



**HAL**  
open science

## Tenue sous irradiation de multicouches $\text{Ni}_x\text{C}_{1-x}/\text{Ti}$

K. N'Guy, A. Menelle, P. Gergaud, F. Samuel, K. Al Usta

► **To cite this version:**

K. N'Guy, A. Menelle, P. Gergaud, F. Samuel, K. Al Usta. Tenue sous irradiation de multicouches  $\text{Ni}_x\text{C}_{1-x}/\text{Ti}$ . Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C7), pp.C7-183-C7-188. 10.1051/jp4:1996723 . jpa-00254511

**HAL Id: jpa-00254511**

**<https://hal.science/jpa-00254511>**

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.

## Tenue sous irradiation de multicouches $\text{Ni}_x\text{C}_{1-x}/\text{Ti}$

K. N'Guy, A. Menelle, P. Gergaud\*, F. Samuel\*\* et K. Al Usta\*\*

*Laboratoire Léon Brillouin, CE Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

*\* MATOP, Faculté des Sciences de Saint Jérôme, 13397 Marseille cedex, France*

*\*\* Compagnie Industrielle des Lasers, Route de Nozay, BP. 27, 91460 Marcoussis, France*

**Résumé :** Nous présentons ici les résultats de l'étude du vieillissement sous irradiation aux neutrons thermiques de multicouches NiC/Ti utilisées dans la fabrication des supermirrors pour guides de neutrons. Nous montrons que le titane subit, sous irradiation, un changement de phase avec ou sans formation d'hydrure. De plus, les contraintes dans le nickel varient en fonction des taux d'irradiation.

### 1. INTRODUCTION

Le développement de la physique neutronique nécessite des dispositifs d'optique neutronique de haute qualité, et en particulier des guides de neutrons très performants comme les guides à revêtement supermiroir. Un supermiroir est un empilement aperiodique de matériaux alternativement réflecteur (ici  $\text{Ni}_x\text{C}_{1-x}$ ) et espaceur (ici Ti) déposé sur un substrat de verre. Ces systèmes étant soumis aux radiations neutroniques, nous nous intéressons au vieillissement de ces multicouches sous irradiation aux neutrons. D'une part, leurs propriétés optiques et structurales sont étudiées afin d'estimer la durée de vie des guides, notamment dans la partie proche du coeur du réacteur où les couches sont soumises à une très forte irradiation. Les dépôts ont été caractérisés avant et après irradiation par réflectivité de neutrons et diffraction de rayons X. D'autre part, les contraintes internes sous irradiation ont également été déterminées afin de connaître la stabilité mécanique des couches.

### 2. CHANGEMENT DE PHASE DU TITANE.

#### 2. 1. ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis).

Une première série de multicouches NiC/Ti pour miroirs de neutrons déposées sur Si et préparées à la Faculté de Saint-Jérôme à Marseille a déjà été étudiée antérieurement. Les travaux réalisés par Bénédicte Ballot [1-2] ont montré une incohérence dans le comportement sous irradiation de ces systèmes. Pour les faibles fluences d'irradiation, un changement de phase du Ti initialement hexagonal compact texturé selon l'axe [002] a été mis en évidence par diffraction de rayons X, EXAFS et Microscopie Electronique en Transmission Haute Résolution. Cependant, ce phénomène n'est pas apparu pour la fluence maximale.

Cette évolution du Ti a été attribuée à la formation d'un composé  $\text{Ti}_y\text{H}_{1-y}$  due à la radiolyse de l'humidité de l'air contenu dans les navettes d'irradiation. Nous avons vérifié cette hypothèse par des expériences d'ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis).

Elles ont été effectuées grâce à l'accélérateur Van de Graaf de 2MV de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires du CE Saclay. Nous avons travaillé en géométrie de réflexion avec un faisceau de  $\text{He}^{4+}$  d'une énergie de 1-2MeV arrivant sur l'échantillon avec une incidence de  $15^\circ$  par rapport à sa surface.

L'angle de détection a été choisi égal à  $30^\circ$ .

Nous avons caractérisé les échantillons suivants (voir tableau 1) :

- l'échantillon de référence non irradié dit SAM210.1,
- l'échantillon SAM209.2 irradié jusqu'à la fluence de  $6 \cdot 10^{19} \text{ n.cm}^{-2}$ , dite OR1/2,
- l'échantillon SAM209.1 irradié jusqu'à la fluence maximale OR1 de  $1.2 \cdot 10^{20} \text{ n.cm}^{-2}$ .

## 2. 2. Résultats des mesures.

Le spectre de l'échantillon de référence présente un pic superficiel d'hydrogène de contamination. Le spectre de l'échantillon irradié OR1/2 présente un spectre plus large et environ 4 fois plus intense que celui de l'échantillon de référence (figure 1a). Ceci traduit la présence d'hydrogène de la surface de l'échantillon jusqu'au substrat. Un profil quantitatif est obtenu après une simulation combinant les spectres de RBS (Rutherford Backscattering) et d'ERDA. Cette simulation montre un gonflement de la multicouche. Les spectres obtenus ci-dessous ont été simulés grâce au code de calcul GABY. Nous avons déterminé la teneur moyenne en hydrogène dans le dépôt, en supposant qu'il se trouve exclusivement dans les couches de titane. Pour l'échantillon de référence, le calcul nous donne un pourcentage atomique de 6%. Dans l'échantillon irradié SAM209.2, cette proportion atteint environ 56%, ce qui correspond à la formation d'un composé  $\text{TiH}_{1.4}$  lors de l'irradiation OR1/2.

Pour une fluence de  $1.2 \cdot 10^{20} \text{ n.cm}^{-2}$ , nous n'avons observé aucune forte augmentation du taux de comptage sur le spectre de l'échantillon irradié par rapport à l'échantillon de référence (figure 1b). Par ailleurs, la simulation ne montre aucun gonflement de la multicouche. Cette absence d'hydrogène dans l'échantillon irradié est en accord avec les résultats obtenus avec d'autres méthodes de caractérisation (réflectométrie, EXAFS) [1-2]. Un tel comportement peut s'expliquer soit par une désorption de l'hydrogène sous irradiation, soit plus vraisemblablement par un conditionnement plus étanche de l'échantillon irradié OR1.

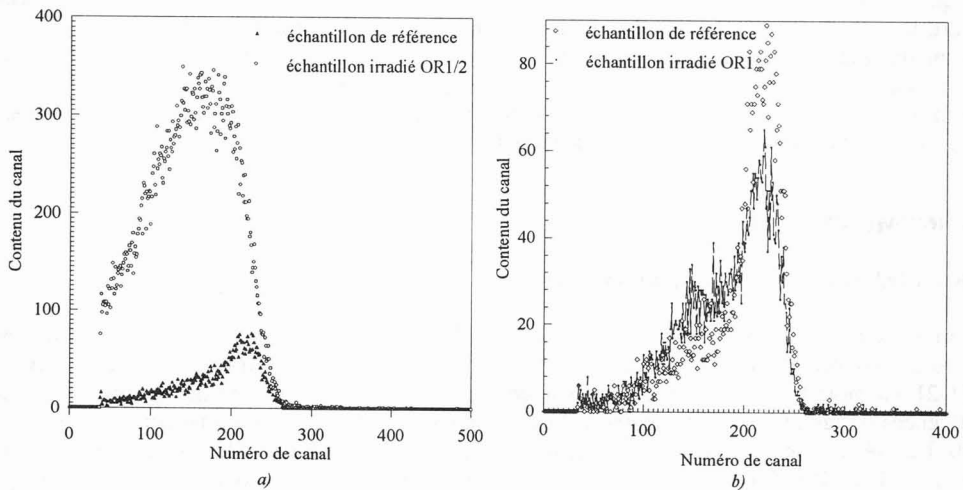


Figure 1 : Spectres d'ERDA des dépôts a) de référence et SAM209.2, b) de référence et SAM209.1.

### 3. NOUVEAUX ECHANTILLONS ET CONTRAINTES.

#### 3. 1. Description des échantillons

Afin de vérifier si les résultats obtenus sur les échantillons décrits précédemment sont reproductibles sur des échantillons élaborés sur la machine de dépôt de la CILAS utilisée pour la fabrication des supermirrors, nous avons élaboré par pulvérisation cathodique magnétron des échantillons de dix bicouches NiC/Ti d'une épaisseur de 100Å chacune, déposées sur des substrats de Si d'une part, et de verre A8866 d'autre part. Ce dernier est un verre ayant les mêmes propriétés mécaniques et neutroniques que le borkron actuellement utilisé dans la fabrication des guides, mais ne contenant pas de zinc. L'absence de Zn dans ce verre en limite considérablement l'activation sous irradiation. Son utilisation nous permet tout d'abord de nous rapprocher du système réel des guides de neutrons mais également d'étudier l'influence du substrat sur la tenue sous irradiation des multicouches. En particulier, l'irradiation du bore contenu dans le verre entraîne la formation de bulles d'hélium susceptibles d'induire une augmentation des contraintes dans le substrat, voire le dépôt, ce qui pourrait occasionner une fissuration du système ou un décollement des couches. C'est pourquoi nous avons cherché à déterminer les contraintes dans ces couches.

Les échantillons ont été irradiés aux neutrons thermiques d'une énergie comprise entre 5 et 80meV dans l'un des puits du réacteur Orphée jusqu'à une fluence dite OR1/4 de  $3 \cdot 10^{19} \text{n.cm}^{-2}$ . Le flux instantané est de  $4 \cdot 10^{13} \text{n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Nous avons conditionné les échantillons dans des navettes étanches sous atmosphère He et en légère surpression afin d'éviter le problème de formation d'hydrogène rencontré précédemment.

Tableau 1 : Récapitulatif des caractéristiques des échantillons.

N° de référence	Substrat	Dépôt	Traitement reçu
SAM210.1	Si	10 bicouches 100Å	--
SAM209.2	Si	10 bicouches 100Å	$6 \cdot 10^{19} \text{n.cm}^{-2}$
SAM209.1	Si	10 bicouches 100Å	$6 \cdot 10^{19} \text{n.cm}^{-2}$
740.2	Si	10 bicouches 100Å	--
H2	Si	10 bicouches 100Å	$3 \cdot 10^{19} \text{n.cm}^{-2}$
300.1	verre	10 bicouches 100Å	--
303.1	verre	10 bicouches 100Å	$3 \cdot 10^{19} \text{n.cm}^{-2}$

#### 3. 2. Réflectivité de neutrons.

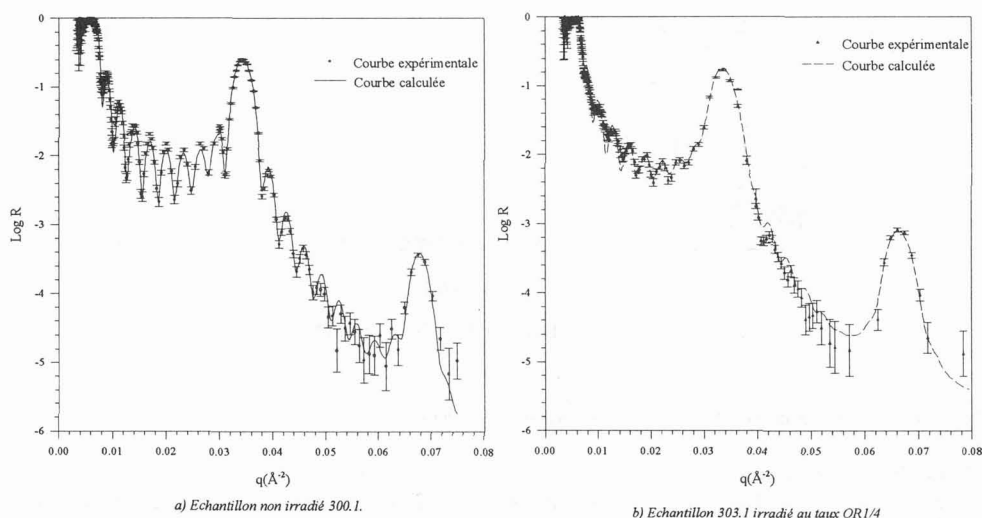


Figure 2 : Courbes de réflectivité de neutrons des échantillons 10 bicouches sur verre a) 300.1 et b) 303.1.

Nous avons caractérisé à l'aide du réflectomètre EROS [2] du Laboratoire Léon Brillouin Saclay, les échantillons de référence 300.1 et 740.2, ainsi que les échantillons irradiés correspondant. Leurs caractéristiques avant irradiation sont conformes à celles des dépôts demandés.

Sous irradiation, la seule modification observée sur l'échantillon déposé sur verre 300.1 est l'oxydation de la première couche de Ti accrochée au substrat de verre. Cet effet est une conséquence de l'échauffement due à l'irradiation. Ceci se traduit sur la courbe de réflectivité par le passage de 8 franges de Kiessig avant irradiation à 7 franges après irradiation (*figure 2*).

Pour l'échantillon déposé sur Si, on observe un gonflement de 8% de l'épaisseur des couches de titane alors que le gonflement était de 13% sur l'échantillon SAM209.2 élaboré à Marseille.

### 3. 3. Diffraction de rayons X.

Nous avons utilisé pour nos expériences une anticathode de Cu ( $\lambda = 1.54041 \text{ \AA}$ ). Nos couches non irradiées sont polycristallines, fortement texturées selon l'axe [111] pour le nickel, et selon l'axe [002] pour le titane.

Pour les échantillons irradiés jusqu'à la fluence OR1/4, les spectres obtenus sont similaires pour les deux échantillons 300.1 et 740.2 (substrat de verre et de Si). Ils présentent tous deux un changement de phase des couches de titane : la raie (002) du titane initialement hexagonale compact a disparu et est remplacée par les raies (111) et (200) d'un titane cubique à faces centrées à texture mixte (*figure 3*). Seule la texture selon l'axe (111) avait été observée dans les études précédentes. La structure du nickel reste cependant inchangée.

Une mesure d'ERDA sur ces échantillons est envisagée afin de déterminer la présence ou non d'hydrogène.

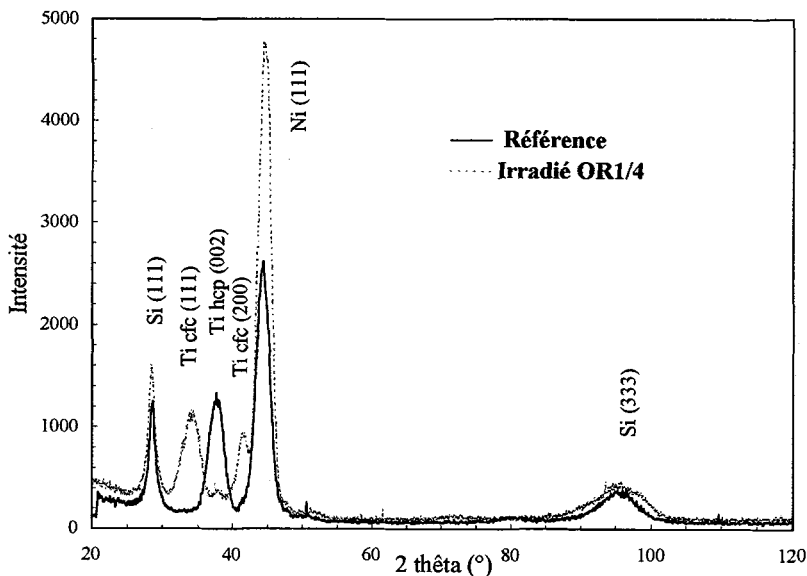


Figure 3 : Spectre de diffraction des échantillons 740.2 et H2.

### 3. 4. Détermination de contraintes par diffraction de rayons X.

La méthode de détermination des contraintes par diffraction de rayons X est basée sur les équations de la mécanique des milieux continus. Elle utilise comme jauge de déformation la distance interréticulaire  $d_{hkl}$  d'une famille de plans (hkl).

Soient  $d_0$  et  $d$  les distances interréticulaires avant et après déformation. La déformation est définie par :

$$\varepsilon = \frac{d - d_0}{d_0}. \text{ En différenciant la loi de Bragg } 2d\sin\theta = \lambda, \text{ on obtient, :}$$

$$\varepsilon = \frac{\Delta d}{d_0} = -\cot\theta \Delta\theta \quad \text{où} \quad \Delta\theta = \theta - \theta_0 \text{ avec } \theta_0 \text{ et } \theta \text{ les angles de Bragg avant et après déformation.}$$

Connaissant la déformation, il est ensuite possible de déterminer la contrainte  $\sigma$  grâce à la loi de Hooke :

$$\sigma = S \varepsilon \text{ où } S \text{ est le tenseur des constantes élastiques du matériau.}$$

### 3. 4. 1. Matériau isotrope : méthode dite "des $\sin^2\psi$ ".

Si le matériau polycristallin est sans contrainte, la déformation est indépendante des plans (hkl) et de l'angle  $\psi$  entre la normale au plan (hkl) et la normale à l'échantillon. En revanche, la déformation est fonction de  $\psi$  si le même matériau est soumis à une contrainte. D'après les lois de la mécanique des milieux continus, on obtient une relation elliptique entre la déformation  $\varepsilon$  et  $\sin^2\psi$  [3]. La pente de l'ellipse donne la contrainte et son ouverture le cisaillement.

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \mathbf{n} \varepsilon \mathbf{n}$$

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \frac{1}{2} S_2 \left[ (\sigma_{\phi}^P - \sigma_{33}^P) \sin^2 \psi - \sigma_{\phi 3}^P \sin 2\psi + \sigma_{33}^P \right] + S_1 (\sigma_{11}^P + \sigma_{22}^P + \sigma_{33}^P)$$

$$\text{avec } \sigma_{\phi}^P = \sigma_{11}^P \cos^2 \phi + \sigma_{22}^P \sin^2 \phi + \sigma_{33}^P \sin 2\phi$$

$$\sigma_{\phi 3}^P = \sigma_{12}^P \cos \phi + \sigma_{23}^P \sin 2\phi$$

$$S_2 = 2(S_{11} - S_{22})$$

### 3. 4. 2. Matériau texturé : méthodes des directions idéales.

Dans le cas d'un matériau texturé, c'est-à-dire orienté préférentiellement par rapport à un axe [HKL], la contrainte, supposée isotrope et identique dans tous les grains, est déterminée pour plusieurs angles  $\psi$  mais un seul angle  $\phi$ . Il est alors nécessaire de définir trois repères : repère P de l'échantillon, repère L du laboratoire (repère de mesure), repère C du cristal. Connaissant les matrices de passage entre les trois repères, il est alors possible de calculer la déformation  $\varepsilon_{33}$  en fonction des constantes élastiques  $S_{33ij}^c$  ( $S^c$  étant le tenseur des constantes élastique du cas cubique) et de la contrainte  $\sigma$  appliquée à l'échantillon [4].

Dans le cas particulier d'un matériau cubique texturé selon l'axe [111], comme le nickel dans nos échantillons, nous avons :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \left( 2S_{12} + \frac{1}{2} S_{44} \sin^2 \psi + \frac{2}{3} S_0 \right) \sigma \quad \text{avec} \quad S_0 = S_{11} - S_{12} - \frac{1}{2} S_{44}$$

Cette relation linéaire entre la déformation et  $\sin^2\psi$  nous permet de calculer la contrainte  $\sigma$  à partir de la pente  $p$  de la droite, d'où  $\sigma = \frac{2p}{S_{44}}$  avec  $S_{44} = 8.361 \times 10^{-6}$  MPa pour le Ni.

Pour le titane hexagonale compact présent dans nos échantillons, le calcul de la déformation nous donne la

$$\text{contrainte suivante : } \sigma = \frac{p}{S_{11} + S_{12} + S_{13}} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} S_{11} = 9.625 \times 10^{-6} \text{ MPa} \\ S_{12} = -4.66 \times 10^{-6} \text{ MPa} \\ S_{13} = -1.893 \times 10^{-6} \text{ MPa} \end{cases}$$

### 3. 4. 3. Résultats expérimentaux.

Nos expériences ont été réalisées sur un goniomètre Seifert au Laboratoire de Mécanique et Microstructure des Matériaux à l'Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers (Paris). L'intensité des pics de diffraction obtenus est mesuré à l'aide d'un détecteur ponctuel germanium refroidi à l'azote liquide. Les spectres obtenus et exploitables ont ensuite été traités avec un programme de lissage afin de déterminer la position  $2\theta$  de chacun des pics. La détermination de la contrainte moyenne dans les couches de nickel d'une part, et de titane d'autre part, est faite grâce à la méthode des directions idéales décrite précédemment.

Nous avons déterminé les contraintes moyennes dans le Ni avant et après irradiation. Nous constatons que la contrainte moyenne dans le Ni varie peu dans les échantillons récemment élaborés alors qu'elle est quadruplée entre les échantillons SAM210.1 et SAM209.1 (tableau 2). Le changement de phase du Ti dans les échantillons SAM209.2, 303.1 et H2 ne nous permet pas actuellement d'en déterminer la contrainte, les constantes élastiques de la nouvelle structure n'étant pas connues.

Tableau 2 : Récapitulatif des contraintes dans le Ni

Echantillons	Traitement	Contraintes
SAM210.1	--	(516±30) MPa
SAM209.2	OR1/2	(1462±885) MPa
SAM209.1	OR1	(2309± 790)MPa
300.1	--	(2209±1520) MPa
303.1	OR1/4	(1038±300) MPa
740.2	--	(2615±3387) MPa
H2	OR1/4	(1971±467) MPa

## 4. CONCLUSION.

L'étude des effets d'irradiation sur des multicouches NiC/Ti pour miroirs à neutrons nous montre que les performances optiques de ces systèmes sont peu altérées par l'irradiation aux neutrons thermiques. Nous avons cependant observé un changement de phase des couches de titane dans tous les échantillons irradiés. L'évolution de la contrainte moyenne dans les couches de nickel varie selon les conditions de dépôt et d'irradiation des échantillons et ne semble pas être liée au changement de phase du Ti. De nouveaux échantillons sont en cours d'irradiation sous des fluences plus élevées. La détermination des contraintes dans ces échantillons nous permettra de confirmer ou infirmer l'augmentation des contraintes mise en évidence dans les premiers échantillons irradiés.

[1] B. Ballot, K. N'Guy, A. Menelle, J. Mimault, T. Girardeau, J. L. Rouvière, F. Samuel, K. Al Usta, Journal de Physique IV, C2, 6, pp 171-176 (Mars 1996).

[2] B. Ballot, thèse Université Paris XI (1995).

[3] P. Gergaud, thèse Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers (1992).

[4] M. Zaouali, thèse Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers (1990).