de ce jury. Qu'il trouve ici mes sincères remerciements

Je remercie vivement Monsieur Izerrouken Mahmoud, mon directeur de thèse, avec qui j'ai pris grand plaisir à travailler, pour l'attention qu'il a apporté à la direction de ce travail, pour son aide, sa disponibilité et ses précieux conseils, je lui dois la plus grande partie de ce travail, et de ce que j'ai pu apprendre sur la physique nucléaire pendant ma thèse,

Mes remerciements les plus vifs vont également à monsieur, Bouzid Boualem, Maître de conférence à l'USTHB, ainsi qu'à Madame Medkour Ghania, Maître de conférence à l'USTHB, pour l'intérêt qu'ils ont manifesté et porté à ce travail en acceptant de prendre part au jury de ma présente thèse.

Je voudrais remercier également monsieur Saichi Bachir, Chargé de recherche, DRN, CRND pour pouvoir accepter de faire part de mon jury.

Je tiens à remercier monsieur le Directeur Général du CRND pour avoir rendu possible mes différents séjours et pour avoir mis à ma disposition les moyens matériels permettant la réalisation de la partie expérimentale de ce travail.

Mes vifs remerciements vont également à tous les membres du groupe de recherche de la division (DPAN) avec lesquels j'ai appris beaucoup de choses, et en particulier monsieur Mazidi Samir, Seguni Tarek, Chil Malek, Mokadem Yazid, pour m'avoir initié au travail de recherche, leur compétences scientifiques, et leur expériences professionnelles m'ont été d'un grand apport pour l'aboutissement de ce travail.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à mes parents, mes sœurs, mes frères et tous mes proches pour leur inestimable affection, leur soutien et leur encouragement sans cesse, à tous ces derniers, j'exprime ma reconnaissance et ma profonde gratitude.

Je tiens à exprimer, d'une façon particulière, ma profonde reconnaissance à mes adorables enfants : Nour essadette, Hasna, Sébilla ; à leur maman, Samira qui m'a tellement encouragé et soutenu pour réaliser ce travail

Sommaire

Introduction	6
Chapitre I : DOMMAGES INDUITS PAR IRRADIATION	
I.1. Introduction	7
I.1. Interaction des neutrons avec la matière	7
I.1.1. Interaction de neutrons rapides : Collisions élastiques	8
I.1.2. Interaction neutrons thermiques : Fission	9
I.1.3. Interaction neutrons thermiques : capture radiative	9
I.1.3. Réaction nucléaires	10
I.2. interaction des particules chargées avec la matière	10
I.2.1. Pouvoir d'arrêt nucléaire (collision élastique)	11
I.2.2. Pouvoir d'arrêt électronique (collision inélastique)	13
I.2.2.1. Domaine des faibles vitesses	13
I.2.2.2. Domaine des vitesses élevées	13
I.3. Mécanismes de formation de défauts	15
I.3.1. Explosion coulombienne	16
I.3.2. Pointe thermique	17
I.3.2.1. Description mathématique du mécanisme	17
I.3.3. mécanisme des excitons auto piégés	19
I.3.3.1 Formation des excitons dans l' Al_2O_3	20
I.3.4. mécanisme d'onde de choc	20
I.3.4.1. Description mathématique du mécanisme	21

Chapitre II : Etat de connaissance sur les défauts induits par irradiation dans l'Al₂O₃

II.1. Introduction	24
II.2. Structure de l'alumine	24
II.3. Comportement de l'Al ₂ O ₃ sous irradiation	26
II.4. Défauts ponctuels créés par irradiation dans l'Al ₂ O ₃	26
II.5. Irradiation au réacteur.....	28

Chapitre III Techniques de caractérisation

III.1. Introduction	31
III.2. Techniques d'analyse par spectroscopie optique (Absorption et photoluminescence).....	31
III.1.3. Absorption optique.....	35
III.1.4. Photoluminescence.....	37

Chapitre IV : Résultats Expérimentaux

IV.1. Absorption optique	38
IV.2. Photoluminescence.....	46
IV.3. Traitement thermique (recuit).....	48
Conclusion.....	54
Annexe	55
Références	61

Introduction

Vue leur importance majeure et leurs propriétés thermiques et opto-mécaniques, les céramiques sont utilisées dans de nombreuses applications de haute technologie comme celles de l'industrie nucléaire. Dans ce cadre, plusieurs travaux ont été effectués dans le but de réaliser des matrices inertes pour le stockage de déchets radioactifs issus dans les réacteurs nucléaires. Ces céramiques sont aussi utilisées comme isolants dans les réacteurs à fusion. Parmi ces céramiques, notons l'alumine (Al_2O_3) : ce cristal a fait l'objet d'études par plusieurs auteurs afin de pouvoir l'utiliser dans divers domaines d'application (dans l'industrie nucléaire et en recherche scientifique). Différents types de radiations (rayon gamma, ions lourds, neutrons...) ont été utilisés dans les expériences. Il est donc nécessaire de connaître l'effet de l'irradiation sur les différentes propriétés de ce matériau.

Le présent travail est consacré à l'étude des défauts ponctuels induits dans l'alumine (Al_2O_3) par irradiation aux neutrons d'un réacteur : évolution des différents types de défauts en fonction de la fluence et de la température de recuit.

Le premier chapitre de ce mémoire est consacré aux rappels des principaux aspects de l'interaction des neutrons avec la matière solide. Nous introduisons ainsi les différents mécanismes qui expliquent la création de défauts dans le matériau exposé à ces irradiations. Le deuxième chapitre présente l'état des connaissances de l' Al_2O_3 (structure cristalline et propriétés physiques) ainsi que le comportement de l'alumine sous irradiation.

Le troisième chapitre est consacré aux techniques de caractérisation optiques (absorption optique et photoluminescence) utilisées pour l'étude et la caractérisation des défauts ponctuels induits par irradiation. Enfin, le quatrième chapitre contient les résultats au cours des mesures optiques et leur discussions.

Chapitre I : DOMMAGES INDUITS PAR IRRADIATION

I.1. Introduction

Il est bien connu qu'un matériau soumis à un faisceau de neutrons ou de particules chargées, change complètement de propriétés mécaniques, optiques, électriques et structurales. Ceci est dû aux différents types de défauts créés dans ce matériau. Dans le cas des neutrons par exemple, à faibles fluences des défauts ponctuels isolés sont créés. Mais au fur et à mesure que la fluence augmente, les défauts ponctuels s'accumulent et forment des agrégats de défauts conduisant à des modifications spectaculaires notamment le gonflement, l'amorphisation et transformation de phase. Par ailleurs, la capture d'un neutron thermique par un noyau fissile dans un réacteur génère plusieurs fragments de fission (Kr, Xe, Sm, Cd...). Ces derniers ayant une énergie élevée induisent des défauts considérables dans la gaine utilisée dans le confinement du combustible. Dans ce qui suit, nous décrirons les différents types d'interaction des neutrons et des particules chargées avec la matière et le mécanisme expliquant la formation de défauts.

I.2 Interaction des neutrons avec la matière

Le neutron est une particule neutre de masse $m_n = 1.67 \cdot 10^{-27}$ kg et de spin $s = 1/2$. Les neutrons sont produits grâce à des réactions nucléaires, réactions de spallation et réactions nucléaires à fission. Les neutrons issus d'un réacteur nucléaire, présentent un spectre en énergie très large allant de thermiques (0.025 eV) jusqu'à environ 10 MeV. On peut distinguer trois domaines : les neutrons thermiques ($E_n < 1$ eV), les neutrons épithermiques ($0.5 \text{ eV} < E_n < 10 \text{ eV}$ [1] et neutrons rapides ($E_n > 0.1 \text{ MeV}$). Les futurs réacteurs à fusion produiront des neutrons d'énergie encore plus élevée, de l'ordre de 14 MeV. Les dommages induits par irradiation aux neutrons sont créés principalement suite aux collisions élastiques, réactions de fission et les réactions nucléaires.

I.2.1. Interaction de neutrons rapides : Collisions élastiques

Les collisions ou chocs élastiques sont dus essentiellement aux neutrons rapides. Le neutron étant une particule neutre, interagit avec les noyaux des atomes par des interactions nucléaires à courte portée ($\sim 10^{-14}$ m). Les collisions peuvent être assimilées à des chocs de sphères dures. L'atome (ou ion) déplacé par le neutron s'appelle **primaire**. Dans le cas de l' Al_2O_3 , un neutron de 1 MeV peut transférer en maximum une énergie de l'ordre de 220 keV à l'atome d'oxygène. Sachant que le seuil en énergie pour déplacer un atome d'oxygène est de 50 eV [2], des milliers de cascades de déplacement d'atomes sont alors produites par un seul neutron. Le nombre N_d d'atomes déplacés par un noyau primaire ayant reçu l'énergie T est calculé par la relation de Kinchin et Peace. [3] :

$$N_d = \frac{T}{2E_d} \quad (\text{I.1})$$

E_d : énergie de déplacement

Trois différents cas se présentent :

- Si $T < E_d \Rightarrow N_d = 0$. Le noyau cible n'est pas déplacé.
- Si $E_d < T < 2E_d \Rightarrow N_d = 1$. Le noyau cible se déplace en position interstitielle.
- Si $T > 2E_d \Rightarrow N_d = T/(2E_d)$. Le noyau cible est déplacé et devient à son tour un projectile.

Alors à titre d'exemple, dans l' Al_2O_3 et pour un primaire (atome d'oxygène) de 220 keV, on trouve approximativement 2200 atomes déplacés dans une cascade.

I.2.2. Interaction neutrons thermiques : Fission

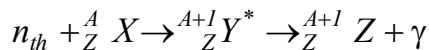
La fission se produit lorsqu'un noyau lourd en particulier l'uranium 235 et le plutonium 239 absorbe un neutron thermique. Les ions issus d'une réaction de fission sont appelés produits de fission. Pour un isotope donné, plusieurs fragments de fissions sont produits avec différentes masses, charges et énergies. Une réaction de fission typique est :



Les fragments de fission étant des ions lourds énergétiques, ils produisent des dommages très importants dans une matrice inerte utilisée pour le stockage de déchets nucléaires ou la transmutation et aussi dans le combustible.

I.2.3. Interaction neutrons thermiques : capture radiative

Un neutron thermique peut être capturer par un noyau lourd et devient radioactif comme le montre la réaction suivante :



Si m est la masse de noyau de recul, les lois de conservation de l'énergie et la quantité du mouvement permettent de déduire l'énergie de recul T_R du noyau après désexcitation gamma :

$$T_R = P_R^2 / 2m = P_\gamma^2 / 2m = \frac{E_\gamma^2}{2mc^2} \quad (\text{I.2})$$

E_γ : Energie du photon émis.

Pour un photon gamma de $E_\gamma = 1 \text{ MeV}$, l'énergie de noyau de recul est de l'ordre de 32 keV et pour $m = 17 \text{ g mol}^{-1}$

I.2.3. Réaction nucléaires

Les neutrons thermiques peuvent produire également des réactions nucléaires conduisant à la création d'un isotope ou d'un nouvel élément tel que les réactions $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$. D'ailleurs, on se base sur ces réactions pour pouvoir détecter les neutrons thermiques. En plus des collisions élastiques et inélastiques, les neutrons rapides produisent également des réactions nucléaires à seuil de types (n, p), (n, d), et (n, α)...dans tout les cas, les produits de réaction sont des particules chargées qui produisent des dommages le long de leurs parcours dans un solide.

I.3. Interaction des particules chargées avec la matière

Une particule chargée traversant un solide est ralentie suite aux différentes interactions avec les atomes du milieu. Cette perte d'énergie est exprimée par le pouvoir d'arrêt $-\left(\frac{dE}{dx}\right)$. Le pouvoir d'arrêt est la contribution d'un pouvoir d'arrêt nucléaire (collision directe élastique avec les atomes de la cible) et d'un pouvoir d'arrêt électronique (collision inélastique avec les électrons conduisant à l'excitation et ionisation des atomes). Ceci est bien clair d'après la courbe de la figure I.1. Nous constatons que pour les faibles énergies (< 0.1 MeV/uma) le pouvoir d'arrêt nucléaire est prépondérant. Par contre pour les énergies élevées (> 0.1 MeV/uma) le pouvoir d'arrêt est dû essentiellement aux interactions inélastiques.

Le ralentissement des particules chargées est alors caractérisé par la somme des pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire donnée par :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_t = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (\text{I.3})$$

Les indices t , e et n indiquent respectivement les pouvoirs d'arrêt total, électronique et nucléaire.

Nous avons calculé grâce au code TRIM 93 les pouvoirs d'arrêt de l'oxyde d'Aluminium prenant en compte une densité massique de 3.9 g/cm^3 .

La figure I.1 présente les pertes électronique et nucléaire dans le cas d'irradiation de l'alumine avec des ions du Kr de 50 GeV

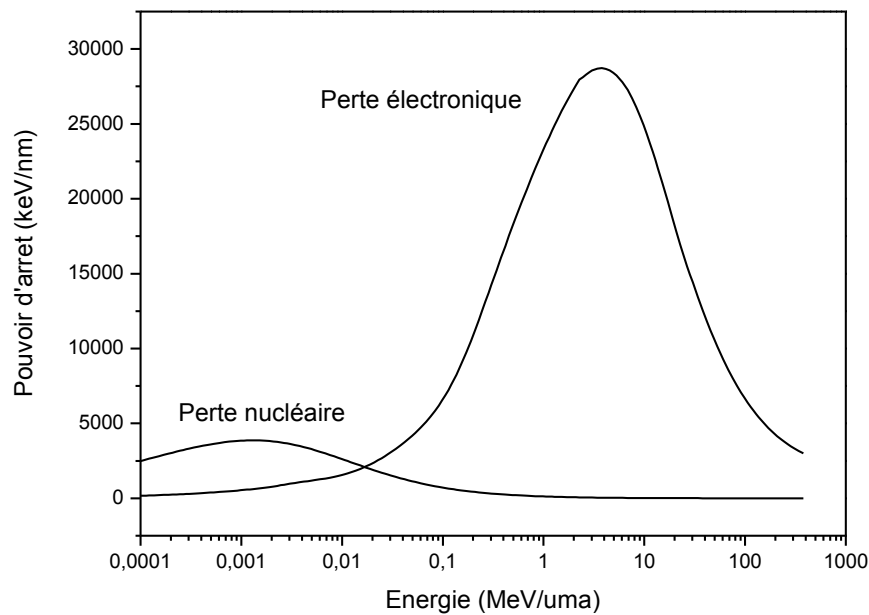


Figure I.1 : pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire pour des ions de Kr de 50 GeV dans l'Al₂O₃.

I.3.1 Pouvoir d'arrêt nucléaire (collision élastique)

Ce processus est prédominant pour des ions de faible énergie ($< 0.1 \text{ MeV/uma}$). Dans ce cas, l'ion interagit directement avec le noyau de la cible et provoque son déplacement loin de son site, appelé le primaire (Primary Knock-on Atom : PKA). Si l'énergie transférée au primaire est suffisamment élevée, d'autres déplacements peuvent avoir lieu. On aura ainsi une cascade de déplacements d'atomes à travers le solide.

La mécanique classique permet de décrire soigneusement ce processus de diffusion puisque ces interactions sont de nature coulombienne ; par conséquent, la probabilité de transférer, une énergie T à un atome cible (section efficace de diffusion) a été calculée par Rutherford [4] :

$$d\sigma(E, T) = 2\pi b db = \pi \left(\frac{p}{2} \right)^2 T_{max} \frac{dT}{T^2} \quad (I.4)$$

$$T_{max} = \frac{4m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E \quad (I.5)$$

$$\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 p} = \frac{\mu V_I^2}{2} \quad (I.6)$$

T_{max} : Energie maximum transférée au cours d'un choc.

μ : Masse réduite définie par : $m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$.

m_1 : Masse de projectile d'énergie E et de vitesse V_I .

m_2 : Masse de la particule cible supposée au repos.

p : diamètre de collision il représente la distance minimale d'approche.

Le pouvoir d'arrêt nucléaire est donné par l'expression :

$$-\left(\frac{dE}{dx} \right)_n = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma(E, T) \quad (I.7)$$

N : Densité atomique de la cible.

T_{min} : Energie cinétique minimale transférée au cours d'un choc.

En remplaçant $d\sigma(E, T)$ par (I.4) ainsi que T_{max} par (I.5) et p par (I.6) dans l'expression (I.7), nous obtenons :

$$-\left(\frac{dE}{dx} \right)_n = N \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{2\pi}{m_2 V_I^2} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \frac{dT}{T} \quad (I.8)$$

Soit

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = N \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{2\pi}{m_2 V_I^2} \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (I.9)$$

$$q_1 = Z_1 e$$

$$q_2 = Z_2 e$$

I.3.2 Pouvoir d'arrêt électronique (collision inélastique)

Ce processus de ralentissement est dominant à haute énergie. Deux domaines de vitesse sont distingués selon la vitesse V_I de l'ion incident par rapport à la vitesse orbitale moyenne des électrons de l'atome cible V_0 .

I.3.2.1 Domaine des faibles vitesses

A faibles vitesses, la plus part des électrons de l'atome cible ont une vitesse supérieure à celle de l'ion incident ; par conséquent, la durée de la collision devient beaucoup plus grande que la période de révolution de l'électron autour du noyau, ce qui lui permet d'ajuster sa trajectoire au cours de l'interaction et retourner après interaction à sa trajectoire initiale. Au cours de la collision, les nuages électroniques du projectile et de la cible se recouvrent formant ainsi une quasi-molécule. Dans cette gamme d'énergie, le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion incident. [5] :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = N 8\pi \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} a \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{2/3}} \frac{V_1}{V_0} \quad (I.10)$$

a : distance d'écran.

I.3.2.2 Domaine des vitesses élevées

Dans le domaine des vitesses élevées (non relativiste), c'est-à-dire lorsque la vitesse du projectile est beaucoup supérieure à celle des électrons de la cible, l'ion incident se trouve totalement dépouillé de ses électrons. Ayant perdu tous ses électrons, il interagit avec les électrons de la cible dans un potentiel coulombien (Rutherford). De ce fait, ceci nous ramène à traiter ces collisions comme des chocs élastiques avec des électrons. [6]

La section efficace qui correspond à un tel transfert d'énergie est exprimée par [7] :

$$d\sigma(E, T) = \pi \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{M_1}{m_e} \frac{1}{E} \frac{dT}{T^2} \quad (\text{I.11})$$

D'où le pouvoir d'arrêt électronique vaut :

$$-\left(\frac{dE}{dx} \right)_e = N_I \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma(E, T) \quad (\text{I.12})$$

Avec

$$N_I = Z_2 N$$

N_I : Densité d'électrons dans l'atome cible.

N : Densité atomique de la cible.

T_{min} : Energie d'ionisation I des atomes de la cible.

$$T_{max} = \frac{4m_e M_1 E}{(M_1 + m_e)^2} \approx 2m_e V_1^2 \quad (\text{I.13})$$

L'expression finale de pouvoir d'arrêt électronique s'écrit de la manière suivante :

$$-\left(\frac{dE}{dx} \right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} N Z_2 \ln \left(\frac{2m_e V_1^2}{I} \right) \quad (\text{I.14})$$

Il est bien évident que la partie logarithmique de l'expression (I.14) varie lentement avec la vitesse de projectile, et par conséquent, la perte d'énergie électronique évolue pratiquement comme V_1^{-2} .

Il faut aussi tenir compte de l'effet relativiste où la formule de Bethe Block devient :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} NZ_2 \left[\ln\left(\frac{2m_e V_1^2}{I}\right) - \ln(1 - B^2) - B^2 - C_k / Z_1 \right] \quad (I.15)$$

Où : $B = v/c$ et le paramètre C_k est un terme de correction de couches.

I.4. Mécanismes de formation de défauts

Le mécanisme de création de l'endommagement dans les isolants sous irradiation est un processus compliqué qui n'est pas complètement compris. La question qui se pose est : comment une excitation et ionisation électronique conduit au déplacement d'atomes ? Plusieurs modèles ont été proposés afin d'expliquer dans les différents systèmes cette apparition de défauts :

Les processus conduisant à la formation de traces (défauts) peuvent être attribués à :

- 1- l'inhomogénéité de la distribution de charge conduisant à l'explosion coulombienne [8].
- 2- L'effet de la pointe thermique qui provient de la dissipation de l'énergie des électrons secondaires sous forme de chaleur. Un mécanisme fondé sur le modèle « à deux température » (Températures des électrons et du réseau) [9].
- 3- La transformation de l'énergie d'excitation en mouvement atomique par un couplage direct électron-réseau. Le mécanisme des excitons auto-piégés a été identifié dans les halogénures d'alcalins et le SiO₂ quartz [10-12]. Ce dernier mécanisme n'est possible que si l'énergie de l'état excité est supérieure à l'énergie de formation de défaut [11].

4- le model de l'onde de choc résulte de la conversion d'une fraction de déformation plastique en chaleur (conversion thermoélastique) lors de l'impact d'un ion lourd rapide avec les atomes du matériau cible [13]. Il permet ainsi de calculer l'élévation de la température du réseau du cristal (due à la conversion) en fonction de la propagation de l'onde de choc.

I.4.1 Mécanisme d'explosion coulombienne :

Ce modèle a fait l'objet d'étude par plusieurs auteurs [8, 14-16]. Il est basé sur le fait que la pénétration d'un ion lourd rapide dans la matière laisse sur son parcours une zone dans laquelle les atomes sont fortement ionisés. Cette accumulation de charges positives entraîne une forte répulsion électrostatique entre les ions (force électrostatique), cette répulsion mutuelle peut amener ces ions dans des positions interstitielles. Le retour des électrons dû à la force de rappel créée par le champs électrique suivi d'une relaxation de réseau conduit à une véritable explosion locale engendrant ainsi une région endommagée.

L'expression de la force de répulsion coulombienne entre deux charges q_1 et q_2 interagissant dans un milieu matériel est donnée par :

$$\vec{F} = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\vec{e}_r}{r^2} \quad \text{avec : } q_1 = q_2 = ne \quad \text{et : } r = a_0 \quad (\text{I.16})$$

L'expression (I.16) devient :

$$F = \frac{ne ne}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{a_0^2} = \frac{n^2 e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{a_0^2} \quad (\text{I.17})$$

La pression électrostatique est donc : $P = F / a_0^2$

Pour y arriver à la formation d'une trace, il faut que la pression électrostatique soit supérieure à la force mécanique du matériau, soit [14]

$$P \succ \frac{Y}{10} \Leftrightarrow \frac{n^2 e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{a_0^4} \succ \frac{Y}{10} \quad (\text{I.18})$$

n : nombre d'électrons perdus par chaque atome.

a_0 : Distance inter atomique

$\vec{e}_r$: Vecteur unitaire.

ϵ : Constante diélectrique du milieu traversé.

ϵ_0 : Permittivité du vide.

Y : Module de Yong du matériau

I.4.2. Mécanisme de la pointe thermique

Le mécanisme de la pointe thermique fut proposé par Desauer [17] et appliqué pour la première fois aux métaux par Seitz et Koehler [18]. Il suppose que l'énergie transférée par l'ion incident aux atomes du réseau via l'interaction électron phonon est convertie en énergie thermique. Par conséquent, l'élévation locale de la température du réseau peut entraîner la fusion d'une région cylindrique. La configuration ainsi obtenue peut être gelée par une trempe ultra rapide menant à la création d'une trace latente. La principale controverse (difficulté) de ce modèle est la non connaissance de l'interaction électron phonon dans le cas des isolants. De plus, les équations de diffusion de la chaleur employées sont celles d'un système à l'équilibre thermique alors que l'on veut décrire un système qui se trouve hors équilibre thermodynamique [19].

I.4.2.1 Description mathématique du mécanisme

Dans le formalisme de la pointe thermique développé par C. Dufour et al. [20] la cible est considérée comme un ensemble de deux systèmes physiques continus : le gaz d'électrons et le

réseau atomique, l'équation de diffusion de la chaleur est résolue dans les deux systèmes, qui sont couplés entre eux par un terme qui rend compte des interactions électron-réseau.

Ce modèle est décrit par deux équations couplées décrivant la diffusion d'énergie dans le système d'électrons et dans le système du réseau (système à deux températures). Le système d'équations est donné par :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r} \left[k_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] + \frac{k_e(T_e)}{r} \frac{\partial T_e}{\partial r} - G(T_e - T) + A(r, t) \quad (I.19)$$

$$\rho C(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r} \left[k(T) \frac{\partial T}{\partial r} \right] + \frac{k(T)}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + G(T_e - T) \quad (I.20)$$

Ou T_e , T , C_e , C et k_e , k sont les températures, les chaleurs spécifiques, et les conductivités thermiques respectivement du système électronique et du système atomique.

G est la constante de couplage électron-phonon.

$A(r, t)$ est la densité d'énergie déposée par l'ion incident à l'instant t , au rayon r [21,22].

Baranov et al. [23] suggèrent que les électrons chauds dans les bandes de conduction des isolants se comportent comme les électrons libres. Dans ce cas, le model du gaz d'électron libre peut être appliqué conduisant à une valeur de chaleur spécifique qui dépend du nombre d'électron N_e qui participent dans le processus de diffusion d'énergie.

$C_e = 3/2 N_e k_B$ ou k_B est la constante de Boltzmann.

La conductivité thermique est liée à la diffusivité thermique par la relation :

$$k_e = D_e C_e.$$

Dans le cadre du model de l'électron libre, $D_e = (1/3) l v_f$.

l : Libre parcours moyen des électrons.

v_f : Vitesse de fermi.

D_e : Diffusivité thermique des électrons.

Cette relation décrit assez bien la diffusion d'énergie sur les électrons à température ambiante.

G est liée au temps d'interaction électron-réseau τ_a par la relation : $\tau_a = C_e / G$ et au libre parcours moyen de l'interaction électron- réseau par : $\lambda^2 = D_e \tau_a = D_e C_e / G = k_e / G$ [22].

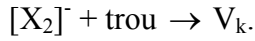
Les deux

équations (I.19) et (I.20) sont résolues numériquement.

I.4.3. Mécanisme de formation d'excitons

Ce mécanisme de formation de défaut a été développé par Itoh [10] en partant de l'apparente corrélation entre l'existence d'excitons piégés et la possibilité de révéler des traces après irradiation dans certains matériaux. Cette corrélation a été revue par la suite par le même auteur et se base maintenant sur le fait que les seuils de création de trace latente sont plus faibles dans les matériaux permettant l'apparition d'exciton auto-piégé. Ce mécanisme de création de défaut appelé aussi « *non impact mécanisme* » n'est possible que si l'énergie de l'état excité de l'exciton est supérieure à l'énergie de formation de défaut [24]. Ce mécanisme de formation de défauts est important dans le cas des matériaux ioniques (LiF, CaF₂,...). C'est la désexcitation non radiative de l'exciton auto-piégé qui conduit à la création d'une paire de Frenkel. Ce dernier est expliqué de la façon suivante (voir figure I.2):

Le déplacement d'un anion $[X]^-$ dû à une collision élastique ou inélastique laisse une lacune et peut se rapprocher d'un autre anion pour former une molécule $[X_2]^-$. Cette molécule négative peut piéger un trou (charge positive) et forme ainsi un centre appelé centre V_k .



Le centre V_k peut à son tour piéger un électron et former un exciton auto-piégré. Si la durée de vie de cet exciton est élevée (entre la nanoseconde et milliseconde dans les halogénures alcalins et le SiO_2 par exemple) [24] et si l'énergie de son état excité est supérieure à l'énergie de formation de défaut, alors sa désexcitation non radiative conduit à la création d'une paire de Frenkel.

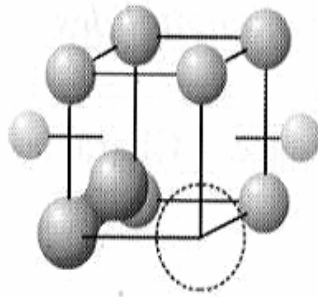


Figure I.2 : exciton auto- piégé.

La forte concentration des excitons auto-piégré peut causer des désordres catastrophiques dans le réseau [25], conduisant ainsi à un endommagement permanent de la structure [26].

I.4.3.1 Formation des excitons dans l' Al_2O_3

Comme il a été mentionné ci-dessus, la création de défauts par relaxation non radiative de l'exciton n'est possible que si l'énergie de l'état excité E_{ex} de l'exciton auto-piégré est supérieur à l'énergie de formation de défaut E_d [27,28].

Des travaux antérieurs concernant l'existence des excitons dans l' Al_2O_3 [27-30] ont révélé que pour les oxydes tels que l'alumine par exemple, l'énergie de formation de défaut est supérieure au gap, donc la possibilité d'avoir un état où l'électron se recombine avec un trou est nulle. Par conséquent la révélation d'une paire de Frenkel due à cette recombinaison est exclue [31].

I.4.4. Mécanisme d'onde de choc

La théorie de l'onde de choc « shock wave » est étudiée par plusieurs auteurs. Les détails concernant cette théorie ainsi que plusieurs références peuvent être trouvés dans l'article de Abdolrahman Razani [32]. L'onde de pression et de chaleur initiée au point d'entrée (impact) de l'ion énergétique peut être évaluée par cette théorie. La déformation très rapide (vitesse élevée) après irradiation est considérée comme une propagation d'une onde de choc avec une vitesse fixe. Dans les matériaux condensés solides cette vitesse est de l'ordre de 6000 à 8000 m/s [33]. L. Davison et al. ont considéré la déformation rapide comme étant un processus adiabatique [34] ou l'énergie de la déformation est transformée en chaleur. D'après les calculs de Ryzanov et al, la température peut atteindre 1000 K dans certains métaux [35]. Ceci conduit à une élévation de la température du matériau d'où résulte une onde de chaleur. La théorie nous permet ainsi de calculer l'élévation de la température du réseau du cristal due à la conversion d'une fraction de la déformation plastique en chaleur, en fonction de la propagation de l'onde de choc [34]. Des études antérieures ont montré en utilisant cette théorie que les défauts ponctuels sont formés plus facilement dans les matériaux flexibles ou un réarrangement collectif d'un groupe d'atomes dans un réseau compressé joue un rôle important.[35-37].

I.4.4.1 Description mathématique du mécanisme

Pour le calcul de l'augmentation de température durant la propagation d'une onde de choc dans les métaux, A. I. Ryzanov et al. [35] ont utilisé le système d'équation suivant :

le courant en énergie,

$$\vec{j} = \rho \vec{V} \left(\frac{V^2}{2} + H_0 \right) \quad (\text{I.21})$$

le courant thermique

$$j_T = -k(T) \cdot \nabla T \quad (\text{I.22})$$

Avec :

ρ : Densité de matériau.

V : Vitesse d'écoulement de matériau.

$H_0 = E_0 + PV_0$ est la fonction thermique en unité de volume, elle exprime aussi l'enthalpie par unité de volume.

E_0 : Energie interne.

V_0 : Volume de matériau

P : Pression interne.

$k(T)$ est la conductivité thermique et T la température de matériau.

L'équation de la conservation de l'énergie s'écrit:

$$\frac{d}{dt} Q_v + \vec{grad}(\vec{j} + \vec{j}_T) = 0 \quad (\text{I.23})$$

Avec : Q_v , l'énergie par unité de volume donnée par :

$$Q_v = \rho \left(\frac{V^2}{2} + E_0 \right) \quad (\text{I.24})$$

Ainsi l'équation (I.23) s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho \left[\frac{V^2}{2} + E_0 \right] \right) = - \frac{\partial}{\partial x} \left(\rho V \left[\frac{V^2}{2} + H_0 \right] \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(k(T) \frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (\text{I.25})$$

Si la vitesse de l'onde de choc est D , alors l'équation (I.25) peut se réécrire dans le nouveau système de coordonnées (Y, t) se déplaçant avec la vitesse D (ou $Y=X-Dt$) comme suit :

$$\frac{\partial}{\partial y} \left(\rho w \left[\frac{w^2}{2} + E_0 + PV_0 \right] \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\rho D \left[\frac{Dw}{2} + w^2 + PV_0 \right] \right) = \frac{\partial}{\partial y} \left(k(T) \frac{\partial T}{\partial y} \right) \quad (\text{I.26})$$

Où $w = dy/dt$ est la vitesse d'écoulement de la matière dans le nouveau système de coordonnées.

Utilisant les conditions aux limites et sachant que

$$P = \frac{2E}{3V_0}, \quad E = \frac{3}{2}KT \quad \text{et} \quad PV_0 = KT$$

L'équation (I.26) peut s'écrire:

$$\frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{2}{3}E \left[D + \frac{5}{2}w \right] \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{\rho w [w + D]^2}{2} \right) = \frac{\partial}{\partial y} \left(k(T) \frac{\partial T}{\partial y} \right) \quad (\text{I.27})$$

La résolution numérique de cette équation donne le profil de température d'une onde de choc se propageant dans un solide.

Il faut noter que les expériences menées récemment par Skuratov et al. [38] ont montré que ce mécanisme n'explique pas les défauts observés à la surface dans l' Al_2O_3 et le MgO .

Chapitre II : Etat de connaissance sur les défauts induits par irradiation dans l' Al_2O_3

II.1 Introduction

L' Al_2O_3 est un important cristal connu pour ses propriétés thermiques et opto-mécaniques (grande conductivité thermique, excellente dureté, propriétés chimiques stables) [39-44]. Ce matériau présente également une grande résistance aux irradiations. Ceci est dû au taux d'ionicté important (80 %) [45]. Ce matériau est utilisé dans de nombreuses applications de haute technologie et dans les applications optiques. L'alumine est aussi utilisée dans la fabrication des isolants pour les réacteurs à fusion [46,47]. Il supporte ainsi des irradiations de différents types de radiations (rayons gamma, alpha, neutron, ions lourds...). Il est alors nécessaire de connaître l'effet d'irradiation sur les différentes propriétés du matériau. Plusieurs travaux ont été menés durant ces dernières années pour l'exploitation de ce matériau et son utilisation précieuse dans divers domaines : dans l'industrie nucléaire comme dans celui de la recherche scientifique. Les principaux paramètres de ce matériau sont résumés dans le tableau II.1.

II.2 Structure de l'alumine

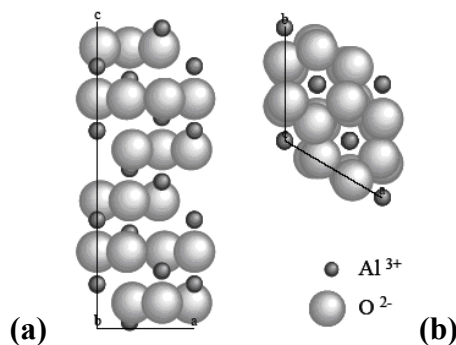


Figure II.1 : représentation de la structure de l'alumine alpha. Visualisation des plans (0001)

(a) de profil, en projection selon [010]. Et (b) en vue de dessus.

Propriétés	valeurs	symboles
Masse volumique (g/cm ³)	3.97	ρ
Poids moléculaire (g/mole)	101.961291	M
Température maximale d'utilisation sous air (C)	1700-1800	-
Dureté (Mohs)	9	-
Module de Young (Gpa)	300-400	E
Coefficient de poisson	0.25	ν
Résistance à la flexion (Mpa)	380	δ_f
Ténacité	2-3	K_{Ic}
Constante diélectrique	9-10	ϵ_r
Résistance électrique à 20 (ohm cm)	$> 10^{14}$	δ
Résistance diélectrique (kV/mm)	10-20	-
Chaleur spécifique (j/K/kg)	900	C_p
Conductivité thermique (w/m/k)		
à 20 °C	26-35	λ
à 500 °C	10-15	λ
Point de fusion (k)	2054 (± 6) ;(2327k)	
Point d'ébullition (k)	3530k	

Tableau II.1 : Propriétés de l'alumine.

L'alumine alpha admet une structure cristalline rhomboédrique dans le groupe d'espace $R\bar{3}c$ - (D^{3d}_6) avec dix atomes dans la cellule unitaire.

Les anions d'oxygène O^{2-} forment un empilement hexagonal compact, les cations d'aluminium Al^{3+} occupent les deux tiers des sites interstitiels octaédriques [48].

Un atome d'aluminium dans l' Al_2O_3 est entouré de 6 atomes d'oxygènes qui forment un octaèdre déformé.

Les trois oxygènes supérieurs sont plus proches les uns des autres que les trois inférieurs, et l'aluminium est un peu plus bas qu'à mi distance entre les couche. Ces 6 voisins chargés produisent sur l'ion central un champ électrostatique, appelé champ cristallin.

Les paramètres du réseau dans cette description hexagonale sont ; $a = b = 4.7588 \text{ \AA}$ et $c = 12.992 \text{ \AA}$ [49] (voir Figure II.1).

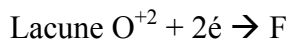
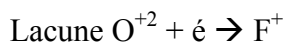
II.3 Comportement de l' Al_2O_3 sous irradiation

Les travaux effectués ultérieurement sur le comportement de l'alumine après irradiation avec des particules chargées énergétiques ont révélé que le cristal ne s'amorphyse pas facilement. Il faut un seuil de perte d'énergie électronique de $dE/dx = 21 \text{ keV/nm}$ [50-55]. Par ailleurs, l'irradiation avec des fluences élevées induit une densité de défauts ponctuels très importante. Ceci engendre des agrégats de défauts sous forme de vides causant par conséquent le gonflement de matériau [56,57]. En effet, il a été trouvé que l'irradiation de l'alumine avec des ions de Xe de haute énergie se fait en deux processus : premièrement, un désordre partiel causé par les cristallites, dans la deuxième étape, un gonflement qui submerge (augmente) linéairement avec la fluence. [56]

II.4 Défauts ponctuels créés par irradiation dans l' Al_2O_3

Comme nous l'avons signalé dans le chapitre I, l'irradiation d'un matériau induit une cascade de déplacements si l'énergie incidente de l'irradiation est supérieure à l'énergie de déplacement d'atomes E_d . Après irradiation, des milliers de lacunes et d'interstices sont produites. Les lacunes sont assimilées à des charges positives et engendrent par conséquent un déséquilibre du potentiel du réseau. Pour cela ces lacunes peuvent piéger des électrons et deviennent ce qu'on appelle des centres colorés. Ils sont appelés ainsi, car les échantillons irradiés absorbent dans le visible et prennent la couleur de la longueur d'onde transmis.

Plusieurs centres colorés sont produits dans l' Al_2O_3 (voir figure II.2) [58]. Une lacune d'oxygène peut piéger un (01) ou deux (02) électrons et donne ce qu'on appelle le centre F^+ et F respectivement.



Deux centres F peuvent également s'associer pour donner un centre F_2 . Ce dernier peut se trouver dans plusieurs états ionisés :

- F_2 : centre neutre : deux lacunes avec 04 électrons
- F_2^+ : une fois ionisé: deux lacunes avec 03 électrons,
- F_2^{2+} : deux fois ionisé: deux lacunes avec 02 électrons.

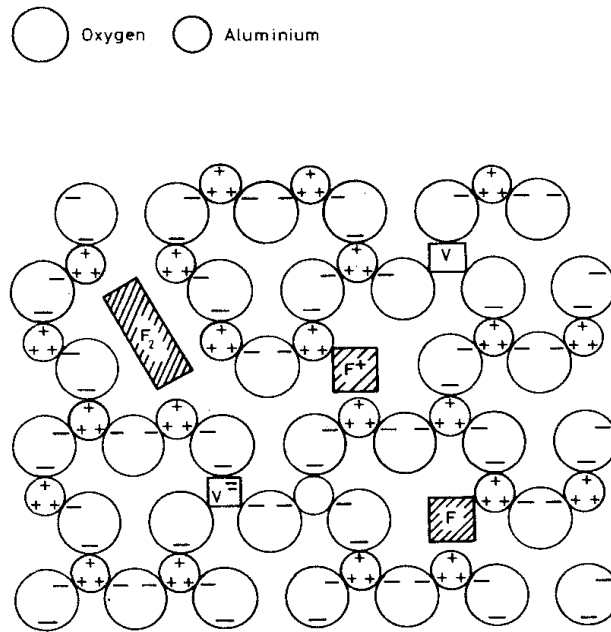


Figure II.2 schéma décrivant les différents types de centres colorés présents dans l' Al_2O_3 . [58]

Chaque centre coloré est caractérisé par une bande d'absorption. Plusieurs travaux ont été consacrés aux centres colorés induits dans l' Al_2O_3 par différents types d'irradiation (γ , électrons, ion, neutron...) [59-67]. Les résultats obtenus montrent que des bandes d'absorption centrées aux environs de 200 nm, 255 nm, 303 nm, 356 nm et 446 nm ont été observées. Levy et Dienes [66] et Lee et Crawford [62] ont attribué la bande 255 nm au centre F^+ . Y. Chen et al. [68] ont attribué la même bande au centre F_2^+ . Okada et al [67] ont attribué les bandes d'absorption situées à 300 nm et 356 nm aux centres F_2 . Récemment, Jheeta et al. [63] ont attribué la bande 356 nm aux centres F_2^+ . Par ailleurs, d'autres auteurs attribuent la bande 303 nm aux interstices Al^+ [69-71].

Ces types de défauts sont connus également par leurs bandes d'émission. L'excitation avec des photons de 442 nm engendre une émission centrée au environ de 550 nm attribuée au centre F_2^{2+} [68]. L'excitation avec un photon de 375 nm induit une émission centrée à 380 nm qui correspond au centre F_2^+ [72]. L'excitation avec un photon de 303 nm conduit à une

émission de photon centré à 516 nm attribuée à l'interstice Al^+ [70]. L'émission observée à 413 nm après excitation avec un photon de 203 nm est attribuée au centre F [72]. Ces travaux antérieurs montrent que l'identification de ces bandes d'absorption et d'émission n'est pas encore claire. Par conséquent, des travaux supplémentaires sont toujours nécessaires afin de bien comprendre la formation des défauts ponctuels dans l'alumine. La mobilité de ces défauts dépend de la température : au fur et à mesure que la température augmente, la lacune fait des sauts d'une position à une autre. Ceci engendre la formation des agrégations de centre F (F_2) [73, 74]. Par ailleurs, la migration d'un interstice finira par se recombiner avec une lacune (annihilation d'une paire de Frenkel) [73-77].

Dans ce travail nous nous sommes intéressés à l'étude des propriétés des défauts ponctuels induits dans Al_2O_3 monocristalline irradiée aux neutrons du réacteur : évolution des différents types de défauts en fonction de la fluence et de la température de recuit.

II.5 Irradiation au réacteur

Dans ce travail nous avons utilisé l'alumine (Al_2O_3) monocristalline pure d'épaisseur 0.5 mm. L'analyse par diffraction X montre bien que le plan principal est $(11\bar{2}0)$

(voir figure II. 3).

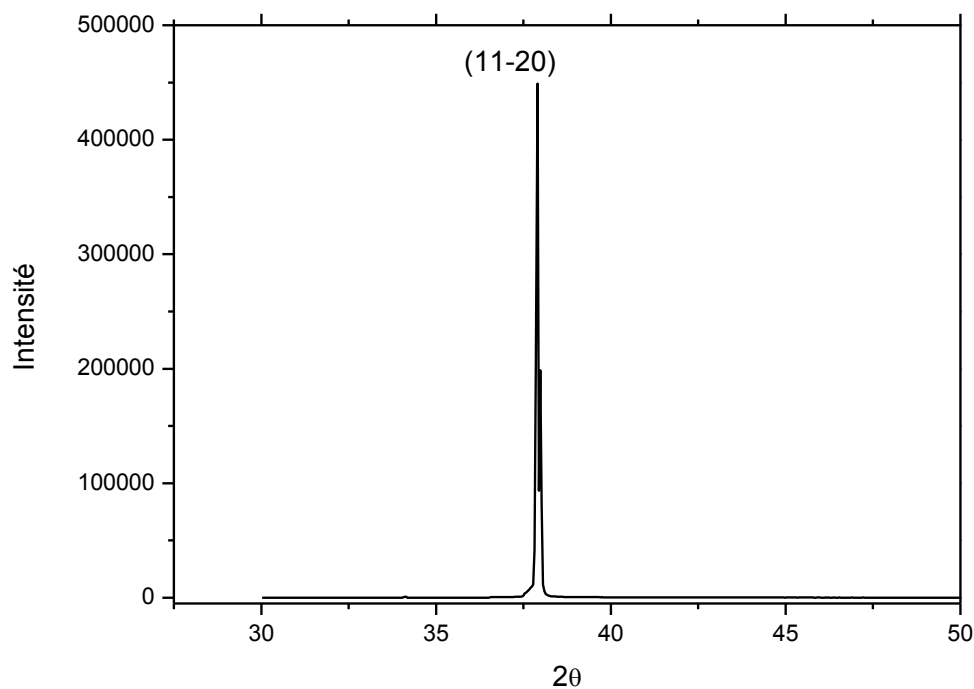


Figure II.3 Spectre de Diffraction X de l' Al_2O_3 .

Les irradiations aux neutrons ont été réalisées auprès du réacteur de recherche NUR, Draria, Algérie. Les échantillons sont placés séparément dans des capsules en aluminium bien scellées. Les capsules sont ensuite fixées sur un porte échantillon en aluminium. Le porte échantillon est ensuite plongé dans la cage centrale d'irradiation situé au centre du cœur du réacteur (figure II.4) parallèle aux éléments combustible. L'introduction du porte échantillon est effectuée la veille du fonctionnement du réacteur. La température dans cette position à une puissance du réacteur de 1 MW ne dépasse pas les 40°C. Cinq (05) échantillons d' Al_2O_3 ont été irradiés à différentes fluences reportées dans le tableau II.2. Le flux de neutrons n'étant pas homogène le long d'un élément combustible, nous avons déterminé la distribution

du flux le long de la cage central. Nous avons utilisé pour cela l'activation neutronique de feuilles de manganèse (voir annexe).

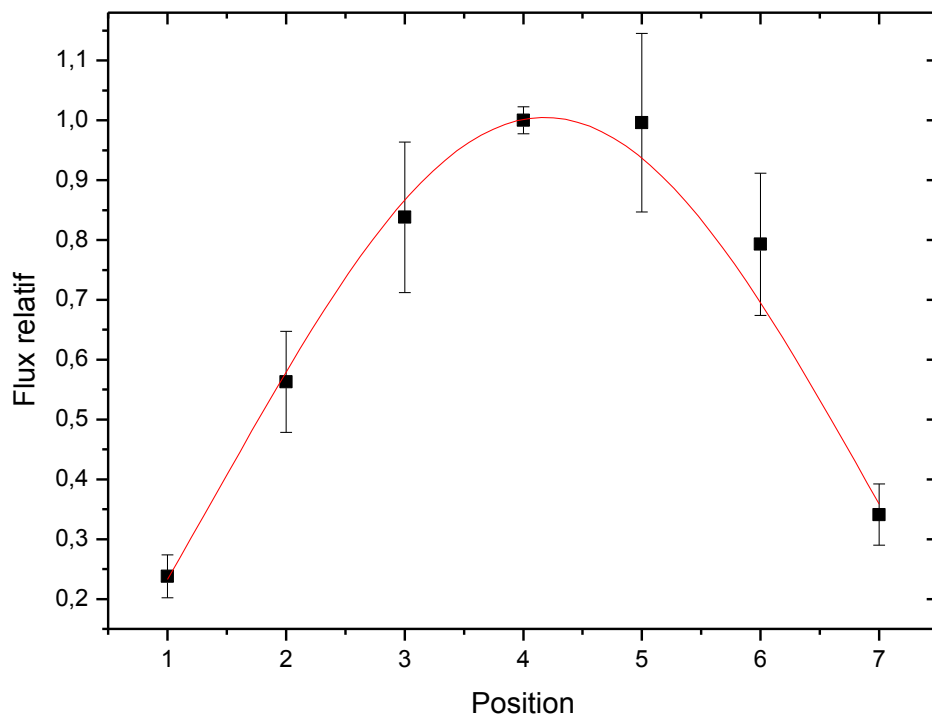


Figure II.4 Distribution du flux de neutrons inhomogène le long de la cage centrale déterminée par activation de feuilles de M_n

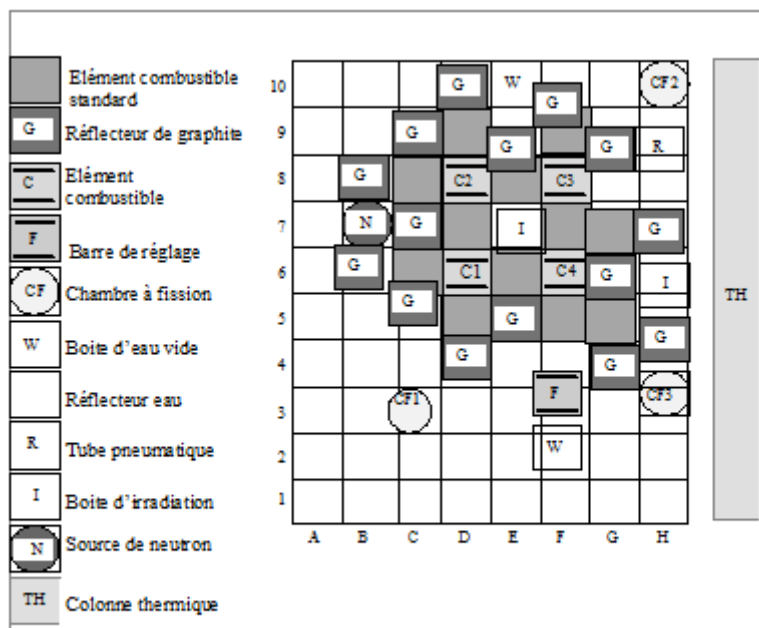


Figure II.5 Cage centrale d’irradiation du réacteur NUR

échantillon	neutrons thermiques [n.cm ⁻²]	neutrons rapides (E > 1.2 MeV) [n.cm ⁻²]
1	8.1 x 10 ¹⁶	4.4 x 10 ¹⁶
2	2.0 x 10 ¹⁷	1.13 x 10 ¹⁷
3	1.3 x 10 ¹⁸	7.5 x 10 ¹⁷
4	1.6 x 10 ¹⁸	9.1 x 10 ¹⁷
5	2.6 x 10 ¹⁸	1.4 x 10 ¹⁸

Tableau II.2: Fluences neutroniques utilisées dans les irradiations

Chapitre III : Techniques de caractérisations

III.1 Introduction

Plusieurs techniques sont utilisées pour caractériser les défauts dans les matériaux. On peut citer la Microscopie Electronique à Transition (TEM), la rétrodiffusion Rutherford en canalisation la (RBS) pour sonder les effets de surface. La profilométrie pour la caractérisation les dommages en volume, la XRD pour l'étude des contraintes, la spectroscopie de thermoluminescence, et les mesures optiques (absorption optique et photoluminescence) pour l'identification de défauts ponctuels (seules utilisées ici).

III.2. Techniques d'analyse par spectroscopie optique (Absorption et photoluminescence)

Ces techniques de mesures optiques, notamment l'absorption optique et la photoluminescence sont très utilisées pour l'étude des propriétés optiques des défauts créés par irradiation dans les solides. Ce sont des outils d'une grande performance et d'une sensibilité remarquable.

En utilisant ces techniques de caractérisation optique, nous parvenons à détecter plusieurs types de défauts ponctuels (centres colorés) qui se forment dans le cristal.

Dans le cas des oxydes, une lacune d'oxygène peut piéger un (01) ou deux (02) électrons et donne ce qu'on appelle le centre F^+ et F respectivement.

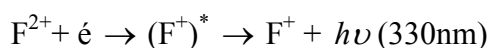
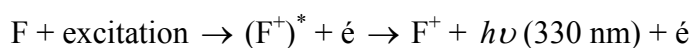
La structure électronique du centre F peut être assimilée à celle de l'atome d'hélium He. De même la structure du centre F^+ peut être considérée comme celle de l'atome d'Hydrogène H ou d'Hélium ionisé une fois, He^+ . La configuration électronique de l'état fondamental $(1S)^2$ correspond au $^1S_0$. Les états excités sont générés si un électron est porté vers l'un des états excité 2S ou 2p. Ainsi, la configuration électronique des états excités devient donc $^1S^2S$ ou $^1S^2p$, ce sont des états singlets et triplets (^1S , ^3S , ^1p , ^3p).

Le diagramme énergétique du centre F dans le cas de l' Al_2O_3 [78] est représenté dans la figure III.1. Un électron peut absorber un photon ($h\nu_0 = 6.1 \text{ eV}$) et passe de l'état fondamental ^1S vers l'état excité ^1p . L'électron revient ensuite vers l'état fondamental avec émission d'un photon ($h\nu = 3.0 \text{ eV}$). L'énergie du photon absorbé est différente de l'énergie du photon émis. Ceci est appelé « Stokes shift »

Comme le montre la figure III.1 cette émission correspond à la transition $^3\text{p} \rightarrow ^1\text{S}$. La transition $^1\text{p} \rightarrow ^1\text{S}$ étant interdite, l'électron excité peut revenir à son état fondamental en empruntant l'un des deux chemins suivant (voir figure III.1 (b)) :

- désexcitation non radiative de l'état ^1p vers l'état ^3p suivie de la transition photonique $^3\text{p} \rightarrow ^1\text{S}$.
- les électrons sont ramenés dans la bande de conduction à partir de l'état ^1p ou bien piégés par des états d'impuretés avant d'être rattrapés dans le niveau ^3p . Ce dernier processus explique la longue durée de vie de la fluorescence du centre F et qui peut engendrer la conversion $\text{F} \rightarrow \text{F}^+$.

Puisque le niveau de l'état excité de centre F (niveau ^1p) est suffisamment proche de la bande de conduction, pour qu'un électron puisse accéder à la bande de conduction, le résultat de l'excitation donne naissance à un centre $(\text{F}^+)^*$ métastable, suivi d'une désexcitation radiative $h\nu$ (330 nm). L'électron sera rattrapé par la suite par un centre F^{2+} qui donnera aussi un centre F^+ et une désexcitation radiative $h\nu$ (330 nm) [79].



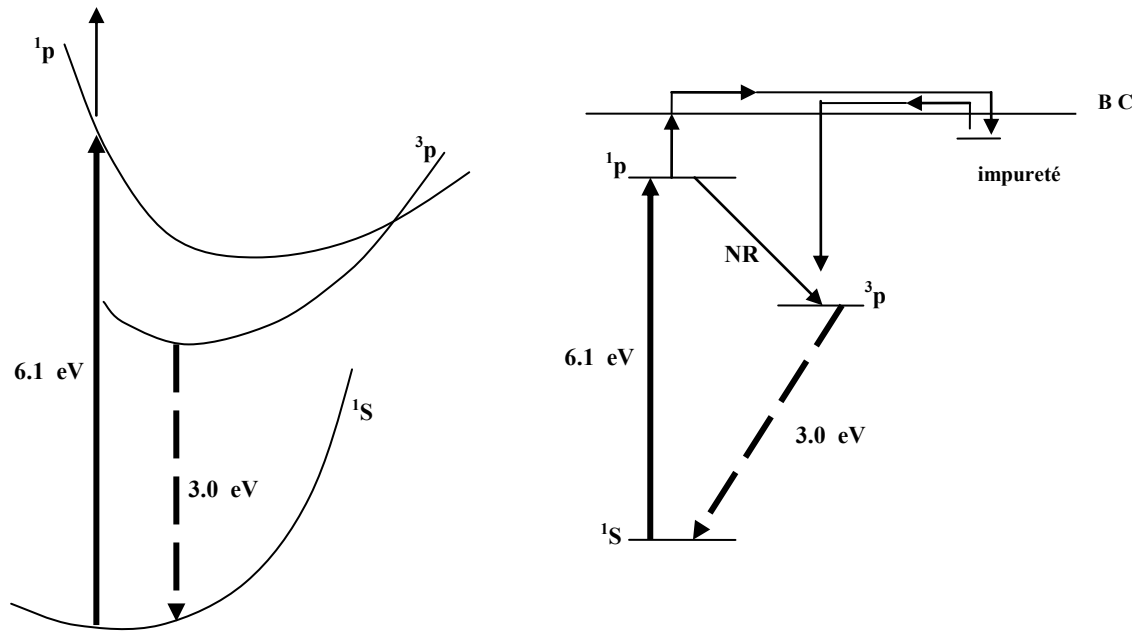


Figure III.1 diagramme énergétique du centre F dans l' Al_2O_3

La Figure III.2 illustre les différentes transitions des centres colorés dans l'alumine ainsi que leurs conversions [80].

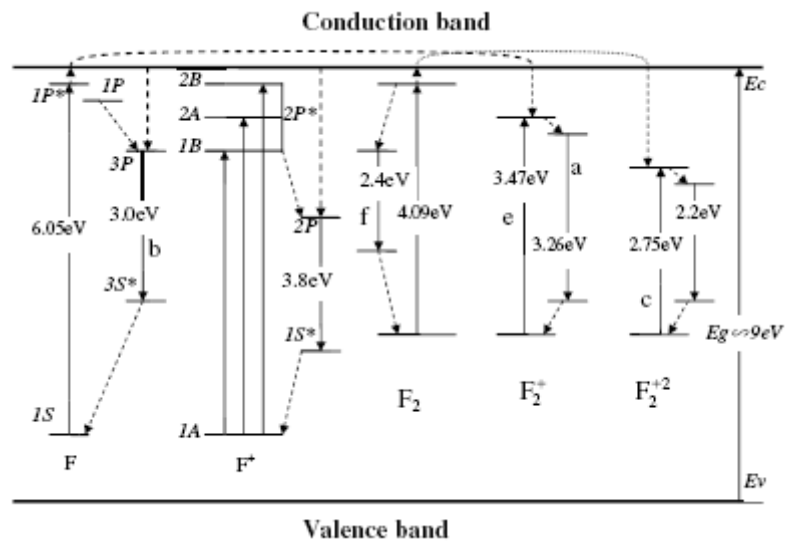


Figure III.2 : schéma décrivant les différentes transitions des centres colorés dans l' Al_2O_3 .

Plusieurs méthodes de calcul ont été proposées pour retrouver les énergies d'absorption et d'émission des différents types de défauts ponctuels. Dans ce qui suit on donne la méthode se basant sur le modèle « The point-ion model » [81] pour calculer les fonctions d'ondes des niveaux d'énergie d'un centre à deux électrons.

Dans le centre à deux électrons, l'Hamiltonien est la somme de deux Hamiltonien d'un seul électron plus un terme Hamiltonien de l'interaction électron-électron [82] :

$$H(1,2) = \sum_{i=1}^2 H(r_i) + H_{rep} + H_{s-o} + V_{cc} \quad (\text{III.1})$$

$$\sum_{i=1}^2 H(r_i) = H(r_1) + H(r_2) \quad (\text{III.2})$$

$$H(r_1) = H(r_2) = -\frac{1}{2} \nabla^2 - \sum_{v=1}^{N-1} \frac{z_v}{|r - R_v|} \quad (\text{III.3})$$

$$H_{rep} = \sum_{i=1}^2 \sum_{j=i}^2 \frac{e^2}{r_{ij}} \quad (\text{III.4})$$

$$H_{s-o} = \sum_{i=1}^N \xi(r_i) \vec{l}_i \vec{s}_i \quad (\text{III.5})$$

$H(r_i)$: représente l'Hamiltonien de configuration.

H_{rep} : décrit la répulsion électrostatique mutuelle entre deux électrons (interaction é-é).

H_{s-o} : Hamiltonien décrivant le couplage spin-orbite.

H_{cc} : correspond aux effets dus à la présence de défauts (potentiel cristallin).

En introduisant la constante $\hbar$, l'Hamiltonien peut s'exprimer de la façon suivante :

$$H = 2 \left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_e} - \sum_{v=1}^6 \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{z_v}{|r_i - R_v|} \right] + \sum_{i=1}^2 \sum_{j=1}^{N-1} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \epsilon} \frac{1}{|r_i - r_j|} + V(r) \quad (\text{III.6})$$

Ou :

$$V(r) = H_{s-o} + V_{cc}$$

R_v : Coordonnée de position de vieme ion dans le cristal.

r_i : Coordonnée de position du ieme électron dans le cristal.

r_j : Coordonnée de position du jeme électron dans le cristal.

ε : Permittivité du cristal.

La résolution de l'équation de Schrödinger

$$H\psi = E\psi \quad (\text{III.7})$$

nous permet de calculer la fonction d'onde de centre à deux électrons. Elle est donnée par :

$$\phi_{ij}(1,2) = N[\phi_i(r_1)\phi_j(r_2) + \phi_i(r_2)\phi_j(r_1)]\chi(1,2) \quad (\text{III.8})$$

Avec :

$$\chi(1,2) = \frac{1}{\sqrt{2}}[\alpha(\xi_1)\beta(\zeta_2) - \alpha(\zeta_2)\beta(\xi_1)] \quad (\text{III.9})$$

$\chi(1,2)$: Fonction de spin

III.2.1. Absorption optique

III.2.1.1. Dispositif expérimental

Les mesures d'absorption ont été réalisées en utilisant le spectrophotomètre UV-visible à doubles faisceaux Cintra-40. Le dispositif expérimental est représenté dans la figure III.3. Le spectrophotomètre est composé de quatre parties essentielles :

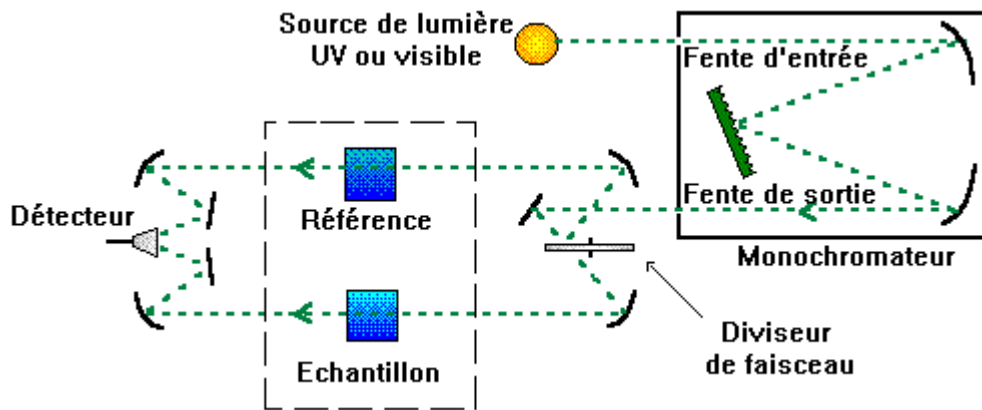


Figure III. 3 : Schéma de principe d'un spectrophotomètre à double faisceau

Source lumineuse

- Une lampe à décharge au xénon utilisée dans le domaine UV et visible.

Monochromateur

- Un monochromateur formé d'un réseau diffractant la lumière de la source. Il permet de sélectionner la longueur d'onde de la lumière qui traversera l'échantillon.
- Une fente de largeur fixe ou variable pour régler la bande passante.

Compartiment échantillons

Il contient deux cuves, une cuve de référence et une cuve échantillon. Dans notre cas la cuve de référence peut contenir un échantillon non irradié (blanc) et la cuve échantillon contient l'échantillon irradié.

Détecteur

- **Photodiode** (semi-conducteur): Est utilisée en tant que détecteur optique composé d'une cellule photoélectrique restituant un courant proportionnel au nombre de photons reçus
- **Photomultiplicateur**: qui permet de multiplier le signal.
- un détecteur électronique dont la réponse est proportionnelle à ce courant électrique et permet une mesure relative de l'intensité lumineuse.

III.2.1.2. principe d'analyse

Dans notre cas ou les échantillons sont des solides, la cuve de référence contient de l'air et la cuve échantillon contient l'échantillon. Ainsi, le spectre obtenu donne directement l'absorbance appelée aussi densité optique de l'échantillon analysé.

Si I_0 et I sont les intensités des faisceaux traversant la cuve de référence et de l'échantillon respectivement, la densité optique est donnée par la loi de Beer-Lambert:

$$A = \log_{10} \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (\text{III.10})$$

Le coefficient d'absorption μ est déduit de l'équation suivante :

$$I = I_0 e^{-\mu x} \Rightarrow \frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad (\text{III.11})$$

$$\begin{aligned} \ln \frac{I_0}{I} &= \mu x \quad d'ou \quad \mu x = \ln 10^A = A \ln 10 \\ \Rightarrow \mu x &= 2,303 A \end{aligned} \quad (\text{III.12})$$

Finalement, on obtient :

$$\mu [cm^{-1}] = \frac{2,303}{x} A \quad (\text{III.13})$$

Où x est l'épaisseur de l'échantillon.

La concentration N de défauts ponctuels est calculée en utilisant la formule de Smakula-Dixter [83] :

$$N f = 0.87 \cdot 10^{17} \mu W \frac{n}{(n^2 + 2)^2} \quad (\text{III.14})$$

Ou :

- W est la largeur à mi-hauteur de la bande d'absorption en électron-volt (eV).
- f est la force d'oscillation donnant la probabilité de transition produisant l'absorption.
- n est l'indice de réfraction.

L'indice de réfraction pour un matériau donné en fonction de la longueur d'onde est donné par la relation de Sellmeier : [84]

$$n^2 = 1 + \sum_i \frac{A_i \lambda^2}{(\lambda^2 - \lambda_i^2)} \quad (\text{III.15})$$

$$n^2 - 1 = \frac{A_1 \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_1^2} + \frac{A_2 \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_2^2} + \frac{A_3 \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_3^2} \quad (\text{III.16})$$

Pour l'alumine, on trouve :

$$\lambda_1 = 0.06144821, A_1 = 1.023798 ; \lambda_2 = 0.1106997, A_2 = 1.058264 ; \lambda_3 = 17.92656, A_3 = 5.280792.$$

III.2.2 La photoluminescence

III.2.2.1. Principe d'analyse

Comme les mesures de l'absorption, la photoluminescence nous permet également de détecter les défauts ponctuels existant dans un matériau. L'excitation d'un matériau avec un photon d'énergie $h\nu_0$ engendre la transition des électrons du défaut vers l'un des états excités. Le retour vers le niveau fondamental induit une fluorescence ou phosphorescence d'énergie $h\nu$. Cette émission est caractéristique du défaut responsable de l'absorption.

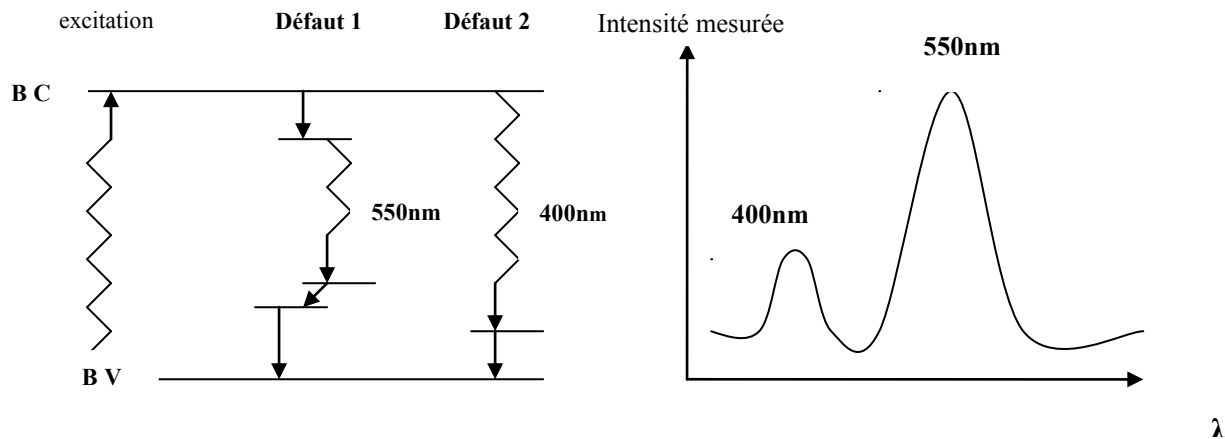


Figure III.4. Schéma du principe de la photoluminescence

III.2.2.2. Dispositif expérimental

Dans ce travail nous avons utilisé le spectromètre Perkin Elmer LS50B disponible au CRNA.

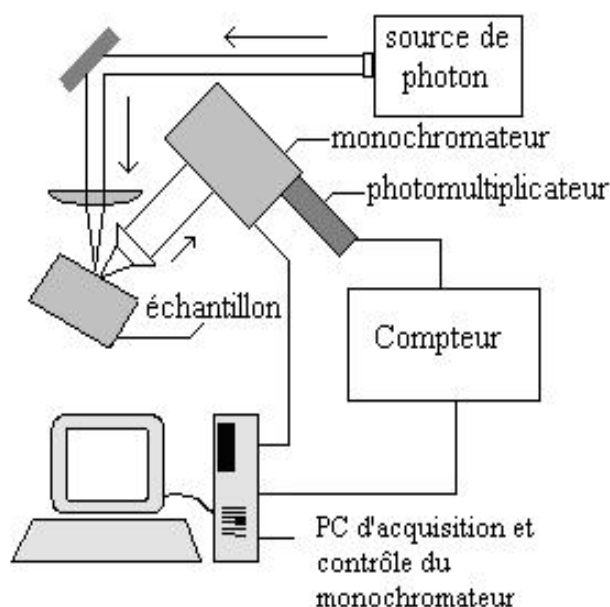


Figure III.5. Schéma représentant le dispositif expérimental utilisé pour les mesures de photoluminescence

Le dispositif expérimental contient :

1. une source lumineuse (laser Argon ou lampe Hg) permettant de produire un faisceau lumineux, qui provoque l'excitation du matériau avec une longueur d'onde appropriée,
2. Le monochromateur,
3. PC pour l'acquisition.

Chapitre IV : Résultats Expérimentaux

L'alumine qui fut l'objet de cette étude a été irradiée aux neutrons du réacteur. Les irradiations ont été effectuées auprès du réacteur de recherche NUR de Draria à 40 °C et à différentes fluences de neutrons rapides (4.4×10^{16} ; 1.1×10^{17} ; 7.5×10^{17} ; 9.1×10^{17} ; 1.41×10^{18} n. cm⁻²). L'erreur sur la fluence a été estimée à 15 %.

Après irradiation les échantillons ont été caractérisés en utilisant les mesures optiques (absorption optique et photoluminescence). Toutes les mesures sur la densité optique ont été effectuées avec une erreur de 1%.

IV.1 Absorption optique

Les spectres d'absorptions obtenus après irradiation à différentes fluences sont représentés dans la figure IV.1. La figure montre également le spectre d'un échantillon non irradié. Ce dernier ne montre aucune bande d'absorption indiquant une bonne transparence de l'alumine étudiée.

Le spectre correspondant à l'échantillon irradié avec une fluence de neutrons rapides de 4.4×10^{16} n. cm⁻² montre deux bandes d'absorption centrées à 200 nm et à 256 nm. D'après les travaux antérieurs ces bandes sont attribuées aux centres F et F⁺ respectivement [85]. Au delà de cette fluence ($> 4.4 \times 10^{16}$ n. cm⁻²) le centre F se sature et d'autres bandes centrées aux 303 nm, 356 nm et 450 nm apparaissent. Les bandes 356 nm et 450 nm sont attribuées aux centres F₂⁺ et F₂²⁺ respectivement. Par contre, la bande 303 nm peut être attribuée au centre F₂, à l'interstice Al⁺, ou bien à la contribution des deux. (Voir la discussion dans le paragraphe IV.3).

La concentration N de chaque type de défaut a été calculée en utilisant la formule de Smakula (équ. III.14) [83]. L'indice de réfraction n correspondant à chaque longueur d'onde λ calculé à partir de l'équation de Sellmeier (équ. III.15) [84], la force d'oscillateur f , et la largeur à mi-

hauteur de chaque bande d'absorption W déduite de l'ajustement d'un spectre d'absorption sont reportés dans le tableau IV. 1.

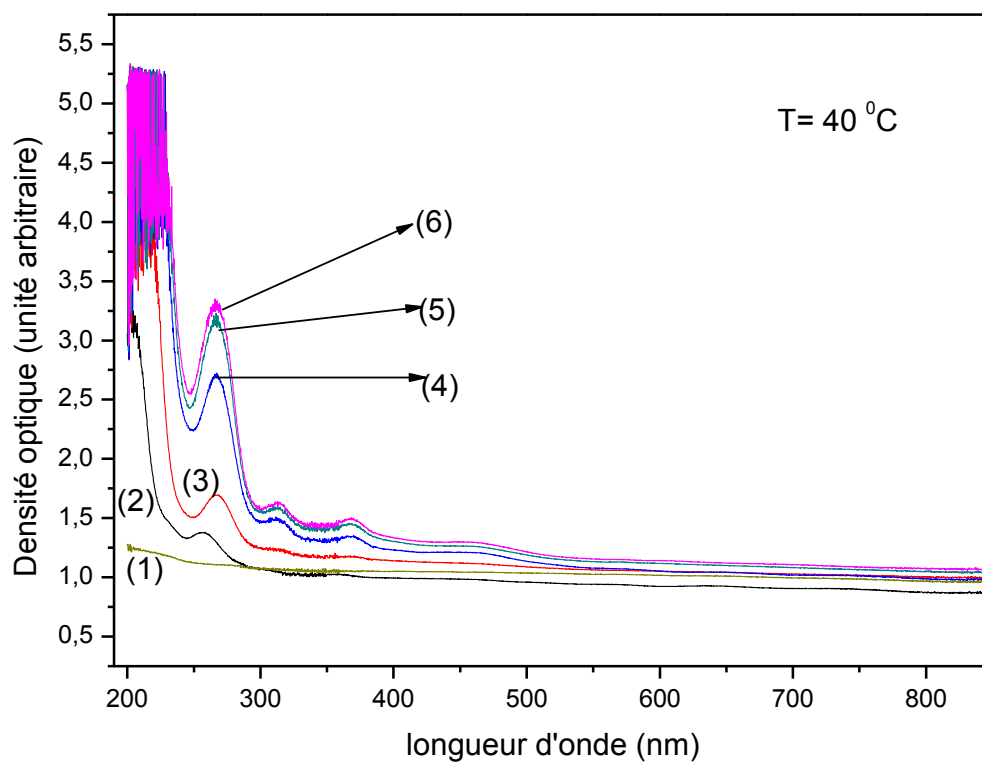


Figure IV.1 : Spectre d'absorption optique de L'Al₂O₃ irradiée aux neutrons du réacteur à différentes fluences. (1) vierge ; (2) 4.4×10^{16} ; (3) 1.1×10^{17} ; (4) 7.5×10^{17} ; (5) 9.1×10^{17} ; (6) 1.41×10^{18} n. cm⁻².

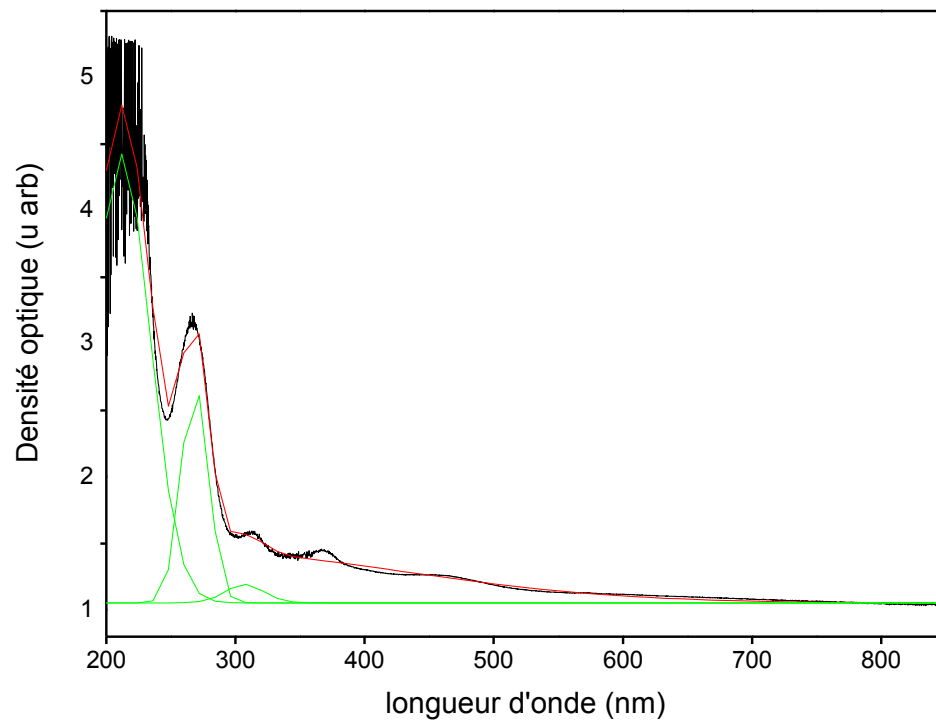


Figure IV.2 : Spectre d'absorption optique de l' Al_2O_3 irradiée aux neutrons du réacteur à la fluence de 7.5×10^{17} avec son ajustement.

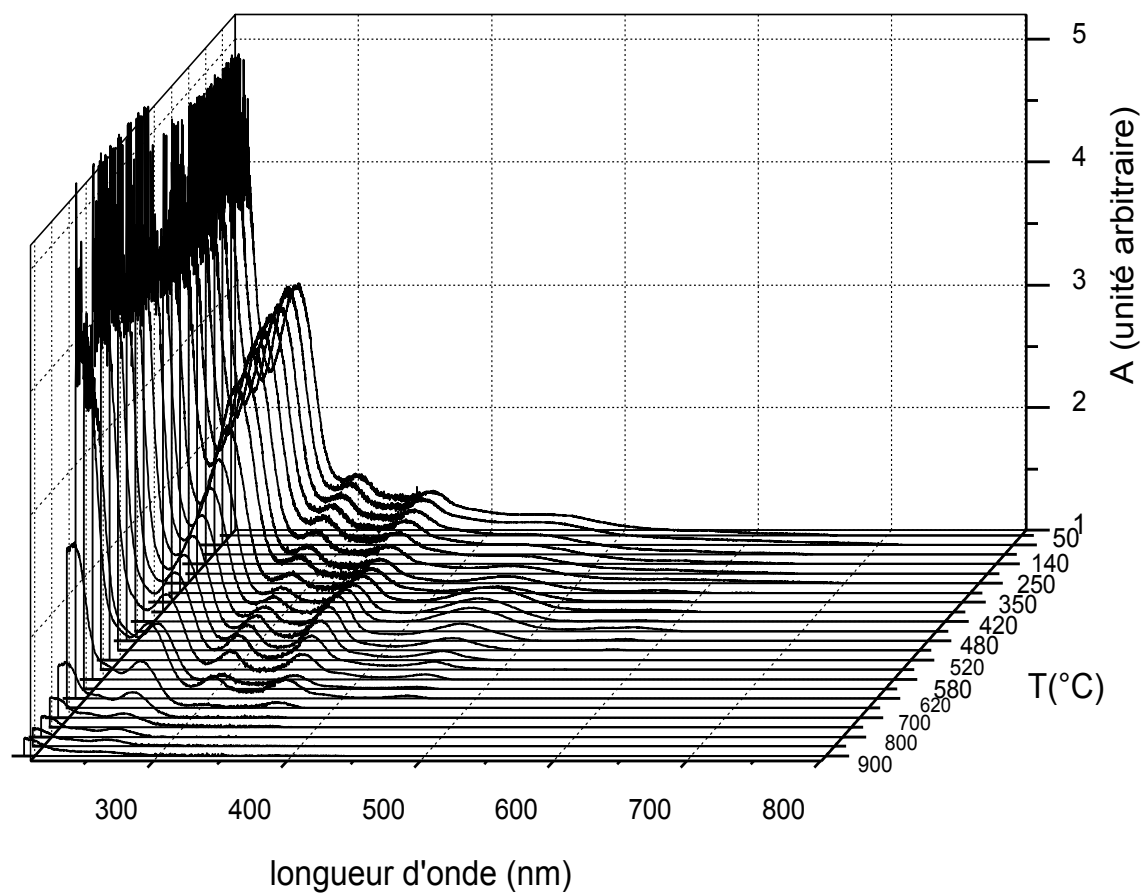


Figure IV.3 : Spectre d'absorption optique de L' Al_2O_3 en 3d en fonction de la température de recuit. Les mesures indiquent que l'absorption est fortement atténuée lorsque T augmente

λ (nm)	200	255	303	356	446
f	1.3	0.66 [86]	1	1	1
n	1.90418	1.84116	1.81369	1.76877	1.841599
W (eV)	0.621	0.572	0.337	0.352	0.548

Tableau IV.1 : les valeurs des paramètres λ , f , n et W utilisés dans la formule de Smakula.

L'évolution de la concentration de chaque type de défaut en fonction de la fluence des neutrons rapides est représentée dans les figures (IV.4, IV.5, IV.6 et IV.7) [87]. Il est clair d'après les figures que la concentration de tous les types de défauts (F , F^+ , F_2 , F_2^+) augmente linéairement en fonction de la fluence dans la gamme 4.4×10^{16} - 10^{18} n.cm⁻². Ceci explique la création de défaut par irradiation en accord avec les travaux menés par T. Mohanty et al [88] sur l'alumine irradiée avec des ions de Ag d'énergie de 190 MeV dans la gamme de fluence de 1×10^{11} à 1×10^{13} ions cm⁻². Ces observations ont révélé une croissance linéaire de la concentration des défauts en fonction de la fluence.

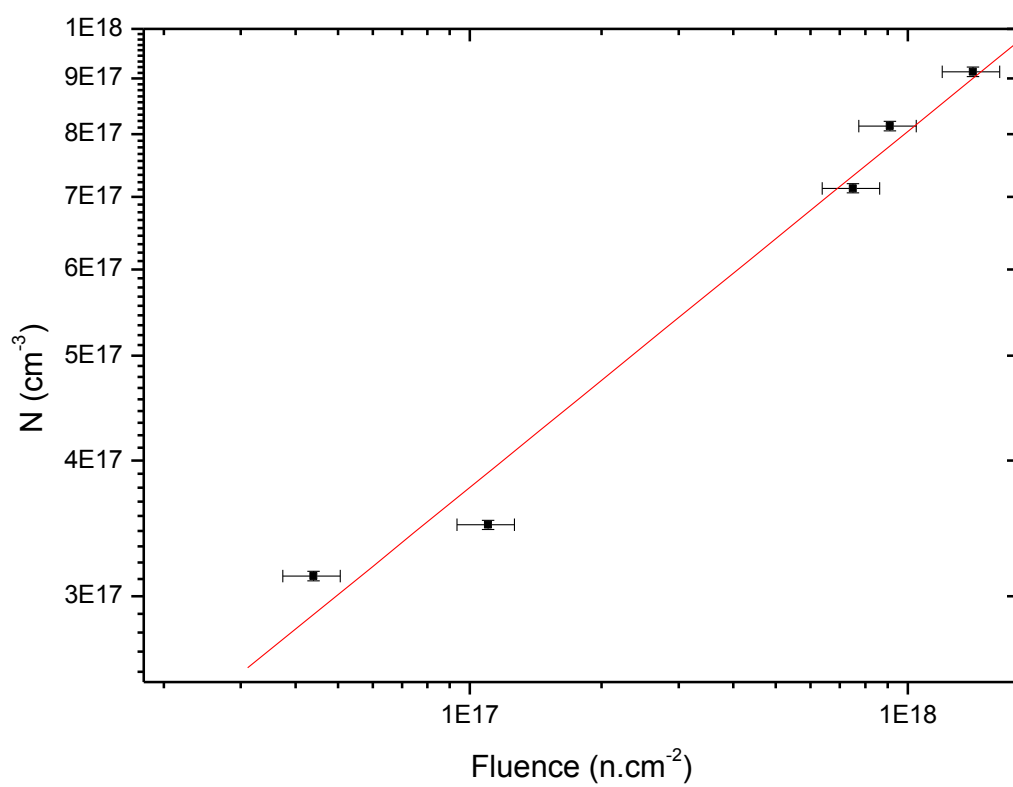


Figure IV.4 : Variation de la concentration de centre F^+ en fonction de la fluence.

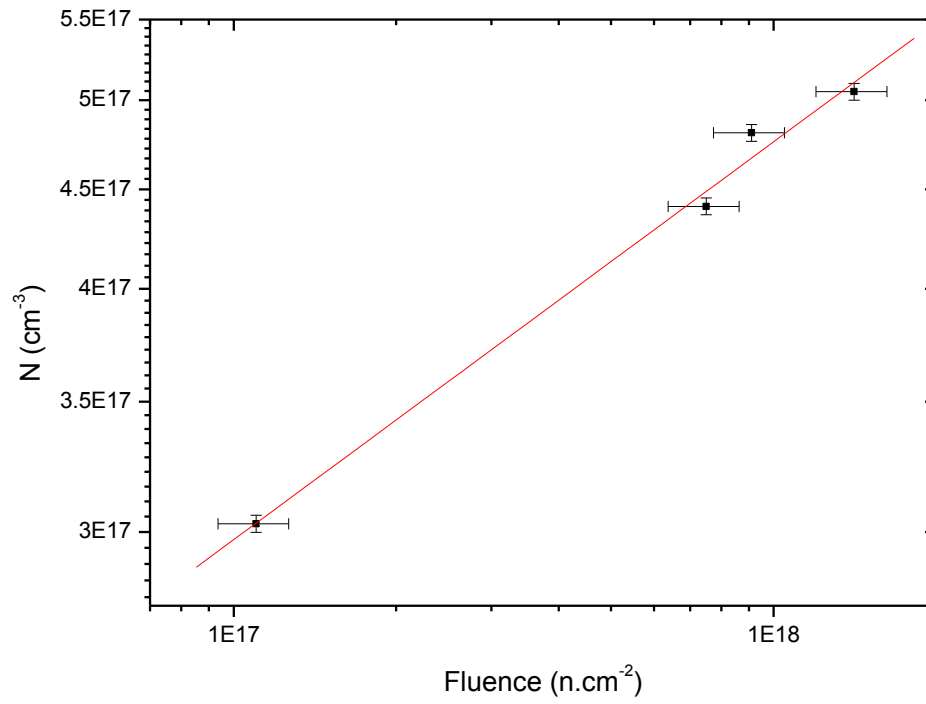


Figure IV.5 : Variation de la concentration de centre F_2 ou de l'interstice Al^+ en fonction de la fluence.

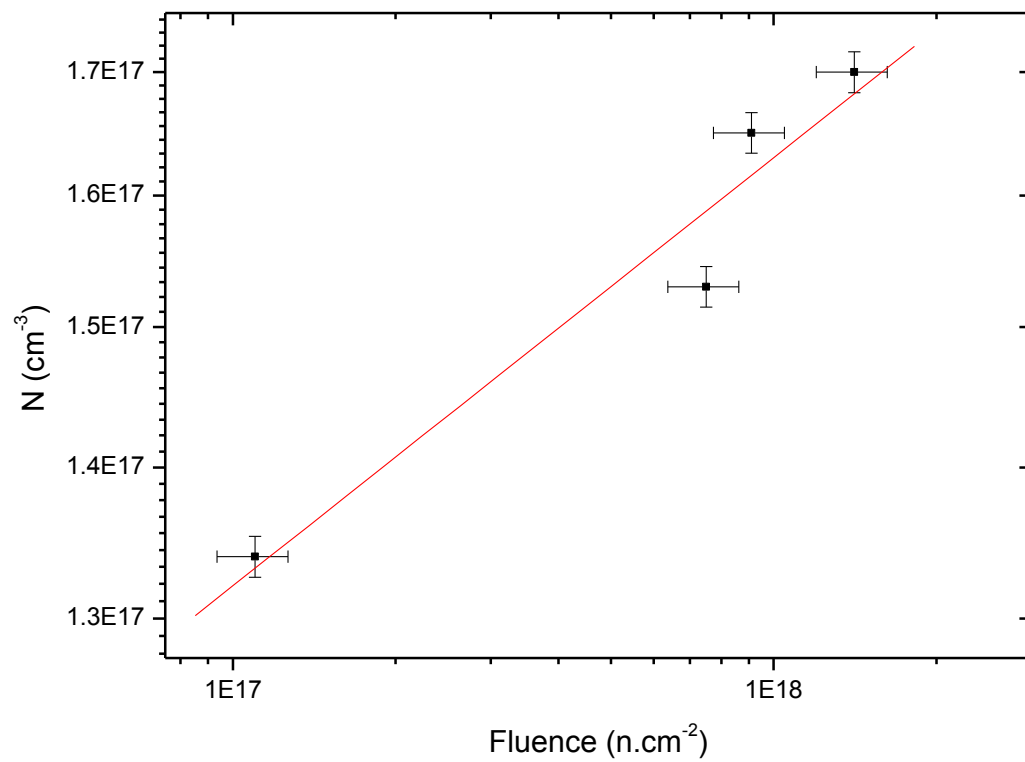


Figure IV.6 : Variation de la concentration de centre F_2^+ en fonction de la fluence.

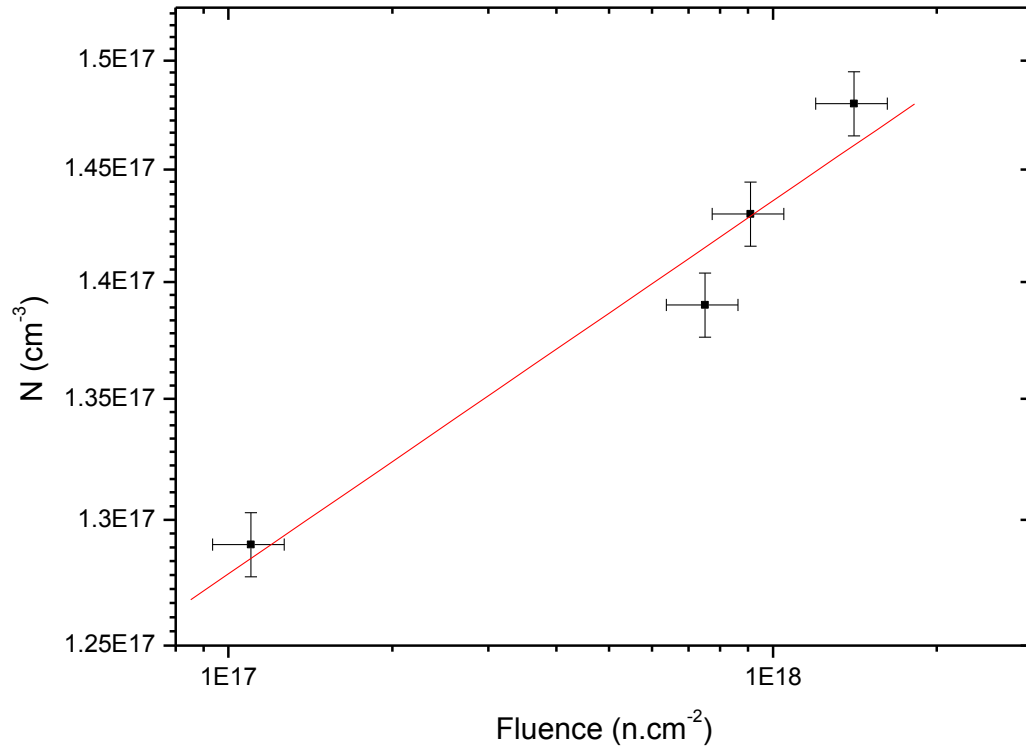


Figure IV.7 : Variation de la concentration de centre F_2^{2+} en fonction de la fluence.

IV.2 Photoluminescence

Le but de cette analyse est de vérifier la sensibilité de cette technique par rapport à l'absorption optique. En effet, l'analyse de l'échantillon irradié avec la fluence de 4.4×10^{16} n. cm⁻² révèle la présence des centres F_2^+ et F_2^{2+} . Par contre on n'a pas pu observer ces défauts en utilisant l'absorption.

L'excitation des défauts responsables de l'absorption à 350 nm (F_2^+) induit une bande d'émission centrée à 380 nm (voir figure IV.8). De même l'excitation de défauts responsables de l'absorption à 450 nm (F_2^{2+}) induit une bande d'émission centrée à 550 nm (voir figure IV.9).

Ceci montre bien que la technique de photoluminescence est plus sensible que la technique de l'absorption optique en accord avec les résultats de Mohanty et al. [65] et de Townsend et al [89].

En effet, la caractérisation par mesures optiques (abs et pl) des défauts induits dans l'alumine après irradiation avec des ions Fe^{2+} d'énergie de 3.8 MeV réalisées par Chen et al (1991) [90] révèlent que les seules bandes apparentes sont celles des centres F et F^+ . Par contre, la photoluminescence confirme la présence des centres F_2 , F_2^+ et F_2^{2+} .

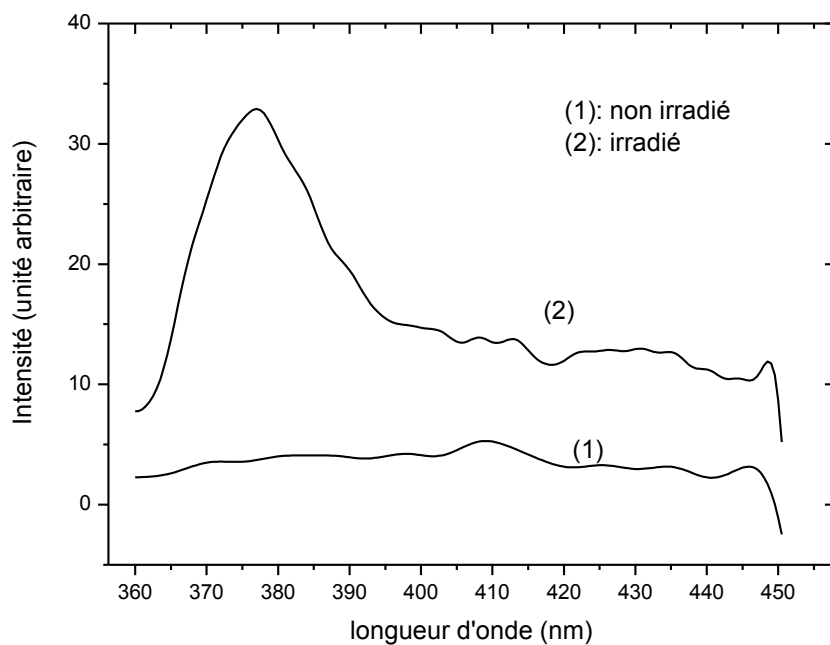


Figure IV.8 : Spectre d'émission après excitation avec un photon de 350 nm de centre F_2^+ à la fluence de $4.4 \times 10^{16} \text{ n. cm}^{-2}$.

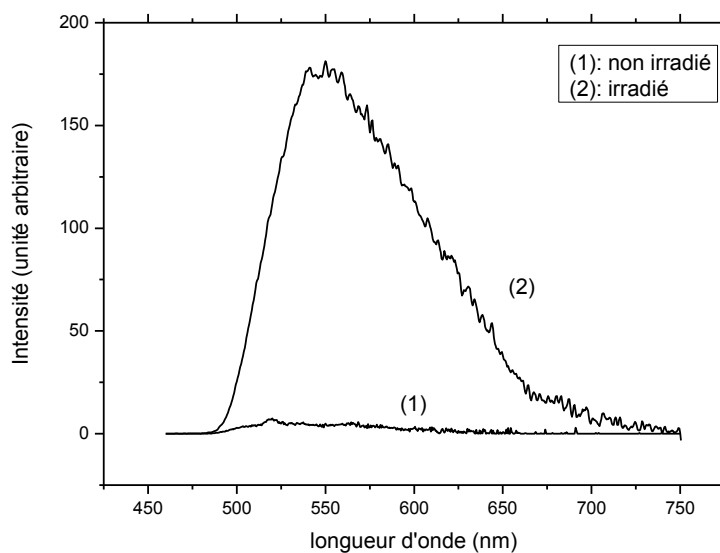


Figure IV.9 : Spectre d'émission après excitation avec un photon de 450 nm de centre F_2^{2+} à la fluence de $4.4 \times 10^{16} \text{ n. cm}^{-2}$.

.IV. 3 Traitement thermique (recuit)

Le traitement thermique a été effectué sur l'échantillon irradié avec une fluence de $9.1 \times 10^{17} \text{ n cm}^{-2}$. L'échantillon a subi un recuit sous air pendant 15 minutes à des températures variant de 50°C à 900°C . Après chaque recuit, l'échantillon est refroidit et analysé à température ambiante. Nous avons suivi l'évolution de la concentration des défauts responsables de chaque bande d'absorption en fonction de la température. Les résultats obtenus sont représentés dans les figures (IV.10, IV.11, IV.12, IV.13).

La figure IV.9 montre la variation de centre F^+ en fonction de la température de recuit. Nous pouvons constater que le processus d'annihilation s'effectue en quatre étapes [91, 92]:

1. entre la température ambiante (25°C) et 350°C : la concentration de centre F^+ décroît doucement en fonction de la température,
2. entre 350°C et 500°C : la concentration de centre F^+ décroît rapidement,
3. entre 500°C et 700°C : nous constatons un point d'inflexion situé à 520°C , au delà de cette valeur, la concentration continue à décroître avec la même pente que l'étape précédente,
4. au delà de 700°C : la concentration décroît doucement avec la température. Il faut signaler que le centre F^+ persiste même après recuit à 900°C .

Durant la première étape (25°C à 350°C) les concentrations des centres F_2^+ (356 nm), F_2^{2+} (450 nm) et les défauts responsables de l'absorption à 303 nm diminuent légèrement en fonction de la température de façon similaire au centre F^+ . Ensuite durant la deuxième étape l'absorption à 303 nm reste constante, par contre, les concentrations des centres F_2^+ (356 nm) et F_2^{2+} (450 nm) augmentent en fonction de la température et présentent un pic aux environs de 450°C . Ensuite durant la troisième étape, (au delà de 700°C) les trois types de défauts diminuent rapidement et les centres disparaissent complètement au delà de 650°C .

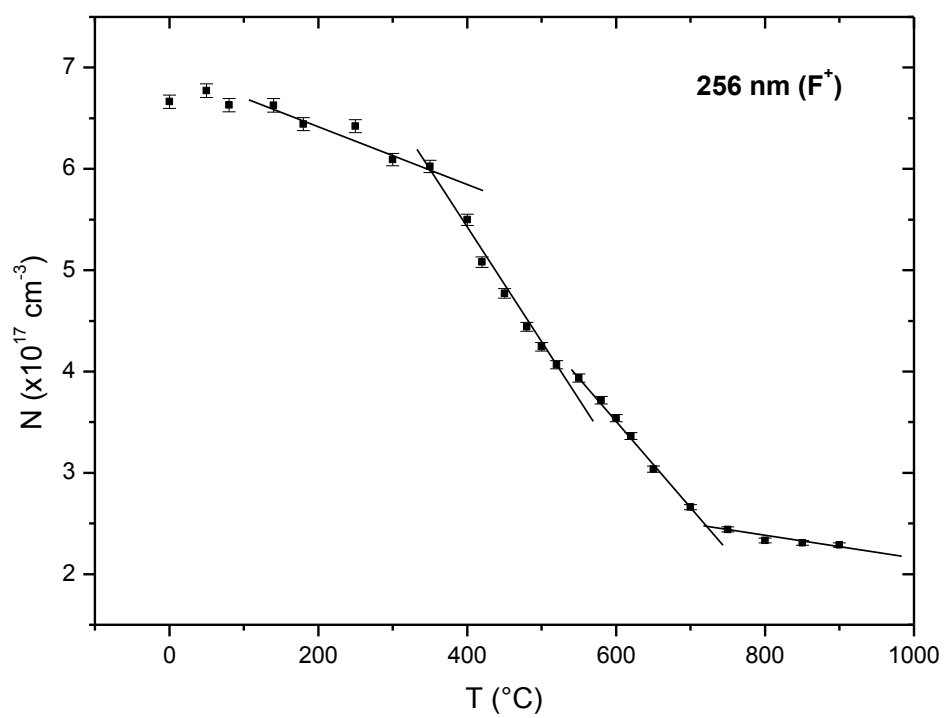


Figure IV.10 : Variation de la concentration de centre F^+ en fonction de la température de recuit.

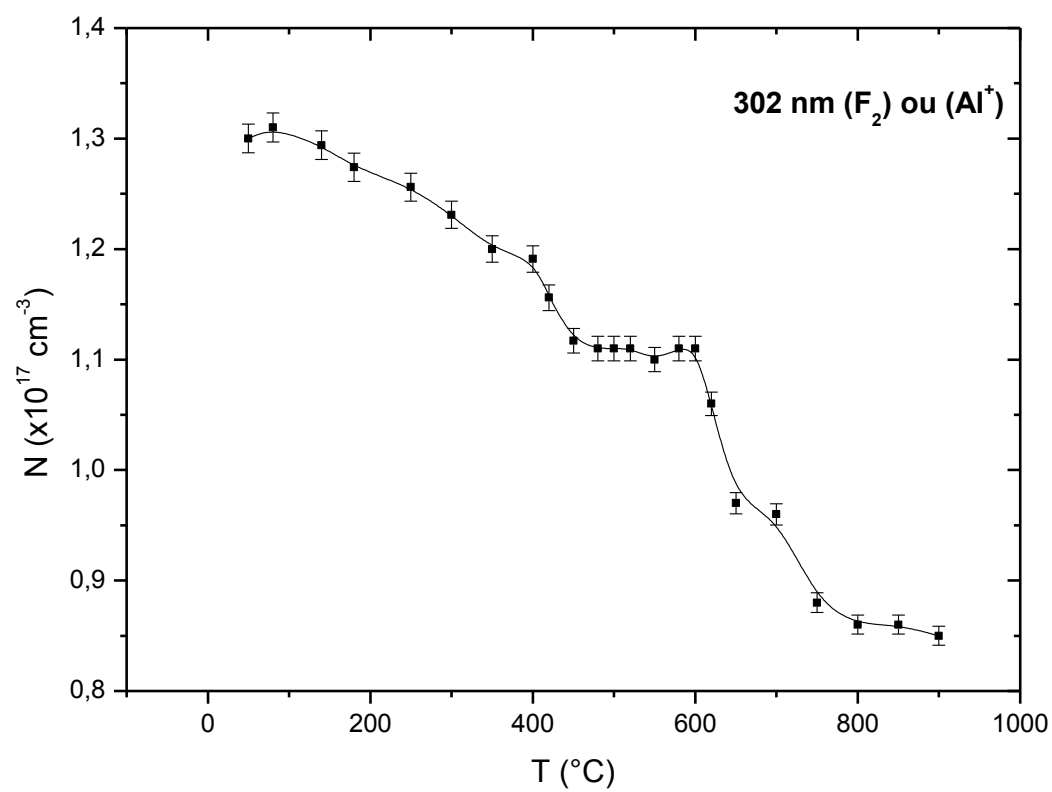


Figure IV.11 : Variation de la concentration de centre F_2 ou de l'interstice Al^+ en fonction de la température de recuit. La ligne continue est pour guider l'oeuil.

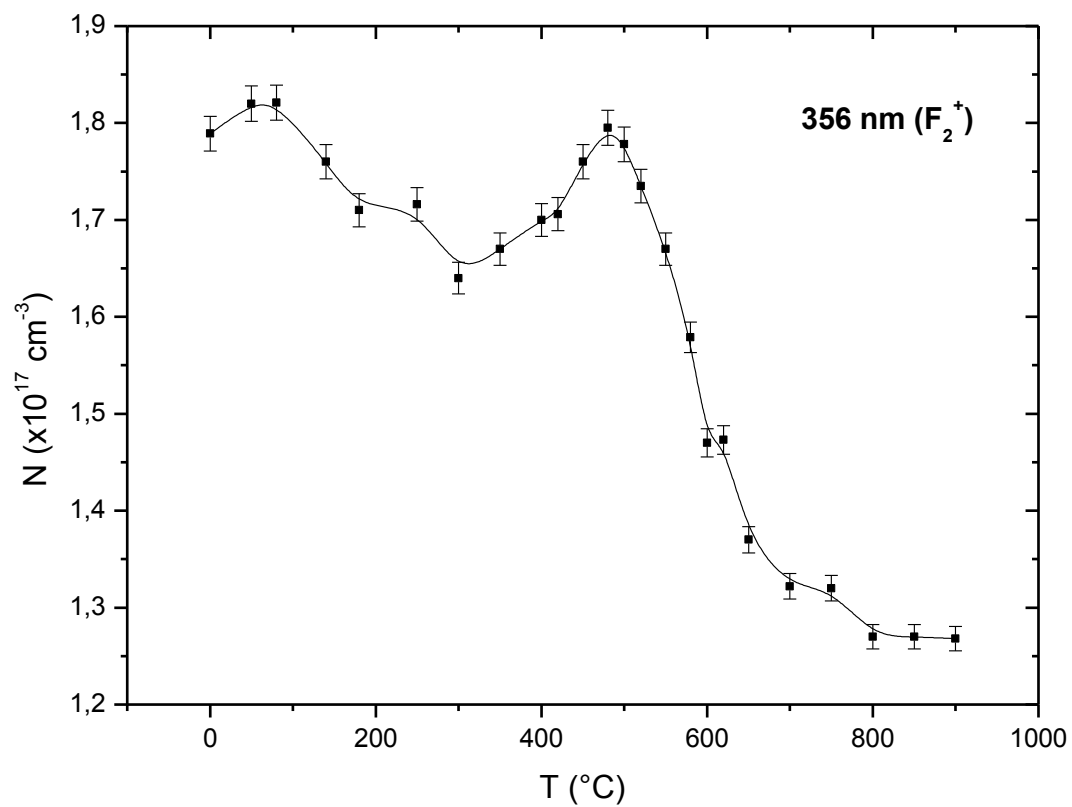


Figure IV.12 : Variation de la concentration de centre F_2^+ en fonction de la température de recuit. La ligne continue est pour guider l'oeil.

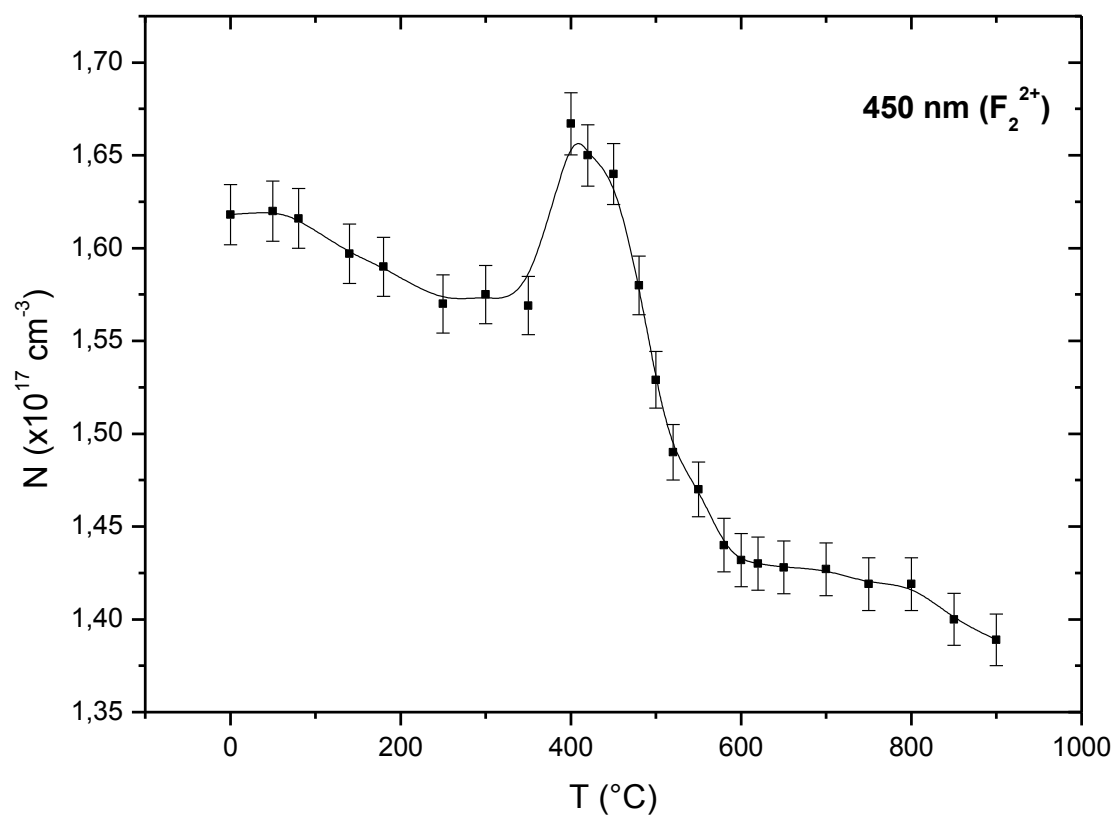


Figure IV.13 : Variation de la concentration de centre F_2^{2+} en fonction de la température de recuit. La ligne continue est pour guider l'oeil.

Les résultats obtenus expliquent clairement que le processus de conversion des centres F et F^+ aux agrégats F_2 , F_2^+ et F_2^{2+} s'effectue dans la gamme de température variant entre 350°C et 500°C.

Par ailleurs, l'irradiation aux neutrons induit des lacunes dans les deux sous réseau d'oxygène et d'aluminium via les collisions élastiques. Par conséquent, les concentrations de ces types de défauts augmentent ou diminuent simultanément en fonction de la fluence ou de la température respectivement. Si on admet que l'absorption à 303 nm est due aux deux types de défauts interstices Al^+ et au centre F_2 , l'allure de recuit de cette bande peut être expliquée de la façon suivante :

De la température ambiante jusqu'à 350°C l'intensité de la bande 303 nm diminue simultanément avec l'intensité du centre F^+ . Ceci est dû probablement à la diminution de la concentration des interstices Al^+ . Durant la deuxième étape on s'attend à ce que la concentration des interstices Al^+ diminue comme celle des centres F^+ , par contre, l'intensité des centres F_2 augmente due à l'agrégation des centres F et F^+ . Par conséquent l'absorption à 303 nm augmente et compense la perte due à la diminution des interstices Al^+ . Ceci explique probablement pourquoi l'absorption à 303 nm reste constante. Ainsi selon nos résultats et tenant compte des résultats de Schaefer et Forster [93] nous suggérons que l'absorption à 303 nm est due à la contribution des centres F_2 et aux interstices Al^+ .

Conclusion

Le présent travail est consacré à l'étude des défauts ponctuels induits dans l'alumine par irradiation aux neutrons du réacteur. Les défauts induits ont été caractérisés en utilisant les mesures optiques, l'absorption optique et la photoluminescence.

L'analyse par la spectrophotométrie UV-visible a révélé des bandes d'absorption centrées à 200 nm, 255 nm, 356 nm et 450 nm. L'évolution linéaire de la concentration des différents types de défauts en fonction de la fluence d'irradiation affirme que la formation de défauts ponctuels dans le cristal est proportionnelle à la fluence. Autrement dit : au fur et à mesure que la fluence augmente, on aura plus de déplacements d'atomes (lacunes) dans les deux sous réseaux d'oxygène et d'aluminium impliquant ainsi une concentration élevée de défauts.

La photoluminescence a montré que la réponse de l'échantillon irradié à $4.4 \cdot 10^{16} \text{ n. cm}^{-2}$ aux excitations avec des photons de 340 nm et 442 nm révèle l'existence de deux bandes d'émission centrées à 380 nm et 550 nm respectivement. Elles sont attribuées aux défauts F_2^+ et F_2^{2+} respectivement. Par contre, on n'a pas pu observer ces types de défauts en utilisant l'absorption optique. Ceci explique que la photoluminescence est plus sensible que la technique de l'absorption optique en accord avec les résultats obtenus précédemment.

L'étude de processus d'annihilation des défauts ponctuels dans la gamme des températures variant de 50 °C à 900 °C s'effectue en quatre étapes. Les résultats montrent bien que la conversion des centres F et F^+ aux agrégats F_2 , F_2^+ et F_2^{2+} s'effectue entre 350 °C et 500 °C.

D'après nos données la conversion est maximale aux environs de 450 °C.

Nous suggérons d'après nos résultats que la bande d'absorption à 303 nm est due à la contribution de centre F_2 et à l'interstice Al^+ .

Il est souhaitable pour la suite de ce travail d'étudier avec plus de détail les processus d'annihilation des centres F et F^+ afin de déterminer les différents modes de recuit et leurs énergies d'activation correspondantes.

Annexe

Mesure de flux relatif

Le flux de neutrons n'étant pas homogène le long d'un élément combustible, nous avons déterminé la distribution du flux le long de la cage centrale. Nous avons utilisé pour cela l'activation neutronique des feuilles de manganèse. Ces feuilles utilisées sont des alliages de manganèse sous forme de fils de longueur d'environ 5 mm.

Le manganèse-55 a une section efficace d'activation de 13.2 barns, une intégrale de résonance de 13.8 barns à 468 keV et une demi-vie de $T_{1/2} = 2.5789$ heure.

Après que les fils sont pesés à l'aide d'une balance de précision, nous les plaçons sur une épée en aluminium sur des positions en alignement de 1 à 7(Figure A.1). On note que les numéros sont indiqués d'en haut vers le bas sur l'épée.

Ces positions sont distantes de 102.5 mm entre elles. Ensuite on a introduit l'épée dans la cage centrale à la place de porte échantillon.

Après irradiation et un temps de décroissance d'environ une heure. Nous avons entamé la mesure de l'activité des différentes feuilles. Nous avons utilisé pour cela la spectrométrie gamma associée à un détecteur (HpGe). Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau A.1 et représentés dans la figure A.2

La variation du nombre d'atomes radioactifs formés pendant l'irradiation d'un fil de masse m est donnée par :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{Nm}{A_m} \sigma_a - \lambda n \quad (\text{A.1})$$

Avec :

- A_m est la masse atomique en gramme,

- σ_a est la section efficace d'activation en (barns),
- ϕ est le flux de neutrons en (n. cm⁻². s⁻¹),
- λ est la constante de décroissance radiative. Elle est exprimée par : $\frac{\log 2}{T_{1/2}}$
- N est le nombre d'Avogadro (6.023x 10²³ mol⁻¹).

Ainsi le nombre d'atomes radioactifs formés à la fin de l'irradiation est :

$$n = \frac{N\sigma_a m}{A_m \lambda} \phi (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (\text{A.2})$$

t_i étant la durée de l'irradiation.

L'activité du fil à la fin de l'irradiation est :

$$A = n\lambda = \frac{N\sigma_a m}{A_m} \phi (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (\text{A.3})$$

Si t_d représente le temps de décroissance entre la fin de l'irradiation et le début de comptage, l'activité au début de comptage sera :

$$A = n\lambda = \frac{N\sigma_a m}{A_m} \phi (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \quad (\text{A.4})$$

Si t_c représente la durée du comptage et ε l'efficacité de la chaîne de mesure, le nombre de coups comptés sera :

$$C = \varepsilon \int_0^{t_c} \frac{N\sigma_a m}{A} \phi (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} e^{-\lambda t} dt \quad (\text{A.5})$$

Ainsi :

$$C = \varepsilon \frac{N\sigma_a m}{A_m} \phi (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \frac{1 - e^{-\lambda t_c}}{\lambda} \quad (\text{A.6})$$

On calculera la valeur corrigée du comptage C_c en tenant compte de :

- temps de décroissance (durée t_d)
- temps de décroissance pendant le comptage (durée t_c)

- temps mort de la chaîne (300 s)
- masse de fil de manganèse utilisée.

$$C_c = \frac{C}{m} e^{\lambda t_d} \left(\frac{\lambda}{1 - e^{-\lambda t_c}} \right) \frac{t_c}{t_l} \quad (\text{A.7})$$

$$C_c = \varepsilon \frac{N \sigma_a}{A_m} \varphi \left(1 - e^{-\lambda t_i} \right) \frac{t_c}{t_l} \quad (\text{A.8})$$

$$\varphi = \frac{A_m C_c}{\varepsilon N \sigma_a} \frac{1}{\left(1 - e^{-\lambda t_i} \right)} \frac{t_l}{t_c} = C^{ete} x C_c \frac{t_l}{t_c} \quad (\text{A.9})$$

Les résultats de mesure obtenus sont reportés dans le tableau A.1 et représentés dans la figure A.2. Les mesures effectuées montrent que le flux maximal est obtenu à la position numéro (4) sur l'épée. Celle-ci correspond à la position la plus haute de la capsule sur le porte échantillon. Le flux dans d'autres positions est ainsi déduit de flux maximal multiplié par les coefficients de correction ($\varphi_i/\varphi_{\max}$)

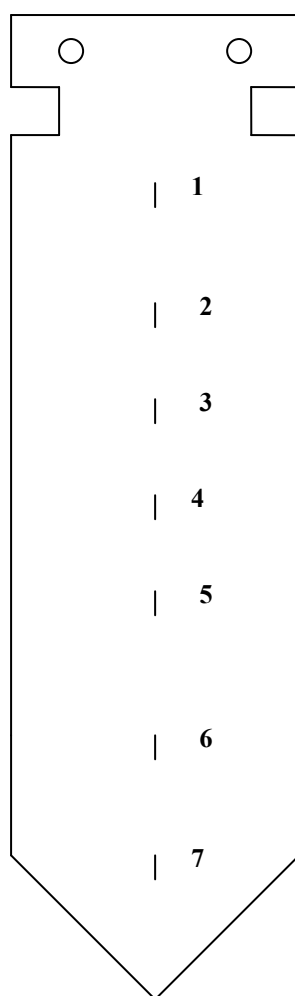


Figure A.1 : épée en aluminium portant les feuilles d'activation de magnésium.

pos	détec	Masse (mg)	t_d (h)	t_l (s)	t_c (s)	Aire du pic	t_c/t_l	ϕ_i	$\phi_i/\phi_{\max}$
1	1	19.94	2.7	300	276	98432+/- 460	0.92	Cx11086.36	0.238
2	2	16.98	3.1666	300	258	163213+/- 637	0.86	Cx26202.73	0.563
3	3	16.36	3.2666	300	243	214538+/- 739	0.81	Cx38988.51	0.838
4	4	16.60	3.3833	300	234	242922+/- 803	0.78	Cx46537.71	1
5	5	15.50	3.4833	300	240	225660+/- 735	0.8	Cx46371.01	0.996
6	6	18.70	3.5833	300	247	201728+/- 711	0.82	Cx34434.77	0.793
7	7	17.60	3.7333	300	277	94328+/- 480	0.92	Cx15875.80	0.341

Tableau A.1 : Valeurs du flux relatif de neutrons obtenues au niveau de la cage centrale le long de l'élément combustible.

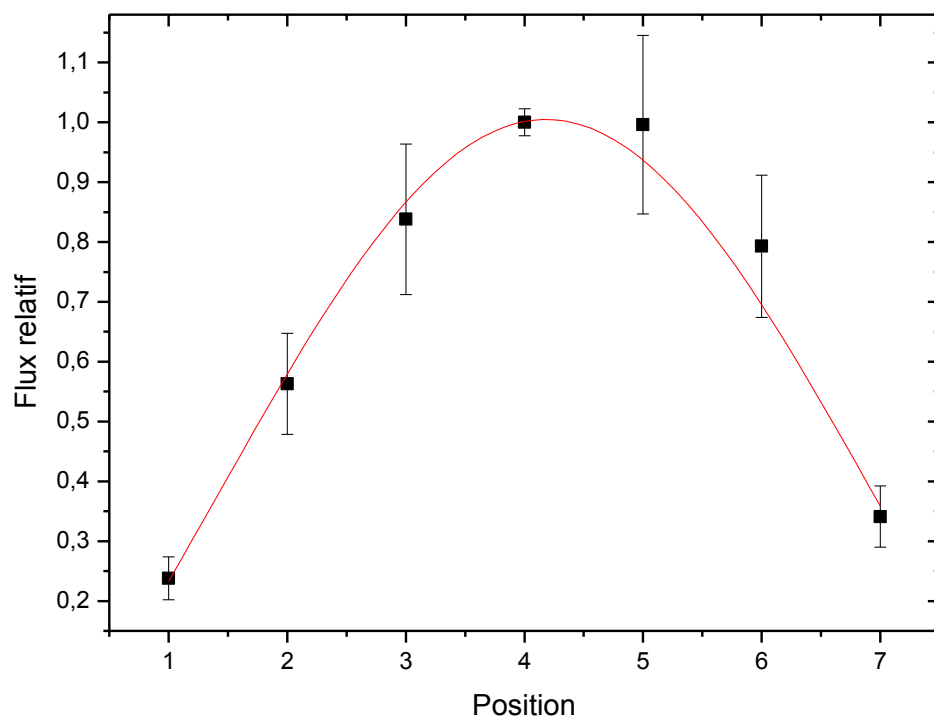


Figure A.1 : distribution de flux relatif dans la cage centrale du réacteur NUR.

Références

- [1] Neutron Fluence Measurements. Technical Reports Series N 107, IAEA, Vienna (1970).
- [2] S. J. Zinkle. C. Kinoshita. In: Defect Production in Ceramics. Journal of Nuclear Materials. 251 (1997) 200-217.
- [3] G. H. Kinchin and R. S. Pease, Rep. Progr. Phys. 18, (1955) 1.
- [4] E. Rutherford, E. Phil. Mag. 21 (1911) 669.
- [5] A. Gentils, thèse de doctorat. *Effets d'irradiation et comportement des produits de fission dans la zircone et le spinelle.*, Université de Paris XI Orsay , France N 7323 (2003)
- [6] N. Khalfaoui, thèse de doctorat. *Etudes des défauts surfaciques et volumiques induits par les ions lourds dans les isolants.* Université de CAEN/ Basse Normandie, France (2003).
- [7] J. Biersack, L. Haggmark, Nucl. Instr. and Meth. 174 (1980) 257.
- [8] R. L. Fleicher, P.B. Price, R.M, Walker, J. Appl. Phys. 36, (1965) 3645
- [9] F. Desauer, Z. Physik 38, 12, (1923)
- [10] N. Itoh, Radiat. Eff. and Def, in Solids 110 (1989) 19
- [11] K. Schwartz, C. Tautmann, R. Neumann, Nucl. Instr. And Meth . B 209 (2003)73-84 .
- [12] N. Itoh, Nucl. Instr and Meth. B 116, (1996) 33
- [13] V.A. Skuratov, S.J. Zinkle, A.E. Efimov, K. Havancsak. Nucl. Instr and Meth. B 203 (2003) 136-140.
- [14] R.L. Fleicher, P.B. Price, R.M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids, Principe and Applications.* (University of California Press, Berkley (1975).
- [15] D. Lesueur, A. Dunlop, Radiat. Eff. And Def. In Solids 126 (1993) 163.
- [16] R. L Fleisher., P. B. Price., R. M. Walker. *Nuclear Tracks in Solids.* Berkeley: University of California Press, (1979).
- [17] F. Desauer, Z. Physik 38, (1923) 12
- [18] F. Seitz, J.S. Koehler, Solid State Physics 2, (1956) 305

- [19] Marc Boccanfuso. Thèse de doctorat, Relation entre le gonflement et la création de défauts dans les cristaux ioniques irradiés par les ions lourds rapides. Université de Cean/Basse Normandie. France (2001)
- [20] Ch. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural. J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois. E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. : Condens. Matter 5, 4573, (1993)
- [21] M.P.R. Waligorski, R. N. Hamm, R. Katz, Nucl, Track Radiat, Meas, 11 (1986) 309.
- [22] Z.G. Wang, C. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. : Condens. Mater. 6 (1994) 6733, and errata J. Phys. : codens. Mater. 7 (1995) 2525.
- [23] I.A. Baronov, Yu. V. Martinenko, S.O. Tsepelevitch, Yu. N. Yavlinskii, Sov. Phys. Usp. 31, (1988) 1015
- [24] Ch. B. Luschchik, Excitons, eds. E. L. Rashba and M.D. Sturge (North Holland, Amsterdam, 1982) p.505.
- [25] K. Schwartz. RAU Scientific Reports and Solid State Electronics and Technologies, 1996, Vol.1, 3-14.
- [26] A. Perez, , E. Balanzat and J. Dural, Phys. Rev. B 41(1990), 3943-3950.
- [27] K. Schwartz, Nucl. Instr and Meth. B 107, (1996)128-132.
- [28] A. Lushchik, M. Kirm, Ch. Luscchik, I. Martinson, G. Zimmerer. Journal of luminescence 87-89 (2000) 232-234.
- [29] A. Lushchik, Ch. Lushchik, M. Kirm, V. Nagirnyi, F. Savikhin, E. Vasil'chenko. Nucl. Instr and Meth in Physics Research B 250 (2006) 330-336.
- [30] N Itoh, D.M. Duffy, S. Khakshouri and A.M. Stoneham. J. Phys. : Condens. Matter 21 (2009) 474205 (14pp).

- [31] Ch. Lushchik, S. Dolgov, T. Karner, H. Kaambre, A. Lushchik, F. Savikhin, Solid State Detectors of Ionising Radiation (Ekaterinburg: Ural State Technical University) Russia (1998) 13.
- [32]. Abdolrahman Razani . in: [Surveys in Mathematics and its Applications, ISSN 1842-6298 Volume 2 (2007), 59.89.
- [33] M. Short, J.J. Quirk, J. Fluid Mech. 339 (1979), 89-119. (98c:80008)
- [34] L. Davison, R. A. Graham ; Phys. Rep. 55 (4) (1979) 255
- [35] A. I. Ryazanov, S. A. Pavlov, M. Kiritani , Mater. Sci. Enginn. A350 (2003)245-250.
- [36] A. I. Ryazanov, S. A. Pavlov, M. Kiritani, Radiat. Effect Dafects Solids 175 (2001)335
- [37] A. I. Ryazanov, V. V. Dremov, M. Kiritani, Radiat. Effect Dafects Solids 175 (2001)426.
- [38] V. A. Skuratov, S. J. Zinkle, A. E. Efimov, K. Havancsak, Surface and Coatings Technology 196 (2005)56-62 .
- [39] H. Abe. S. Yamamoto. H. Naramoto. Nucl. Instr. and Meth. Phys. Rev. b 127-128 (1997) 170.
- [40] S.J. Zinkle. G. P. Pells. J. Nucl. Mater. 253 (1998) 120.
- [41] Y. Katano. T. Nakazawa. D. Yamaki. T. Aruga. K. Noda. J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1842.
- [42] N. Sasajima. T. Matsui. S. Furuno. K. Hojou. H. Otsu. Nucl. Instr and Meth. Phys. Rev. B 148 (1999) 745.
- [43] Dong Zu Xie. De-Zhang Zhu. De-xin Cao. Jian-quing Cao. Hao-chang Pan. Hong-jie Xu. Nucl. Instr and Meth. Phys. Res. B 149 (1999) 136.
- [44] G. Szenes. J. Nucl. Mater. 336 (2005) 81.

- [45] B.R. Namozov, M.E. Fominich, and R. I. Zakharchenya. Physics of the Solid State. Vol 40, N⁰ 5.
- [46] J. Garcia-Guinea, J. Rubio, V. Correcher, f.J. Valle-Fuentes, Rad. Measur. 33 (2001) 653.
- [47] T. Tanabe, M. Fujiwara, K. Miyazaki, j. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 1344.
- [48] R.W.G. Wyckoff, Crystal Structures, 2nd ed, ; Wiley, new york, 1964
- [49] Fiche JCPDS-ICDD n⁰ 42-1468
- [50] B. Canut. A. Benyagoub, G. Marest. A. Meftah. N. Moncoffre. SMM. Ramos, F. Studer. P. Thevenard. M. Toulemonde. Phys. Rev. B 51 (1995) 12194.
- [51] B Canut, SMM Ramos, P, Thevenard, N Moncoffre, A, Benyagoub, G Marest A Meftah M Toulemonde and F Studer Nucl Instr and Meth B 80/81 1114-1118 (1993).
- [52] SMM. Ramos. N. Bonardi, B. Canut, S. Della-Negra, Phys. Rev. B 57 (1998) 189.
- [53] SMM. Ramos. N. Bonardi, B. Canut, S. Bouffard. Nucl. Instr and Meth. B 143 (1998) 319.
- [54] R. Brenier. B. Canut. S.M.M. Ramos. P. Thevenard. Nucl. Instr and Meth. B 90 (1994) 339.
- [55] Canut. B, Ramos. S.M.M, . 1998. Radiat. Eff. Def. Solids 145, 1-27.

- [56] A. Kabir, A. Meftah, J.P. Stoquert, M. Toulemonde, I. Monnet. Nuclear Instr and Meth. B 266 (2008) 2976-2980.
- [57] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu, Y. Kazumata, Nucl. Instr and Meth. B 166-167 (2000) 913-919.
- [58] Metting Report, *Colour centres in Al₂O₃ and Their application to Fast neutron dosimetry*. Radiat.phys. chem.. vol.22 N 1053-1056, 1983.
- [59] GW Arnold WD Compton Phys Rev Lett 4 (1960) 66
- [60] P Levy Phys Rev 123 (1961) 1226
- [61] Yongjun Dong, Xu jun, Guoqing Zhou, Fenglian, Su, Liangbi, Su, Hongjun Li, Jiliang, Si, Xiaobo qian, Xiaoqing Li, Jun Shen, Mater, Lett. 61 (2007) 2606-2608.
- [62] K H Lee JH Crawford jr Phys Rev B 15 (1977) 4065
- [63] KS Jheeta, D.C.Jain, Ravi Kumar, K.B. Garg, Solid State Comm. 144 (2007) 460-465.
- [64] V. N. Mkhov, A. Lushchik, Ch. B. Lushchik, M. Kirm. E. Vasil'chenko, S. Vielhauer, V. V. Harutunyan, E. Aleksanhan, Nucl. Instr and Meth. B 266 (2008) 2949-2952
- [65] T. Mohanty, N. C. Mishra, F. Singh, S. V. Bhat, D. Kanjilal, Radiat. Meas. 36 (2003) 723-727.
- [66]P.W. Levy GJ Dienes, *Report of Bristol Conference on defects in Crystalline Solids*, The Physical Society, London 1954, P 256
- [67] M Okada, K Atobe, M Nakagawa. Nucl. Instr and Meth B 226 (2004) 369-375
- [68] Y. Chen, M.M. Abraham.D.F. Pedraza, Nucl. Instr and Meth. B 59/60 (1991). 1163-1166.
- [69] A. Kh. Islamov, E. M. Ibragimova, I. Nuritdinov, J. Nucl. Mater. 362 (2007) 222.
- [70] E.D. Aluker. V.V. Gavrilov. S.A. Chernov. Phys. Status Solidi B 171 (1992) 283.
- [71] M G Springis J A Valbis Phys Status Solidi B 123 (1984) 335.

- [72] Song Yin, Xie er-quig, Zhang Chong-hong, Wang Zhi-guang, Zhou Li-hong, Ma Yi-Zhong, Yao Cun-feng, Zang Hang, Liu Chun-bao, Sheng Yan-bin, Gou jie. Nucl. Instr and Meth. b 266 (2003) 2998-3003.
- [73] G.P. Pells, J. Am. Ceram. Soc. 77 (1994) 368.
- [74] K. atobe. N. Nishimoto. M. Nakagawa. Phys. Status Solidi A89 (1985) 155.
- [75] J.M. Bunch. F.W. Clinard Jr., J. Am. Ceram. Soc. 57 (1974) 279.
- [76] B. Jeffries. G.P. Summers. J.H. Crawford Jr., J. appl. Phys 51 (1980) 3984.
- [77] K. Atobe. M. Nakagawa. Cryst. Latt. Def. Amorph. Mater 17 (1987) 229.
- [78] D Bruce. Evans, Journal of Nuclear Materials 219 (1995) 202-223.
- [79] M. Ghamnia, C, Jardin, M. Bouslama. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 133 (2003) 55-63.
- [80] Song Yin, Xie Er-qing, Zhang Chong, wang Zhi-guang, Zhou Li-hong, Ma Yi-zhong, Yao Cun-feng, Zang Hang, Liu Chun-bao, Sheng Yan-bin, Gou Jie. Nucl. Instr and meth. B 266 (2008) 2998-3001.
- [81] J.C. Kemp and V.I. Neely. Phys. Rev. 132, 215 (1963); Bull, Am, Phys. Soc 8, (1963) 484
- [82] R. F. Wood and T.M. Wilson, Solid State Communication, V 16, (1975), 545-548.
- [83] A. Smacula. Zeits. Phys. 59. (1930) 603.
- [84] L.M. Belyaev, in: Ruby and Sapphire, Amerind Published LTD, New York, 1982, P.4.
- [85] M. Okada, K. Atobe, M. Nakagawa,. Nucl Inst and Meth. B 226 (2004) 369-375.
- [86] W.B. Fowler (Ed.). *Physics of Color Centers*, Academic, New York, 1968, chaps. 2 and 6.
- [87] T. Benyahia, M. Izerrouken, *Centres colorés induits dans l'alumine monocristallin irradié au réacteur*, conférence nationale sur les rayonnements et leur applications, USTHB du 26 au 28/05/2009.

- [88] T. Mohanty, N. C. Mishra, F. Singh, U. Tiwari, D. Kanjilal. Nuc Instr and Meth. B 212 (2003) 179-183.
- [89] P. D. Townsend, P.j. Chandler, L. Zhang, *Optic Effects of Ion Implantation*. Cambridge University Press, 1994.
- [90] Chen, y. Abraham, M.M and Pedraza, D.F. (1991) Nucl. Inst. Methods, B 59/60, 1163.
- [91] M. Izerrouken, T. Benyahia, *Absorption and photoluminescence study of Al_2O_3 single crystal irradiated with fast neutrons*. 15th international conference on radiation effects in insulators REI-15, Padova, Italie du 31 Août au 4 Septembre 2009.
- [92] M. Izerrouken, T. Benyahia, Nucl. Instr and Meth. B in Press.
- [93] H. E. Schaefer, M. Foster, Materials Science and Engineering, a 109 (1989) 161.