



HAL
open science

Etude du comportement du tungstène sous irradiation : applications aux réacteurs de fusion

Moussa Sidibe

► **To cite this version:**

Moussa Sidibe. Etude du comportement du tungstène sous irradiation : applications aux réacteurs de fusion. Autre. Université d'Orléans, 2014. Français. NNT : 2014ORLE2007 . tel-01068634

HAL Id: tel-01068634

<https://theses.hal.science/tel-01068634v1>

Submitted on 26 Sep 2014

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.



UNIVERSITÉ D'ORLÉANS



***ÉCOLE DOCTORALE ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA
TERRE ET DE L'UNIVERS***

Laboratoire CEMHTI : Conditions Extrêmes et Matériaux : Haute Température
et Irradiation

THÈSE présentée par :

Moussa SIDIBE

soutenue le : **26 février 2014**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline : Chimie « Sciences des Matériaux »

**Etude du comportement du tungstène sous
irradiation : Applications aux réacteurs de fusion**

THÈSE dirigée par :

M-F. BARTHE

Directrice de Recherche, CEMHTI, CNRS, Orléans

RAPPORTEURS :

M-F. BEAUFORT

Directrice de Recherche, Institut Pprime, CNRS, Poitiers

R. SCHAEUBLIN

Maître d'Enseignement et de Recherche, EPFL, Suisse

JURY :

B. DECAMPS

Directrice de Recherche, CSNSM, Orsay, Président du jury

C. GRISOLIA

Directeur de Recherche, CEA, IRFM, Cadarache

A-L. THOMANN

Directrice de Recherche, CNRS, GREMI, Orléans

C. CORBEL

Ingénieur Chercheur, LSI, Palaiseau

C. BECQUART

Professeur des Universités, UMET-CNRS, ENSCL, Lille

REMERCIEMENTS

Je souhaite en premier lieu adresser mes sincères remerciements à ma directrice de thèse, Marie-France BARTHE (Directrice de Recherche, CEMHTI, CNRS, Orléans), pour m'avoir confié ce travail de recherches et accueilli au sein de son équipe. Je lui suis également reconnaissant pour son aide, le temps qu'elle m'a accordé, ses qualités pédagogiques et scientifiques, sa loyauté et sa sympathie. J'ai beaucoup appris à ses côtés et je lui exprime toute ma gratitude.

Mes remerciements vont également à Marie-France BEAUFORT (Directrice de Recherche, Institut Pprime, CNRS, Poitiers) et à Robin SCHAEUBLIN (Maître d'Enseignement et de Recherche, EPFL, Suisse) de m'avoir fait l'honneur d'accepter la charge de rapporteur et surtout pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

J'associe à ces remerciements l'ensemble des membres du jury à savoir Christian GRISOLIA (Directeur de Recherche, CEA, IRFM, Cadarache), Anne-Lise THOMANN (Directrice de Recherche, CNRS, GREMI, Orléans), Brigitte DECAMPS (Directrice de Recherche, CSNSM, Orsay), Catherine CORBEL (Ingénieur Chercheur, LSI, Palaiseau) et Charlotte BECQUART (Professeur des Universités, UMET-CNRS, ENSCL, Lille) d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Je tiens à remercier Pierre DESGARDIN (Chargé de Recherche, CEMHTI, CNRS, Orléans) qui a vivement participé à mon apprentissage à l'utilisation du faisceau de positons lents, ainsi que nos différents échanges sur le plan technique et scientifique. Je remercie également Jérôme JOSEPH (Technicien, CEMHTI, CNRS, Orléans) pour le support technique qu'il a pu apporter durant mes travaux de recherches.

J'adresse ma gratitude envers Yves SERRUYS, Patrick TROCELIER en charge des dispositifs JANNuS de Saclay, pour le support technique qu'ils m'ont apporté. Je remercie également tout le staff technique qui a participé à la réalisation de mes expériences d'irradiation à JANNuS notamment Eric BORDAS.

Je remercie sincèrement, Robin SCHEAUBLIN ainsi que Philippe SPAETIG, Eugenia MINIKUS, Julijana KRBANJEVIC et Raluca SCHIBLI, pour m'avoir accueilli au CRPP (Paul Sherrer Institut, Suisse) et pour m'avoir permis de réaliser des observations au Microscope Electronique à Transmission (MET).

Mes remerciements à Brigitte DECAMPS (Directrice de recherche, CSNSM, Orsay) pour m'avoir accueilli au CSNSM-Orsay et pour m'avoir permis de réaliser également des observations MET, sans oublier l'aide précieuse que Robin SCHAEUBLIN a apporté au cours des séances d'expérience.

Je remercie également Audrey SAULDUBOIS (Ingénieur d'étude, CME, Orléans), Cécile GENEVOIS (Ingénieur de Recherche, CEMHTI, CNRS, Orléans) pour leur

implication et leur contribution pour la réalisation des observations MET réalisées au laboratoire CME (Centre de Microscopie Electronique) à Orléans.

Je remercie Jérôme CHANCOLON (Maitre de Conférences, CRMD, CNRS, Orléans), pour sa disponibilité et sa réactivité lors de mes demandes de profilométrie.

J'adresse également un clin d'œil amical et reconnaissant à mes amis thésard et post-doctorant que j'ai eu la chance de connaître pendant ma thèse, Tayeb BELHABIB, El-Amin KOUADRI-BOUDJELTHIA, Jacques BOTSOA, René BES, Chenwei HE, Kamel DAWI, ainsi que Joseph MARAE, Peiqin YU, Sylvia POKAM et Timothée PINGAULT qui nous ont rejoint un peu plus tard. Chacun d'eux a participé à faire de mon séjour au laboratoire, une expérience enrichissante dans une ambiance agréable.

Je remercie toute l'équipe du CEMHTI site cyclotron pour leur accueil sympathique et plus particulièrement : Esidor NTSOENZOK, Martine LEPAN, Marie-Noëlle LIBAUDE, Michel SAILLARD, Thierry SAUVAGE, Florian DUVAL, Isidro Da SILVA, Rachelle OMNEE, tous les mécaniciens et électroniciens.

Je tiens à remercier tout autant toutes les personnes que j'ai oubliées de citer ici et qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail de recherches.

Enfin, je dédie ce travail à Yasmina SIDIBE BEN-SAHRA mon épouse, qui m'a apporté un soutien moral dans les moments difficiles, ainsi qu'à mes parents et mes frères et sœurs qui m'ont donné l'envie et la motivation pour mener ce travail.

Liste des acronymes

DB-PAS	D oppler B roadening P ositron A nnihilation S pectroscopy
DEMO	DEMO nstration power plant
DM	D ynamique M oléculaire
ITER	I nternational T hermonuclear E xperimental R eactor
JANNuS	J umelage d' A ccélérateurs pour les N anosciences, le Nucléaire et la S imulation J oint A ccelerators for N anosciences and N uclear S imulation
JET	J oint E uropean T orus
MET	M icroscopie E lectronique à T ransmission
NRA	N uclear R eaction A nalysis
OKMC	O bject K inetic M onte C arlo
PAS	P ositron A nnihilation S pectroscopy
PKA	P rimary K nock-on A tom
SIA	S elf I nterstitial A tom
SRIM	S topping and R anging of I on in M atter
TOKAMAK	T oroïdalnaïa K Ameras M Agnitnymi K atushkami (chambre toroïdale à bobines magnétiques)
VEPFIT	V ariable E nergy P ositron FIT

TABLES DES MATIERES

INTRODUCTION	11
CHAPITRE I	14
I. SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE	15
I.1. GENERALITES SUR LES REACTEURS A FUSION NUCLEAIRE	15
I.1.1. La fusion nucléaire	15
I.1.2. Confinement du plasma	16
I.1.3. Les réacteurs à confinement magnétique	17
I.1.4. Le projet ITER.....	18
I.1.4.1. Problématique des interactions plasma-paroi	19
I.1.4.2. Le divertor.....	20
I.2. LE TUNGSTENE (W) ET CONSEQUENCES DES CONTRAINTES SUBIES DANS LES REACTEURS A FUSION NUCLEAIRE	21
I.2.1. Les propriétés du tungstène	21
I.2.2. Défauts induits par irradiation dans le tungstène	22
I.2.3. Processus de création des défauts par irradiation ou par implantation.....	25
I.2.4. Défauts d'irradiation connus dans le tungstène.....	28
I.2.4.1. Les différents types de défauts ponctuels	28
I.2.4.2. Les énergies de formation des défauts : SIA et monolacune (v)	29
I.2.4.3. Les énergies de migration des défauts : SIA et monolacune (v)	30
I.2.4.4. Les énergies de liaison entre les défauts (SIA, v) et les impuretés.....	30
I.2.4.5. Autres types de défauts lacunaires dans le tungstène : bilacune, amas lacunaires	31
I.2.4.6. Caractéristiques d'annihilation de positons dans le tungstène.....	33
I.2.4.7. Evolution des défauts en fonction de la température.....	34
I.2.5. Comportement de l'hélium dans le tungstène	36
I.2.5.1. Energie de migration de l'hélium dans le tungstène.....	36
I.2.5.2. Piégeage de l'hélium dans le tungstène.....	37
I.2.6. L'effet des cascades de collisions dans le tungstène	41
I.3. CONCLUSIONS	47
CHAPITRE II	49
II. TECHNIQUES EXPERIMENTALES	50
II.1. DESCRIPTION DES ECHANTILLONS DE TUNGSTENE	50
II.1.1. Echantillons Goodfellow	50
II.1.2. Echantillons EFDA	51

II.2. CONDITIONS DE RECUIT DES ECHANTILLONS : FOUR A BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE.....	53
II.3. DECAPAGE ELECTROLYTIQUE	54
II.3.1. Paramètres utilisés pour le décapage des échantillons de tungstène.....	55
II.3.2. Paramètres utilisés pour le décapage électrolytique des lames minces.....	56
II.4. CARACTERISATION DES LAMES MINCES PAR MET.....	56
II.4.1. Principe de la Microscopie Electronique à Transmission	56
II.4.2. Préparation des lames minces	58
II.4.3. Acquisitions d'images	59
II.4.4. Traitements des images	60
II.4.4.1. Diamètre moyen.....	61
II.4.4.2. Densité des cavités ou des bulles	61
II.5. SPECTROSCOPIE D'ANNIHILATION DE POSITONS (PAS)	63
II.5.1. Le positon et ses interactions dans la matière	63
II.5.1.1. Source de positons	63
II.5.1.2. Pénétration des positons dans la matière.....	64
II.5.1.3. Diffusion des positons dans la matière.....	66
II.5.1.4. Piégeage et dépiégeage des positons	67
II.5.1.4.1. Etat délocalisé	67
II.5.1.4.2. Etat localisé	67
II.5.1.5. Annihilation des paires positon-électron.....	68
II.5.2. Principe du dispositif DB-PAS et acquisition des données	70
II.5.2.1. Accélérateur de positons lents couplé au spectromètre d'élargissement Doppler.....	70
II.5.2.2. Traitement des données.....	71
II.5.3. Exploitation et interprétation des données	73
II.5.3.1. Exploitation des paramètres S et W : concentration et nature des défauts	73
II.5.3.1.1. Modèle de piégeage : concentration des défauts	74
II.5.3.1.2. Nature des défauts	77
II.5.3.1.3. Effet de l'environnement chimique	78
II.5.3.1. Analyse des spectres Doppler en fonction de la profondeur	78
II.5.4. Caractéristiques d'annihilation des positons dans le tungstène	80
II.6. TECHNIQUES D'IRRADIATIONS OU D'IMPLANTATIONS.....	83
II.6.1. Irradiation aux ions lourds et légers de haute énergie : la plateforme JANNuS	83
II.6.2. Implantation ⁴ He 60 keV.....	86
II.7. RESUME	87
CHAPITRE III	88

III. CREATION ET COMPORTEMENT DES DEFAUTS INDUITS PAR IRRADIATION DANS LE TUNGSTENE.....	89
III.1. QUALITE INITIALE DES ECHANTILLONS REÇUS	89
III.1.1. Caractérisation des échantillons initialement reçus	89
III.1.2. Elimination des défauts natifs	91
III.2. DEFAUTS LACUNAIRES INDUITS PAR IRRADIATION AVEC DES IONS LOURDS... 93	
III.2.1. Irradiation avec des ions lourds à faible dpa.....	94
III.2.1.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM	94
III.2.1.2. Caractérisation des défauts induits	95
III.2.1.2.1. Interprétation des résultats obtenues par PAS	95
III.2.1.2.2. Discussions des résultats	98
III.2.1.2.3. Conclusions.....	102
III.2.2. Irradiations avec des ions lourds à fort dpa	103
III.2.2.1. Conditions expérimentales et simulations SRIM	103
III.2.2.2. Caractérisation des défauts d'irradiation	105
III.2.2.2.1. Résultats PAS	105
III.2.2.2.2. Discussions des résultats	108
III.2.2.2.3. Conclusions.....	110
III.2.3. Nature des défauts lacunaires en fonction de la profondeur	112
III.2.3.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM	112
III.2.3.2. Résultats	113
III.2.3.2.1. Cas des irradiations W 20 MeV à faible fluence	113
III.2.3.2.2. Cas des irradiations W 20 MeV à forte fluence	115
III.2.3.3. Discussions des résultats.....	116
III.2.3.4. Conclusions	118
III.3. COMPORTEMENTS DES AMAS LACUNAIRES EN FONCTION DE LA TEMPERATURE DE RECUIT	119
III.3.1. Méthode de traitement appliquée.....	119
III.3.2. Stades de recuit des amas lacunaires induits par les ions W	119
III.3.3. Etude des défauts en fonction de la profondeur.....	122
III.3.3.1. Cas des échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV.....	122
III.3.3.1.1. Caractéristiques d'annihilation <i>S</i> et <i>W</i> à 24 keV pour 1 dpa*	122
III.3.3.1.2. Caractéristiques d'annihilation <i>S</i> et <i>W</i> à 9 keV pour 1 dpa*	124
III.3.3.1.3. Caractéristiques d'annihilation <i>S</i> et <i>W</i> à 3 keV pour 1 dpa*	125
III.3.3.1.4. Discussions des stades de recuit obtenus avec les irradiations W 20 MeV à 1 dpa*	126
III.3.3.1.5. Echantillons irradiés avec les ions W 20 MeV à 12 dpa*	130
III.3.3.2. Echantillons irradiés avec les ions Fe 10 MeV	133
III.3.3.3. Comparaison entre les échantillons irradiés W 20 MeV et Fe 10 MeV	138
III.3.3.4. Résumé	142
III.4. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A TRANSMISSION : DISTRIBUTION DES CAVITES.....	144

III.4.1. Echantillon de tungstène irradié Fe 10 MeV	144
III.4.1.1. Clichés MET obtenus	144
III.4.1.2. Caractérisations de la distribution des cavités	146
III.4.1.2.1. Distribution en taille des cavités	147
III.4.1.2.2. Distribution de la densité des cavités en profondeur.....	149
III.4.2. Echantillons de tungstène irradiés W 20 MeV	149
III.4.3. Discussions	151
III.4.4. Conclusions.....	152
III.5. NATURE DES DEFAUTS EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION	153
III.5.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM	153
III.5.2. Caractérisation des défauts induits par irradiation en température.....	154
III.5.2.1. Interprétation des résultats PAS.....	154
III.5.2.2. Comparaison entre les échantillons irradiés en température et ceux recuits après irradiations	155
III.5.2.3. Discussions des résultats.....	156
III.5.2.4. Conclusions	157
III.6. CONCLUSIONS DU CHAPITRE III.....	158
CHAPITRE IV	160
IV. ETUDE DE L'INTERACTION DE L'HELIUM ET DES DEFAUTS LACUNAIRES DANS LE TUNGSTENE	161
IV.1. IMPLANTATION DE HE A FORT HE/DPA	161
IV.1.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM.....	162
IV.1.2. Identification des défauts après implantation	166
IV.1.2.1. Description des résultats.....	166
IV.1.2.2. Discussions des résultats	167
IV.1.3. Evolution en fonction de la température de recuit des défauts lacunaires en présence d'hélium	172
IV.1.3.1. Traitements thermiques après implantation.....	172
IV.1.3.2. Résultats et discussions	172
IV.1.3.2.1. Résultats dans le cas de l'implantation à BF	172
IV.1.3.2.2. Discussions des résultats dans le cas de l'implantation à BF.....	174
IV.1.3.2.3. Résultats dans le cas de l'implantation à HF	175
IV.1.3.2.4. Discussions des résultats dans le cas de l'implantation à HF	176
IV.1.3.3. Comparaison des stades de recuit des échantillons implantés BF et HF	178
IV.1.4. Conclusions	182
IV.2. COMPORTEMENT DES AMAS LACUNAIRES EN PRESENCE D'HELIUM.....	184
IV.2.1. Conditions expérimentales d'irradiation	184
IV.2.2. Simulation SRIM.....	185

IV.2.3. Défauts induits à 128 K	187
IV.2.3.1. Résultats	187
IV.2.3.2. Discussions	188
IV.2.4. Evolution de la nature des défauts en fonction de la profondeur et du ratio He/dpa	189
IV.2.4.1. Conditions expérimentales : décapage électrolytique et simulation SRIM	189
IV.2.4.2. Résultats et discussions	190
IV.2.5. Influence de la température de recuit sur l'évolution des défauts lacunaires en présence ou non d'hélium.....	192
IV.2.5.1. Résultats et discussions	192
IV.2.5.2. Conclusions	196
IV.2.6. Evolution des défauts lacunaires en présence d'hélium en fonction de la température d'irradiation.....	197
IV.2.7. Conclusions du chapitre IV	199
V. CONCLUSIONS GENERALE ET PERSPECTIVES	200
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	204
ANNEXES.....	214
LISTE DES FIGURES	223
LISTE DES TABLEAUX	234

INTRODUCTION

La production d'énergie est un enjeu majeur pour le futur, en effet, la consommation mondiale pourrait devenir deux à trois fois plus élevée à l'horizon 2050. L'utilisation de combustibles fossiles (charbon, pétrole et gaz naturel) s'est révélée extrêmement compromettante pour l'environnement à cause des émissions de dioxyde de carbone et de gaz à effet de serre, entraînant un déséquilibre climatique de la planète. Le développement de nouvelles sources d'énergie propres s'avère donc indispensable. Elles devront satisfaire des exigences en termes d'environnement, de sûreté de fonctionnement, de disponibilité des ressources et bien sûr être plus économiques.

La fusion nucléaire est l'une des voies très prometteuses explorée aujourd'hui pour la production d'énergie de demain. La réaction nucléaire de fusion entre le deutérium (D) et le tritium (T) présente de nombreux avantages : une production d'énergie sans émission de CO₂ et des combustibles pratiquement inépuisables.

C'est dans ce contexte que le projet international ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) a vu le jour officiellement en 1985. Il s'agit d'un nouveau réacteur tokamak dont la conception met à profit les avancées obtenues sur les différentes machines déjà en exploitation. Sa construction a démarré en 2006. L'objectif d'ITER est de démontrer la faisabilité scientifique et technologique de la maîtrise de la fusion nucléaire afin d'envisager la production d'énergie par son successeur DEMO (DEMONstration power plant). Cependant la mise en œuvre de la réaction de fusion pour produire de l'énergie présente un grand nombre d'obstacles scientifiques à résoudre, en particulier la mise au point des matériaux qui devront faire face au plasma et donc résister aux conditions extrêmes d'irradiation (neutrons de 14.1 MeV et particules alpha de 3.5 MeV) et de température.

C'est dans ce cadre, que le tungstène a été choisi comme matériau pour recouvrir le « divertor », un composant crucial du réacteur d'ITER, ainsi que la première paroi dans DEMO. Le divertor assure l'extraction des cendres produites par la réaction de fusion et permet d'évacuer une partie de la chaleur générée par l'irradiation des particules. Il sera donc soumis aux conditions de fonctionnement les plus extrêmes. Ainsi, le tungstène devra faire face au bombardement neutronique, aux intenses flux de particules (hélium, hydrogène) et à des flux thermiques pouvant générer des températures de l'ordre de 1773 K. Le bombardement neutronique induira des déplacements atomiques dans le tungstène, engendrant des modifications de sa microstructure et de ses propriétés physiques, chimiques et mécaniques. En outre, les flux d'hélium (produit de la fusion ou généré par transmutation) et/ou d'hydrogène (combustible ou généré par transmutation), peuvent s'implanter dans le matériau et sont susceptibles d'entraîner un gonflement ou même du cloquage.

Il est donc nécessaire d'étudier le comportement du tungstène dans ces conditions sévères d'utilisation pour comprendre les mécanismes d'endommagement afin de prévoir sa durée de vie dans les futurs réacteurs à fusion nucléaire. Différentes approches complémentaires sont envisageables pour traiter cette problématique. Il est tout d'abord

important de noter qu'il n'existe pas actuellement de machine capable de reproduire les conditions d'usage des matériaux équivalentes à celles de ces réacteurs. La simulation numérique multi-échelle s'avère d'intérêt pour prévoir le comportement de ces matériaux. Cependant, elle doit s'appuyer sur des données expérimentales à la fois d'entrée mais aussi de validation.

L'objectif de ce travail est de réaliser des expériences à effets séparés afin d'enrichir la base de données existante. La démarche mise en œuvre associe des irradiations aux ions dans des conditions maîtrisées et choisies pour introduire différents types d'endommagement et de l'hélium à différentes concentrations, suivies de la caractérisation de la microstructure à l'échelle atomique.

Ce travail fait suite à la thèse de P.E. Lhuillier [1] dans laquelle, d'une part, les propriétés de la monolacune (migration, agglomération) ont été mises en évidence, et d'autre part, le comportement de l'hélium a été étudié.

Ici nous nous focaliserons sur deux aspects :

- La caractérisation de l'endommagement généré par irradiation aux ions dans des conditions aussi proches que possible de celles que le tungstène pourra subir dans le réacteur à fusion.
- L'étude des interactions entre les défauts générés par irradiation et l'hélium y compris les mécanismes de formation des complexes (nHe-mv).

Ce travail de thèse est organisé en quatre chapitres :

- Le premier chapitre présente le contexte général des réacteurs à fusion nucléaire puis les sollicitations auxquelles les matériaux de la chambre à vide du réacteur sont soumis. Ensuite, l'étude bibliographique sur le comportement à différentes échelles des défauts lacunaires induits par irradiation en présence ou non d'hélium dans le tungstène sera détaillée.
- Le deuxième chapitre expose et détaille les techniques expérimentales principalement utilisées dans ce travail : la Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS), la Microscopie Electronique à Transmission (MET) et la technique de décapage électrolytique. Les différentes techniques expérimentales d'irradiation et d'implantation utilisées sont aussi présentées brièvement. Le choix des conditions d'irradiation (nature, énergie, fluence des ions et température) est également expliqué.
- Le troisième chapitre est consacré à l'étude des défauts lacunaires induits par irradiation aux ions lourds (W 20 MeV, Fe 10 MeV) dans le tungstène. Dans un premier temps, nous nous sommes focalisés sur la vérification et la préparation des différents lots d'échantillons de tungstène en vue d'éliminer les défauts liés à la fabrication. Dans un second temps, nous exposerons les résultats PAS et MET obtenus sur l'étude de la nature et du comportement en température des défauts lacunaires induits dans les différentes conditions d'irradiation appliquées.

- Le quatrième chapitre présente l'étude du comportement des défauts lacunaires en présence d'hélium introduit par irradiation aux ions lourds et/ou légers. Un premier axe traite de l'impact de l'évolution de fortes concentrations d'hélium en présence de défauts lacunaires de type monolacune induits par implantation d'ions légers sur les phénomènes de migration, agglomération et élimination des défauts dans le tungstène. Un second axe, présente l'effet de la variation du rapport entre la concentration d'hélium et l'endommagement (dpa) induit par irradiation aux ions lourds selon les analyses PAS. Finalement, le comportement de ces défauts en fonction de la température d'irradiation et de recuit est également présenté.

Enfin, une conclusion générale résumant l'ensemble des principaux résultats obtenus sera présentée, ainsi que des perspectives à ce travail de thèse.

CHAPITRE I

I. SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE	15
I.1. GÉNÉRALITÉS SUR LES RÉACTEURS À FUSION NUCLEAIRE.....	15
I.1.1. La fusion nucléaire	15
I.1.2. Confinement du plasma	16
I.1.3. Les réacteurs à confinement magnétique	17
I.1.4. Le projet ITER.....	18
I.2. LE TUNGSTÈNE (W) ET CONSÉQUENCES DES CONTRAINTES SUBIES DANS LES RÉACTEURS À FUSION NUCLEAIRE	21
I.2.1. Les propriétés du tungstène	21
I.2.2. Défauts induits par irradiation dans le tungstène	22
I.2.3. Processus de création des défauts par irradiation ou par implantation.....	25
I.2.4. Défauts d'irradiation connus dans le tungstène.....	28
I.2.5. Comportement de l'hélium dans le tungstène	36
I.2.6. L'effet des cascades de collisions dans le tungstène	41
I.3. CONCLUSIONS	47

I. Synthèse bibliographique

Ce chapitre présente une synthèse bibliographique sur le contexte de la thèse. Il rappellera les principes généraux des réactions de fusion nucléaire (ou thermonucléaire) et des futurs réacteurs à fusion. Ainsi, nous aborderons les contraintes subies par les matériaux constituant les parois des réacteurs à fusion tel que le tungstène. En outre, cette synthèse bibliographique balayera une vue d'ensemble sur les résultats expérimentaux et théoriques collectés dans la littérature qui nous aiderons à mieux comprendre et interpréter les résultats qui seront présentés dans la suite de ce document.

I.1. Généralités sur les réacteurs à fusion nucléaire

I.1.1. La fusion nucléaire

La fusion nucléaire ou thermonucléaire, est la réaction au cours de laquelle des noyaux d'atomes légers entrent en collision et fusionnent pour former un noyau atomique plus lourd. Cette réaction dégage une énorme quantité d'énergie. La réaction de fusion est à l'œuvre naturellement dans le soleil et dans la plupart des étoiles. Au cœur du soleil, la température avoisine les 15 millions de degrés kelvin, les atomes d'hydrogène sont ainsi animés de mouvement dont la vitesse peut leur permettre de franchir l'intense répulsion due à leurs charges positives responsable du phénomène appelé « barrière coulombienne ». Au cours du processus, des noyaux d'hydrogène (1_1H) vont entrer en collision et fusionner pour donner un atome d'hélium (4_2He), des particules (neutrinos...) et de l'énergie. La masse de l'atome d'hélium obtenue n'est cependant pas strictement égale à la somme des masses des atomes qui l'ont créé. C'est la petite quantité de masse perdue (m) multipliée par le carré de la célérité de la lumière (c^2) qui produit l'énorme quantité d'énergie (E) créée par la réaction de fusion. C'est la formule d'Einstein :

$$E = mc^2 \quad \text{I. 1}$$

Sur la Terre parmi les réactions de fusion qui sont maîtrisées en laboratoire, la réaction entre deux isotopes de l'hydrogène, le deutérium (2_1D) et le tritium (3_1T) (voir **Figure I.1**), est la plus efficace en termes de gain énergétique aux températures les plus basses.

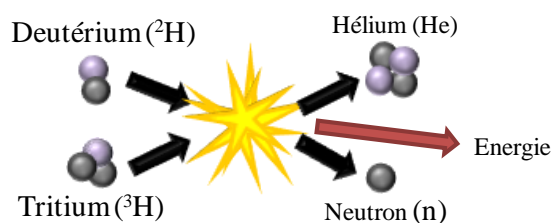


Figure I.1 : Schéma de la réaction de fusion entre un atome de deutérium et un atome de tritium.

Les produits de la réaction de fusion sont émis avec une énergie cinétique de 14.1 MeV et 3.5 MeV respectivement pour le neutron (1_0n) et l'atome d'hélium (4_2He) [2]. Cette réaction nécessite néanmoins des températures 10 fois supérieures à celle qui se produit au cœur du

soleil. A ces températures, la matière se trouve à l'état de plasma (gaz électriquement chargé), les électrons sont séparés des noyaux. Il est donc nécessaire d'éviter tout contact entre le milieu réactionnel et les matériaux constituant le réacteur, ce qui est possible en réalisant un confinement du plasma par champ inertiel ou magnétique.

Si cette réaction était mise en œuvre dans les décennies à venir, elle présenterait de nombreux avantages. En ce qui concerne les ressources, le deutérium est obtenu par distillation de l'eau douce ou de mer, ressources quasi illimitées. Par contre le tritium, qui est un élément radioactif avec une période de 12.3 ans, n'existe qu'à l'état de trace dans la nature. Il peut toutefois être produit par interaction d'un neutron issu des réactions de fusion et d'un atome de lithium selon les réactions **I.2** et **I.3** [3]. De plus les réserves de lithium connus pourraient couvrir plus de mille ans [4].



L'énergie produite à partir de 100 kg de deutérium et 300 kg de tritium peut produire 1000 MWe en 1 an, ce qui équivaut à 175 tonnes d'uranium naturel, soit 1.8 million de tonnes de pétroles ou 2.6 millions de tonnes de charbon [5]. De plus, le futur réacteur à fusion présentera l'avantage de ne pas dégager de gaz carbonique (CO₂) pendant son fonctionnement et le risque d'explosion est nul car la réaction s'arrête quand elle n'est plus alimentée en combustibles [4]. D'autre part, les seuls déchets générés par la fusion sont l'hélium et des matériaux radioactivés par bombardement neutronique. Les radioisotopes générés sont généralement de courte durée de vie, de l'ordre d'une centaine d'années [6], contrairement aux déchets issus de la fission nucléaire qui restent radioactifs pendant plusieurs centaines de millions d'années. Avec de tels atouts, les réacteurs à fusion nucléaire semblent donc être une future source d'énergie électrique durable et propre.

I.1.2. Confinement du plasma

Les réactions de fusion nécessitent des températures très élevés de l'ordre d'une centaine de millions de degrés kelvin, pour que les atomes puissent franchir la barrière coulombienne et fusionner dans le plasma. Il est donc évident qu'aucun matériau ne peut résister pour contenir un plasma aussi chaud. C'est pourquoi il est nécessaire de confiner le plasma. Pour cela, deux voies de confinement sont actuellement étudiées, le confinement inertiel et le confinement magnétique.

La fusion par confinement inertiel, est une technique utilisant des lasers de très haute puissance permettant de fusionner deux noyaux atomiques légers en un noyau atomique plus lourd [7]. Ainsi il y a le Laser MégaJoule (LMJ) [8, 9] étudié en France ou son équivalent américain le NIF (National Ignition Facility) [10, 11], qui devraient produire des plasmas très denses mais sur des temps très courts (de l'ordre de 10⁻⁸ s) [12].

La fusion par confinement magnétique, utilise un champ magnétique intense pour confiner le plasma sur un temps assez long (secondes voir minutes). Cette technologie est la plus avancée et constitue une grande partie des activités de recherches sur la fusion nucléaire [13]. Dans la suite de ce document nous allons nous intéresser à cette dernière.

I.1.3. Les réacteurs à confinement magnétique

Il existe plusieurs configurations de réacteur à confinement magnétique tels que le stellarator et le tokamak. Aujourd'hui la configuration la plus répandue et la plus développée est celle du TOKAMAK (**T**oroïdalnaïa **K**Ameras **M**Agnitnymi **K**atushkami, qui signifie chambre toroïdale avec bobine magnétique), inventée par les russes dans les années 1950.

Le champ magnétique dans un tokamak a deux composantes : une composante toroïdale créée par un ensemble de bobines de champ toroïdal (bobines rouges, **Figure I.2**), une composante poloïdale, perpendiculaire à la composante toroïdale, est générée par la bobine centrale (solénoïde centrale bleu, **Figure I.2**) et permet d'induire dans le plasma un très fort courant. Enfin des bobines supplémentaires, des bobines de champ poloïdal extérieures (bobines vertes, **Figure I.2**) permettent d'améliorer la forme et la position du plasma dans la chambre.

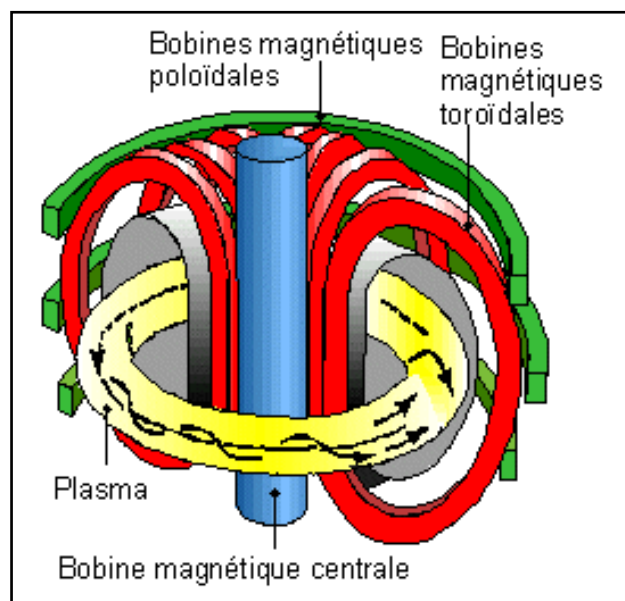


Figure I.2 : Schéma d'un tokamak (<http://superconductors.free.fr/tokamaks.php>).

Actuellement certains réacteurs de fusion de type tokamak ont atteint des performances très intéressantes, comme Tore Supra (tokamak français) qui détient le record mondial de durée de décharge plasma de 6 min 18 s [14], JET (tokamak anglais) qui est parvenu à restituer sous forme d'énergie de fusion près de 62 % de la puissance qui lui avait été apportée [15]. Le futur réacteur ITER bénéficiera du retour d'expériences de toutes les installations de réacteurs à fusion de type tokamak encore en service.

I.1.4. Le projet ITER

Le projet ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor), est une étape dans la démonstration de la faisabilité scientifique et technologique de la production de l'énergie électrique par la fusion (**Figure I.3**). Les travaux de construction ont démarré en 2006 sur le site de Cadarache, dans le sud de la France, et devraient prendre fin à l'horizon de 2020 si le calendrier initialement prévu est tenu. Le programme ITER utilise le concept du confinement magnétique et sera le plus grand et le plus puissant tokamak (**Figure I.1**) jamais construit comme le montrent ses caractéristiques résumées dans le **Tableau I.1**. Ce projet bénéficiera de l'ensemble des avancées technologiques déjà obtenues sur les tokamaks actuels. Les principaux objectifs techniques d'ITER pendant sa phase de fonctionnement sont, dans un premier temps, de générer une puissance de 500 MW à partir de 50 MW apportés au plasma, c'est-à-dire un facteur Q ($= \frac{\text{Puissance de fusion}}{\text{Puissance reçue}}$) égal à 10 et ce pendant 400 secondes [16]. Dans un second temps, il faudra réussir à maintenir des réactions de fusion avec un facteur Q de 5 (50 MW fournis, 250 MW produits) pendant 3000 secondes environ [16]. Ces objectifs seront réalisés si le réacteur ITER relève les nombreux challenges tels que la stabilité globale du plasma, une production in situ du tritium et l'auto-entretien de la réaction de fusion.

Si le but du projet ITER est de démontrer la faisabilité scientifique et technologique de la production d'énergie électrique par la fusion nucléaire, il ne produira cependant pas d'énergie électrique. Celui qui en produira sera son successeur appelé DEMO (DEMONstration power plant). Le but avec le réacteur DEMO sera de produire 3300 MW de puissance en continu [17] avec un facteur Q variant entre 24.4 et 30 [18].

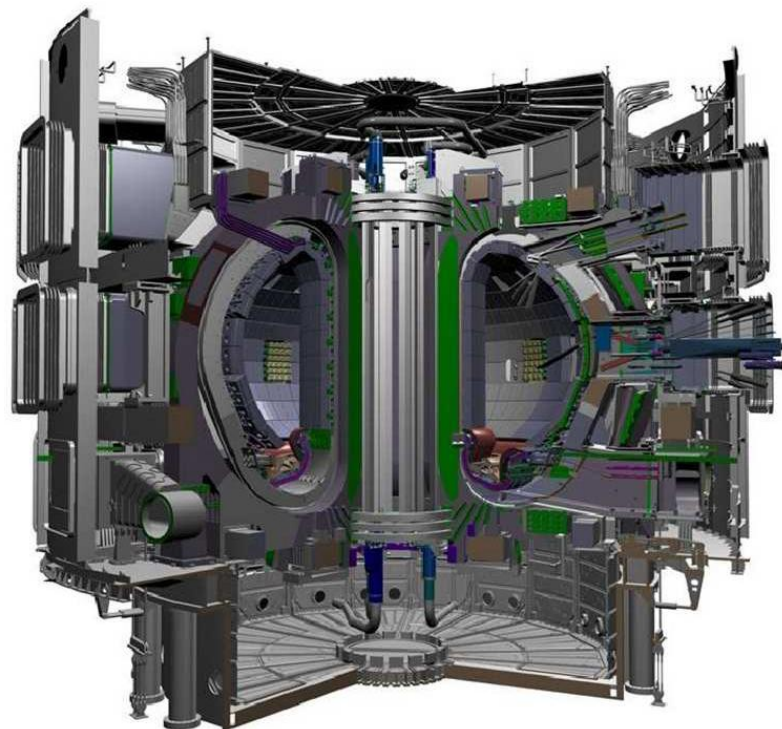


Figure I.3 : Schéma du réacteur ITER (source site d'ITER : <http://www.iter.org/fr/mach>).

Paramètres	(Unité)	Tore Supra	JET	ITER
Grand rayon du plasma	(m)	2.25	3	6.21
Petit rayon du plasma	(m)	0.7	1.25	2
Volume du plasma	(m ³)	25	155	837
Courant plasma	MA	1.7	5	15
Champ magnétique	(T)	4.5	3.4	5.3
Type de Plasma		D-D	D-D/D-T	D-T
Puissance thermonucléaire	(MW)	2.5	5x10 ⁻³ - 10	500
durée de décharge	(s)	10 - 400		jusqu'à 1000
Facteur Q			0.7	10

Tableau I.1 : Principales caractéristiques du tokamak ITER comparées à ceux déjà en service (Tore supra, JET).

I.1.4.1. Problématique des interactions plasma-paroi

Dans les réacteurs à fusion, les matériaux de paroi qui font face au plasma vont subir des contraintes extrêmes et doivent être capables de les supporter. Les matériaux face au plasma doivent présenter des caractéristiques d'érosion et de rétention des isotopes d'hydrogène compatibles avec le fonctionnement des réacteurs à fusion. En effet, en plus des neutrons, des particules animées de quantité de mouvement significative bombardent les parois du réacteur malgré le confinement magnétique exercé. Ceci entraîne de l'érosion des éléments de la surface, soit poussières et impuretés, sont arrachés de la paroi, qui peuvent pénétrer dans le plasma et ainsi le refroidir. Il est donc important que le matériau soit résistant à l'érosion pour limiter les pertes de performance du réacteur. De plus, les températures de fusion des matériaux de la chambre du réacteur doivent être élevées afin de pouvoir supporter des températures de fonctionnement prévues entre 673 K et 873 K [19] pour ITER. En outre, les matériaux de la première paroi doivent également avoir une excellente conductivité thermique pour pouvoir transmettre au mieux l'énergie qu'ils reçoivent. D'autre part, le taux de rétention des isotopes de l'hydrogène doit être faible. Le phénomène de rétention pose des problèmes de sécurité notamment vis-à-vis de la radioactivité du tritium. Enfin l'irradiation aux neutrons de fusion de 14.1 MeV affectera fortement la microstructure et pourra conduire à l'activation des matériaux de paroi du réacteur.

Dans le cas d'ITER, trois matériaux ont été retenus pour constituer la chambre à vide du réacteur : le béryllium (Be), les composites à fibres de carbone (CFC) et le tungstène (W). Le Béryllium pour sa faible possibilité de rétention du tritium, composera la couverture de la chambre à vide. Pendant la phase de démarrage, un divertor composé de CFC et de tungstène sera installé. Enfin, lors de la montée en puissance, il sera remplacé par un divertor en tungstène, dont la durée de vie devrait être plus longue [20].

I.1.4.2. *Le divertor*

Le divertor, situé sur le plancher de la chambre à vide est l'un des composants cruciaux du tokamak ITER. Il assure l'extraction des cendres, l'hélium, produites par la réaction de fusion et permet d'évacuer une partie de la chaleur générée par l'irradiation des particules. Il doit remplir ces fonctions tout en maintenant un niveau acceptable d'impuretés au cœur du plasma. Le divertor d'ITER est composé de 54 éléments « cassettes » [21] qui peuvent être extraites par télémanipulation, afin de permettre leur remplacement rapide et leur rénovation [22, 23]. Chaque cassette comporte trois éléments qui font directement face au plasma, appelés « cibles » : une cible verticale interne, une cible verticale externe et un dôme (voir **Figure I.4.b**). Ces cibles sont à l'intersection des lignes de force du champ magnétique du plasma d'ITER (**Figure I.4.c**). Les matériaux les constituant seront donc soumis à une charge thermique élevée, un bombardement de particules (neutrons, hélium...) d'une extrême intensité et devront supporter des températures maximales de fonctionnement avoisinant 1773 K [24].

Seuls quelques très rares matériaux sont capables de supporter cet environnement extrême durant les vingt années que devrait durer l'exploitation d'ITER. Le tungstène a été choisi comme matériau qui fera face au plasma dans la région du divertor [25]. Ce matériau présente une faible érosion à la pulvérisation, une bonne conductivité thermique ainsi qu'un point de fusion élevé [21, 26]. Dans certains modèles de réacteurs DEMO le tungstène est également considéré pour recouvrir l'ensemble des parois de l'armure (Blanket) [27, 28].

Le programme WEST [29] prévoit des modifications dans la géométrie du plasma généré par le tokamak Tore Supra, tout en profitant de sa capacité de longue décharge, pour tester un divertor en tungstène dans les conditions qu'il devrait subir dans ITER en prévision de son utilisation futur sur ce réacteur. Le début d'une série de fabrication industrielle importante des éléments du divertor d'ITER en tungstène et leur test dans Tore Supra permettront de mieux maîtriser le début d'exploitation du divertor en tungstène face au plasma d'ITER.

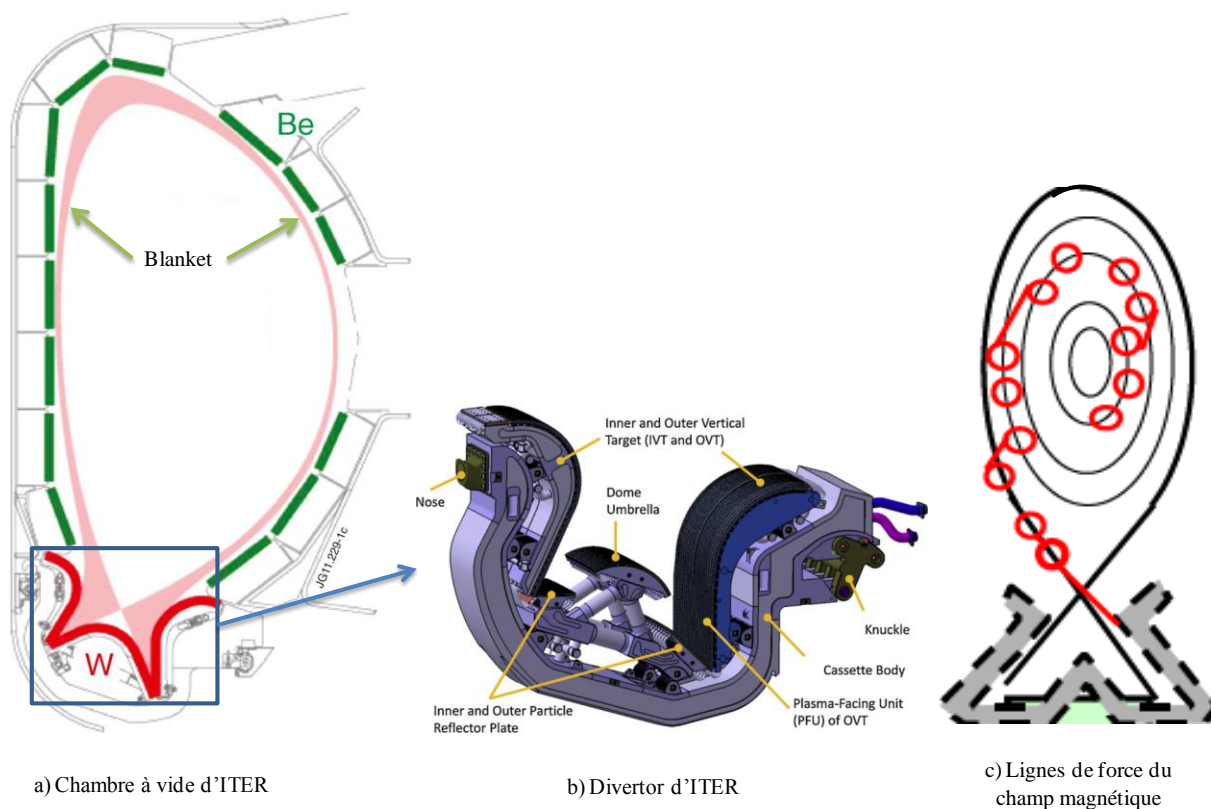


Figure I.4 : a) Schéma de la section interne de la chambre à vide d'ITER (le Blanket en béryllium, le divertor en tungstène) [20]. b) Design d'un élément du divertor d'ITER [30]. c) Schéma des lignes de force du champ magnétique dans le tokamak d'ITER, les cercles rouges représentent les particules qui sortent du plasma.

I.2. Le tungstène (W) et conséquences des contraintes subies dans les réacteurs à fusion nucléaire

Cette section présente d'une part, les propriétés du tungstène et d'autre part l'état de l'art sur les conséquences des contraintes subies par ce matériau dans les tokamaks, plus précisément l'endommagement induit de la surface jusque dans le volume du matériau.

I.2.1. Les propriétés du tungstène

Le tungstène est un élément chimique du tableau périodique de Mendeleïev de symbole W et de numéro atomique 74. C'est un métal rare et peu abondant dans l'écorce terrestre (1.25 ppm). Il est présent sous forme d'oxyde dans les sels minéraux exploitables tels que la scheelite CaWO_4 et la wolframite $(\text{Fe},\text{Mn})\text{WO}_4$ [31, 32]. Le processus de réduction de ces minerais est complexe et l'on peut intervenir sur de nombreux paramètres pour contrôler la taille de grain des poudres de tungstène obtenues, comprise habituellement entre 0.4 à 10 μm , avec des puretés courantes de 99.95 à 99.99% [31]. Le tungstène est un métal dur et cassant. Il est très délicat à façonner lorsqu'il est impur, et on emploie généralement les techniques de frittage, extrusion, forgeage ou laminage pour sa mise en forme.

Le tungstène est un métal dense de masse volumique égale à 19.253 g.cm^{-3} [33]. Il est aussi extrêmement réfractaire, étant celui qui a le point de fusion le plus élevé avec 3683 K, et sa température de recristallisation se situe à 1773 K. Sa structure cristalline est de type cubique centrée (**Figure I.5**), avec un paramètre de maille de 0.3165 nm [33]. De plus il a une bonne conductivité thermique, ainsi que des propriétés mécaniques intéressantes à améliorer. Le tungstène est souvent utilisé à haute température. Toutes ces propriétés sont des atouts très intéressants qui font du tungstène un candidat potentiel pour faire face au plasma d'ITER.

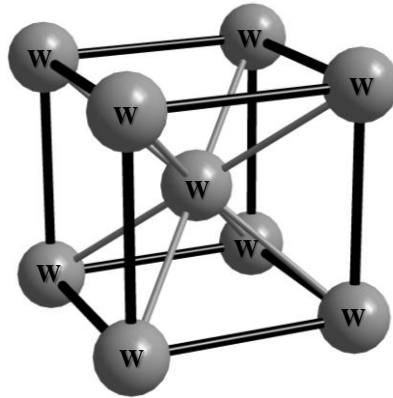


Figure I.5 : Structure de la maille cristalline du tungstène (cubique centrée).

Propriété	Valeur	Unité
Nombre atomique	74	
Masse atomique	183.85	[33]
Masse volumique	19.253	[33] g.cm^{-3}
Densité atomique	6.316×10^{28}	at.cm^{-3}
Structure cristalline	cubique centré	
Paramètre de maille (a)	0.316522	[33] nm
Température de recristallisation	1773	[33] K
Température de fusion	3683	[33] K
Température d'ébullition	5973	[33] K
Conductivité thermique (à 293 K)	145	W.mK^{-1}
Emissivité	0.342	[34] à $\lambda = 1.6 \mu\text{m}$

Tableau I.2 : Propriétés physiques du tungstène.

I.2.2. Défauts induits par irradiation dans le tungstène

La plupart des matériaux qui seront utilisés dans les réacteurs mettant en œuvre la fusion nucléaire entre le deutérium et le tritium seront exposés à des neutrons de 14.1 MeV et aux flux de particules alpha de 3.5 MeV, qui quittent le plasma. Il est prévu que la puissance délivrée par les neutrons de 14 MeV sur les matériaux de couverture de l'enceinte sera d'environ 1 MW/m^2 [35, 36] pour une année de fonctionnement du réacteur ITER. Cela correspond à une fluence de neutrons de $1.4 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$. Le flux des neutrons en fonction de

leur énergie a été évalué par simulation pour ITER [37] (voir **Figure I.6**). L'exposition des matériaux aux neutrons très énergétiques entraîne des modifications importantes de leur microstructure et engendre des changements observables dans le dimensionnement des composants [38] et des modifications des propriétés physiques et mécaniques tels que la température de transition fragile-ductile (DBTT). L'irradiation neutronique a tendance à augmenter la DBTT [39], ce qui provoque l'augmentation de la température à laquelle le matériau reste encore ductile. Certains auteurs ont pu démontrer que l'augmentation de la DBTT dépend fortement de la température d'irradiation [40], ainsi pour une température d'irradiation supérieure ou égale à 1180 K, la DBTT du tungstène pourrait ne pas être modifiée [41]. D'après I.V. Gorynin et *al* [42], un recuit à 1473 K pendant une heure peut partiellement restaurer les propriétés du tungstène, en particulier sa ductilité.

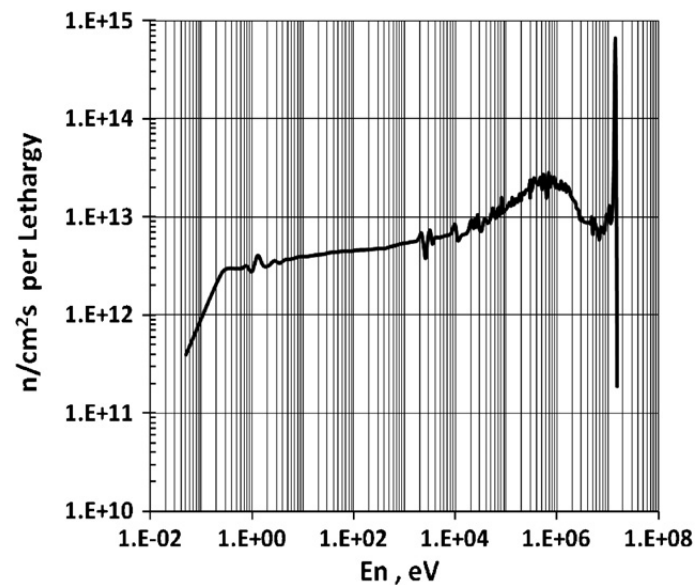


Figure I.6 : Spectre en énergie de flux neutronique sur les matériaux face au plasma d'ITER [37].

Les processus majeurs induits par des neutrons provoquant une modification des matériaux face au plasma sont de deux types :

- **La transmutation des atomes** dans le matériau par réactions nucléaires conduira à l'activation du matériau et à la création d'atomes tels que l'hafnium (Hf), le tantale (Ta), le rhénium (Re), l'osmium (Os), l'iridium (Ir) et leurs isotopes. Ils constitueront des impuretés dans le tungstène. Sur la **Figure I.7** sont présentés les atomes d'impuretés induits dans le tungstène par les neutrons incidents après une année de fonctionnement du réacteur d'ITER [35]. Les produits de transmutation primaires pour le tungstène sont Re, Os et Ta. Le réacteur ITER devrait fonctionner pendant deux ans avec un plasma de Deutérium-Deutérium, suivie de 12 années de fonctionnement avec un plasma de Deutérium-Tritium. Les résultats des calculs récemment effectués par M.R. Gilbert et *al* [43], sur la transmutation du tungstène induite par irradiation neutronique pendant les 14 années de fonctionnement du réacteur ITER, confirment la présence de ces produits de

transmutation primaires Hf, Re, Ta et Os (**Figure I.8**). De plus, les calculs de ce dernier révèlent la présence d'une concentration d'hélium et d'hydrogène qui n'a pas été observée par R. Behrisch et *al* [35].

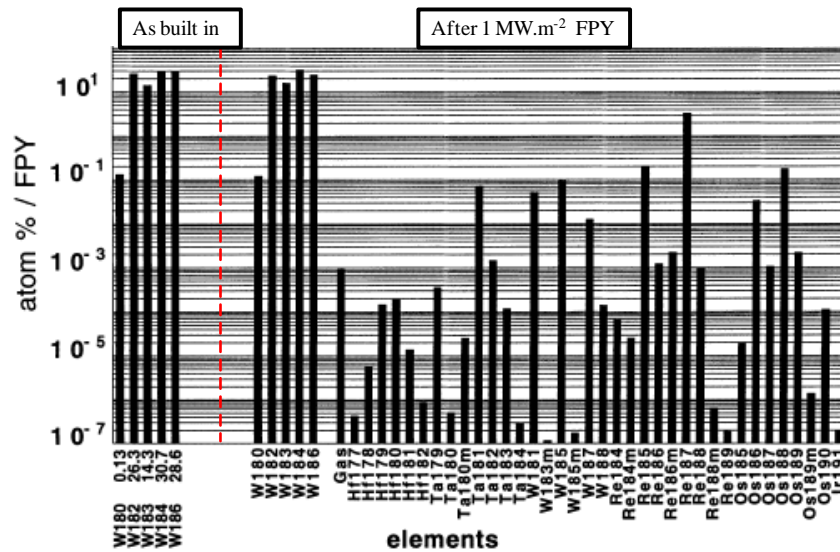


Figure I.7 : Les produits de réaction, pour un tungstène pur, après une année de fonctionnement à pleine puissance (FPY) du réacteur. Au début, la composition isotopique naturelle est prise, voir sur le côté gauche [35].

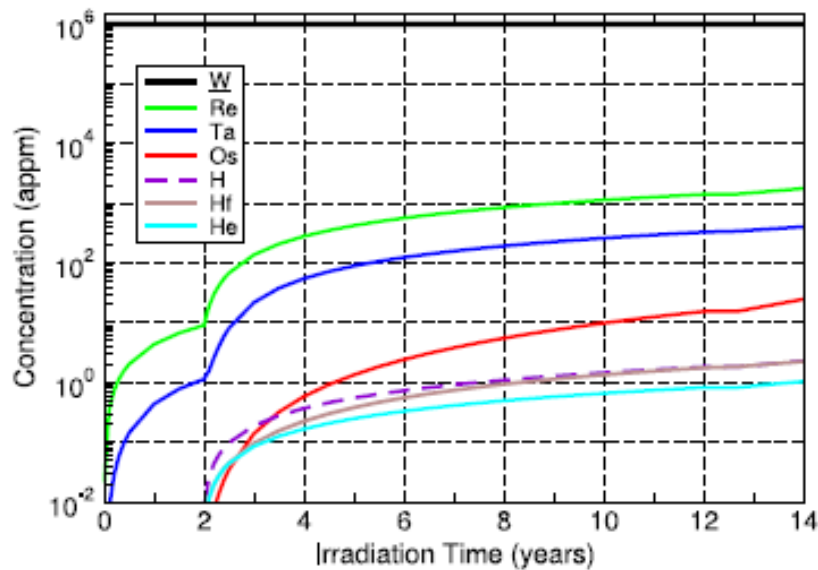


Figure I.8 : Transmutation du tungstène pendant une campagne d'irradiation neutronique dans ITER pendant 14 années de fonctionnement du réacteur, obtenue par simulation [43].

- Les neutrons induiront des **déplacements atomiques**, qui conduiront à un désordre du réseau des matériaux cristallins de première paroi. Ils laisseront place à des sites inoccupés, les lacunes, et introduiront des interstitiels. Ce processus d'endommagement sera détaillé par la suite. Ces lacunes ou interstitiels peuvent être des pièges pour les gaz produits, comme l'hélium et les isotopes de l'hydrogène, ce qui peut entraîner un gonflement du matériau [40]. Dans le cas

d'ITER le niveau de déplacement atomique subi par le tungstène constituant le divertor est de l'ordre de 3.5 dpa par an [41] et environ 30 dpa par an pour DEMO [44].

Tous ces processus vont généralement accroître la dégradation des propriétés thermo-physiques et mécaniques des matériaux face au plasma.

Dans cette étude nous nous sommes intéressés particulièrement à l'endommagement du tungstène par déplacements atomiques générés par l'irradiation neutronique et l'implantation de flux intenses de particules alpha conduisant à l'introduction d'hélium.

I.2.3. Processus de création des défauts par irradiation ou par implantation

Avant d'aborder cette partie, il apparaît nécessaire de faire une mise au point sur l'énergie seuil de déplacement dans le tungstène.

Energie seuil de déplacement : nommée E_d , c'est l'énergie minimale nécessaire pour déplacer un atome de son site, en d'autres termes l'énergie de création d'une paire de Frenkel constituée d'une lacune et d'un atome en position interstitielle générée lorsqu'un atome quitte sa position normale pour venir en position interstitielle. Cette énergie (E_d) varie selon la direction cristallographique du matériau. Dans la littérature, les valeurs de l'énergie seuil de déplacement pour le tungstène sont très variées, elles sont comprises entre 40 eV et 100 eV [45-47]. La valeur de 90 eV est celle qui est la plus utilisée et que l'on retrouve dans plusieurs articles [48, 49], notamment, dans la thèse de P.E. Lhuillier [1]. Pour cette étude, nous utiliserons pour E_d la valeur de 90 eV.

Lorsqu'une particule (ou un ion) d'énergie initiale E_i est projetée sur une cible en tungstène et pénètre celui-ci, elle perdra son énergie en interagissant avec les atomes de la cible par différents processus de collision inélastique (interaction électronique) ou élastique (interaction nucléaire). Ainsi la perte d'énergie de la particule incidente sera la somme des pertes d'énergie électronique, $(\frac{dE}{dx})_{\text{Electronique}}$, et des pertes d'énergie nucléaire, $(\frac{dE}{dx})_{\text{Nucléaire}}$. Le parcours de l'ion incident dépend fortement de sa masse et de son énergie. Un ion lourd de tungstène (W) de 20 MeV, cédera localement une énergie d'interaction électronique de 9.56 keV/nm (**Figure I.9**), beaucoup plus grande que celle d'un ion léger d'hélium (^4He) de 20 MeV qui cédera 0.23 keV/nm (**Figure I.10**). Ainsi la profondeur d'arrêt maximale des ions va dépendre de la masse et de l'énergie de l'ion incident. En fin de parcours, l'ion perdra son énergie de façon prépondérante par interaction nucléaire en générant des déplacements des atomes de la cible.

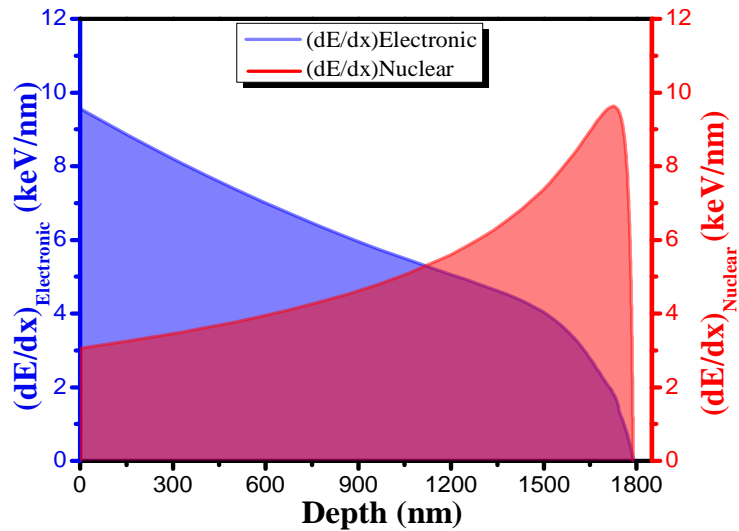


Figure I.9 : Les pertes d'énergie par interaction nucléaire et électronique dans le tungstène en fonction de la profondeur pour un ion lourd de W 20 MeV, calculées avec SRIM.

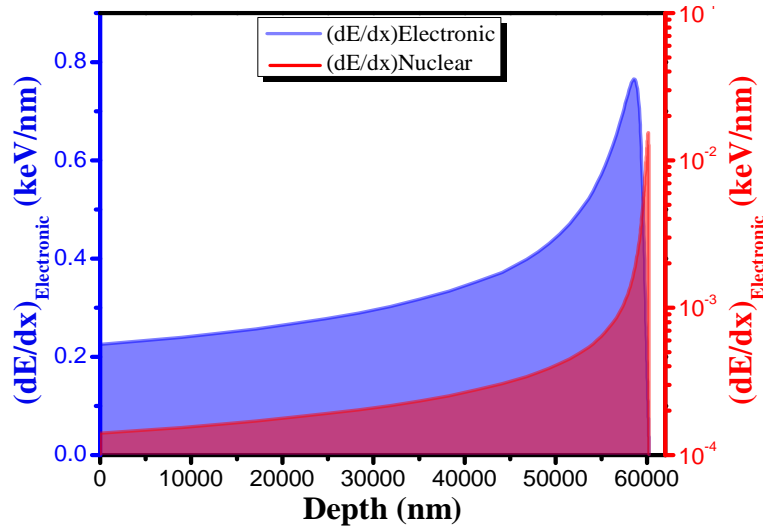


Figure I.10 : Les pertes d'énergie par interaction nucléaire et électronique dans le tungstène en fonction de la profondeur pour un ion lourd de ^4He 20 MeV, calculées avec SRIM.

Dans les métaux, les collisions élastiques sont les principales responsables des défauts générés par les conditions d'irradiations ou d'implantations investiguées dans ce travail.

Lorsqu'un ion d'énergie incidente E_i et de masse M_1 entre en collision avec un atome de la cible au repos de masse M_2 , il lui communique une certaine énergie. Cette énergie nommée E_T , dépend de l'angle de diffusion φ de l'atome cible et s'écrit :

$$E_T = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_i \cdot \cos \varphi \quad \text{I. 4}$$

Dans le cas où $M_1 = M_2$, l'énergie transmise est :

$$E_T = E_i \cdot \cos \varphi \quad \text{I. 5}$$

Lorsque le choc est frontal ($\varphi = \pi$) entre l'ion incident et l'atome de la cible, cela produit le plus grand transfert d'énergie appelé l'énergie transmise maximale E_{Tmax} qui s'écrit :

$$E_{Tmax} = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_i \quad \text{I. 6}$$

Si $M_1 = M_2$ on a :

$$E_{Tmax} = E_i \quad \text{I. 7}$$

Les atomes déplacés directement par la particule incidente sont désignés par l'acronyme PKA qui signifie en anglais « Primary Knock on Atoms ». Si l'énergie E du PKA (E_{PKA}) est inférieure à l'énergie seuil de déplacement (E_d), l'atome de la cible n'a pas assez d'énergie pour sortir de son site, dans ce cas il n'y aura pas de création de paire de Frenkel. En revanche, lorsque $E_{PKA} \approx E_d$, l'atome de la cible sera éjecté de son site et créera une paire de Frenkel. De plus, si $E_{PKA} > E_d$, l'atome de la cible va être déplacé de son site. Ainsi si leur énergie de recul est assez importante, ces PKAs pourront à leur tour déplacer d'autres atomes de la cible, ce qui conduit à générer des cascades de collisions (**Figure I.11**) et se traduit par la formation d'un ensemble d'atomes déplacés dans des zones cristallines plus ou moins désordonnées.

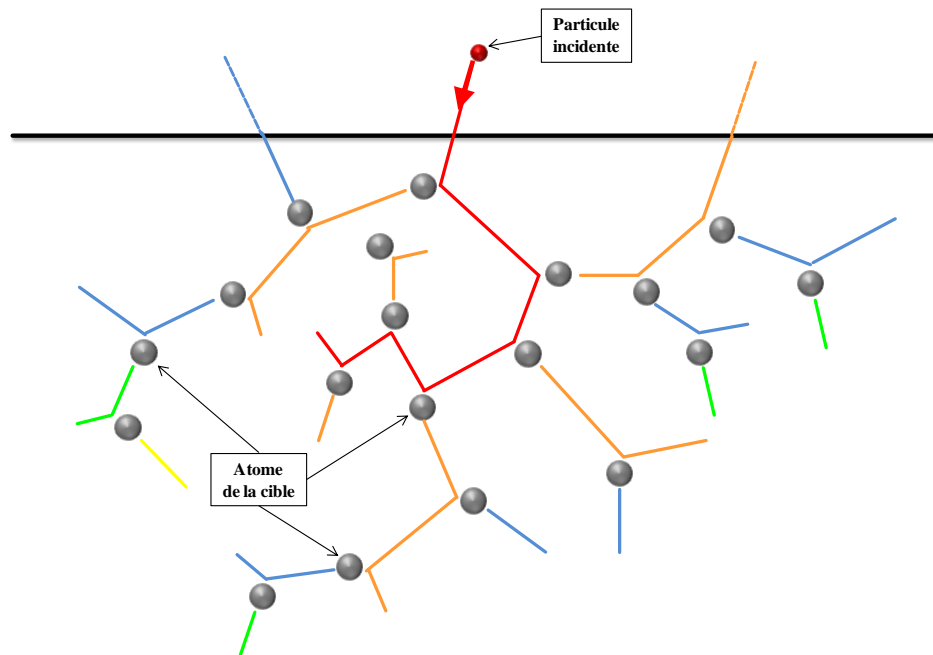


Figure I.11 : Illustration schématique d'une cascade de collision. La ligne noire épaisse représente la position de la surface et les lignes plus minces les trajectoires de la particule incidente et des atomes de la cible déplacés qui collisionnent les autres atomes de la cible. Les lignes rouges, oranges, bleues, vertes et jaunes illustrent respectivement les KAs (Know-on Atoms) primaires, secondaires, tertiaires, quaternaires et quinquénaires.

Ci-dessous (**Figure I.12**) un exemple de simulation SRIM de l'endommagement induit par un ion incident (W 150 keV) dans le tungstène générant des cascades de collisions.

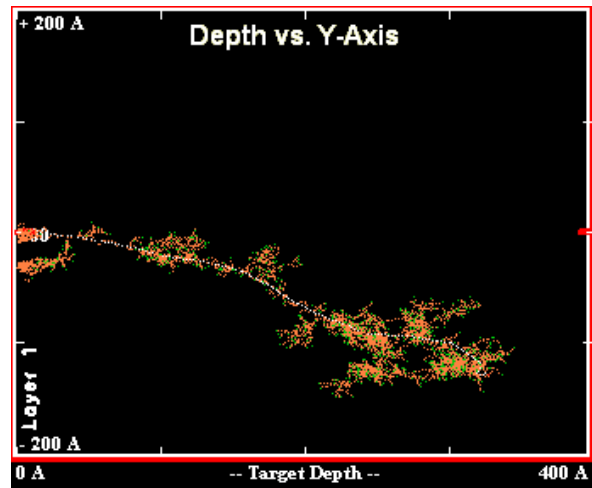


Figure I.12 : Simulation SRIM de la trajectoire des ions de recul dans le cas d'une irradiation avec un ion W 150 keV dans le tungstène. Les zones colorées en orange et vert représentent des cascades de collisions générées par les premiers atomes de reculs (PKA)

Ainsi la caractérisation du niveau d'endommagement induit par irradiation se fait en déterminant le nombre de déplacements par atome (dpa) de la cible. Il peut être estimé en utilisant des logiciels de simulation, notamment parmi ceux qui sont les plus utilisés, MARLOWE [50] et SRIM [51], simulant la trajectoire des ions incidents et des pertes d'énergie dans la matière. La différence fondamentale entre ces deux logiciels de simulation est que le code MARLOWE prend en compte l'arrangement cristallographique du matériau tandis que SRIM ne tient pas compte de cet arrangement. En effet le matériau est considéré comme étant amorphe tout en respectant la densité de sa structure. Dans ce travail nous avons particulièrement utilisé le logiciel de simulation SRIM pour calculer les niveaux d'endommagement que nous avons souhaité induire dans les échantillons de tungstène. Entre outre, le logiciel SRIM permet d'obtenir et d'évaluer les profils d'endommagement en fonction de la profondeur ainsi que ceux des ions incidents. Le choix de matériau cible dans SRIM implique un choix de l'énergie seuil de déplacements E_d . Notez que les phénomènes de recombinaisons entre les atomes en position interstitielle et les lacunes ne sont pas pris en compte, ce qui peut conduire à une augmentation du nombre de lacunes comparé à celui mesuré après irradiation. De plus cet outil ne permet que d'estimer les déplacements atomiques globaux (et non locaux) en fonction de la profondeur. Les résultats obtenus ne reflètent pas leur distribution locale ni l'effet des pertes électroniques sur cette distribution.

I.2.4. Défauts d'irradiation connus dans le tungstène

I.2.4.1. Les différents types de défauts ponctuels

L'irradiation ou l'implantation de particules dans les matériaux peuvent induire plusieurs types de défauts ponctuels. Parmi ces défauts, les plus simples sont cités ci-dessous (**Figure I.13**) :

- Les lacunes (v) : ce défaut correspond à un site atomique vacant du réseau cristallin.

- Les auto-interstitiels (SIA : Self Interstitial Atom) : il s'agit d'un atome qui a été déplacé de son site et se trouve dans les espaces vides du réseau cristallin.
- Les impuretés : la présence d'une impureté, c'est-à-dire un atome dont la nature est différente des constituants des atomes du réseau cristallin, peut être en position interstitielle ou substitutionnelle ou former des complexes avec les lacunes ou les interstitiels.

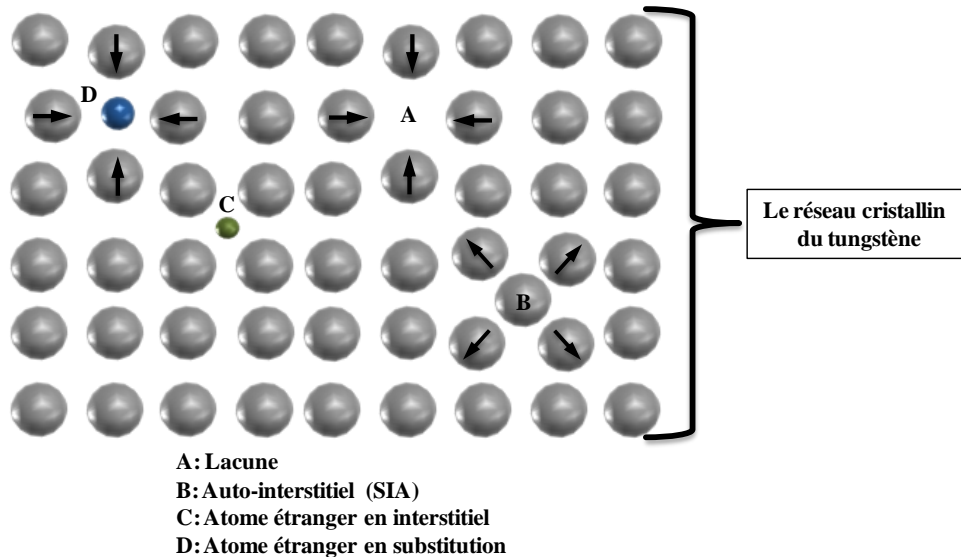


Figure I.13 : Les types de défauts ponctuels simples dans le tungstène. (A) lacune. (B) Auto-interstitiel (SIA). (C) Atome étranger en interstitiel. (D) Atome étranger en substitution.

Ces défauts peuvent s'amasser pour former des défauts de taille plus importante. Il existe des défauts de types boucles de lacunes ou d'interstitiels, amas (clusters) lacunaires (mv), amas d'interstitiels (impuretés ou non), des défauts complexes (lacunes-impuretés), puis des défauts tels que les dislocations, les bulles, les cavités, qui sont des défauts plus étendus.

1.2.4.2. Les énergies de formation des défauts : SIA et monolacune (v)

Les valeurs des énergies de formation des défauts peuvent être estimées par calcul numérique en utilisant une méthode ab-initio, telle que la Théorie de la Densité Fonctionnelle (DFT). Cependant peu de données expérimentales sont disponibles.

Certains auteurs ont réalisé des calculs numériques pour déterminer les énergies de formation pour différentes configurations des auto-interstitiels (SIA). Les résultats montrent que les auto-interstitiels en configuration « dumbbell », où l'atome supplémentaire partage un site du réseau cristallin avec un autre atome, $\langle 110 \rangle$ [52, 53] et $\langle 111 \rangle$ [54, 55] sont les plus stables. De plus, D. Nguyen-Manh et al [54], montrent par des calculs DFT en utilisant le code PLATO [56], qu'il existe une différence d'énergie de formation entre la configuration $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, avec $E_{\langle 110 \rangle}^f - E_{\langle 111 \rangle}^f = 0.29$ eV. Récemment, L. Ventelon et al [57], montre aussi par des calculs DFT en utilisant le code SIESTA [58] que l'auto-interstitiel avec la

configuration $\langle 111 \rangle$ a l'énergie de formation la plus faible, et la configuration $\langle 110 \rangle$ devrait avoir une énergie d'environ 0.3 eV supérieure à celle de la configuration $\langle 111 \rangle$, qui est de 10.53 eV [57].

En ce qui concerne la monolacune (v pour vacancy), l'énergie de formation a été déterminée expérimentalement et par calcul (DFT, potentiels empiriques). Les données expérimentales rapportées dans la littérature montrent que les valeurs de l'énergie de formation de la monolacune sont très dispersées et sont comprises entre 3.1 eV [59] et 4.0 eV [59, 60]. C. Becquart et *al* [55], ont obtenus par calcul DFT la valeur de 3.11 eV. Récemment, des valeurs de l'énergie de formation de la monolacune ont été calculées par L. Ventelon et *al* [57] par DFT en utilisant les codes SIESTA et PWSCF, ils ont obtenu respectivement la valeurs 3.22 eV et 3.17 eV. L'article [59], récapitule des valeurs calculées de l'énergie de formation de la monolacune obtenues par différents auteurs.

1.2.4.3. Les énergies de migration des défauts : SIA et monolacune (v)

L'orientation cristalline ou la configuration de l'auto-interstitiel (SIA) sont des paramètres importants pour la migration de celui-ci. L'énergie de migration des SIA déduite expérimentalement par différents auteurs s'étend de 0.08 eV [59] à 0.054 eV [61]. Dans l'article [61], les auteurs ont déterminé la valeur de l'énergie de migration des SIA en mesurant expérimentalement la résistivité après irradiation avec des électrons de 3 MeV à 4.5 K sur des monocristaux de tungstène. Il est intéressant de noter que les calculs DFT réalisés par D. Nguyen-Manh et *al* [54], en utilisant le code PLATO, prévoit que l'énergie de migration de l'auto-interstitiel pour la configuration $\langle 111 \rangle$ est de 0.05 eV dans le tungstène. Cette valeur est en bon accord avec celle mesurée expérimentalement de 0.054 obtenue par F. Dausinger et *al* [61]. Les calculs plus récents réalisés par P.M. Derlet et *al* [62] en utilisant le potentiel dérivé prévoit une valeur de 0.013 eV pour l'énergie de migration des SIA. H. Tanimoto et *al* [63], ont mesuré expérimentalement l'anélasticité dans le tungstène après irradiation avec des électrons de 2 MeV à 5 K et des protons de 20 MeV à 1.5 K. Ces derniers ont proposé que les interstitiels sont mobiles en-dessous de 1.5 K, ce qui signifie que l'énergie de la migration est proche de 0 [59].

Concernant l'énergie de migration de la monolacune (v), les données expérimentales obtenues par certains auteurs varient entre 1.68 eV et 2.02 eV [64]. Cependant, C. Becquart et *al* [55] ont obtenus par calcul ab-initio la valeur de 1.66 eV. De plus, L. Ventelon et *al* [57] ont obtenus par calculs DFT en utilisant le code SIESTA, une valeur de l'énergie de migration de la monolacune qui est en bon accord avec la valeur expérimentale de 1.7 ± 0.1 eV reportée dans l'article [65].

1.2.4.4. Les énergies de liaison entre les défauts (SIA, v) et les impuretés

Dans le tungstène, les impuretés présentes même en petite quantité peuvent se lier avec les monolacunes et les interstitiels et changer leur mobilité. Les énergies de liaison ont été déterminées à l'aide de calculs ab-initio réalisés par C. Becquart et *al* [59, 66] pour quelques impuretés possibles et fréquentes dans le tungstène commercial et sont présentées dans le

Tableau I.3. Parmi toutes les impuretés possibles, le carbone (C) et le Molybdène (Mo) sont des impuretés natives trouvées dans le tungstène, leur présence étant liée à la technique de préparation. Le Rhénium (Re) est une impureté qui peut être obtenue par la transmutation du tungstène engendrée par l'irradiation neutronique. L'hydrogène (H) va porter atteinte à la surface du divertor ainsi que l'hélium (voir **section I.2.5**). Ainsi, le carbone (C) se lie fortement à la fois avec la monolacune (v) et SIA. Le molybdène (Mo) n'apparaît pas établir des interactions significatives avec v , contrairement au Re. Par contre, Mo et Re établissent des interactions plus ou moins fortes avec les SIA. En outre, l'énergie de liaison de H n'est pas négligeable avec v et SIA. Les valeurs de l'énergie de liaison de v et SIA avec chaque impureté, donnent une idée exhaustive de la température (agitation thermique) qu'il faudrait fournir pour les dissocier.

Impuretés	H	C	Mo	Re	Unité
Auto-interstitiel (SIA)	0.33	0.62	0.44	0.8	eV
Monolacune (v)	1.22	2.01	0.04	0.23	eV

Tableau I.3 : Energie de liaison de quelques impuretés liées avec la monolacune et l'auto-interstitiel dans le tungstène, calculé par C. Becquart et al [59, 66].

Dans une étude précédente [1], l'influence de la concentration des impuretés dans le tungstène sur l'évolution des caractéristiques d'annihilation des positons a été étudiée. Des échantillons de tungstène de basse pureté (99.95%. wt : 500 wt. ppm) et de haute pureté (99.999%. wt : 10 wt. ppm) ont été implantés avec des ions ^3He 800 keV à la fluence de $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, induisant majoritairement des défauts lacunaires de type monolacune, puis recuits à différentes températures. Les résultats qui ont été obtenus par Spectroscopie d'Annihilation de Positons, montrent que la teneur en impureté a des conséquences sur l'évolution de la distribution en profondeur des défauts et cela s'observe sur les couches de proche surface et pour des températures de recuits supérieures à 1073 K. Plus la teneur en impureté est faible, plus l'élimination des défauts se fait de manière plus efficace dans la région de proche surface.

1.2.4.5. Autres types de défauts lacunaires dans le tungstène : bilacune, amas lacunaires

La bilacune ($2v$) et les amas lacunaires (mv) sont des défauts lacunaires qui peuvent être créés par la migration et l'agglomération des monolacunes. La bilacune constituée de deux lacunes est le défaut le plus simple des amas lacunaires (clusters en anglais). Dans la littérature, les valeurs théoriques de l'énergie de liaison de la bilacune dans le tungstène sont controversées. En effet, des calculs de potentiels empiriques [67, 68] montre que la valeur de l'énergie de liaison de la bilacune est positive (attractive) jusqu'à la position du second voisin, tandis qu'elle devient négative (répulsive) pour le troisième, cinquième et sixième voisin selon R.A. Johnson et al [67]. K.C. Mundim et al [69], extraient d'un modèle de potentiel non-empirique des valeurs de l'énergie de liaison de la bilacune dans le tungstène en fonction de la distance, **Figure I.14**. Ils ont prédit une énergie de liaison négative pour la

bilacune en premier voisin. Cette prédiction est en accord avec les calculs ab-initio réalisés par C. Becquart et *al* [55], qui prédisent que deux lacunes ont tendance à se repousser l'une de l'autre, et cela est valable même si elles sont situées en cinquième voisin. Les calculs DFT proposés par L. Ventelon et *al* [57], montrent que les énergies d'interaction sont négatives entre deux lacunes du premier au cinquième voisin et sont donc en très bon accord avec celles prédites par C. Becquart [55].

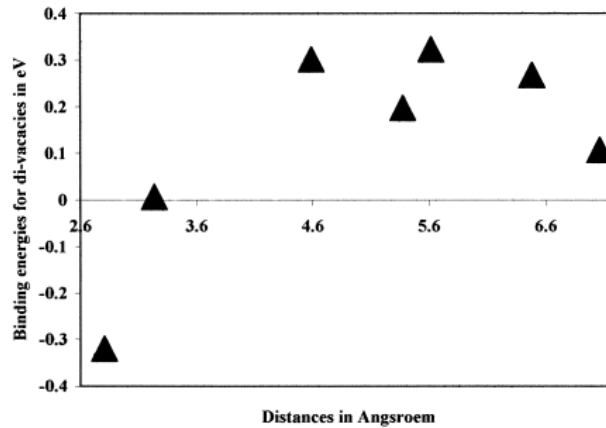


Figure I.14 : Les valeurs des énergies de liaison pour la bilacune dans le tungstène à différentes distances obtenues par simulation utilisant les potentiels non-empiriques [69].

Pour les amas lacunaires (clusters), les calculs de C. Becquart et *al* [59], prédisent que l'énergie de liaison entre plus de deux lacunes devient positif que lorsque le nombre de lacunes formant l'amas est plus grand que 3 et l'énergie de liaison a tendance à augmenter avec le nombre de lacunes constituant l'amas lacunaire, comme on peut le voir dans la **Figure I.15**.

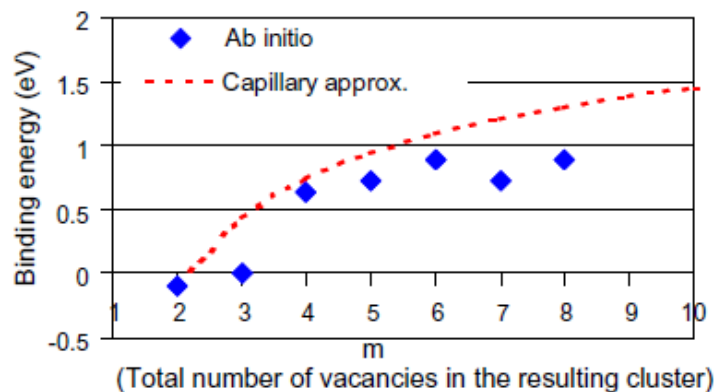


Figure I.15 : Énergie de liaison (eV) d'une lacune à un amas lacunaires selon la réaction $(m+1)v + v \rightarrow mv$ [59].

D'autre part, C. Becquart, a également déterminé l'énergie de liaison d'un SIA à un amas de SIA pour une taille de cluster contenant jusqu'à 7 SIA (**Figure I.16**), en utilisant le code VASP (Vienna Ab-initio Simulation Package). Les énergies de liaison sont élevées, ce qui indique que la dissociation d'un SIA d'un amas de SIA se fait seulement à des températures élevées.

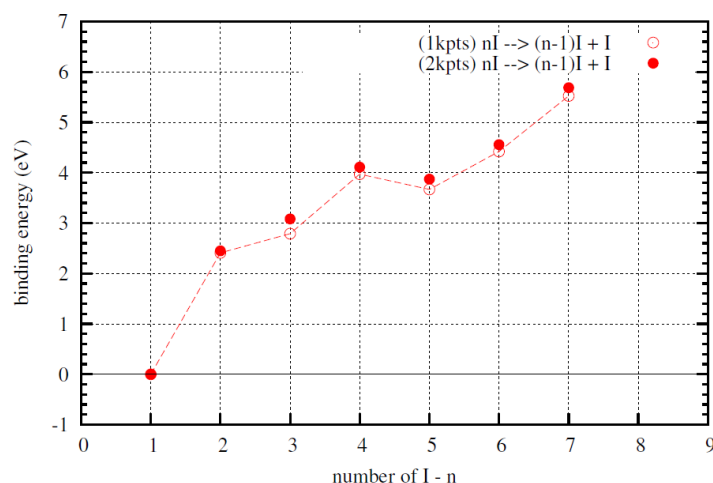


Figure I.16 : Énergie de liaison (eV) d'un interstitiel (SIA) à un amas d'interstitiels, récemment calculées par C. Beccart.

I.2.4.6. Caractéristiques d'annihilation de positons dans le tungstène

La Spectroscopie d'Annihilation de Positons (voir **chapitre II, section II.5 page 63**) est une technique qui permet entre autre d'identifier la nature des défauts de type lacunaires dans les matériaux solides, en mesurant le temps de vie des positons qui peut varier selon la densité électronique au niveau du site de l'annihilation et fournit des informations sur le volume libre des défauts lacunaires. Le **Tableau I.4**, résume des valeurs expérimentales et théoriques des caractéristiques d'annihilation de positons de différents défauts lacunaires dans le tungstène disponibles dans la littérature.

La valeur expérimentale du temps de vie des positons dans la matrice sans défauts, « lattice », du tungstène varie entre 102 ps [70, 71] et 116 ps [72]. Dans les articles [70-72], l'erreur expérimentale n'est pas représentée. Les valeurs théoriques et expérimentales du temps de vie des positons pour le « lattice » du tungstène sont en bon accord (**Tableau I.4**).

Des expériences ont été réalisées sur un échantillon de tungstène préalablement recuit à 1873 K pendant une heure sous vide et ensuite irradié avec des ions ^3He 800 keV à la fluence de $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, induisant principalement des défauts de type monolacunes (v) [73]. Il a été rapporté que la valeur du temps de vie des positons pour la monolacune est de 200 ± 0.4 ps. Cette valeur expérimentale est très proche de celle qui a été déterminée théoriquement par T. Troev et al [74] (199.7 ps) et récemment par P. Straikov et al [75] (193 ps).

	Temps de vie des positons (ps)	
	Expérimental	Théorique
Lattice W	102 [70, 71] 102±3 [76] 105 [77-80] 116 [72]	101 [75, 83] 107.6 [74]
Monolacune (v)	>165 [76] 190 [81] 200±0.4 [73] 200±2 [1]	193 [75] 199.7 [74]
mv (m=2)	424 [77]	226 [75] 230 [74]
Cavité		>437 [74]
Dislocation vis		130 [75]
Dislocation coin		161 [75]
Boucle de dislocation	150 [82] 153±2 [76]	

Tableau I.4 : Valeurs expérimentales et théoriques du temps de vie des positons de différents types de défauts lacunaires dans le tungstène.

Le temps de vie des positons des amas lacunaires dans le tungstène en fonction de leur taille a également été calculé par T. Troev et *al* [74] (**Figure I.17**). Le temps de vie des positons augmente et tend vers une saturation autour de la valeur de 437 ps correspondant au temps de vie des positons dans des amas lacunaires contenant 37 lacunes.

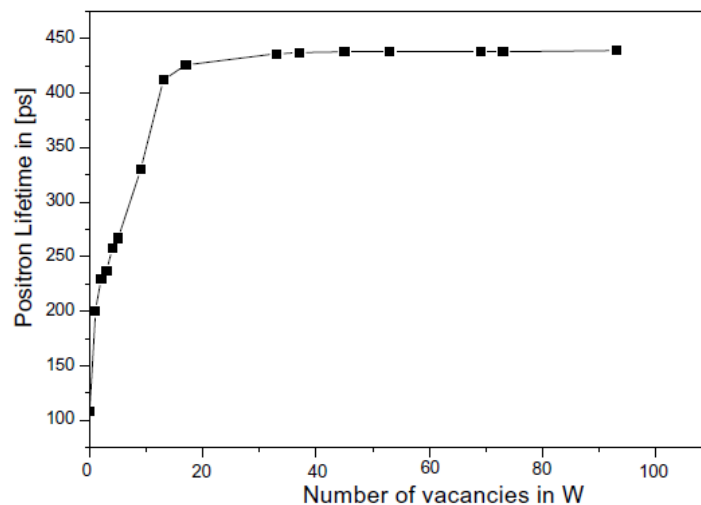


Figure I.17 : Corrélation entre le temps de vie des positons et le nombre de lacunes dans un amas lacunaire dans le tungstène [74].

I.2.4.7. Evolution des défauts en fonction de la température

La nature et la localisation des défauts induits par irradiation peuvent évoluer sous l'effet de la température. L'énergie apportée par la température permet aux défauts de franchir les barrières de potentiels qui les maintiennent stables et d'accélérer les différents processus qui peuvent être divisés en cinq stades :

Stade 1 : la recombinaison des paires de Frenkel, c'est-à-dire lorsque des lacunes et interstitiels se retrouvent au voisinage l'un de l'autre, et se recombinent.

Stade 2 : la migration des interstitiels entraînant leur combinaison entre eux ou à plus grande distance avec des lacunes ou des impuretés.

Stade 3 : la migration des lacunes générant leurs agglomérations entre elles pour former de plus gros défauts (amas lacunaires).

Stade 4 : mobilité des amas d'interstitiels étendus, dislocation.

Stade 5 : L'élimination des amas lacunaires par dissociation.

Différents auteurs ont étudié par Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS) l'évolution de ces défauts d'irradiation dans le tungstène en fonction de la température dans le cadre de plusieurs travaux de recherches. A. Debelle et *al* [84] ont étudié par PAS le comportement en température des défauts lacunaires induits dans des échantillons de tungstène par implantation d'ions ^3He 800 keV avec des fluences variant entre 10^{14} cm^{-2} et 5×10^{16} cm^{-2} . Un stade de recuit correspondant à la migration de la monolacune qui se situe entre 523 et 573 K a été identifié. Par ailleurs, dans la région sondée par les positons, la présence de défauts de type monolacune a été évoquée dans une de leur précédente étude [85] et a été récemment confirmée par P.E. Lhuillier [1, 73] en mesurant le temps de vie des positons dans cette région. Ce stade de recuit a déjà été observé dans le passé par plusieurs auteurs [80, 86-88], mais à des températures allant de 553 K à 873 K. La détermination exacte de la température de migration de la monolacune semble donc être difficile. Cependant, l'écart entre les températures de migration de la monolacune peut être lié aux conditions d'implantation ou d'irradiation appliquées. En effet, P.M.G. Nambissam et *al* [87], ont étudié par PAS des échantillons de tungstène irradiés avec des particules alpha d'énergie variable jusqu'à 32 MeV à la fluence de 4.3×10^{17} cm^{-2} à une température avoisinant 373 K. Ils ont suggéré une gamme de température allant de 673 K à 773 K, correspondant à la migration et à l'agglomération de la monolacune. P.E. Lhuillier [1] a montré que dans le cas des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^3He 800 keV, la température à laquelle la migration/agglomération des monolacunes s'effectue dépend de la fluence d'implantation et donc de l'endommagement. Ainsi la migration de la monolacune a été observée à plus faible température pour l'échantillon implanté à fort dpa (fluence de 5×10^{16} cm^{-2} correspondant à 0.13 dpa), soit à partir de 473 K au lieu de 623 K pour la faible fluence (10^{15} cm^{-2} , correspondant à 2.5×10^{-3} dpa). Cette différence est liée à la concentration initiale en monolacune libre, permettant l'apparition de stades de migration et d'agglomération à basse température, lorsque celle-ci est élevée.

Dans les travaux de thèse de P.E. Lhuillier [1], le comportement en température de la monolacune dans le tungstène a été étudié. Une synthèse des différentes étapes d'évolution de la monolacune sont présentées sur la **Figure I.18**. Ainsi, trois étapes importantes sont clairement identifiées : (i) une **étape** attribuée au **stade de migration de la monolacune** suggérée intervenir entre 473 K et 623 K entraînant l'agglomération des monolacunes entre elles pour former des amas lacunaires, (ii) une **deuxième étape correspondant à la stabilité des amas lacunaires** entre 623 et 873 K, (iii) et une **dernière étape** attribuée au **stade d'élimination des amas lacunaires** à partir de 873 K.

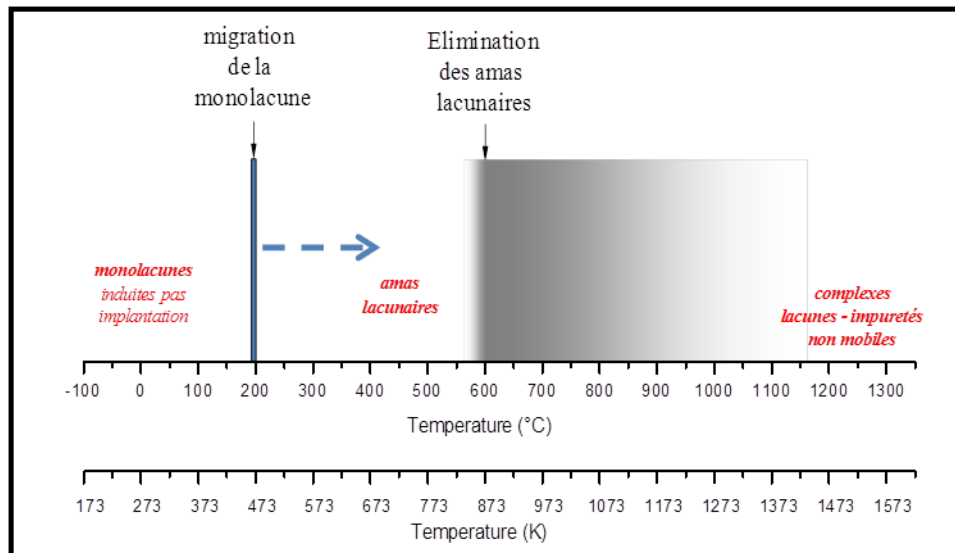


Figure I.18 : Schéma des étapes d'évolution de la monolacune dans le tungstène [1].

Concernant la migration des interstitiels (SIA), plusieurs auteurs ont étudié les propriétés énergétiques et cinétiques des SIA dans le tungstène en réalisant des expériences de recuits isochrones [61, 89], des observations par microscopie ionique à effet de champ (ou Field Ion Microscopy, FIM en anglais) [90, 91] et des mesures de relaxation mécanique [53]. F. Maury et *al* [89] ont investigué des recuits isochrones sur des échantillons de tungstène monocristallins irradiés avec des électrons d'énergie variant entre 1.4-1.8 MeV et ont conclu que la migration à longue distance des interstitiels correspond à un pic secondaire apparaissant à environ 38 K. S. Okuda et *al* [53] ont rapporté une valeur de 15 K correspondant à l'énergie de migration des SIA et une valeur de 30 K qui pourrait correspondre à la dissociation des interstitiels et des impuretés. Récemment, W.H. Zhou et *al* [92], montrent par calculs de Dynamique Moléculaire que les interstitiels peuvent migrer thermiquement au moins à 12 K. Bien que de nombreuses expériences aient été menées sur le tungstène, la valeur de l'énergie de migration de l'interstitiel reste encore en débat.

I.2.5. Comportement de l'hélium dans le tungstène

Dans ITER le tungstène sera exposé à d'intenses flux d'hélium produit par la réaction de fusion. C'est pourquoi l'étude du comportement de l'hélium dans le tungstène s'avère primordiale pour tenter de comprendre les processus tels que la migration des atomes d'hélium, l'interaction de l'hélium avec les défauts présents dans la matrice en fonction de la température.

I.2.5.1. Energie de migration de l'hélium dans le tungstène

La migration de l'hélium dans la matrice du tungstène dépend de la température et de la structure cristallographique. À ce jour, de nombreuses études théoriques et expérimentales ont été consacrées à traiter les propriétés de l'hélium dans le tungstène.

A. Wagner et *al* [93], ont mesuré par FIM une énergie de migration de ^4He entre 0.24 eV et 0.32 eV, ce qui correspond respectivement à 90 K et 110 K. J. Amano et *al* [94] ont rapporté que le coefficient de diffusion de ^3He dans le tungstène de cristal parfait est :

$$D_{3\text{He}}(T) = 5.4 (\pm_{3.8}^{10.6}) \times 10^{-3} \exp \frac{-0.28}{kT} \quad \text{I. 8}$$

avec $D_{3\text{He}}$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, k constante de Boltzmann et T la température en kelvin.

M.J. Baldwin et *al* [95] ont mesuré les coefficients de diffusion de l'hélium dans le tungstène à 1120 K et 1320 K sont égaux à $D_{1120\text{K}} = (6.6 \pm 0.4) \times 10^{-12} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $D_{1320\text{K}} = (2.6 \pm 0.5) \times 10^{-11} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, respectivement. S. Kajita et *al* [96] ont étudié la formation de nanostructure de tungstène causés par irradiation hélium. Le coefficient de diffusion de l'hélium qui a été déduite à 1400 K est de $D_{1400\text{K}} = (1.0 \pm 0.1) \times 10^{-11} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Récemment en 2012, S.J. Zenobia et *al* [97], ont rapporté que le coefficient de diffusion de l'hélium évalué à 1173 K est de $D_{1173\text{K}} = 9 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Cette valeur du coefficient de diffusion est beaucoup plus grande que les résultats obtenus par M.J. Baldwin et S. Kajita. Les résultats expérimentaux sont dispersés et incompatibles dans une simple analyse qui ne tient pas compte des conditions d'expérience en particulier des sites de piégeage qui sont présent dans le matériau et/ou auront pu être créés pendant l'introduction de He.

Entre autre, J. Amano et *al* [94], ont également déterminés par FIM entre 90 K et 110 K une valeur de 0.28 eV pour l'énergie de migration de ^3He . Ainsi, d'après A. Warner et *al* et J. Amano et *al*, les atomes ^3He et ^4He ne sont pas mobiles en dessous de 90 K, mais ils sont très mobiles à 110 K. Les calculs d'atomistiques effectués par K.O.E. Henriksson et *al* [98] ont également obtenus une valeurs de 0.29 eV pour l'énergie de migration de hélium.

L'utilisation du code VASP par C. Becquart et *al* [99], a permis d'évaluer l'énergie de migration de l'hélium à environ 0.06 eV, beaucoup plus faible que celle obtenue par A. Wagner et *al* [93] et K.O.E. Henriksson et *al* [94]. Cet écart peut s'expliquer par le fait que, dans les expériences de A. Wagner et *al*, les atomes d'hélium ont tendance à former des amas très facilement grâce à la grande énergie de liaison entre atomes d'hélium et la forte concentration d'hélium implanté qui atteint 5%, par conséquent, l'énergie de migration de l'hélium devrait inclure la contribution des amas d'hélium [99]. En outre, il a été constaté que l'hélium peut devenir mobile même à des températures inférieures à 6 K dans les résultats expérimentaux de A.S. Soltan et *al* [100], où les concentrations d'hélium dans le tungstène étaient largement inférieures à 350 ppm.

I.2.5.2. Piégeage de l'hélium dans le tungstène

Les atomes d'hélium implantés dans le tungstène sont donc très mobiles déjà à basse température. Leur capacité à migrer sur de grandes distances dans la matrice peut les amener à sortir éventuellement du matériau. Toutefois, l'hélium peut rencontrer et se lier avec des pièges tels que les défauts et/ou les impuretés qui peuvent être des pièges plus ou moins profonds et donc inhiber sa migration. La configuration la plus stable pour l'interstitiel

d'hélium a été prévue pour être le site octaédrique d'après les calculs numériques de Dynamique Moléculaire réalisés par K.O.E. Henriksson et *al* [98]. En 2006, C. Becquart et *al* [99], ont calculé par ab-initio l'énergie d'un atome d'hélium dans différents sites cristallographiques. La position la plus stable pour un atome de He en interstitiel semble être le site tétraédrique. Récemment en 2012, J. Wang et *al* [101] ont calculé le potentiel He-W en fonction de la distance interatomique. Ces derniers ont rapporté que la configuration la plus stable obtenue pour interstitiel d'hélium est le site tétraédrique. Ces résultats sont en bon accord avec les calculs ab-initio effectués par C. Becquart et *al* [99].

Lorsque des atomes d'hélium sont introduits dans le tungstène sans qu'ils n'engendrent de défauts par déplacement atomique, soit ≤ 1000 eV pour ^4He et ≤ 1400 eV pour ^3He [1], ils peuvent former des petits clusters très stables [99, 102, 103]. Une étude en Microscopie Electronique à Transmission in situ (MET) réalisé par H. Iwakiri et *al* [104], a montré que dans le cas de l'implantation d'ions He d'énergie de 0.25 keV dans le tungstène, le piégeage d'hélium se produit indépendamment de la présence préexistante de défauts dans le tungstène et ont pu observé la formation de bulles d'hélium. Les calculs DM et DFT effectuées par K.O.E. Henriksson et *al* [98] ont également montré que les atomes d'hélium sont capables de se regrouper entre eux sans la présence préexistante de défauts dans le tungstène. Ce type de piégeage de l'hélium avec lui-même est appelé « self trapping ». De plus, l'énergie de liaison entre les deux atomes d'hélium (He-He) est élevée, près de 1 eV. Cette même valeur a été obtenue récemment par C. Becquart et *al* [66, 99] par simulation ab-initio, et les données du **Tableau I.5** [66], indiquent également qu'un atome d'hélium se lie toujours plus fortement avec un amas d'hélium quand le nombre d'atome d'hélium augmente.

Réaction	Energie de liaison (eV)
He + He \longrightarrow 2He	1.03
He + 2He \longrightarrow 3He	1.36
He + 3He \longrightarrow 4He	1.52
He + 4He \longrightarrow 5He	1.64

Tableau I.5 : Les énergies de liaison (eV) d'un atome d'hélium, à un cluster d'hélium, pour des atomes d'hélium en configurations interstitiels [66].

Les impuretés contenues dans le tungstène (H, C, Mo et Re) et les auto-interstitiels peuvent aussi piéger les atomes d'hélium. C. Becquart et *al* [66], ont calculé les énergies de liaison d'un atome d'hélium avec les impuretés et les auto-interstitiels par DFT, les valeurs sont regroupées dans le **Tableau I.6**.

	Energie de liaison (eV)				
	SIA	H	C	Mo	Re
He	0.94	0.20	0.37	0.21	0.02

Tableau I.6 : Les énergies de liaison d'un atome d'hélium liés avec des impuretés et auto-interstitiels (SIA) [59, 66].

L'énergie de liaison entre un défaut lacunaire de type monolacune (v) et l'hélium est très élevée et peut conduire à la forme d'un complexe (He-v) très stable. Le complexe He-v possède une énergie de dissociation, déterminée expérimentalement de 4.15 eV [86], ou calculée qui varie de 4.57 eV [55, 66] à 4.98 eV [101]. La dissociation d'un tel complexe intervient à des températures élevées. Des études expérimentales de Thermo-désorption de l'hélium (THDS) ont conduit à la détermination d'une température de dissociation autour de 1520 K [86]. Plus récemment, le suivi par NRA du relâchement de l'hélium implanté dans des échantillons de tungstène réalisé par P.E. Lhuillier et al [105], a montré une température de dissociation des complexes He-v autour de 1500-1600 K. Les calculs numériques réalisés par A. De Backer et al [106], prédisent une valeur plus faible de la température de dissociation des défauts complexes He-v et est estimée à 1400 K.

Les complexes He-v sont eux aussi des sites de piégeage de l'hélium, mais l'énergie de dissociation diminue lorsque le nombre d'atomes d'hélium dans une lacune augmente. Pour le complexe nHe-v, la température de dissociation d'un atome d'hélium du complexe est autant plus faible que n est grand [55, 86]. Dans le **Tableau I.7**, sont représentées les valeurs de l'énergie de liaison des complexes nHe-v ainsi que leur température de dissociation associée.

Réaction	Energie de liaison (eV)			Température de dissociation (K)			
$\text{He} + \text{v} \longrightarrow \text{He-v}$	4.15 ^a	4.57 ^b	4.98 ^c	1400 ^d	1520 ^a	1580 ^e	1500-1600 ^f
$\text{He} + \text{He-v} \longrightarrow 2\text{He-v}$	3.11 ^b			1220 ^a			
$\text{He} + 2\text{He-v} \longrightarrow 3\text{He-v}$	3.28 ^b			1130 ^a			
$\text{He} + 3\text{He-v} \longrightarrow 4\text{He-v}$	2.61 ^b			1080 ^a			
$\text{He} + 4\text{He-v} \longrightarrow 5\text{He-v}$	1.44 ^b			≈ 960 ^a			
$\text{He} + 5\text{He-v} \longrightarrow 6\text{He-v}$	2.08 ^b			≈ 960 ^a			

Tableau I.7 : Energie de liaison et température de dissociation des complexes nHe-v, avec n le nombre d'atome d'hélium. (a Ref [86], b Ref [55], c Ref [101], d Ref [106], e Ref [107], f Ref [105]).

En outre, les atomes d'hélium dans une lacune v révèlent un mécanisme très spécifique appelé « trap mutation ». L'association des atomes d'hélium dans un volume fini de la lacune va engendrer une augmentation du champ de contrainte avoisinant le complexe nHe-v. Dès lors où le remplissage des atomes d'hélium dans la lacune v atteint un certain seuil, le complexe nHe-v pourrait éjecter un auto-interstitiel dans la matrice par relaxation suivant la réaction ci-dessous (mécanisme décrit par H. Iwakiri et al [104]) :



Ainsi une lacune supplémentaire a été piégée par le complexe nHe-v. Ce type de piégeage est appelé piégeage par trap mutation.

Nous avons vu précédemment que les calculs DFT (ab-initio) ont montré que l'énergie de liaison de la bilacune (2v) est négative, ce qui signifie qu'elle n'est pas stable [55]. Néanmoins, C. Becquart et al [66], ont obtenu par calcul ab-initio une énergie de liaison

d'une lacune v au complexe He- v qui est positive. Ainsi, l'hélium peut jouer un rôle important dans la stabilité de la bilacune. **La Figure I.19** [59], représente l'évolution des énergies de dissociation d'une lacune (v) ou d'un atome d'hélium (He) sur un complexe de type $n\text{He}-mv$ en fonction du ratio n/m . On peut également observer que les complexes se lient fortement aux atomes d'hélium (l'énergie de dissociation est au moins supérieure à 2 eV). Il est également clair que plus le ratio n/m est élevé, plus l'énergie de dissociation d'une lacune est grande. A contrario, lorsque le ratio n/m augmente, l'énergie de dissociation d'un atome d'hélium diminue.

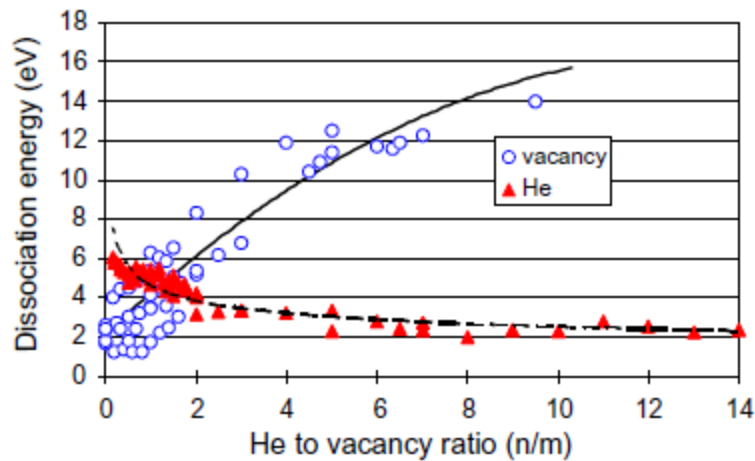


Figure I.19 : Énergies de dissociation d'un atome d'hélium ou d'une lacune sur un complexe de type $n\text{He}-mv$ en fonction du ratio n/m [59].

Dans les travaux de thèse de P.E. Lhuillier [1] des expériences MET réalisées sur un échantillon de tungstène implanté à 200 K avec des ions ^3He 500 keV à 10^{16} cm^{-2} , puis recuit à 1773 K, ont permis d'observer la présence de cavités ou bulles d'hélium intergranulaires et intragranulaires. Le diamètre moyen des cavités/bulles est de 36 nm (**Figure I.20**). Ces expériences montrent que certaines de ces cavités/bulles d'hélium peuvent être stables à haute température (1773 K). On peut supposer que ces cavités sont des bulles d'hélium car des mesures de profil d'hélium réalisées par Nuclear Reaction Analysis montrent que la totalité de l'hélium est restée piégée dans l'échantillon après recuit.

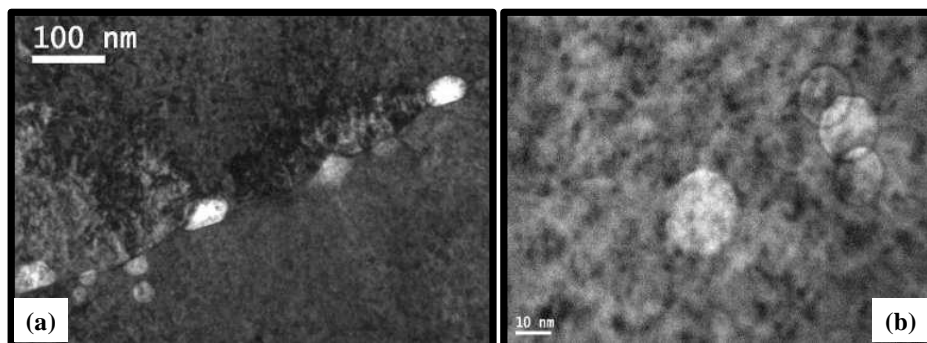


Figure I.20 : Clichés MET de bulles d'hélium (a) de forme ellipsoïde situées sur un joint de grain (intergranulaires), (b) de forme sphérique à l'intérieur d'un grain (intragranulaires), observées dans un échantillon de tungstène implanté à 200 K avec des ions ^3He 500 keV à 10^{16} cm^{-2} , puis recuit à 1773 K pendant 1h sous Ar & H_2 .

I.2.6. L'effet des cascades de collisions dans le tungstène

Dans la littérature il existe peu de données sur l'endommagement généré dans le tungstène par des cascades de collisions. Par contre, il existe de nombreuses études théoriques et expérimentales pour le fer (Fe). Même si le Fe et le W ont la même structure cristalline, cubique centré, il s'avère qu'ils peuvent présenter des différences, ce qui ne permet pas de faire des extrapolations avec évidence. Ces différences ont été attribuées aux différences de point de fusion, des énergies de formation et de migration des défauts, propres à chaque métal [108]. Néanmoins on peut trouver dans la littérature quelques résultats théoriques et expérimentaux.

D'un point de vue théorique, l'endommagement généré par irradiation dans le tungstène à été évalué par OKMC [106] et DM [108].

A. De Backer et *al* [106], ont calculé par OKMC l'évolution de la concentration des monolacunes en fonction de la fluence d'irradiation avec des ions ^3He 800 keV dans le tungstène. Le code OKMC a été paramétré à partir des propriétés des défauts calculées par DFT. Ces auteurs ont rapporté que la concentration de la monolacune n'évolue pas proportionnellement avec la fluence d'irradiation, à cause du phénomène de recombinaison entre les lacunes et les interstitiels (**Figure I.21**). De plus, la concentration des amas lacunaires mv et des autres défauts mixtes (nHe-v, nHe-mv et nHe-mI) n'augmente pas proportionnellement avec la fluence d'irradiation (voir **Tableau I.8**).

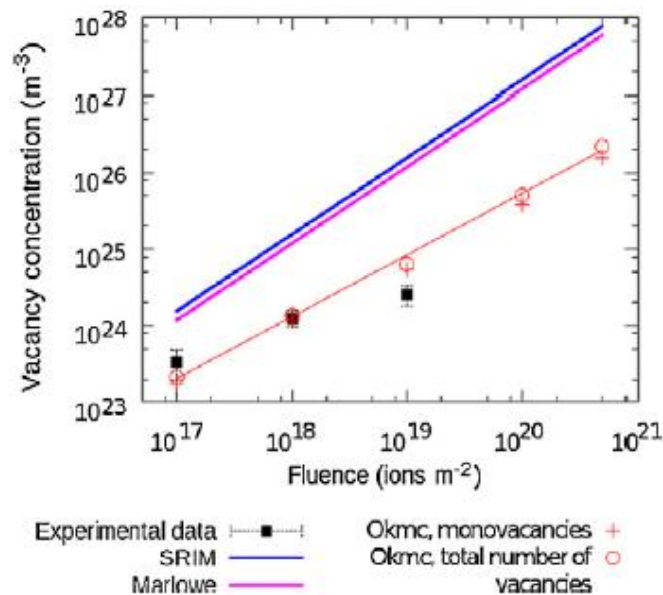


Figure I.21 : La comparaison entre la concentration de monolacunes dans le tungstène mesurée expérimentalement par PAS et celles calculées avec SRIM, Marlowe et le modèle OKMC (LAKIMOCA en utilisant Marlowe) [106].

Fluence Ions m ⁻²	Before the clustering (300 K)				
	Concentration of nHe.mI clusters, 10 ²⁴ m ⁻³		Concentrations of vacancy objects, 10 ²⁴ m ⁻³		
	nHe.mI	v	mv	nHe.v	nHe.mv
10 ¹⁷	0.0005	0.165	0.015	0.0028	0.0004
10 ¹⁸	0.011	1.31.17	0.13	0.026	0.003
10 ¹⁹	0.16	6.5	0.7	0.22	0.04
10 ²⁰	1.7	38	4.5	1.4	0.26
5 × 10 ²⁰	6.4	153	23	6.4	1.8

Tableau I.8 : Evolution de la concentration de la monolacune (v), des amas lacunaires pur (mv) et des défauts mixtes (nHe-v, nHe-mv et nHe-mI) en fonction de la fluence d'irradiation avec des ions ³He 800 keV dans le tungstène, calculé par A. De Backer et al [106].

C. Björkas et al [108], ont étudié l'endommagement induit par les cascades de collisions en fonction de l'énergie de recul entre 0.5 et 20 keV dans plusieurs métaux, soit le W, le Fe et le V, à l'aide de la simulation DM. Pour une énergie de recul donnée le nombre de paires de Frenkel (**Figure I.22.b**), la fraction de lacunes (**Figure I.23.b**) et d'interstitiels (**Figure I.24.b**), diminuent en fonction du temps, après la phase de collisions à environ 1 ps. Cette diminution est due à la recombinaison entre les lacunes et les interstitiels.

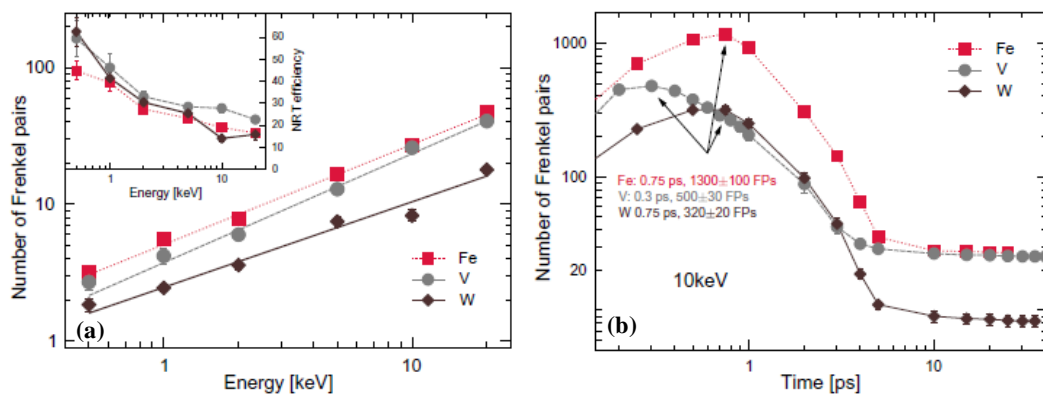


Figure I.22 : (a) Le nombre de paires de Frenkel après une cascade de collision dans le tungstène (W), le Fer (Fe) et le vanadium (v), en fonction de l'énergie de recul. La petite figure insérée en haut à gauche montre l'efficacité de la cascade (NRT) en fonction de l'énergie de recul. (b) Le nombre de paires de Frenkel en fonction du temps au cours d'une cascade de collision de 10 keV dans W, Fe et v [108].

De plus, les résultats de leurs calculs dans le cas du tungstène (W) montrent que le nombre de paires de Frenkel augmente avec l'énergie de recul, alors que l'efficacité de la cascade diminue. Cette efficacité passe de 80% pour une énergie de recul de 0.5 keV à environ 15% quand l'énergie de recul est de 10 keV (**Figure I.22.a**). La fraction d'interstitiels agglomérés en fonction de l'énergie de recul augmente fortement, en passant de 9% pour 0.5 keV à 72% pour 20 keV (**Figure I.24.a**), tandis que la fraction de lacunes agglomérées diminue en fonction de l'énergie de recul, de 35% pour 0.5 keV et passe à 15% pour 20 keV (**Figure I.23.a**). La diminution de la fraction de lacunes agglomérées dans le tungstène a été attribuée au fait que son point de fusion élevé entraîne l'augmentation de la

vitesse du front de recristallisation. Cela conduira à geler les lacunes (v) dans le réseau au lieu de migrer vers le centre de la cascade pour former des amas mv.

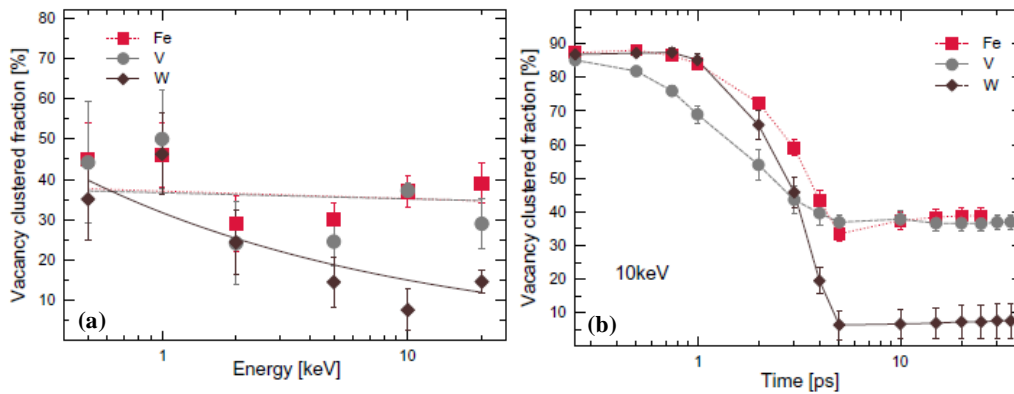


Figure I.23 : (a) La fraction de lacunes agglomérées après une cascade de collision en fonction de l'énergie de recul dans W, Fe et v. (b) La fraction de lacunes agglomérées dans W, Fe et v en fonction du temps pendant une cascade de collisions de 10 keV [108].

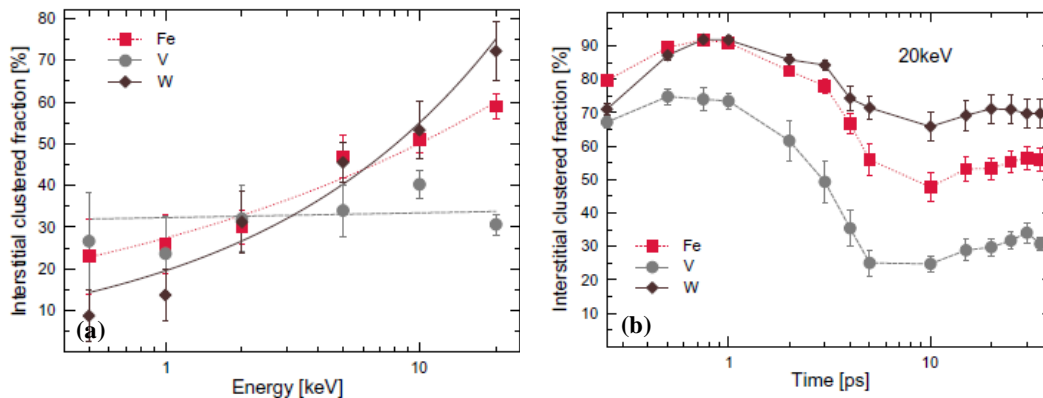


Figure I.24 : (a) La fraction d'interstitiels agglomérés après une cascade de collision en fonction de l'énergie de recul dans W, Fe et v. (b) La fraction d'interstitiels agglomérés dans W, Fe et v en fonction du temps pendant une cascade de collisions de 20 keV [108].

Selon les calculs DM effectués par J. Fickar et *al* [109] sur les cascades de collisions dans le tungstène réalisés pour différentes énergie de PKA, soit 10 keV, 20 keV, 50 keV, et en utilisant différent potentiels empiriques, ils ont rapporté que la fraction de lacunes agglomérées a tendance à augmenter entre 20 keV et 50 keV.

M. Fukuda et *al* [110], ont réalisé des observations par MET afin d'étudier l'évolution de la microstructure de W et W-xRe, où x est la concentration de Re fixée entre 3 et 26%, après irradiation neutronique à des doses de 3.4 et $3.7 \times 10^{25} \text{ n}\cdot\text{m}^{-2}$, soit 0.44 et 0.47 dpa. L'énergie des neutrons, E_n , est $> 0.1 \text{ MeV}$, et la température d'irradiation varie entre 804 et 856 K. Les résultats résumés dans le **Tableau I.9**, montrent que les irradiations induisent différents types de défauts tels que des « voids », des boucles de dislocations. La densité en nombre des voids pour les deux cas d'irradiations (voir **Tableau I.9**) est significativement plus élevée pour W que pour W-xRe. Des précipités ont été observés uniquement dans le cas de l'échantillon W-26%Re irradié à 0.47 dpa à 856 K. Dans le cas du W pur, lorsque la dose et la température d'irradiation augmentent, la taille des voids augmente tandis que leur densité en nombre

diminue. Par contre, la taille et la densité des boucles de dislocations diminuent quand la dose et la température d'irradiation augmentent.

Irradiation conditions	Specimen	Void		Dislocation loop		Precipitate	
		Diameter, d/nm	Density, $N/10^{22} \text{ m}^{-3}$	Diameter, d/nm	Density, $N/10^{22} \text{ m}^{-3}$	Diameter, d/nm	Density, $N/10^{22} \text{ m}^{-3}$
531 °C 0.44 dpa	Pure W	1.1	19.0	7.5	1.3	—	—
	W-3%Re	1.4	0.03	3.7	4.6	—	—
	W-5%Re	1.7	0.2	2.9	1.4	—	—
	W-10%Re	3.4	0.1	7.1	0.3	—	—
583 °C 0.47 dpa	Pure W	3.1	12.8	~3	<0.2	—	—
	W-3%Re	1.9	0.2	2.1	1.2	—	—
	W-5%Re	1.6	0.3	2.2	1.3	—	—
	W-10%Re	3.9	0.05	4.5	0.6	—	—
	W-26%Re	—	—	—	—	2.8	3.9

Tableau I.9 : La taille et la densité en nombre des défauts induits par irradiation neutronique dans des échantillons de W et W-Re [110].

T. Tanno et *al* [111], ont réalisé des irradiations dans des échantillons de W et W-xRe (x : concentration de Re 3-26%) avec des neutrons rapides à des doses de $1.3-12.0 \times 10^{25} \text{ n m}^{-2}$ (0.17-1.54 dpa), $E_n > 0.1 \text{ MeV}$, à des températures variant entre 673-1023 K. Ces derniers ont pu observer par MET, que la microstructure des échantillons irradiés est très sensible à la dose et à la température d'irradiation. Pour la dose d'irradiation de 1.54 dpa à la température de 1023 K dans W, seul des voids (cavités ou bulles) sont observés. Par contre, à des températures et doses d'irradiations inférieures, un mélange de boucles de dislocation et de voids (cavités ou bulles) a été observé (voir **Figure I.25**). La présence de Re favorise la formation de précipités (**Figure I.26**). Ces observations sont en bon accord avec celles de M. Fukuda et *al* [110].

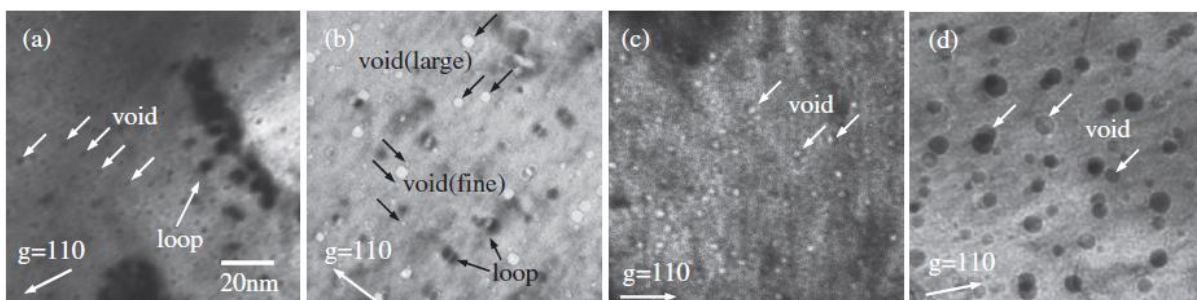


Figure I.25 : Observations par MET de la microstructure de W irradiés avec des neutrons rapides ($E_n > 0.1 \text{ MeV}$) à différentes doses et températures. (a) 0.17 dpa à 673 K. (b) 0.96 dpa à 811 K. (c) 0.40 dpa à 1013 K. (d) 1.54 dpa à 1023 K. Les voids (cavités ou bulles) sur les images (a) et (d) sont noirs, car celles-ci ont été prises dans la condition de « sur-focalisation » [111].

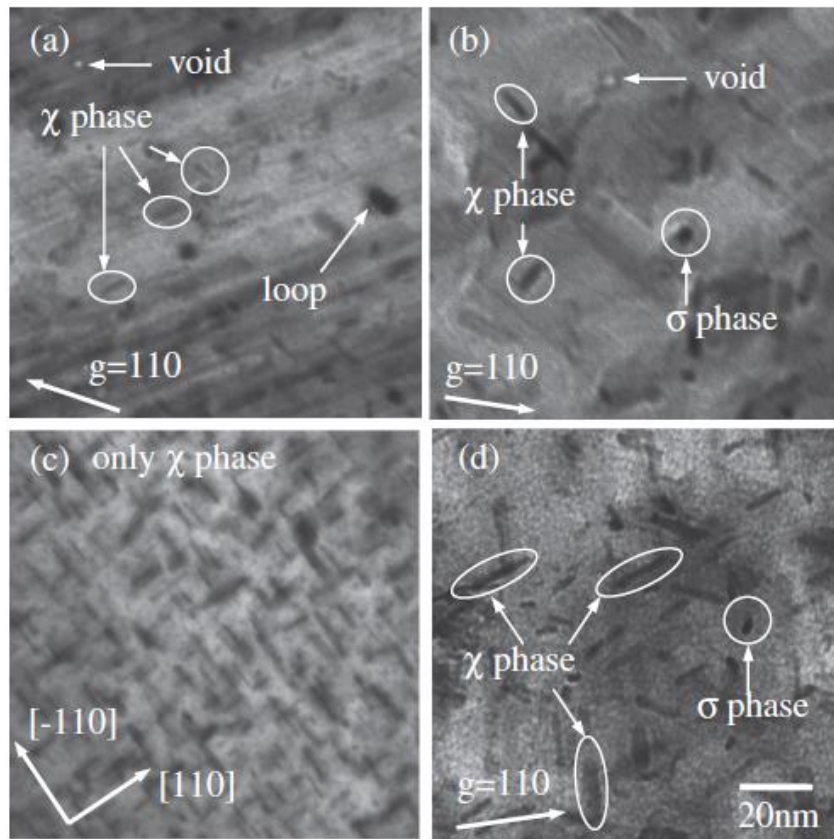


Figure I.26 : Observations par MET de la microstructure de W-5%Re (a), (b) et W-10%Re (c), (d), irradiés avec des neutrons rapides ($E_n > 0.1$ MeV) à 0.96 dpa à 811 K (a), (c) et à 1.54 dpa à 1023 K (b), (d). les zone encadrées correspondent à des précipités en forme de plaques [111].

Récemment, X. Yi et *al* [112] ont réalisé des observations par MET pour suivre l'évolution de l'endommagement induit pendant et après irradiation avec des ions lourds, W 150 keV, à la température de 773 K dans le W et le W-5%Re. Le flux des ions W 150 keV a été fixé à $6.25 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Ils ont rapporté que le seuil minimum pour que les dommages, correspondant à des boucles de lacunes, soient visibles pouvait être estimé à $4.20 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. De plus ils ont pu évaluer la fluence limite de $5.09 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, au-delà de laquelle les cascades de collisions devraient se chevaucher. Ils ont observé que la densité de défauts augmente de façon linéaire avec la fluence jusqu'à $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, soit environ 0.5 dpa, avec un taux deux fois plus élevé dans le W-5%Re que dans le W. Par contre, pour les fluences supérieures à $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ le taux d'accumulation des défauts ralentit (**Figure I.27**). Avec une épaisseur de lame d'environ de 35 nm, la concentration des boucles accumulées est d'environ 10^{17} cm^{-3} pour 1 dpa. Les boucles peuvent être mobiles à 773 K par saut, mais semblent accrochées sur des sites de piégeage.

Ces boucles lacunaires ont aussi été observées par F. Häussermann et *al* [113, 114] dans un échantillon de tungstène irradié avec des ions Au^+ d'énergie 60 keV à la température ambiante avec des densités plus importantes à cause de la température d'irradiation. En effet dans les expériences de X. Yi et *al* [112] réalisées à 773 K, les monolacunes sont mobiles pendant les irradiations et cette migration à longue distance pourrait réduire leur

concentration dans la cascade qui deviendrait inférieure au seuil nécessaire à la nucléation des boucles [115].

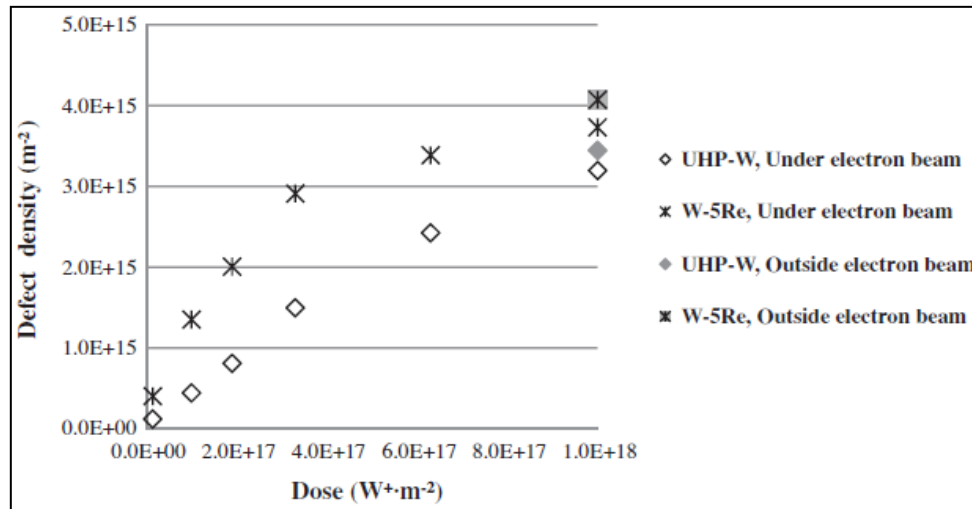


Figure I.27 : Evolution de la densité en nombre des défauts dans W et W-5%Re, pendant et après irradiation avec des ions W d'énergie de 150 keV en fonction de la fluence (dose) [112].

I.3. Conclusions

Le projet ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) a pour objectif de maîtriser la fusion nucléaire contrôlée par confinement magnétique dans le but de produire de l'énergie électrique grâce à son successeur DEMO (DEMONstration power plant). Si cette technologie est une source d'énergie qui possède de nombreux avantages, elle est aussi confrontée à de nombreux obstacles. Les matériaux qui feront face au plasma de la réaction de fusion sont l'une des problématiques majeures. Le divertor, un composant essentiel des réacteurs de fusion de type TOKAMAK, devra résister aux interactions avec le plasma, et donc au flux de chaleur, de neutrons et de particules alpha. Le tungstène a été choisi comme matériau de première paroi pour recouvrir le divertor, au regard de ses propriétés physiques et mécaniques excellentes. Le tungstène sera soumis à un bombardement intense (neutrons, particules alpha), des flux de chaleur élevés et à des températures de fonctionnement avoisinant 1773 K. Par conséquent il est nécessaire de connaître l'évolution du tungstène dans ces conditions d'utilisations sévères, et d'être capable de prévoir sa durée de vie dans les futurs réacteurs à fusion.

Au travers de cette étude bibliographique nous avons pu voir que l'irradiation induit dans le tungstène des défauts divers tels que les lacunes, les interstitiels, les dislocations, les amas lacunaires, les boucles d'interstitiels, les boucles de dislocations (certaines propriétés de ces défauts sont résumées dans le **Tableau I.10**), dont la nature dépend fortement des conditions d'irradiation appliquées (masse de la particule, énergie, flux, fluence, température d'irradiation). En outre, les valeurs des énergies de formation, de migration de certains défauts restent encore en débat au point de vue expérimental et théorique : la stabilité de la bilacune, le comportement de l'hélium en présence de défauts, l'effet des cascades de collisions.

Un travail de thèse a été réalisé par P.E. Lhuillier au laboratoire CEMHTI sur ce sujet et a été soutenu en 2010. Il a obtenu des résultats expérimentaux intéressants sur les propriétés fondamentales de la monolacune et de l'hélium dans le tungstène ainsi que leurs évolutions en fonction de la température de recuit.

Dans ce travail de thèse, les principaux objectifs ont été fixés sur la base des questions qui restent en suspens notamment la détermination des propriétés fondamentales des défauts lacunaires de type amas lacunaires, induits dans le tungstène par différentes conditions d'irradiations/implantations, en tenant compte de la nature de l'ion incident (ion lourds et/ou légers), l'énergie, la fluence et la température. En outre, il est nécessaire de comprendre leur mécanisme d'évolution en fonction de la température de recuit et d'irradiation en présence ou non d'hélium. Il est aussi intéressant d'étudier l'effet des cascades de collisions sur la distribution des défauts induits.

Les données expérimentales issues de cette étude pourront être comparées à celles de la simulation numérique pour leur validation et servir à alimenter une base de données qui sera intégrée dans un code de calcul permettant de prévoir le comportement du tungstène au sein des réacteurs à fusion nucléaire.

	Expérimentale	Théorique	
Interstitial (I)	→ Température de migration : 1.5 K [63]	→ Energie de migration : 0.013 eV [62]	
Lacune (V)	→ Energie de formation : 3.1-4 eV [59] → Energie de migration : 1.68-2.02 eV [64] → Température de migration : 473-623 K [1]	→ Energie de formation : 3.11 eV [55] → Energie de migration : 1.66 eV [55]	
Amas lacunaires (mV)		→ Energie de liaison de V à mV [59] → Stabilité de la bilacune (2V) ? → Energie de liaison de nV à mV avec (n<m) ?	
He (Interstitial)	→ Température de mobilité de He : < 6 K [100]	→ Energie de migration de l'interstitiel He : 0.06 eV [99]	
He	→ Formation de bulles d'hélium se produit indépendamment de la présence de défauts [104]	→ Energie de liaison de He à nHe [66] : He+He→2He = 1.03 eV He+4He→5He = 1.64 eV	Association
Interaction He et V	→ Température de dissociation : He-V→ He + V = 1580K [86], 1500-1600K [105] 6He-V→ He+5He-V = 960K [86]	→ Energie de dissociation [55] : He-V→ He + V = 4.57 eV 6He-V→ He+5He-V = 2.08 eV	

Tableau I.10 : Récapitulatif des données expérimentales et théoriques des propriétés des défauts et de l'hélium dans le tungstène, issues de la littérature.

CHAPITRE II

II. TECHNIQUES EXPERIMENTALES	50
II.1. DESCRIPTION DES ECHANTILLONS DE TUNGSTENE	50
II.1.1. Echantillons Goodfellow	50
II.1.2. Echantillons EFDA	51
II.2. CONDITIONS DE RECUIT DES ECHANTILLONS : FOUR A BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE	53
II.3. DECAPAGE ELECTROLYTIQUE	54
II.3.1. Paramètres utilisés pour le décapage des échantillons de tungstène	55
II.3.2. Paramètres utilisés pour le décapage électrolytique des lames minces	56
II.4. CARACTERISATION DES LAMES MINCES PAR MET	56
II.4.1. Principe de la Microscopie Electronique à Transmission	56
II.4.2. Préparation des lames minces	58
II.4.3. Acquisitions d'images	59
II.4.4. Traitements des images	60
II.5. SPECTROSCOPIE D'ANNIHILATION DE POSITONS (PAS)	63
II.5.1. Le positon et ses interactions dans la matière	63
II.5.2. Principe du dispositif DB-PAS et acquisition des données	70
II.5.3. Exploitation et interprétation des données	73
II.5.4. Caractéristiques d'annihilation des positons dans le tungstène	80
II.6. TECHNIQUES D'IRRADIATIONS OU D'IMPLANTATIONS.....	83
II.6.1. Irradiation aux ions lourds et légers de haute énergie : la plateforme JANNuS	83
II.6.2. Implantation ^4He 60 keV	86
II.7. RÉSUMÉ	87

II. Techniques expérimentales

Afin d'étudier à l'échelle atomique les défauts lacunaires induits par irradiation dans le tungstène et de comprendre l'interaction entre l'hélium et ces défauts lacunaires, nous avons utilisé la Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS). C'est l'une des seules techniques qui permettent de donner des informations sur la nature, la taille ou volume libre, des défauts ponctuels de types lacunaires dans les métaux. Une technique complémentaire telle que la Microscopie Electronique à Transmission (MET) a aussi été utilisée dans le but d'obtenir des données quantitatives sur la densité des défauts étendus de type cavité formés dans les échantillons de tungstène irradiés.

Dans un premier temps, nous allons décrire les caractéristiques des échantillons de tungstène utilisés dans cette étude et les différentes méthodes de préparation des échantillons. Ensuite la Microscopie Electronique à Transmission et la Spectroscopie d'Annihilation de Positons seront détaillées, et enfin les outils utilisés pour réaliser les irradiations.

II.1. Description des échantillons de tungstène

Dans cette étude nous avons utilisé des lots d'échantillons de tungstène polycristallin Goodfellow et EFDA. La taille des échantillons est généralement de $7 \times 7 \text{ mm}^2$ avec une épaisseur variant entre $150 \text{ }\mu\text{m}$ et $500 \text{ }\mu\text{m}$. Cependant, le procédé de leur fabrication diffère. Les paragraphes ci-dessous décrivent la méthode de fabrication des échantillons selon leur provenance.

II.1.1. Echantillons Goodfellow

Les échantillons Goodfellow sont issus de feuilles minces de tungstène polycristallin obtenues par le procédé de laminage à froid. Le principe consiste à réduire l'épaisseur d'un métal par déformation plastique entre deux cylindres en contre-rotation qui constituent le laminoir. L'épaisseur des échantillons Goodfellow utilisée dans cette étude est de $150 \text{ }\mu\text{m}$. La pureté nominale est de 99.95% en masse. La **Figure II.1** donne la concentration maximale des impuretés fournie par le fabricant. Dans le **Tableau II.1**, sont listées les impuretés majoritairement présentes dans les échantillons Goodfellow. Le molybdène est l'impureté principale en dehors de l'hydrogène, sa concentration massique et sa teneur atomique sont respectivement de 300 ppm.wt et de 580 at.ppm. Notons que la concentration de C, O et P sont non négligeables, étant supérieure à 300 at.ppm. Tous les échantillons de ce lot ont été reçus polis miroir sur une face à l'aide d'une polisseuse mécanique (diamant).

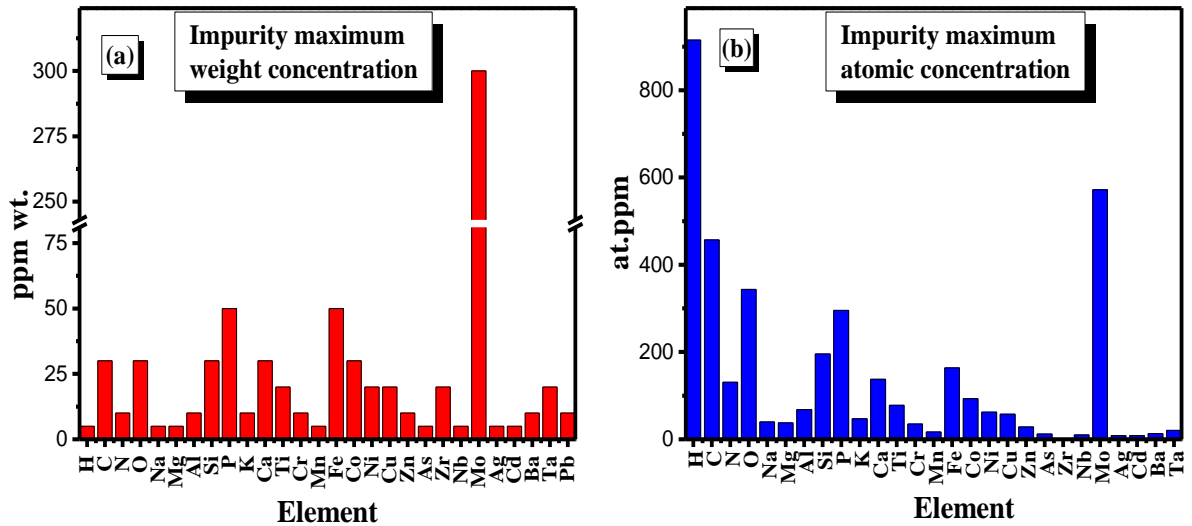


Figure II.1 : Concentration maximale des impuretés contenues dans les échantillons de tungstène polycristallin fournis par Goodfellow. (a) Concentration massique (ppm.wt.). (b) Concentration atomique (at. ppm).

Elément	wt.ppm	at.ppm
C	30	450
O	30	350
P	50	300
Fe	50	160
Mo	300	580

Tableau II.1 : Liste des impuretés majoritaires contenues dans les échantillons de tungstène polycristallin fournis par Goodfellow.

II.1.2. Echantillons EFDA

Les échantillons de tungstène EFDA ont été fournis par G. Pintsuk (Jülich FZ). Le procédé de fabrication mis en œuvre est le frittage, effectué par double forgeage. Le principe consiste à appliquer une pression verticale et horizontale simultanément dans une enceinte de forme cylindrique contenant de la nano-poudre de tungstène (**Figure II.2**). La température dans l'enceinte lors du frittage est maintenue à 1273 K. Le bloc de tungstène aplati ainsi obtenu a subi ensuite un traitement thermique à 1873 K pendant 1 heure. Ce traitement permet la recristallisation du matériau. La **Figure II.3**, montre une augmentation de la taille des grains après le recuit, avec des grains de taille supérieure à 50 μm .

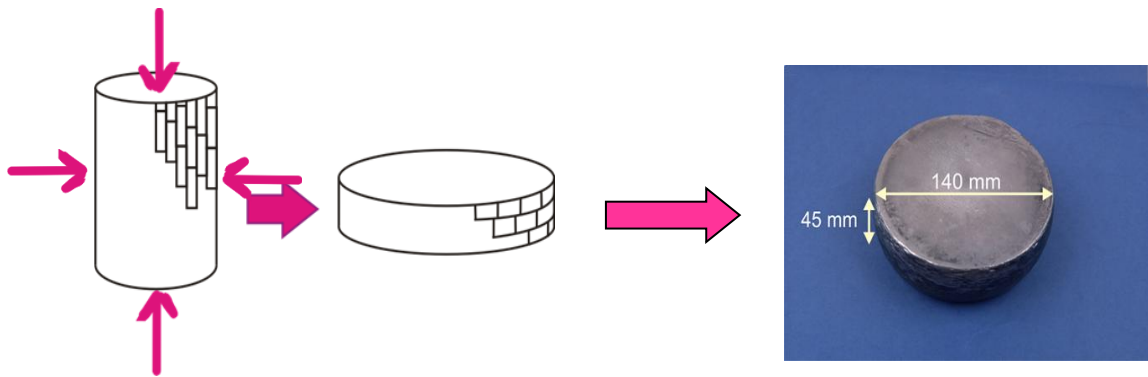


Figure II.2 : Processus de fabrication des échantillons de tungstène EFDA par la méthode double forgeage.

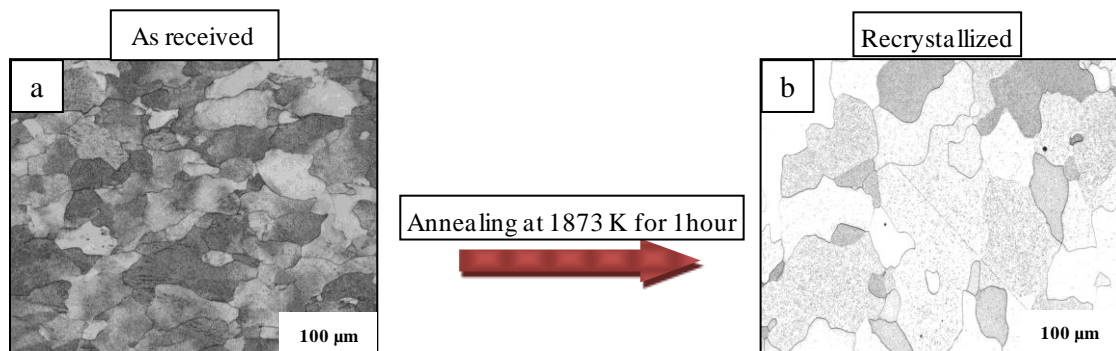


Figure II.3 : a) Microstructure du bloc de tungstène EFDA avant recuit. b) Après recuit à 1873 K pendant 1 heure.

Les échantillons utilisés dans cette étude ont été découpés sur la face supérieure et dans la région du centre du bloc (voir **Figure II.4**) à l'aide d'un faisceau d'électrons. L'épaisseur des échantillons ne dépasse pas les 500 µm. La pureté est de 99.7% en masse. La concentration des impuretés n'a pas été fournie par le fabricant.

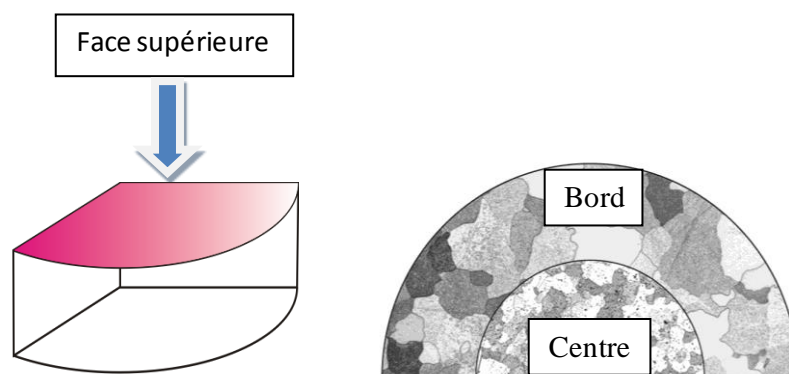


Figure II.4 : Illustration de la face et de la région du bloc qui ont été utilisées pour réaliser la découpe des échantillons de tungstène du lot EFDA.

Après réception des échantillons du lot EFDA, nous avons effectué un polissage miroir de tous les échantillons à l'aide d'une polisseuse mécanique (diamant) disponible au laboratoire CEMHTI.

II.2. Conditions de recuit des échantillons : Four à bombardement électronique

Dans ce travail, les recuits ou le traitement thermique des échantillons de tungstène ont été réalisés en utilisant le four à bombardement électronique du laboratoire CEMHTI conçu pour réaliser des recuits à très haute température sous un vide poussé. Le principe de fonctionnement est le suivant : les échantillons sont montés sur un porte-échantillon en tungstène, qui est lui-même posé au-dessus d'un filament en tungstène. Un courant électrique traversant le filament chauffe le support par effet joule. Pour accroître la température sur le porte-échantillon, une tension peut être appliquée entre le filament et celui-ci créant ainsi une accélération des électrons vers le porte-échantillon. Ce phénomène de bombardement électronique permet d'atteindre des températures élevées. Un système de pompage assure un vide de l'ordre de 5×10^{-6} mbar dans l'enceinte avant l'allumage du four. La lecture de la température se fait à l'aide d'un pyromètre visant un échantillon en molybdène poli qui a été utilisé comme référence pour tous les recuits. L'émissivité de cet échantillon de molybdène poli est de 0.344 pour $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ [34]. Le pyromètre est fixé au dessus d'un hublot en quartz qui absorbe 5% à cette longueur d'onde, ainsi la valeur de l'émissivité à prendre en compte est de 0.327. Cette valeur a été arrondie à 0.3 pour des raisons de commodité. Le four à bombardement électronique disponible au laboratoire, permet d'atteindre la température maximale de 2173 K avec des pentes de montée en température allant jusqu'à 600 K/min. L'incertitude de mesure de la température est de l'ordre de 50 K à haute température. La **Figure II.5**, montre l'évolution de la température et de la pression au cours d'un recuit à 1873 K pendant 1 heure sous vide. Nous pouvons observer plusieurs pics sur la mesure de la pression, liés au dégazage du porte-échantillon et des échantillons pendant la montée en température, mais sa valeur reste entre 5×10^{-6} - 2×10^{-6} mbar.

Dans cette étude nous avons utilisé ce type de recuit pour la préparation des échantillons de tungstène (Goodfellow et EFDA) initialement reçus et pour suivre l'évolution des échantillons de tungstène implantés en fonction de la température de recuit.

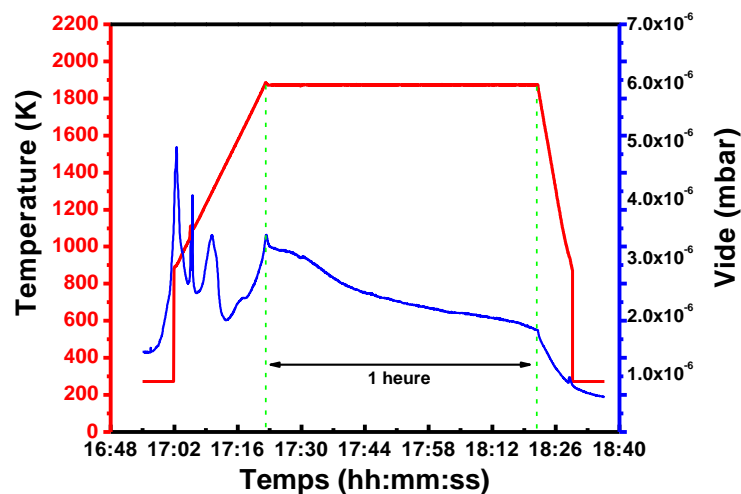


Figure II.5 : Evolution de la température et de la pression pendant un recuit à 1873 K durant 1 heure sous vide.

II.3. Décapage électrolytique

Dans cette étude nous avons eu recours au décapage électrolytique dans l'objectif d'une part, de décaper de fines épaisseurs (environ 800 nm) sur des échantillons de tungstène de taille $7 \times 7 \text{ mm}^2$ ayant des épaisseurs initiales variant entre 150-500 μm . Cela nous permettra de sonder avec les positons des régions plus profondes dans les échantillons irradiés. En effet en utilisant un faisceau de positons lents d'énergie variable entre 0.5-25 keV, les positons peuvent sonder environ les 800 premiers nanomètres dans les échantillons de tungstène. Les profils d'implantations des positons lents sont donnés en **section II.5.1.2, page 64**. D'autre part, cette technique nous permettra de finaliser la préparation des lames minces découpées par FIB dans des échantillons de tungstène pour la MET, dans le but d'améliorer l'état de surface de ces lames pour une meilleure observation.

La technique de décapage électrolytique permet de décaper sans écrouissage une fine épaisseur sur des matériaux conducteurs, tels que le tungstène. Le principe de fonctionnement est le suivant : l'échantillon de tungstène à décaper est relié à l'anode d'un générateur de courant et la cathode est connectée à une barre en graphite. Ils sont immergés dans un bain d'électrolyte (solution de NaOH) comme indiqué sur la **Figure II.6**. On applique un courant continu qui va provoquer la dissolution de l'échantillon sur les deux faces. Après avoir obtenus l'aminçissement désiré, on coupe le courant, puis l'échantillon est rincé dans un bac de rinçage contenant de l'eau distillée puis dans un autre contenant de l'éthanol. Cette technique est très intéressante car l'épaisseur du matériau à décaper peut être contrôlée par le temps.

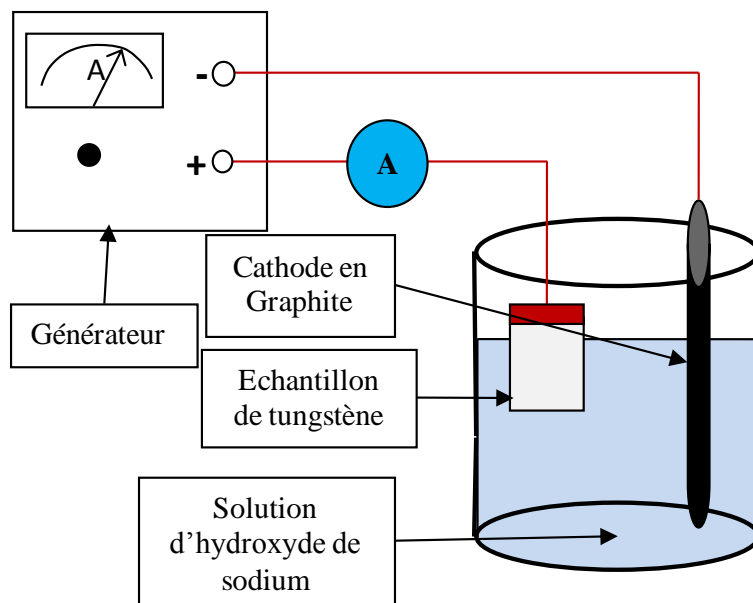


Figure II.6 : Schéma général d'un bain de décapage électrolytique.

La **Figure II.7** présente les différents outils que nous avons utilisés pour mettre en œuvre le décapage électrolytique et listés ci-après.

- Becher en verre
- Cristaux de soude (NaOH à 99%) pour la préparation de la solution de NaOH
- Eau distillée
- Electrode en graphite (Ø 5-10mm, longueur 100 mm)
- Alimentation de courant 0-20 Ampère (30V)
- Ampèremètre (pour mesurer le courant de sortie)
- Fils d'alimentation cuivre Ø 2 mm souple avec pinces crocodile
- Agitateur magnétique + barreau aimanté

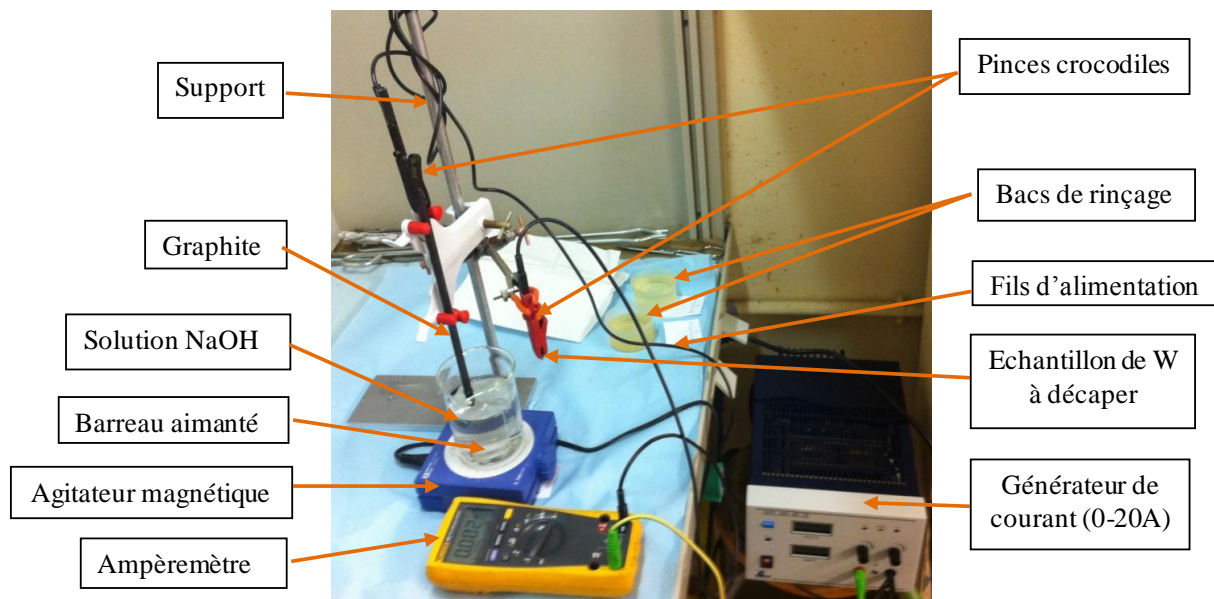


Figure II.7 : Bain de décapage électrolytique monté au laboratoire.

II.3.1. Paramètres utilisés pour le décapage des échantillons de tungstène

Plusieurs campagnes d'expériences ont été réalisées sur des échantillons EFDA et Goodfellow afin de pouvoir optimiser les différents paramètres pouvant agir sur la vitesse de décapage qui sont les suivants :

- La concentration de la solution de soude [NaOH] en mol/L
- L'intensité du courant I en Ampère
- Le temps de décapage t en secondes

Les mesures de l'épaisseur décapée ont été réalisées soit à l'aide d'un profilomètre optique 3D (interférométrie) de la marque Zygo NewView 7100 (avec une résolution en Z de 0.1 nm), disponible au laboratoire CMRD à Orléans, ou soit par l'évaluation des pertes de masse.

En fixant certains paramètres du système de décapage électrolytique tels que la concentration de la solution de NaOH (électrolyte) à 0.125 mol/L et l'intensité du courant à 1A, nous avons été en mesure de contrôler la vitesse de décapage à 20 ± 2 nm par seconde.

Sur la **Figure II.8**, nous pouvons clairement observer l'épaisseur (environ 873 nm) qui a pu être décapée sur un échantillon de tungstène EFDA après une exposition de 40 secondes dans un bain électrolytique avec les valeurs des différents paramètres citées ci-dessus.

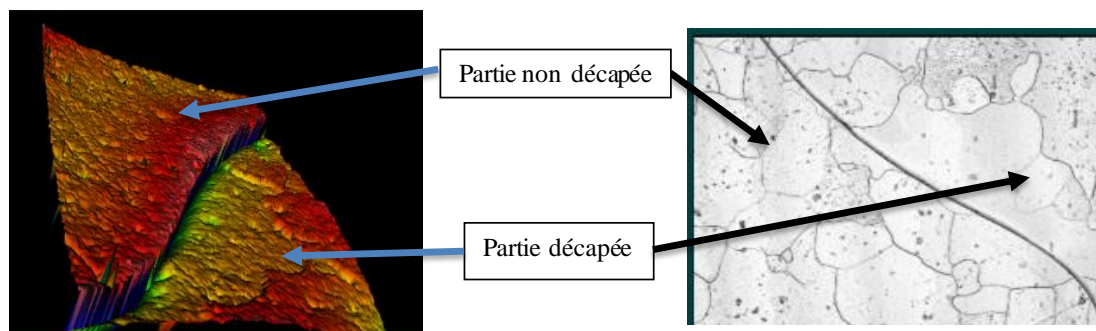


Figure II.8 : Image d'un échantillon de tungstène EFDA décapé par le procédé de décapage électrolytique sur une partie, obtenue avec le profilomètre du laboratoire CRMD.

II.3.2. Paramètres utilisés pour le décapage électrolytique des lames minces

Dans le cas de la préparation des lames minces pour des observations au Microscope Electronique à Transmission, l'épaisseur à décaper est de l'ordre de 10-20 nm. Ainsi la concentration de la solution de NaOH a été abaissée à 0.06 mol/L et l'intensité à 0.5 A, ce qui permet d'atteindre une vitesse de décapage plus faible, comprise entre 3 et 5 nm/s.

II.4. Caractérisation des lames minces par MET

La Microscopie Electronique à Transmission (MET) a été utilisée dans notre étude dans le but de réaliser des observations dans les échantillons de tungstène irradiés. Nous étions tout particulièrement intéressés par l'analyse de la distribution de cavités ou de bulles d'hélium afin de pouvoir compléter les mesures de Spectroscopie d'Annihilation de Positons lents pour mieux connaître les mécanismes de migration, d'agglomération et de dissociation des défauts de type lacunaires dans le tungstène.

II.4.1. Principe de la Microscopie Electronique à Transmission

Lorsqu'un faisceau d'électrons arrive dans une lame suffisamment mince, plusieurs types d'interactions électron-matière peuvent se produire (voir **Figure II.9**). Entre autre, si les électrons traversent la matière sans subir de déviation de trajectoire, ni de perte d'énergie, ils formeront le faisceau transmis. Dans le cas où certains plans cristallographiques de l'échantillon se trouvent en position de Bragg par rapport au faisceau électronique, on obtiendra des faisceaux diffractés, c'est-à-dire des faisceaux dont les électrons ont subi une déviation de leur trajectoire, en correspondance avec l'angle de Bragg, mais sans perte

d'énergie. L'ensemble, faisceau transmis et faisceaux diffractés, forme le cliché de diffraction présenté à la **Figure II.10**.

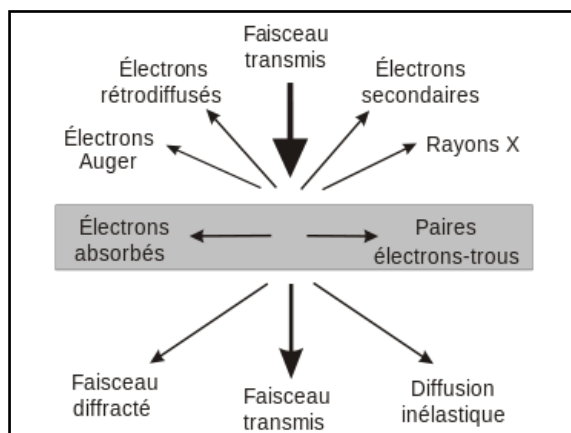


Figure II.9 : Schémas de l'interaction entre le faisceau d'électrons incident et la lame mince (matière).



Figure II.10 : Cliché de diffraction d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

Dans un MET, on obtient une image ou un cliché de diffraction. Les images sont formées à partir du faisceau transmis et/ou des faisceaux diffractés. Dans le cas d'image en champ clair, l'image est formée uniquement à partir du faisceau transmis, c'est-à-dire uniquement les électrons non diffractés et les régions de l'échantillon diffractant le faisceau apparaissent plus sombres. Par contre, les images en champ sombres sont formées à partir d'un faisceau diffracté. L'image est construite uniquement par les électrons diffractés à un angle spécifique et les régions de l'échantillon ne diffractant pas ou à des angles différents apparaissent sombres. Pour sélectionner le faisceau qui servira à faire l'image, on place un diaphragme dit « diaphragme objectif ».

Trois MET ont été utilisés dans ce travail :

- Le MET du PSI en Suisse
- Le MET du CSNSM de la plateforme JANNuS d'Orsay
- Le MET du CME situé sur le campus universitaire d'Orléans

Le MET du PSI (Paul Scherrer Institut) est un JEOL 2010 équipé d'un filament LaB6. La tension d'accélération des électrons est de 200 kV. Il est muni d'une caméra CCD Orius de la marque Gatan. Sa résolution point à point du microscope est de 2.4 Å.

Le MET du CSNSM (Centre de Spectroscopie Nucléaires et de Spectroscopie de Masse) est un TECNAI G² 20 Twin de la marque FEI. Il est muni d'un filament LaB6 et a été utilisé à une tension d'accélération des électrons de 200kV. Il est équipé d'une caméra numérique GATAN ES500W et d'une caméra numérique haute résolution ORIUS 200 GATAN. Sa résolution est de 0.27 nm.

Au CME (Centre de Microscopie Electronique), il s'agit d'un microscope CM 20 de la marque PHILIPS. Il fonctionne également à 200 kV et est doté du même type de filament LaB6 et d'une caméra numérique GATAN Orius. Sa résolution spatiale est également de 0.27 nm.

II.4.2. Préparation des lames minces

Dans notre étude nous avons eu recours à la technique FIB (FIB : Focused Ion Beam) pour découper des lames minces dans les échantillons de tungstène. Le but de cette technique est d'extraire une lame mince à l'échelle nanométrique et d'épaisseur constante dans une région bien ciblée de l'échantillon à l'aide d'un faisceau d'ions. Sur la **Figure II.11**, nous avons représenté la lame mince découpée en profondeur dans un matériau irradié. Toute la zone irradiée de la surface jusqu'à la profondeur maximale d'irradiation peut être prise en compte, ce qui nous permettra d'observer toute la région irradiée (**Figure II.12**).

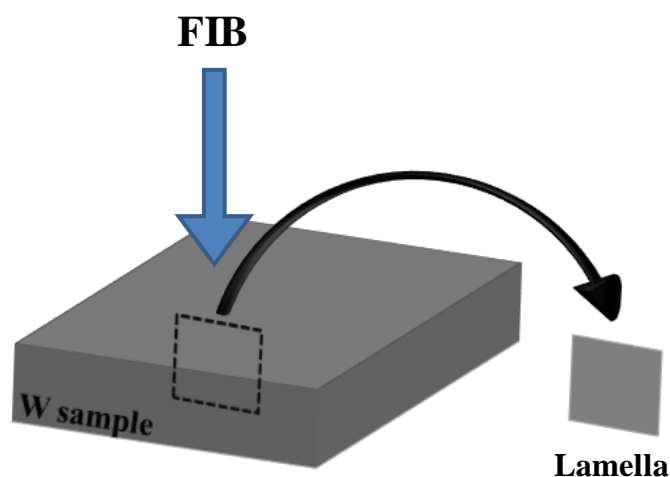


Figure II.11 : Schéma montrant l'orientation relative de la découpe d'une lame mince dans un échantillon de tungstène par FIB.

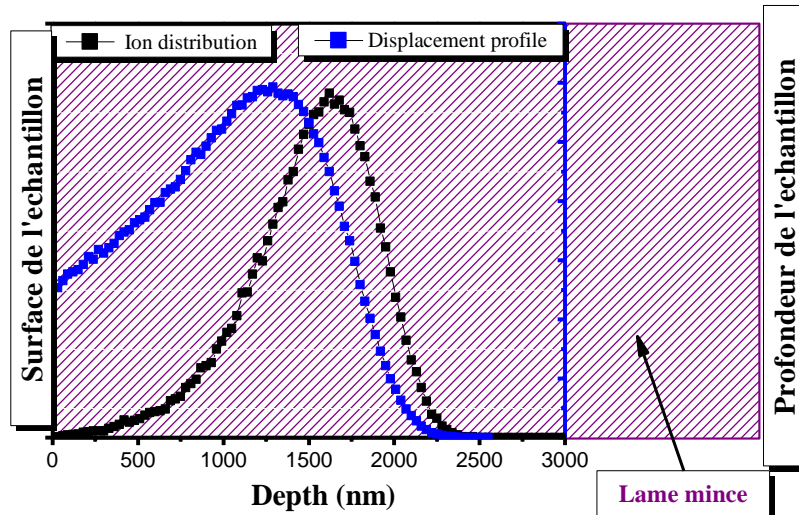


Figure II.12 : Schématisation de la coupe longitudinale d'une lame mince découpée dans un échantillon de W irradié. La courbe en bleu et en noir représentent respectivement la distribution de l'endommagement (dpa) et celle des ions incidents W 20MeV avec une fluence de $9.98 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, en fonction de la profondeur dans le matériau.

Les lames FIB ont été préparées à l'aide d'un « Zeiss NVision 40 » Dual Beam disponible au Centre de Recherche en Physique des Plasmas (CRPP) de l'école fédérale polytechnique de Lausanne, grâce à une collaboration avec Robin Schaeublin établie depuis 2008.

La **Figure II.13**, présente des images sous différents angles de vue d'une lame mince découpée dans un échantillon de tungstène par FIB.

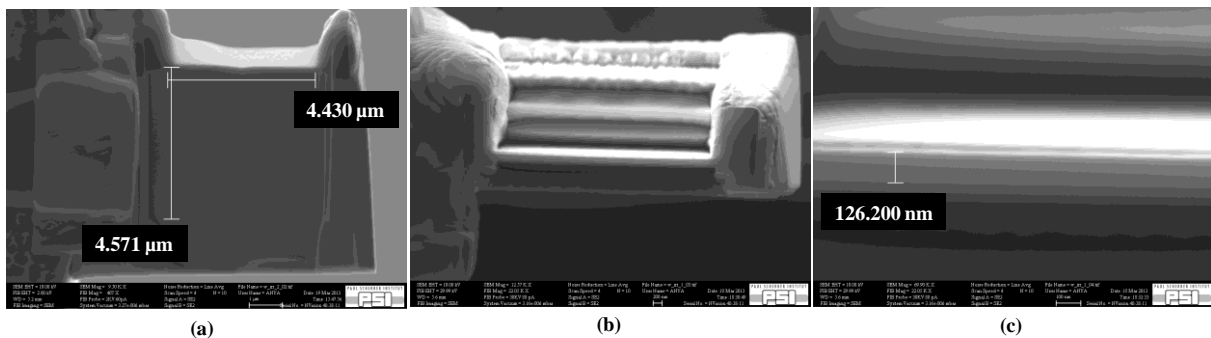


Figure II.13 : Images au Microscope Electronique à Balayage de la fabrication de la lame mince (a) Vue verticale de la lame mince. (b) Vue de dessus de la lame mince. (c) Vue de dessus agrandie au niveau du bord de la lame mince.

II.4.3. Acquisitions d'images

Au cours de notre étude, nous avons voulu observer des cavités (amas lacunaires) ou bulles d'hélium. Pour cela, il est nécessaire de s'éloigner au maximum des conditions de diffraction et donc d'incliner l'échantillon afin d'obtenir un cliché de diffraction qui contient le moins de tâches de diffraction possible. Dans ces conditions, le contraste de diffraction est réduit et on peut mieux voir les cavités. On les met en évidence par le biais d'une série

focale. En regardant en condition de sur-focalisation, la cavité ou bulle apparaît sous forme de point noir entouré d'un halo blanc tandis qu'en condition de sous-focalisation c'est le contraire, elle apparaît comme un point blanc entouré d'un halo sombre (voir exemple **Figure II.14**).

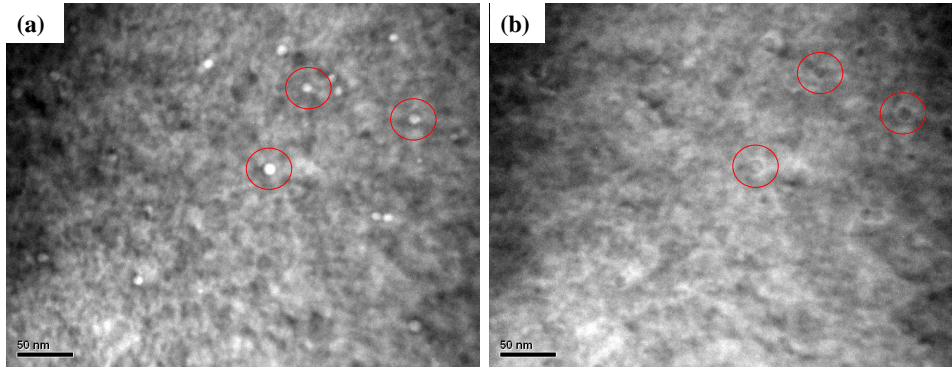


Figure II.14 : Images (a) sous-focalisée et (b) sur-focalisée obtenues en MET à partir d'une lame mince issue d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide. Les cavités sont entourées en rouges.

II.4.4. Traitements des images

Les images obtenues par MET sont ensuite traitées à l'aide du logiciel Digital Micrograph de la société Gatan. Pour faciliter le traitement, l'image est scindée en plusieurs rectangles de surface identique. Le choix de la taille des rectangles se fait arbitrairement.

Ensuite, une évaluation du nombre de cavités ou de bulles ainsi que la mesure de leur diamètre sont effectués manuellement dans chaque rectangle sélectionné. Chaque petit trait représente le diamètre d'une cavité ou d'une bulle (voir exemple **Figure II.15**).

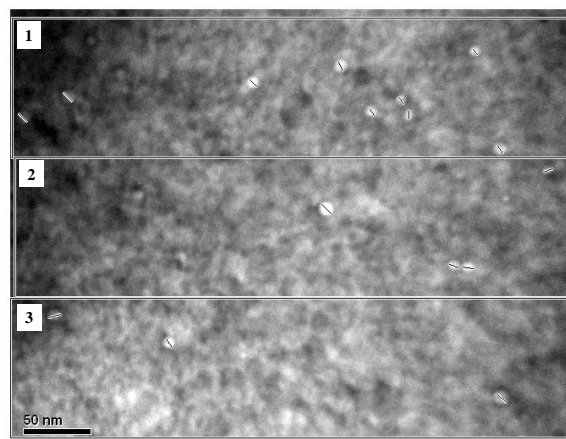


Figure II.15 : Illustration du dépouillement à l'aide du logiciel Digital Micrograph des cavités présentes dans une image sous-focalisée d'une lame mince issue d'un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide.

Toutes les données telles que, le numéro de rectangle, le nombre de cavités ou de bulles par rectangle et le diamètre de chacune d'elle, sont regroupées dans un tableau. Pour être plus explicite voici un exemple de résultats obtenus à partir de la **Figure II.15**, présentées dans le **Tableau II.2**.

Numero rectangle	Nombre de cavités par rectangle	Diametres des cavités
1	9	11.17, 10.02, 11.89, 9.39, 10.02, 8.76, 10.64, 10.02, 10.64
2	4	11.89, 8.76, 9.39, 7.51
3	3	10.02, 10.64, 11.27

Tableau II.2 : Données issues du dépouillement des rectangles définis dans de Figure II.15 : Lamé mince issue d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide.

Ces données sont ensuite utilisées pour déterminer le diamètre moyen, la distribution en taille en fonction de la profondeur et la densité en nombre de la population de cavités ou de bulles.

II.4.4.1. *Diamètre moyen*

Le calcul du diamètre moyen, d (nm), a été déterminé en réalisant une moyenne des diamètres mesurés pour toutes les cavités ou bulles dénombrées :

$$d = \frac{\sum d_i}{N} \quad \text{II. 1}$$

Avec

d : Diamètre moyen (en nm)

d_i : Diamètre de la cavité ou bulle i (en nm)

N : Nombre total de cavités ou de bulles caractérisées

L'incertitude sur le diamètre moyen a été calculée en tenant compte de l'erreur associée au nombre total de cavités ou de bulles caractérisées et s'exprime :

$$\Delta d = d \times \frac{\Delta N}{N} \quad \text{II. 2}$$

L'erreur liée au nombre total de cavités ou de bulles a été déterminée à l'aide de la formule $\frac{\Delta N}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}}$.

II.4.4.2. *Densité des cavités ou des bulles*

La densité numérique des cavités, D (m^{-3}), est définie suivant la relation :

$$D = \frac{N}{S \times n \times e}$$

II. 3

Avec

- N : Nombre total de cavités caractérisées
- S : Surface d'un rectangle (en m²)
- n : Nombre de rectangle
- e : Epaisseur de la lame (en m) approximative de 120 nm

A partir de la relation précédente, l'incertitude sur la densité peut être déduite par :

$$\Delta D = D \times \left(\frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta S}{S} + \frac{\Delta n}{n} + \frac{\Delta e}{e} \right)$$

II. 4

L'expression de l'incertitude peut être simplifiée, car la majorité de l'erreur associée au calcul de la densité vient du nombre de cavités et de l'épaisseur de la lame. On peut alors écrire que :

$$\Delta D = D \times \left(\frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta e}{e} \right)$$

II. 5

L'erreur liée à N a été déterminée à l'aide de la formule $\frac{\Delta N}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}}$. Des mesures d'épaisseur avec le MET en utilisant la technique de la spectrométrie des pertes d'énergie des électrons (en anglais EELS : Electron Energy Loss Spectrometry) nous ont permis de voir que l'épaisseur variait de 102 nm au bord de la lame à 130 nm dans la zone plus profonde (Rp). Nous avons donc choisi de fixer une épaisseur approximative de 120 nm et l'incertitude relative liée à l'épaisseur $\frac{\Delta e}{e}$ de 20%.

II.5. Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS)

La Spectroscopie d'Annihilation de positons est un outil très puissant capable de détecter des défauts lacunaires à l'échelle atomique dans les matériaux. De plus c'est une technique non destructive de caractérisation de la matière. Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé la Spectroscopie d'Elargissement Doppler décrite ci-après, pour caractériser les défauts induits par implantation d'ions lourds et/ou légers dans les échantillons de tungstène.

Dans cette partie nous allons détailler en premier lieu la description des propriétés du positon et les principes de la technique de caractérisation utilisée : l'élargissement Doppler, sa mise en œuvre et le traitement des données qui permet d'établir des conclusions sur la nature, la taille et la concentration des défauts lacunaires.

II.5.1. Le positon et ses interactions dans la matière

II.5.1.1. Source de positons

Le positon (e^+) est la première particule d'antimatière dont l'existence a été découverte expérimentalement en 1932 par Carl David Anderson [116]. Il a les mêmes caractéristiques que l'électron (e^-) à l'exception de sa charge électrique qui est positive ($+1.602 \times 10^{-19}$ C). Dans le vide, le positon est stable et sa durée de vie est de 4.2×10^{23} ans. A l'inverse, dans la matière son interaction avec les électrons amène à la formation de paires e^+e^- , qui s'annihilent en provoquant l'émission de deux ou trois photons gammas. La désintégration β^+ d'un noyau radioactif tel que le sodium 22 (^{22}Na), le fluor 18 (^{18}F), le cobalt 58 (^{58}Co), est l'origine principale d'émission de positons. Le processus repose sur la conversion d'un proton (p) en neutron (n) qui conduit à l'émission d'une particule β^+ (positon) et d'un neutrino (ν_e).

Dans la plus part des laboratoires particulièrement au CEMHTI, la source radioactive utilisée est le ^{22}Na . Sa période de désintégration (demi-vie) est de 2.6 ans [117]. Lors de la désintégration du ^{22}Na (**Figure II.16**), le positon émis s'accompagne d'une émission quasi-simultanée d'un photon γ d'une énergie de 1274 keV, qui marque la naissance du positon (e^+). Cette information est utile pour déterminer le temps de vie d'un positon dans la matière, par détection en coïncidence du temps séparant l'émission du photon γ de 1274 keV et celle des photons γ de 511 keV correspondant à l'annihilation des paires e^+e^- .

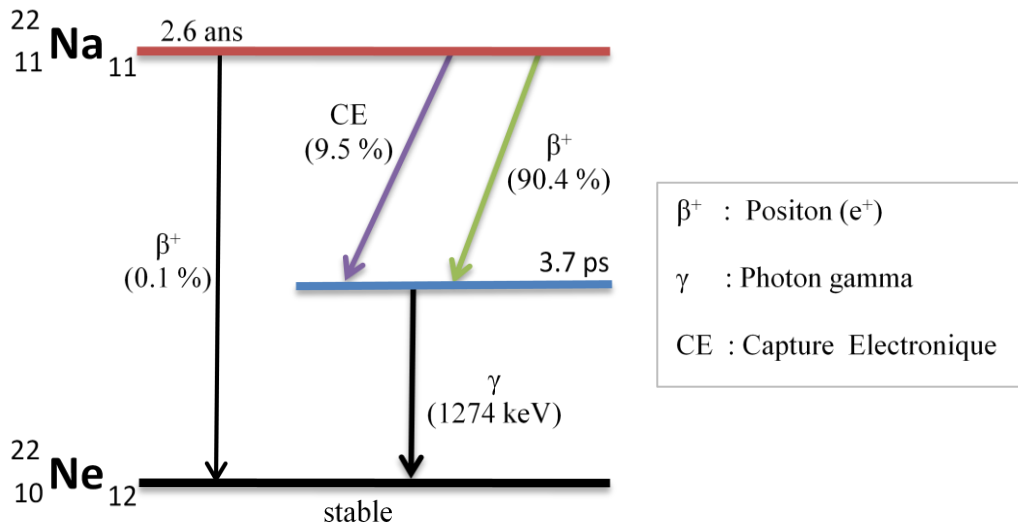


Figure II.16 : Schéma du processus de désintégration du sodium 22 (^{22}Na).

II.5.1.2. Pénétration des positons dans la matière

Dans la matière, le libre parcours moyen d'un positon dépend de son énergie. On distingue deux types de sources de positons : la source de positons rapides, dans le cas des positons émis directement par la source de ^{22}Na , et l'accélérateur de positons lents monoénergétique.

Le profil de pénétration ou d'implantation dans le cas des positons émis directement par la source de ^{22}Na , dont l'énergie maximale des positons est de 541 keV, suit une loi exponentielle de la forme [118, 119] :

$$P(Z) = e^{-\alpha z} \quad \text{et} \quad \alpha = 16 \frac{\rho}{E_{\max}^{1.4}} \quad \text{II. 6}$$

Avec

- α : Coefficient d'absorption linéaire (cm^{-1})
- z : Profondeur (cm)
- ρ : Densité du matériau étudié ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)
- E_{\max} : Energie maximale des positons émis (MeV)

Si on applique cette loi de pénétration des positons rapides dans le cas du tungstène, la majorité des positons ne dépasse pas les 100 premiers micromètres de profondeur (**Figure II.17**).

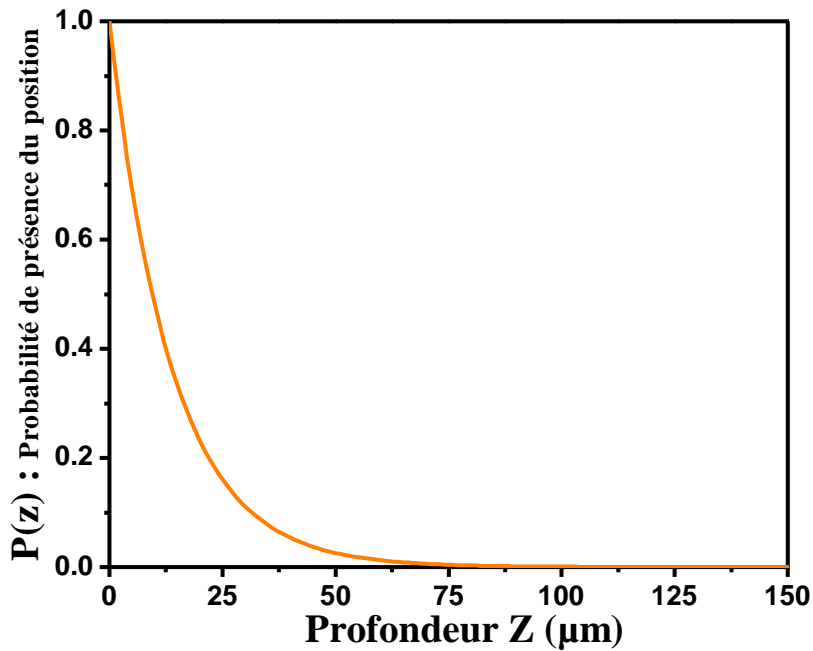


Figure II.17 : Profil de pénétration des positons rapides dans le tungstène.

Dans le cas des positons monoénergétiques d'énergie E, tels que le faisceau de positons lents du CEMHTI d'énergie comprise entre 0.1-25 keV, le profil de pénétration est de type Makhov [120] :

$$P(z) = -\frac{d}{dz} \left(e^{-\left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \right) \quad \text{II. 7}$$

où $z_0 = \frac{z_m}{0.886}$, et on définit la profondeur moyenne d'arrêt des positons $z_m = \frac{A}{\rho} E^n$

Avec

z_m : Profondeur moyenne d'arrêt des positons (cm)

ρ : Densité du matériau étudié ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)

E : Energie des positons (keV)

A et n : Constantes qui dépendent peu du matériau

Les valeurs de A et n fréquemment appliquées sont respectivement $2.95 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{keV}^{-n}$ et 1.7 [121].

La **Figure II.18**, présente les profils de pénétration des positons lents dans le cas de tungstène. En augmentant l'énergie des positons on peut sonder de plus en plus profond. On note que pour les positons de 25 keV l'épaisseur maximale sondée est environ de 800 nm.

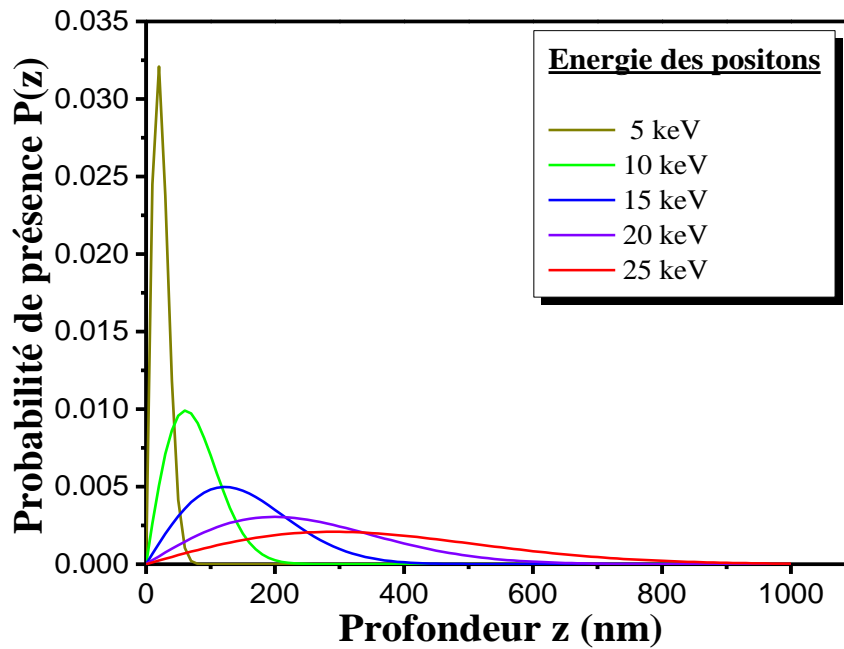


Figure II.18 : Profil de pénétration des positons lents dans le tungstène.

Dans la matière, le positon possédant une énergie initiale E , la perd par des phénomènes d'ionisation et d'excitation électronique ou phonique au cours de sa pénétration : c'est le phénomène de thermalisation, qui se produit très rapidement de l'ordre de 1-2 picoseconde, donc un temps bien inférieur à la durée de vie du positon.

II.5.1.3. Diffusion des positons dans la matière

Après thermalisation, le positon diffuse dans le matériau jusqu'à ce qu'il s'annihile ou se piège dans un défaut. Le coefficient de diffusion D_+ d'après la relation de Nernst-Einstein s'écrit :

$$D_+ = \frac{\mu_+}{e} k_B T = \frac{k_B T}{m_+} \tau_{\text{relaxation}} \quad \text{II. 8}$$

Avec

- μ_+ : Mobilité du positon
- k_B : Constante de Boltzmann
- T : Température en Kelvin
- e : Charge élémentaire de l'électron
- m_+ : Masse effective du positon
- $\tau_{\text{relaxation}}$: Temps de relaxation pour sa diffusion

Dans les métaux, les valeurs expérimentales du coefficient de diffusion à 300 K sont de l'ordre de 1-2 $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [122].

La longueur de diffusion du positon, L^+ , correspond à la longueur parcourue par le positon thermalisé dans le matériau avant qu'il ne s'annihile. Dans un matériau sans défaut, la longueur de diffusion intrinsèque du positon L^+ s'écrit :

$$L^+ = \sqrt{\frac{D_+}{\lambda_L}} \quad \text{II. 9}$$

Avec

D_+ : Coefficient de diffusion du positon

λ_L : Taux d'annihilation du positon dans le réseau du matériau (sans défaut)

Il est à noter que lorsque le matériau contient une concentration de défauts de type v , la longueur de diffusion effective du positon L_{eff}^+ devient :

$$L_{\text{eff}}^+ = \sqrt{\frac{D_+}{\lambda_L + K_v}} \quad \text{II. 10}$$

Avec K_v le taux de piégeage des positons dans le défaut v (définie à la **section II.5.1.4.2, Page 67**)

II.5.1.4. Piégeage et dépiégeage des positons

Le positon étant chargé positivement est de ce fait réceptif au potentiel coulombien du réseau du matériau dans lequel il se trouve. Il peut être piégé et s'annihiler avec les électrons dans un état libre délocalisé dans le réseau du matériau, ou localisé, quand il est piégé dans un défaut de type lacunaire.

II.5.1.4.1. Etat délocalisé

Le potentiel périodique associé au positon dans une matrice d'un matériau parfait (cristal parfait) est la fonction de Bloch de la forme :

$$\Psi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \cdot \mathbf{u}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad \text{II. 11}$$

Avec $u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ une fonction périodique de même périodicité que la matrice du matériau parfait. La répulsion entre les positons et les noyaux atomiques du matériau implique que la probabilité de présence des positons dans les sites interstitiels est maximale.

II.5.1.4.2. Etat localisé

Les défauts de types lacunaires, soit les lacunes, les amas lacunaires et voids, sont des régions où il manque des atomes. Les positons sont particulièrement piégés dans ces défauts car leur état d'énergie est plus bas que dans la matrice du matériau. Ils constituent ainsi des puits de potentiel attractif pour les positons.

Lorsque le positon est piégé, il va sonder la densité électronique locale et s'annihiler avec l'un des électrons. Dans ce cas le piégeage dans un défaut de type d dépendra d'un coefficient de piégeage spécifique μ_d qui est lié au taux de piégeage K_d suivant la relation :

$$K_d = \mu_d \cdot C_d \quad \text{II. 12}$$

Avec

K_d :	Taux de piégeage (s^{-1})
C_d :	Concentration du défaut de type d (cm^{-3})
$\mu_{d(d=v)}$:	Coefficient de piégeage spécifique ($cm^3 \cdot s^{-1}$)

Dans les métaux les valeurs du coefficient de piégeage spécifique atomique μ_d^{at} (en s^{-1}) dans les défauts lacunaires de type v déterminées expérimentalement ou par calcul varie entre 10^{14} et $10^{15} s^{-1}$ [122].

NB : $\mu_d = \frac{\mu_d^{at}}{N^{at}}$, avec N^{at} la densité atomique du matériau ($at \cdot cm^{-3}$), égale à $6.316 \times 10^{22} at \cdot cm^{-3}$ pour le tungstène.

II.5.1.5. Annihilation des paires positon-électron

Lorsqu'un positon, e^+ , rencontre un électron, e^- , ils forment une paire e^+e^- qui s'annihile en émettant des photons gammas γ . Deux modes d'annihilations distincts existent et dépendent de l'état du spin de la paire :

- La paire est dans un état de spin singulier $S = 0$, para, le nombre de photons γ émis est pair, et l'annihilation se fait en grande partie avec l'émission de deux photons γ .
- La paire est dans un état de spin triplet $S = 1$, ortho, le nombre de photons γ émis est impair, et l'annihilation se fait en grande partie avec l'émission de trois photons γ . L'annihilation à un photon gamma se produit pour des positons possédant une énergie cinétique très élevée. Dans notre cas, cet état d'annihilation est peu probable du fait que l'énergie maximale des positons incidents est de 25 keV [123].

La probabilité qu'une paire e^+e^- soit dans un état de spin donné est de 25% pour l'état de spin singulier ($S = 0$), et 75% pour l'état de spin triplet ($S = 1$). Par contre, la probabilité d'une annihilation à 3 photons γ est 0.27×10^{-2} fois plus petite que celle d'une annihilation à deux photons γ [122], elle est donc petite devant cette dernière.

Dans la matière, suivant la densité électronique environnante, la paire e^+e^- peut s'annihiler soit à partir d'une configuration libre ou soit à partir d'une configuration liée appelée positronium (Ps). Cette dernière est particulièrement formée dans les régions où la densité atomique est faible, soit à la surface des matériaux, ou aux amas lacunaires de grande taille.

Lors de l'annihilation de la paire e^+e^- dans la matière, la quantité de mouvement \vec{p} des électrons engendre un élargissement de la raie d'annihilation qui n'est que l'image de la distribution des moments de la paire e^+e^- . Le spectre obtenu par la technique de la Spectroscopie d'élargissement Doppler permet d'étudier les défauts qui piègent les positons.

L'annihilation d'une paire e^+e^- dans le repère du centre de masse entraîne l'émission de deux photons gammas γ en directions opposées de même énergie, égale à :

$$E_0 = m_0 \cdot c^2 = 511 \text{ keV} \quad \text{II. 13}$$

Avec

m_0 : Masse du positon ou de l'électron ($\text{keV} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^2$)

c : Vitesse de la lumière ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

Or dans le repère du laboratoire, l'énergie et l'angle d'émission des deux photons γ changent. Cela est dû à la quantité de mouvement de la paire e^+e^- qui est non nulle provoquant un élargissement Doppler de la raie d'annihilation. Les énergies des deux photons gammas γ émis sont de $511 \text{ keV} \pm \Delta E$ dans des directions quasi-opposées formant un angle de $180^\circ - \theta$ (voir **Figure II.19**). Ci-dessous les relations décrivant ΔE et θ qui dépendent de la quantité de mouvement de la paire e^+e^- :

$$\Delta E = \frac{c \cdot p_L}{2} \quad \text{II. 14}$$

$$\theta = \frac{p_T}{m_0 \cdot c} \quad \text{II. 15}$$

p_L et p_T sont respectivement les composantes longitudinale et transverse de la quantité de mouvement de la paire e^+e^- .

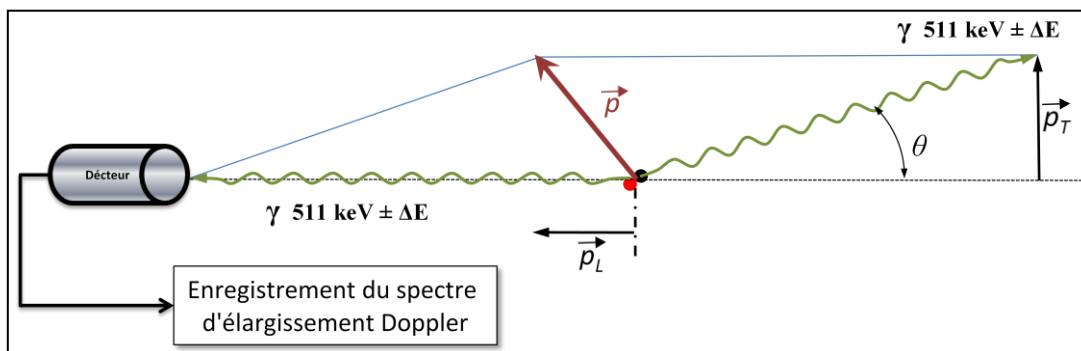


Figure II.19 : Schéma de l'annihilation de la paire e^+e^- dans un repère lié au laboratoire.

Dans un matériau, le positon se thermalise avant de s'annihiler avec un électron. A ce stade, l'énergie cinétique du positon peut alors être négligée. La quantité de mouvement de la paire e^+e^- provient principalement de l'électron avec lequel il s'est annihilé. La spectroscopie d'élargissement Doppler qui mesure l'énergie des photons gamma (γ) permet d'étudier la distribution des moments des électrons qui s'annihilent avec les positons. Elle permet

d'obtenir des informations sur la densité électronique et aussi sur l'environnement chimique du positon au moment de l'annihilation.

Le temps de vie du positon dans un matériau équivaut au temps séparant son entrée dans le matériau de son annihilation. Cette technique permet d'obtenir des informations spécifiques au réseau du matériau. Si celui-ci contient des défauts de type lacunaires les positons pourront être piégés pendant un temps Δt avant de s'annihiler. Le temps de vie du positon dans la matière est inversement proportionnel à la densité électronique vue par le positon. Ainsi chaque type de défaut lacunaire aura un temps de vie spécifique.

Dans la suite, nous allons nous focaliser sur la description de la technique d'élargissement Doppler.

II.5.2. Principe du dispositif DB-PAS et acquisition des données

Dans ce travail la Spectroscopie d'Annihilation de Positons est réalisée par mesure de l'élargissement Doppler (DB-PAS : Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy) grâce à un spectromètre couplé à un accélérateur de positons lents monoénergétiques d'énergie variable.

II.5.2.1. Accélérateur de positons lents couplé au spectromètre d'élargissement Doppler

L'accélérateur de positons lents du CEMHTI permet d'obtenir un faisceau de positons monoénergétique d'énergie variable entre 0.1-25 keV. Il est équipé (**Figure II.20**) d'une source de sodium 22 (^{22}Na) qui émet des positons très énergétiques dont l'énergie maximale est de 541 keV. Ils sont ensuite convertis en un faisceau de positons quasi-monoénergétique avec une énergie de l'ordre de 3 eV, grâce à un modérateur constitué d'une feuille de tungstène polycristallin. Un filtre en énergie magnétique de forme coudée (90°), a pour rôle d'éliminer les positons qui n'ont pas été suffisamment modérés. Ainsi le faisceau de positons lents est dirigé et accéléré respectivement par un champ magnétique et électrique vers l'échantillon à étudier.

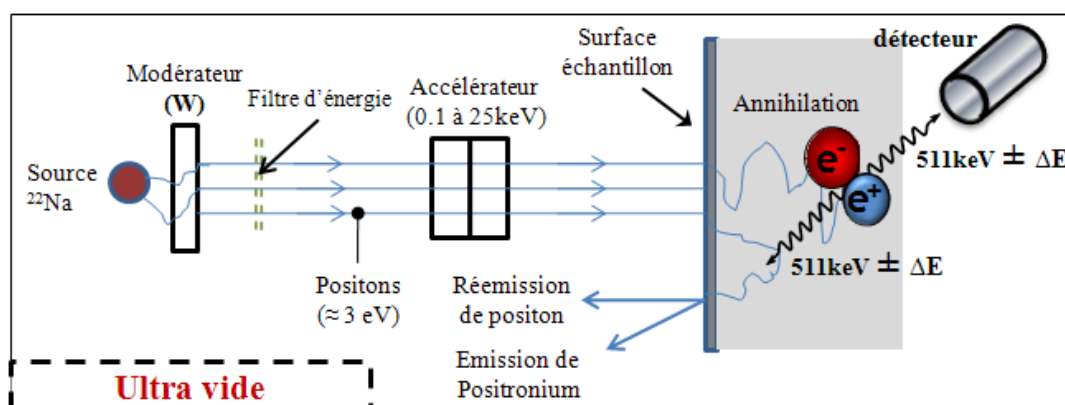


Figure II.20 : Représentation schématique du principe de fonctionnement de l'accélérateur de positons lents couplé au spectromètre d'élargissement Doppler du CEMHTI.

Les photons gammas γ émis lors de l'annihilation sont détectés par un détecteur à jonction p/n d'un cristal de germanium de haute résolution en énergie, maintenu à la température de 77 K, l'azote liquide, et polarisé par une haute tension de 3.5 kV. Le détecteur émet des signaux électriques qui passent par un amplificateur. Un système anti-empilement permet d'exclure les signaux qui résultent de la superposition de plusieurs photons γ . Un analyseur multicanaux trie les signaux suivant leur amplitude dans des canaux correspondant à l'énergie des photons gamma. Les dérivées du pic à 511 keV sont continuellement corrigées par un stabilisateur de pic. Enfin un convertisseur digital (ADC) va transformer les signaux analogiques en données numériques. Toutes ces données constituent un spectre Doppler (**Figure II.21**) dans lequel a été répertorié le nombre de photons γ en fonction de leur énergie détectés dans un intervalle dE , la résolution en énergie en keV/canal.

II.5.2.2. *Traitement des données*

La **Figure II.21**, représente le spectre d'élargissement Doppler enregistré au cours d'une analyse sur un échantillon de tungstène Goodfellow vierge. Le premier traitement consiste à soustraire le bruit de fond dû à l'effet Compton. En effet une partie des photons ne perd pas systématiquement la totalité de leur énergie et donc l'amplitude du pic de détection des photons est plus faible, conduisant à une asymétrie du spectre aux faibles énergies. Ainsi pour chaque énergie E est associée une valeur de bruit de fond calculée suivant la relation :

$$BG(E) = A + (B-A) \frac{F(E)}{F_{totale}} \quad \text{II. 16}$$

Avec

BG(E) :	Bruit de fond à l'énergie E
A :	Moyenne du bruit de fond à droite du pic
B :	Moyenne du bruit de fond à gauche du pic
F(E) :	Aire du spectre comprise entre E et E_{max}
F_{totale} :	Aire totale du spectre entre E_{min} et E_{max}

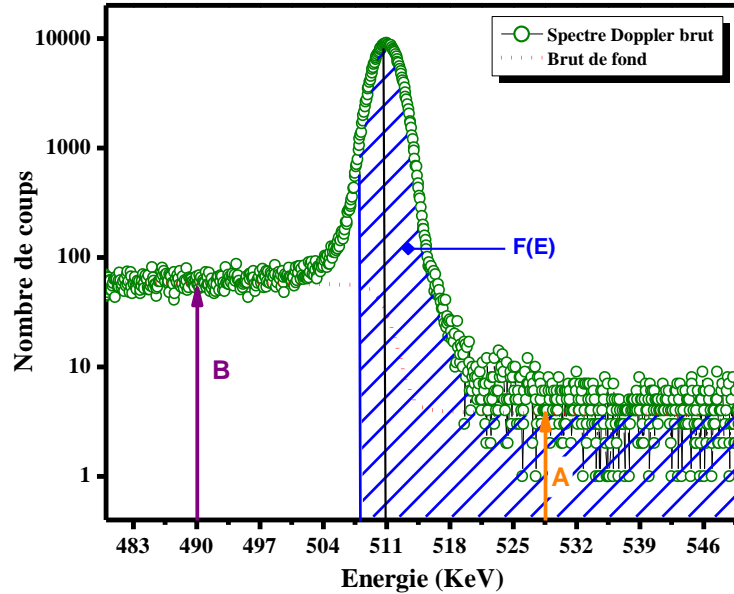


Figure II.21 : Spectre d'élargissement Doppler brut d'un échantillon de tungstène Goodfellow vierge pour des énergies de positons de 15 keV.

Après la soustraction du bruit de fond, le spectre obtenu a été normalisé en fonction du nombre de coups total et est présenté sur la **Figure II.22**. Ce spectre est caractérisé par deux paramètres de forme :

- Le paramètre S ou « Shape » : représente la fraction de positons qui se sont annihilés avec des électrons de faible moment cinétique, soit les électrons de valence essentiellement.
- Le paramètre W ou « Wing » : représente la fraction de positons qui se sont annihilés avec des électrons de fort moment cinétique, soit les électrons de cœur essentiellement.

Il est nécessaire pour le calcul de ces deux paramètres de définir un intervalle au centre de la raie à 511 keV $[-E_S ; +E_S]$ pour S et deux intervalles sur les zones latérales de la raie à 511 keV $[-E_{W1} ; -E_{W2}]$ et $[+E_{W1} ; +E_{W2}]$ (**Figure II.22**). Les intervalles sont choisis de manière à ce que les variations de S et W soient maximales et ils doivent rester constants d'une série de mesure à une autre. Ainsi le paramètre S est égal à l'intégrale de l'aire comprise dans l'intervalle $[-E_S ; +E_S]$ divisée par l'intégrale de l'aire totale sous le pic et le paramètre W est la somme des intégrales des aires comprises dans les intervalles $[-E_{W1} ; -E_{W2}]$ et $[+E_{W1} ; +E_{W2}]$ divisée par l'intégrale de l'aire totale sous le pic.

S et W constituent des caractéristiques d'annihilation du positon dans le matériau. Elles dépendent de la présence des défauts, de leur nature, concentration et de leur environnement chimique.

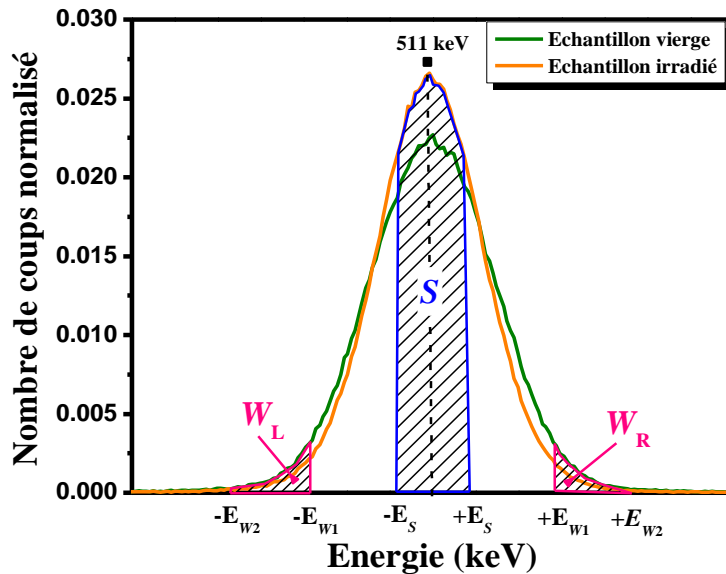


Figure II.22 : Spectre Doppler après soustraction du bruit de fond. La courbe verte correspond au spectre d'un échantillon de tungstène vierge et la courbe orange à celui d'un échantillon de tungstène irradié. La fraction d'annihilation S (resp. W) augmente (resp. diminue) dans le cas de l'échantillon irradié comparé à celui de l'échantillon vierge.

II.5.3. Exploitation et interprétation des données

II.5.3.1. Exploitation des paramètres S et W : concentration et nature des défauts

Les fractions d'annihilations S et W extraites des spectres d'élargissement Doppler après soustraction du bruit de fond constituent les caractéristiques d'annihilations des positons. L'analyse des courbes S et W en fonction de l'énergie des positons puis S en fonction de W , permettent de déduire des informations sur la distribution et la nature des défauts lacunaires détectés. Les caractéristiques d'annihilations S et W sont spécifiques à chaque matériau.

Dans un matériau sans défaut (vierge), les valeurs mesurées sont S_L et W_L . Elles sont caractéristiques de l'annihilation dans le réseau, où L signifie « Lattice ».

Lorsqu'un matériau comporte des défauts de type lacunaires les caractéristiques d'annihilation changent. Lorsque le positon est piégé dans les lacunes la probabilité pour le positon de s'annihiler avec un électron de cœur est limitée. La probabilité d'annihilation du positon avec un électron de valence devient plus grande. Ceci entraîne une augmentation de la fraction d'annihilation de positons s'annihilant avec les électrons de valence (S) et une diminution de la fraction d'annihilation de positons s'annihilant avec les électrons de cœur (W) par rapport à un échantillon sans défaut (voir **Figure II.22**). Par exemple, si un matériau contient un type de défaut lacunaire tel que la monolacune (v), avec une concentration très élevée conduisant à une saturation de piégeage, 100% de piégeage, des positons dans v , les valeurs des caractéristiques d'annihilation mesurées sont S_v et W_v et seront caractéristiques du défaut v .

Pour un matériau contenant une distribution de défauts, les valeurs mesurées de S et W correspondent à la somme des caractéristiques d'annihilation de chaque état i , défaut, Lattice, pondérées par la fraction d'annihilation dans chaque état, c'est-à-dire :

$$S = \sum_i f_i S_i \quad W = \sum_i f_i W_i \quad \text{II. 17}$$

Avec

S_i, W_i : Caractéristiques d'annihilation spécifiques de l'état i

f_i : Fraction de positons s'annihilant dans l'état i et $\sum_i f_i = 1$

II.5.3.1.1. Modèle de piégeage : concentration des défauts

Les modèles de piégeage sont utilisés dans le but d'évaluer quantitativement les concentrations de défauts détectés par la Spectroscopie d'Annihilation de positons (PAS). Ils permettent d'exploiter les paramètres S et W en fonction de la concentration des défauts dans les échantillons analysés par PAS. L'utilisation de cette méthode de calcul requiert une connaissance préalable de la nature des défauts présents dans l'échantillon. Nous présentons le modèle de piégeage dans le cas le plus simple celui où l'échantillon ne contient qu'un piège profond, appelé le **modèle à un piège profond**.

Dans un échantillon contenant un piège profond tels que des défauts lacunaires de type v appelé monolacune, une partie des positons s'annihilent dans un état délocalisé, le réseau, et l'autre partie des positons dans un état localisé, les défauts v . Le modèle peut être représenté par le schéma ci-dessous (**Figure II.23**) :

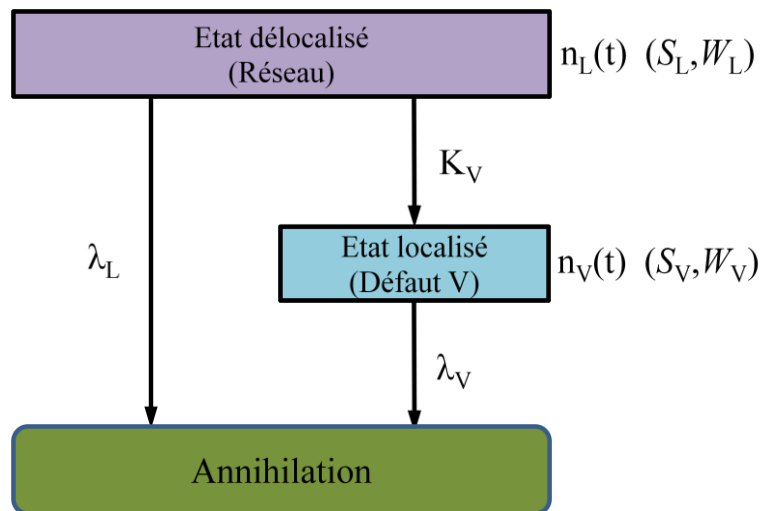


Figure II.23 : Représentation schématique du modèle à un piège profond d'annihilation des positons dans la matière cristalline.

La variation du nombre de positons n dans chacun des états au temps t est commandée par un système d'équations différentielles décrit ci-dessous :

$$\begin{cases} \frac{dn_L(t)}{dt} + (\lambda_L + K_V)n_L(t) = 0 \\ \frac{dn_V(t)}{dt} + \lambda_V n_V(t) = K_V n_L(t) \end{cases} \quad \text{II. 18}$$

Avec $n_L(t)$ la population de positons au temps (t) présent dans le réseau et $n_V(t)$ la population de positons au temps (t) piégé dans le défaut v .

En posant comme conditions initiales :

$$\begin{cases} n_L(t=0) = n_0 \\ n_V(t=0) = 0 \end{cases} \text{ où } n_0 \text{ est la population de positons dans le réseau à l'instant } t=0 \quad \text{II. 19}$$

En effet les positons ne sont pas piégés pendant la phase de thermalisation.

En résolvant le système d'équations nous obtenons :

$$\begin{cases} n_L(t) = n_0 e^{-(\lambda_L + K_V)t} \\ n_V(t) = n_0 \frac{K_V}{\lambda_L - \lambda_V + K_V} (e^{-\lambda_V t} - e^{-(\lambda_L + K_V)t}) \end{cases} \quad \text{II. 20}$$

Le nombre total de positons dans l'échantillon à l'instant t peut s'écrire de la façon suivante $n(t) = n_L(t) + n_V(t)$, alors :

$$n(t) = n_0 \frac{\lambda_L - \lambda_V}{\lambda_L - \lambda_V + K_V} e^{-(\lambda_L + \lambda_V)t} + n_0 \frac{K_V}{\lambda_L - \lambda_V + K_V} e^{-\lambda_V t} \quad \text{II. 21}$$

Ainsi $n(t)$ peut s'écrire :

$$n(t) = n_0 \sum_i I_i e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad \text{soit dans notre cas} \quad n(t) = n_0 (I_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} + I_2 e^{-\frac{t}{\tau_2}}) \quad \text{II. 22}$$

Avec τ_i les composantes des spectres de temps de vie et I_i leurs intensités, qui s'expriment :

$$\begin{cases} \tau_1 = \frac{1}{\lambda_L + K_V} \\ \tau_2 = \frac{1}{\lambda_V} \end{cases} \quad \text{II. 23}$$

$$\begin{cases} I_1 = \frac{\lambda_L - \lambda_V}{\lambda_L - \lambda_V + K_V} \\ I_2 = \frac{K_V}{\lambda_L - \lambda_V + K_V} \end{cases} \quad \text{II. 24}$$

On peut définir le temps de vie moyen des positons dans l'échantillon comme suit :

$$\bar{\tau} = \int_0^{\infty} t \times \left(-\frac{dn(t)}{dt} \right) dt = \sum_{i=1}^2 I_i \tau_i = I_1 \tau_1 + I_2 \tau_2 \quad \text{II. 25}$$

En remplaçant $n(t)$ par $n_L(t) + n_V(t)$ et en intégrant le taux d'annihilation des positons dans la formule II. 25 on peut alors écrire :

$$\bar{\tau} = f_L \tau_L + f_V \tau_V \quad \text{II. 26}$$

Avec

$$\begin{cases} f_L = \frac{1}{\lambda_L} \int_0^\infty t \left(-\frac{dn_L(t)}{dt} \right) dt \\ f_V = \frac{1}{\lambda_V} \int_0^\infty t \left(-\frac{dn_V(t)}{dt} \right) dt \end{cases} \implies \begin{cases} f_L = \frac{\lambda_L}{\lambda_L + K_V} \\ f_V = \frac{K_V}{\lambda_L + K_V} \end{cases} \quad \text{II. 27}$$

f_L et f_V représentent les fractions des positons qui s'annihilent respectivement dans le réseau et dans le défaut v . De la même façon on peut écrire :

$$\begin{cases} S = f_L S_L + f_V S_V \\ W = f_L W_L + f_V W_V \end{cases} \quad \text{II. 28}$$

L'expression des paramètres S et W peut alors s'exprimer en fonction de la concentration C_V des défauts v en remplaçant K_V par $\mu_V C_V$ car $K_V = \mu_V C_V$, voir page 68 :

$$\begin{cases} S = \frac{\lambda_L}{\lambda_L + \mu_V C_V} S_L + \frac{\mu_V C_V}{\lambda_L + \mu_V C_V} S_V \\ W = \frac{\lambda_L}{\lambda_L + \mu_V C_V} W_L + \frac{\mu_V C_V}{\lambda_L + \mu_V C_V} W_V \end{cases} \quad \text{II. 29}$$

En appliquant ce modèle dans le cas du tungstène, on obtient la Figure II.24, qui présente la courbe théorique de la variation du paramètre S en fonction de la concentration de la monolacune de tungstène.

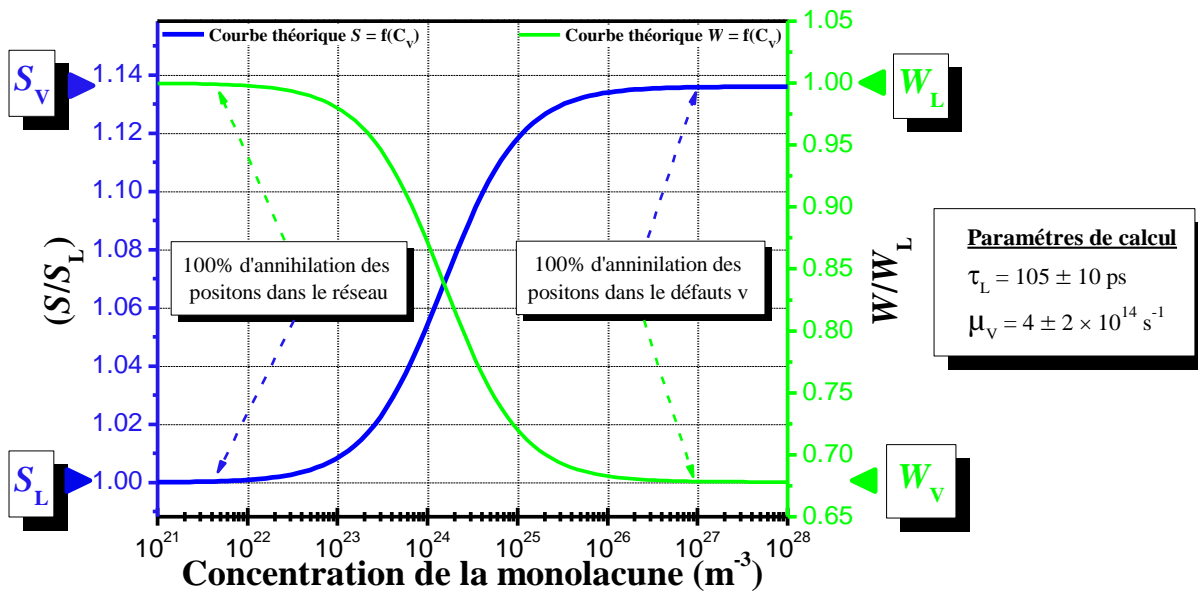


Figure II.24 : Variation théorique des paramètres d'annihilation des positons S et W normalisés en fonction de la concentration des défauts v dans le tungstène.

Il faut noter que la concentration des défauts peut être déterminée dans un domaine compris entre 10^{23} m^{-3} et 10^{26} m^{-3} . Au-delà de la concentration maximale de défauts, les caractéristiques d'annihilation S et W ne varient pratiquement pas. Cela correspond à une saturation de piégeage des positons dans les défauts.

II.5.3.1.2. Nature des défauts

Si on trace S en fonction de W pour toutes les concentrations on constate que les points (S, W) correspondent au point (S_L, W_L) pour les faibles concentrations. Puis ils se déplacent en suivant un segment de droite D_v et atteignent le point (S_v, W_v) caractéristique de l'annihilation dans le défaut v lorsque la concentration de v est telle que 100% des annihilations ont lieu dans le défaut v . Le segment de droite D_v est caractéristique du défaut v .

La représentation des caractéristiques spécifiques S en fonction de W , (S, W) , permet d'identifier la nature et la taille des défauts présents dans l'échantillon. Lorsque S augmente et W diminue, la taille du défaut augmente. La valeur absolue de la pente de la droite caractéristique augmente avec la taille du volume libre du défaut. Une étude réalisée par Hakala et al [124] sur le silicium, a pu montrer en calculant les valeurs théoriques de S_{v_i} et W_{v_i} , avec i le nombre de lacunes, qu'il est possible de distinguer des défauts lacunaires de nature différente par la représentation des points (S, W) . Sur la **Figure II.25**, la valeur absolue de la pente de la droite D_{v_i} augmente lorsque la taille ou le volume libre du défaut v_i augmente.

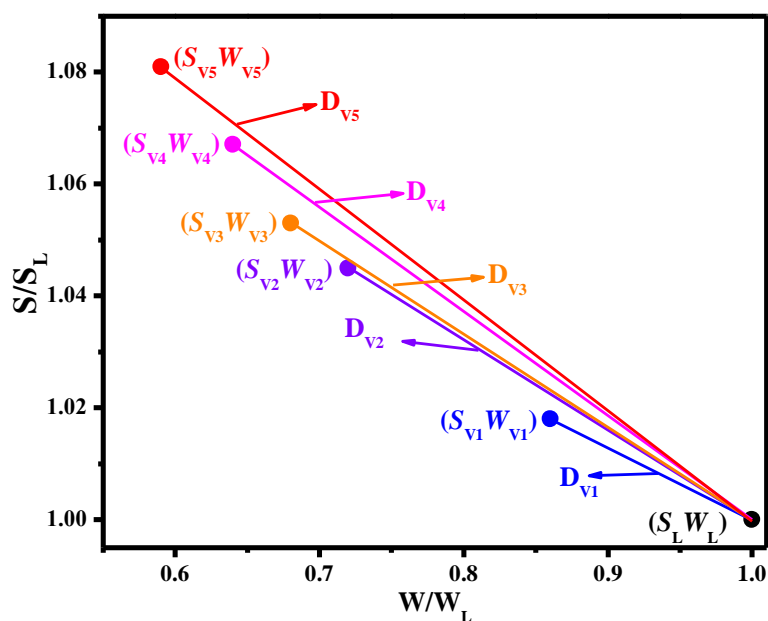


Figure II.25 : Evolution théorique des fractions d'annihilation des positons S et W en fonction de la taille des défauts lacunaires dans le silicium [124].

II.5.3.1.3. Effet de l'environnement chimique

Il est à noter que l'environnement chimique des atomes du matériau peut modifier les caractéristiques d'annihilation des positons S et W . La présence d'hélium dans les défauts de type lacunaire augmente la densité électronique et change la distribution des quantités de mouvement des paires e^+e^- annihilés, provoquant ainsi la réduction de la durée de vie des positons et du paramètre S [125]. De nombreux résultats des temps de vie des positons comme ceux calculés par Troev et *al* [74] ont démontré qu'effectivement la présence de l'hélium dans les défauts lacunaires peut modifier les caractéristiques d'annihilation. Une étude théorique réalisée par Tang et *al* [126] dans le Fer montre que la présence d'hélium dans les lacunes change la distribution des moments des électrons qui s'annihilent avec les positons. Sur la **Figure II.26** [126], nous pouvons observer que les points (S,W) tendent vers une diminution de S et de W , lorsque le nombre d'atome d'hélium augmente dans les amas lacunaires.

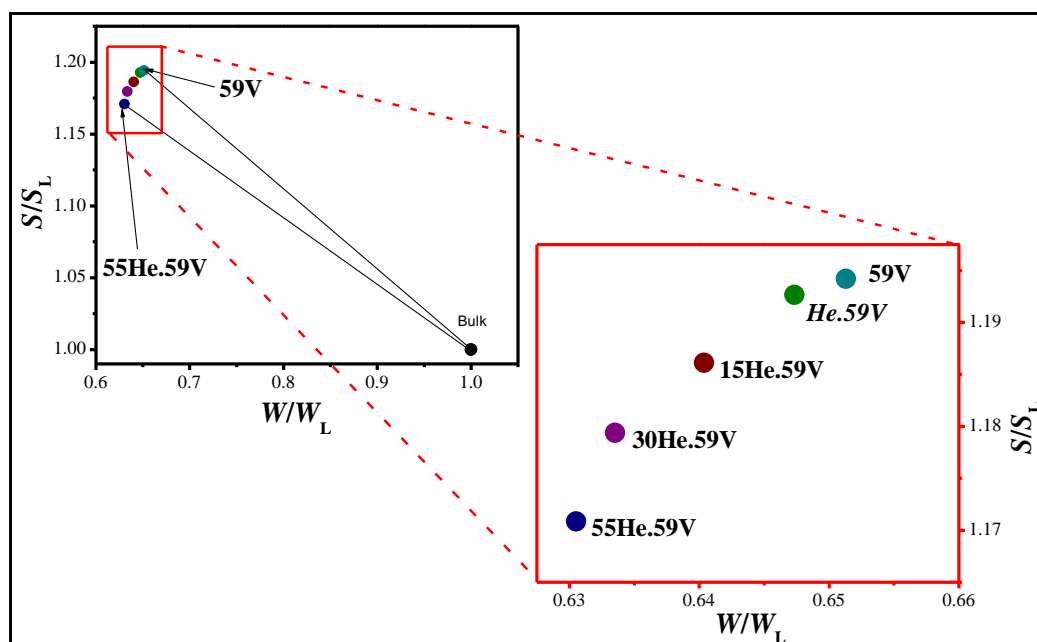


Figure II.26 : Evolution théorique des caractéristiques d'annihilation S et W des défauts lacunaires contenant de différents nombres d'atome d'hélium, données calculées pour le Fer par Tang et *al* [126].

II.5.3.1. Analyse des spectres Doppler en fonction de la profondeur

Le faisceau de positons lents monoénergétiques du CEMHTI permet d'accélérer les positons entre 0.1-25 keV et de mesurer $S(E)$ et $W(E)$. Dans le tungstène, ces positons peuvent sonder jusqu'à 800 nm sous la surface. A chaque énergie d'implantation les positons s'implantent suivant une distribution caractérisée par une profondeur moyenne d'implantation, **Figure II.18**. Afin d'ajuster et de modéliser les caractéristiques d'annihilations S et W en fonction de la profondeur, nous utilisons un programme VEPFIT [127]. Ce logiciel tient compte de l'implantation et de la diffusion des positons avant leur annihilation dans le matériau qui est modélisé en une succession de couches homogènes i . La

variation de S ou W en fonction de l'énergie incidente E des positons s'écrit alors comme une somme des caractéristiques d'annihilation à la surface et dans les différentes couches pondérée par la fraction d'annihilation à la surface et dans chaque couche i pour l'énergie E :

$$S(E) = f_{\text{surface}}(E)S_{\text{surface}} + \sum_i f_i(E)S_i \quad \text{II. 30}$$

$$W(E) = f_{\text{surface}}(E)W_{\text{surface}} + \sum_i f_i(E)W_i \quad \text{II. 31}$$

Avec

$f_i(E)$	Fraction de positons d'énergie E s'annihilant dans la couche i
$f_{\text{surface}}(E)$	Fraction de positons d'énergie E s'annihilant à la surface
S_i et W_i	Caractéristiques d'annihilation dans la couche i
S_{surface} et W_{surface}	Caractéristiques d'annihilation de surface

Ainsi la modélisation des courbes expérimentales $S(E)$ et $W(E)$ permet de déterminer pour chaque couche i les caractéristiques d'annihilations S_i et W_i , l'épaisseur P_i et d'évaluer la longueur de diffusion effective $L_{i\text{eff}}^+$ des positons (**Figure II.27**).

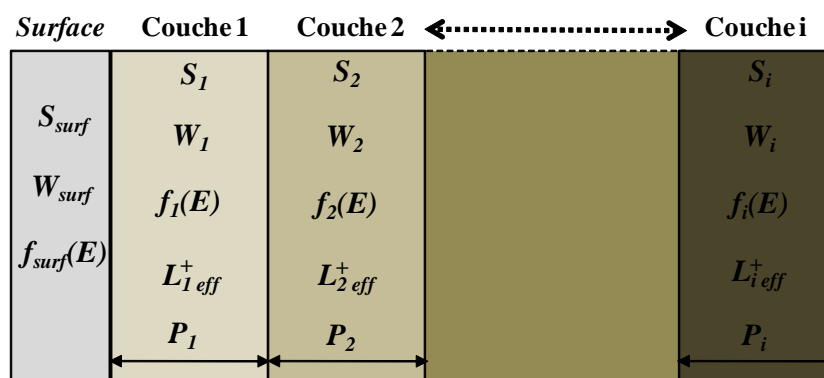


Figure II.27 : Illustration de la structure en couches homogènes modélisée par le logiciel VEPFIT.

Il est bien de préciser que l'utilisation du logiciel VEPFIT pour simuler un matériau endommagé sur plusieurs couches ayant des caractéristiques d'annihilation homogènes peut devenir contraignante. En effet cela implique d'augmenter le nombre de couches dans le traitement et le logiciel VEPFIT doit gérer beaucoup de paramètres en même temps. Dans ce cas l'idée est de fixer certains paramètres pour effectuer un fit. Or cette méthode peut induire des erreurs. Il est donc nécessaire de réaliser ces fits avec beaucoup de précaution.

Il est à noter que les valeurs S_i et W_i peuvent correspondre à l'annihilation des positons dans plusieurs états (Lattice, défaut).

II.5.4. Caractéristiques d'annihilation des positons dans le tungstène

Il existe quelques données expérimentales des caractéristiques d'annihilation S et W déterminées dans le tungstène par Spectroscopie d'élargissement Doppler et par mesure des temps de vie des positons. Ces données ont été obtenues par P.E. Lhuillier pendant la réalisation de ses travaux de thèse effectués au laboratoire CEMHTI et publiés en 2010 [1]. La **Figure II.28**, regroupent les caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons de tungstène Goodfellow monocristallins et polycristallins vierges correspondant respectivement aux points (S_{LM}, W_{LM}) et (S_L, W_L) . De plus, il a pu déterminer les caractéristiques (S_V, W_V) de la monolacune de tungstène v , en réalisant des analyses par PAS dans des échantillons de tungstène polycristallins implantés avec des ions ^3He d'une énergie de 800 keV à différentes fluences. Après recuits des échantillons implantés à différentes températures, il a mis en évidence les caractéristiques d'annihilation S et W d'un mélange de défauts identifié comme étant des amas lacunaires de type v_L (avec $L \geq 30$) de taille supérieure à celle de la monolacune v et d'autres défauts pièges à positons qui pourraient être des boucles de dislocations (A) [1]. La droite D_V est la droite caractéristique de la monolacune de tungstène v , elle passe par l'état initial (Lattice) des échantillons de tungstène (S_L, W_L) et le point (S_V, W_V) . La droite D_3 correspond à un mélange de défauts tels que des clusters v_L (avec $L \geq 30$) et des boucles de dislocations (A).

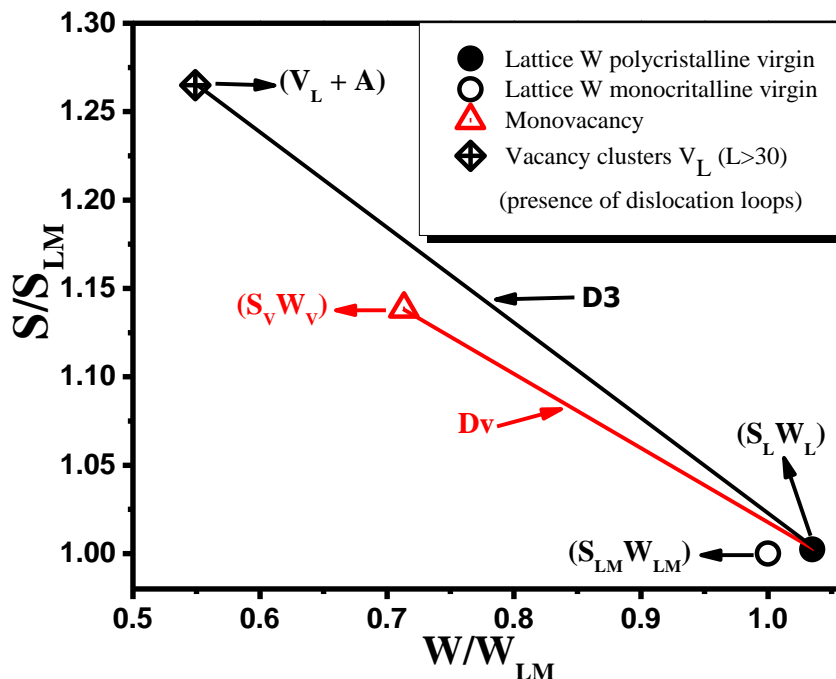


Figure II.28 : Evolution expérimentale des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la taille des défauts lacunaires dans le tungstène polycristallin. Toutes les valeurs de S et W ont été prises dans l'étude précédente [1].

Récemment, K. Heinola a calculé les valeurs des caractéristiques d'annihilation de positons S , W et le temps de vie des positons (τ) de différents états d'annihilation tels que le réseau, la monolacune et des défauts complexes de type $n\text{He}-v$ (une monolacune de tungstène v avec plusieurs atomes d'hélium avec $n \geq 1$) dans le tungstène. En comparant l'évolution des

caractéristiques d'annihilation S et W théoriques obtenues dans le tungstène par K. Heinola (**Figure II.29**) avec celles obtenus dans le Fer par Tang et *al* [126] (**Figure II.26**), nous constatons que les valeurs de W augmentent quand le nombre d'atomes d'hélium augmentent dans le cas de K. Heinola tandis que, les résultats de Tang et *al*, montrent que les valeurs de W diminuent quand le nombre d'atomes d'hélium augmente. Mais de manière générale les deux auteurs prédisent que la valeur absolue de la pente de la droite caractéristique d'un défaut $n\text{He}-m\nu$ (avec $m \geq 1$) a tendance à diminuer quand le nombre d'hélium n augmente. En outre, la diminution du temps de vie théorique des positons dans les défauts de type $n\text{He}-\nu$ en fonction du nombre d'atomes d'hélium prédit par K. Heinola (**Figure II.30**) est en bon accord avec celle annoncée dans l'article publié par V.S. Subrahmanyam et *al* [125].

Nous pouvons constater que les valeurs théoriques S et W du réseau (Lattice) et de la monolacune (ν) ne sont pas égales aux valeurs expérimentales obtenues dans une étude précédente [1] (voir **Tableau II.3**). En effet dans le modèle, la résolution du spectromètre Doppler n'a pas été prise en compte. La représentation des points (S,W) théoriques des complexes $n\text{He}-\nu$ (voir **Figure II.29**), montre quelles sont largement en-dessous de la droite D_V . L'augmentation du nombre n d'atomes d'hélium dans la monolacune ν , donne une tendance de variation des caractéristiques d'annihilation (S,W) quasi-linéaire. La valeur absolue de la pente de la droite qui relie le point « Lattice » et le point caractéristique du défaut complexe $n\text{He}-\nu$ diminue quand le nombre n d'atomes d'hélium augmente. Il est également très clairement montré que la durée de vie des positons dans les complexes $n\text{He}-\nu$ diminue quand le nombre n augmente (**Figure II.30**), et pour $n > 6$ la valeur de la durée de vie des positons est très proche de celle du réseau (Lattice), tandis que les valeurs des caractéristiques d'annihilation S et W sont clairement différentes.

		Tungstene				
		Lattice	ν	He- ν	2He- ν	6He- ν
Theoretical values	S	0.394595	0.4572	0.41716	0.408445	0.389499
	W	0.048288	0.030739	0.036483	0.037582	0.039773
	S/S_{Lattice}	1	1.158656	1.057185	1.035099	0.987085
	W/W_{Lattice}	1	0.636576	0.755529	0.778289	0.823662
	τ (ps)	-	-	-	-	-
	$\tau/\tau_{\text{Lattice}}$	-	-	-	-	-
Experimental values (From P.-E. LHUILLIER Thesis)	S	0.367 ± 0.002	0.417 ± 0.003	-	-	-
	W	0.084 ± 0.001	0.057 ± 0.002	-	-	-
	S/S_{Lattice}	1	1.13624	-	-	-
	W/W_{Lattice}	1	0.678571	-	-	-
	τ (ps)	105	200	-	-	-
	$\tau/\tau_{\text{Lattice}}$	1	1.904762	-	-	-

Tableau II.3 : Valeurs théoriques des caractéristiques d'annihilation S et W du réseau, de la monolacune ν et des défauts complexes de type $n\text{He}-\nu$ calculées dans le tungstène par K. Heinola comparées aux valeurs expérimentales obtenues par P.E. Lhuillier [1].

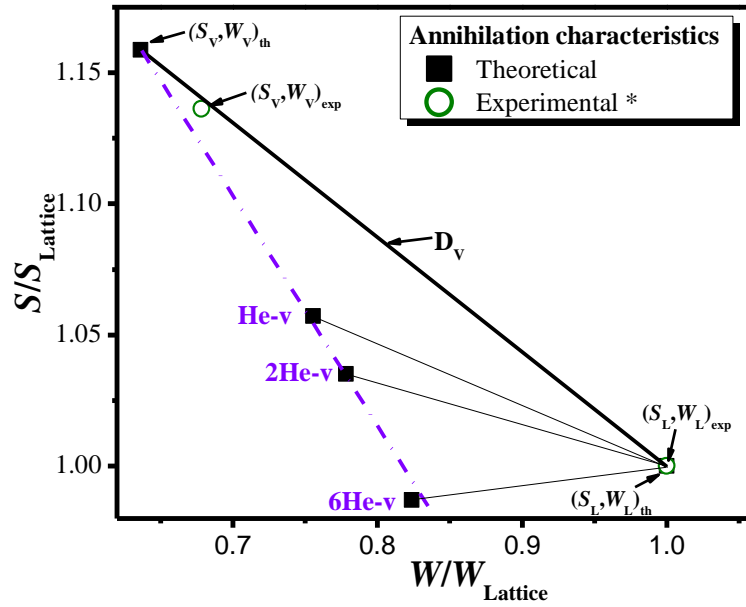


Figure II.29 : Variation des caractéristiques d'annihilation S et W des défauts complexes $n\text{He-v}$ en fonction du nombre n d'atomes d'hélium calculées pour le tungstène par K. Heinola. Les caractéristiques d'annihilation (S, W) du point Lattice et de la monolacune dans le tungstène obtenues expérimentalement [1] sont reportées.

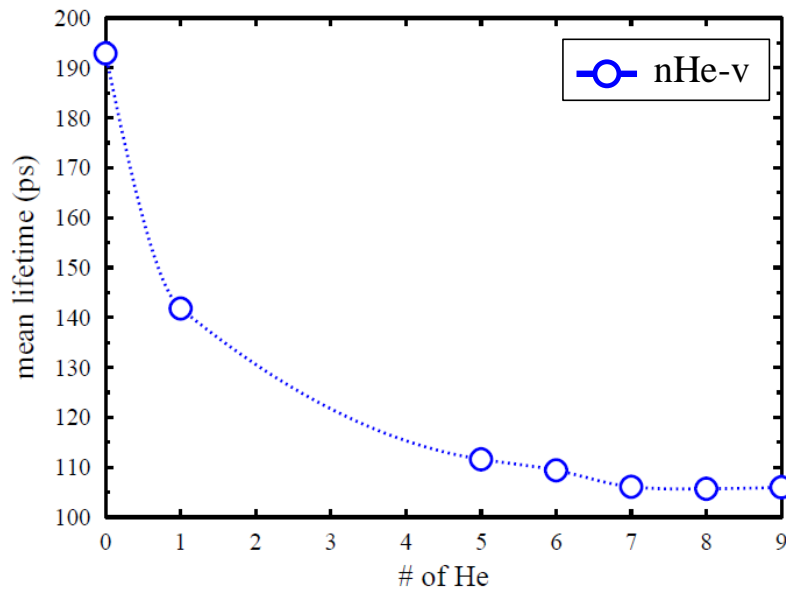


Figure II.30 : Evolution de la durée de vie des positons dans des défauts complexes $n\text{He-v}$ en fonction du nombre n d'atomes d'hélium, calculée pour le tungstène par K. Heinola.

II.6. Techniques d'irradiations ou d'implantations

Deux types de dispositifs ont été utilisés afin d'induire de l'endommagement dans des échantillons de tungstène ou d'introduire de l'hélium. Ces dispositifs sont décrits dans cette section avec les conditions d'irradiation ou d'implantation utilisées.

II.6.1. Irradiation aux ions lourds et légers de haute énergie : la plateforme JANNuS

Pour simuler l'endommagement induit par les reculs de noyaux engendrés par irradiation aux neutrons de fusion, nous avons réalisé des irradiations avec des ions W d'une énergie de 20 MeV dans des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow).

Pour induire l'endommagement attendu par irradiation aux neutrons et étudier le rôle de l'hélium produit par transmutation et/ou par implantation sur la nature des défauts, des irradiations simultanées d'ions W 20 MeV et ^4He 850 keV ont été réalisées dans des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow).

Ces irradiations ont été réalisées sur la plateforme JANNuS (Jumelage d'Accélérateurs pour les Nanosciences, le Nucléaire et la Simulation) située sur le site de Saclay. Cette plateforme (**Figure II.31**) dispose de trois accélérateurs de particules couplés dont les voies convergent vers la même cible. Le porte-échantillon (**Figure II.32**) est monté dans la partie arrière de la chambre sur une plaque en platine dont la température peut être réglée entre l'azote liquide jusqu'à 1073 K [128]. Un thermocouple fixé dans le porte-échantillon permet de suivre la température des échantillons au cours de l'implantation.

Nous avons utilisé soit l'accélérateur Epiméthée pour les irradiations avec les ions W 20 MeV, simultanément les accélérateurs Epiméthée et Yvette pour des irradiations avec respectivement des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV. Tous les échantillons de tungstène utilisés pour ces irradiations ont été préalablement recuits à 1873 K pendant 1 h sous vide. Les conditions d'irradiation sont résumées dans le **Tableau II.4**.

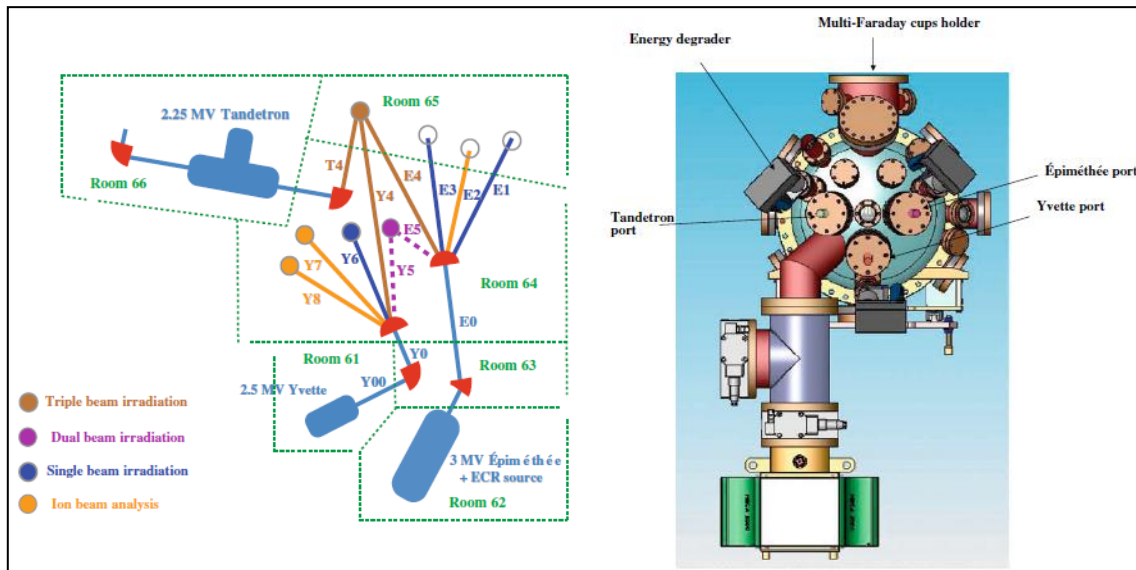


Figure II.31 : Schémas d'ensemble de l'installation du dispositif JANNuS (à gauche) et vue de face de la chambre à vide du dispositif JANNuS (à droite), installé au CEA de Saclay [128].

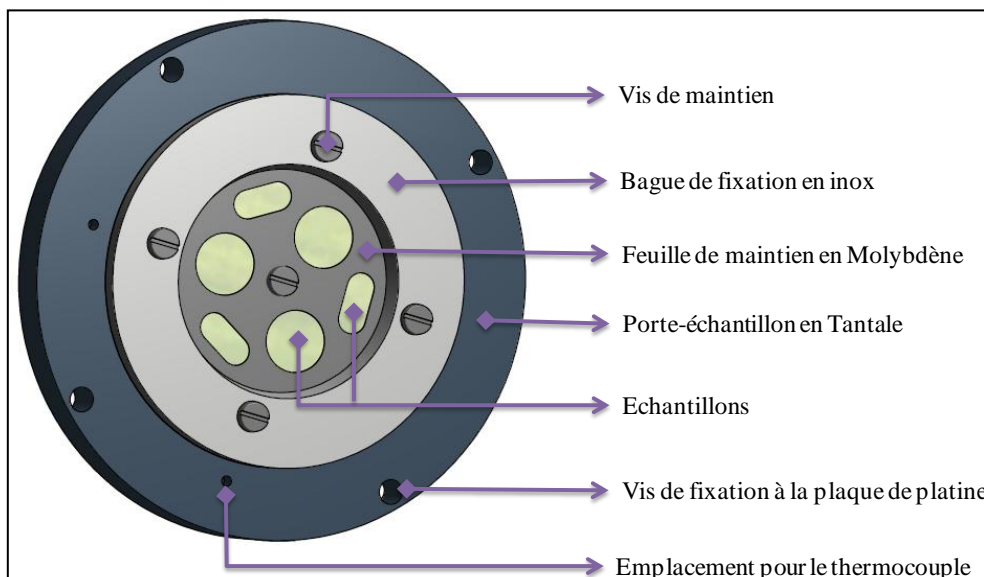


Figure II.32 : Design du porte-échantillon utilisé pour nos implantations sur le dispositif JANNuS du CEA-Saclay.

Irradiations JANNUS du 10 au 13 Octobre 2011													
Echantillons			Irradiations voulues				Réalizations						
			W 20 MeV	⁴ He 850 keV	dpa* (SRIM)	Température d'irradiation (K)	Temps (min)		Flux (cm ⁻² .s ⁻¹)		Fluence (cm ⁻²)		Température d'irradiation (K)
Nom	Taille (mm ²)	Lot	Fluence (cm ⁻²)				W	⁴ He	W	⁴ He	W	⁴ He	
W-P-H-R02	7x7	Goodfellow	4.50 x 10 ¹⁵	X	12	93	472	X	1.58 x 10 ¹¹	X	4.49 x 10 ¹⁵	X	91
W-P-H-R03		Goodfellow											
DF-W-A-C-A01		EFDA											
W-P-H-P04	7x7	Goodfellow	3.70 x 10 ¹⁴	X	1	93	138	X	4.47 x 10 ¹⁰	X	3.70 x 10 ¹⁴	X	91
DF-W-A-C-A05		EFDA											
DF-W-A-C-A06		EFDA											
W-P-H-P03	7x7	Goodfellow	9.40 x 10 ¹²	X	0.025	93	4.70	X	3.54 x 10 ¹⁰	X	9.98 x 10 ¹²	X	91
DF-W-A-C-A02		EFDA											
DF-W-A-C-A04		EFDA											
Irradiations JANNUS du 01 Mars 2013													
DF-W-A-C-A23	7x7	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	X	12	873	281	X	2.66 x 10 ¹¹	X	4.48 x 10 ¹⁵	X	873
DF-W-A-C-A24		EFDA											
W-P-H-R09		Goodfellow											
DF-W-A-C-A19a	7x3	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	X	12	873	281	X	2.66 x 10 ¹¹	X	4.48 x 10 ¹⁵	X	873
DF-W-A-C-A19b		EFDA											
W-P-H-Q13b		Goodfellow											
Irradiations JANNUS 18 Juillet 2012													
DF-W-A-C-A15	7x7	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	91	302	184	2.48 x 10 ¹¹	4.12 x 10 ¹⁰	4.49 x 10 ¹⁵	4.55 x 10 ¹⁴	128
DF-W-A-C-A16		EFDA											
W-P-H-R04		Goodfellow											
DF-W-A-C-A03a	7x3	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	91	302	184	2.48 x 10 ¹¹	4.12 x 10 ¹⁰	4.49 x 10 ¹⁵	4.55 x 10 ¹⁴	128
DF-W-A-C-A03b		EFDA											
W-P-H-R07a		Goodfellow											
Irradiations JANNUS 12 Juillet 2012													
DF-W-A-C-A17	7x7	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	673	388	160	1.87 x 10 ¹¹	4.87 x 10 ¹⁰	4.36 x 10 ¹⁵	4.68 x 10 ¹⁴	673<T<678
DF-W-A-C-A18		EFDA											
W-P-H-R06		Goodfellow											
DF-W-A-C-A09a	7x3	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	673	388	160	1.87 x 10 ¹¹	4.87 x 10 ¹⁰	4.36 x 10 ¹⁵	4.68 x 10 ¹⁴	673<T<678
DF-W-A-C-A09b		EFDA											
W-P-H-R07b		Goodfellow											
Irradiations JANNUS 27 février 2013													
DF-W-A-C-A21	7x7	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	873	305	164	2.46 x 10 ¹¹	4.64 x 10 ¹⁰	4.50 x 10 ¹⁵	4.56 x 10 ¹⁴	873
DF-W-A-C-A22		EFDA											
W-P-H-R08		Goodfellow											
DF-W-A-C-A14a	7x3	EFDA	4.50 x 10 ¹⁵	4.53 x 10 ¹⁴	12	873	305	164	2.46 x 10 ¹¹	4.64 x 10 ¹⁰	4.50 x 10 ¹⁵	4.56 x 10 ¹⁴	873
DF-W-A-C-A14b		EFDA											
W-P-H-Q13a		Goodfellow											

Tableau II.4 : Récapitulatif de toutes les conditions d'irradiations aux ions lourds et/ou légers réalisées à JANNUS.

Le flux d'irradiation des ions W d'une énergie de 20 MeV est de $3.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour les faibles fluences et reste limité à $2.66 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour les plus fortes fluences.

Dans le cas des irradiations simultanées (W 20 MeV + ⁴He 850 keV), le flux des ions ⁴He 850 keV issu de Yvette n'a pas pu être adapté aux flux des ions W 20 MeV pour pouvoir respecter les rapports d'irradiation He/dpa souhaités. Il a été nécessaire d'arrêter le faisceau des ions ⁴He 850 keV par intermittence. Ainsi pendant 20 minutes l'échantillon a été irradié seulement avec des ions W 20 MeV et les 20 minutes suivantes avec les 2 faisceaux d'ions W 20 MeV + ⁴He 850 keV (**Figure II.33**).

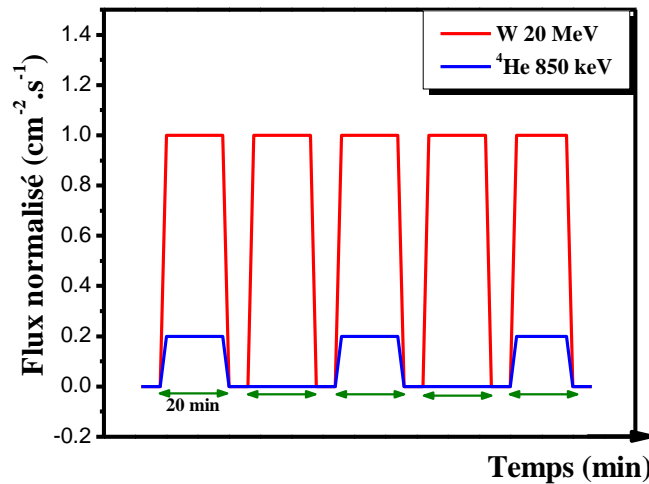


Figure II.33 : Schéma de la méthode d'irradiation simultanée avec des ions W 20 MeV + ⁴He 850 keV dans le tungstène réalisé sur la plateforme JANNuS.

Les profils d'endommagement et d'implantation des ions calculés par SRIM sont données au début de chaque chapitre traitant des résultats expérimentaux.

II.6.2. Implantation ⁴He 60 keV

Pour étudier le comportement en température des défauts lacunaires de type monolacune en présence d'hélium, nous avons choisi de réaliser des implantations avec des ions hélium de faible énergie. Pour cela, des échantillons de tungstène (Goodfellow) ont été implantés par des ions ⁴He avec une énergie de 60 keV. Ces implantations ont été réalisées sur l'implanteur du laboratoire Pprime de Poitiers, qui est un accélérateur de type EATON NV 3206 fonctionnant avec une tension accélératrice pouvant atteindre 200 kV. Pendant l'implantation la température des échantillons n'a pas dépassé 333 K. Dans le **Tableau II.5**, sont présentées les conditions d'implantation des échantillons de tungstène Goodfellow avec des ions ⁴He 60 keV à différentes fluences. Les échantillons de tungstène ont été recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide avant les implantations.

Echantillons				Implantations			
Nombre	Nom	Lot	Taille (mm ²)	Particule	Energie (keV)	Flux (cm ⁻² .s ⁻¹)	Fluence (cm ⁻²)
4	W-P-H-Q03	Goodfellow	7x7	⁴ He	60keV	~1 x 10 ¹²	1 x 10 ¹⁴
	W-P-H-Q04						
	W-P-H-Q05						
	W-P-H-Q06						
2	W-P-H-Q07	Goodfellow	7x7	⁴ He	60keV	~1 x 10 ¹²	1 x 10 ¹⁵
	W-P-H-Q10						

Tableau II.5 : Résumé des conditions utilisées pour les implantations avec les ions He 60 keV dans des échantillons de tungstène Goodfellow réalisées au laboratoire Pprime de Poitiers.

II.7. Résumé

Dans ce travail nous avons étudié l'endommagement induit par les ions lourds et/ou légers, son évolution en fonction de la fluence, de la température d'irradiation ou de recuit et de la présence de l'hélium. Deux lots d'échantillons de tungstène ont été utilisés, EFDA et Goodfellow. Ils ont été recuits préalablement à 1873 K pendant une heure sous vide. Nous avons utilisé principalement la Spectroscopie d'Annihilation de Positons pour sonder les défauts lacunaires. L'accélérateur de positons lents du CEMHTI nous permettra de sonder les défauts lacunaires d'une part dans les premiers 800 nm des échantillons de tungstène et d'autre part de suivre leurs évolutions en fonction de la température de recuit et d'irradiation. Afin d'étudier les défauts lacunaires engendrés au-delà des 800 premiers nanomètres, nous utiliserons la technique de décapage électrolytique que nous avons mise au point pour décaper sans induire des défauts supplémentaires dans les échantillons de tungstène irradiés. Enfin, nous avons réalisé quelques observations MET sur les lames minces découpés par FIB dans des échantillons de tungstène irradiés.

CHAPITRE III

III. CREATION ET COMPORTEMENT DES DEFAUTS INDUITS PAR IRRADIATION DANS LE TUNGSTENE.....	89
III.1. QUALITE INITIALE DES ECHANTILLONS REÇUS	89
III.1.1. Caractérisation des échantillons initialement reçus	89
III.1.2. Elimination des défauts natifs	91
III.2. DEFAUTS LACUNAIRES INDUITS PAR IRRADIATION AVEC DES IONS LOURDS... 93	
III.2.1. Irradiation avec des ions lourds à faible dpa.....	94
III.2.2. Irradiations avec des ions lourds à fort dpa	103
III.2.3. Nature des défauts lacunaires en fonction de la profondeur	112
III.3. COMPORTEMENTS DES AMAS LACUNAIRES EN FONCTION DE LA TEMPERATURE DE RECUIT	119
III.3.1. Méthode de traitement appliquée.....	119
III.3.2. Stades de recuit des amas lacunaires induits par les ions W	119
III.3.3. Etude des défauts en fonction de la profondeur.....	122
III.4. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A TRANSMISSION : DISTRIBUTION DES CAVITES.....	144
III.4.1. Echantillon de tungstène irradié Fe 10 MeV	144
III.4.2. Echantillons de tungstène irradiés W 20 MeV	149
III.4.3. Discussions	151
III.4.4. Conclusions.....	152
III.5. NATURE DES DEFAUTS EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION	153
III.5.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM	153
III.5.2. Caractérisation des défauts induits par irradiation en température.....	154
III.6. CONCLUSIONS DU CHAPITRE III.....	158

III. Création et comportement des défauts induits par irradiation dans le tungstène

Le divertor du réacteur ITER, est un composant essentiel, il assurera l'extraction des cendres du réacteur. Le tungstène a été choisi comme matériau constituant ce divertor où il subira un endommagement pendant la phase de fonctionnement dû au bombardement neutronique et des particules alpha, créant ainsi des défauts. Dans ce chapitre nous allons nous focaliser sur l'étude de la nature et du comportement des défauts induits par l'endommagement neutronique subi par le tungstène dans le réacteur d'ITER. Afin de simuler cet endommagement neutronique, nous avons réalisé des irradiations avec des ions lourds tels que des ions Fe et W.

Dans un premier temps, il était nécessaire de détenir des échantillons de tungstène de bonne qualité, c'est-à-dire des échantillons ayant un état initial sans défauts. Nous avons utilisé la Spectroscopie d'Annihilation de Positons réalisé avec le faisceau de positons lents du CEMHTI, pour vérifier la qualité des échantillons avant et après irradiation. Ensuite le comportement des défauts induits en fonction de la température a aussi été étudié. Enfin quelques observations en Microscopie Electronique à Transmission ont aussi pu être réalisées.

III.1. Qualité initiale des échantillons reçus

Les différents lots d'échantillons de tungstène utilisés pour cette étude proviennent de deux fournisseurs différents : Goodfellow et EFDA.

III.1.1. Caractérisation des échantillons initialement reçus

Les échantillons de tungstène des différents lots ont été analysés avec l'accélérateur de positons lents du CEMHTI : le DB-PAS (Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy).

La **Figure III.1**, présente les caractéristiques d'annihilation d'un échantillon EFDA dans l'état tel que reçu, puis poli, comparés à celles d'un échantillon poli Goodfellow tel que reçu. Le profil de la fraction d'annihilation de faible moment en fonction de l'énergie des positons $S(E)$ (resp. la fraction d'annihilation de fort moment en fonction de l'énergie des positons $W(E)$) de l'échantillon W EFDA tel que reçu décroît (resp. croît). Les valeurs $S(E)$ et $W(E)$ restent au-dessus (resp. en-dessous) de celles mesurées dans l'échantillon poli Goodfellow pour les énergies de positons variant entre 0.5-18 keV. En revanche, l'échantillon poli Goodfellow présente un plateau pour $S(E)$ et $W(E)$ sur toute la gamme d'énergie de positons comprise entre 0.5-25 keV où S et W restent constants égaux à : $S = 0.4167 \pm 0.0001$ et $W = 0.05867 \pm 0.00008$. Cela suggère que l'échantillon W EFDA tel que reçu contient plus de défauts en surface ou présente un état de surface oxydé. Notez que lorsque l'énergie des positons est au-dessus de 18 keV, les positons commencent à sonder en profondeur à environ 450 nm et nous pouvons observer que les profils $S(E)$ et $W(E)$ de échantillon EFDA tel que

reçu, viennent pratiquement se superposer sur ceux de l'échantillon poli Goodfellow. Après avoir poli l'échantillon EFDA, nous pouvons constater que les profils $S(E)$ et $W(E)$ mesurés changent d'allures, ils présentent un plateau et sont quasi-superposés à ceux de l'échantillon poli Goodfellow. De plus les valeurs de $S = 0.4149 \pm 0.0001$ et de $W = 0.0621 \pm 0.0003$, sont très proches de celles obtenues pour l'échantillon Goodfellow poli. Tous les points $S(W)$, plus précisément dans le cas des échantillons polis, se regroupent pratiquement au même endroit et sont proches du point caractéristique correspondant à l'annihilation dans les défauts lacunaires de type monolacune de tungstène [1]. Il est intéressant de noter que le même type de profil de $S(E)$ et de $W(E)$ a déjà été observé sur des échantillons de tungstène Goodfellow, dans une étude précédente [1, 73]. Nous pouvons conclure que les échantillons EFDA après polissage présentent des défauts natifs similaires à ceux observés dans l'échantillon poli Goodfellow.

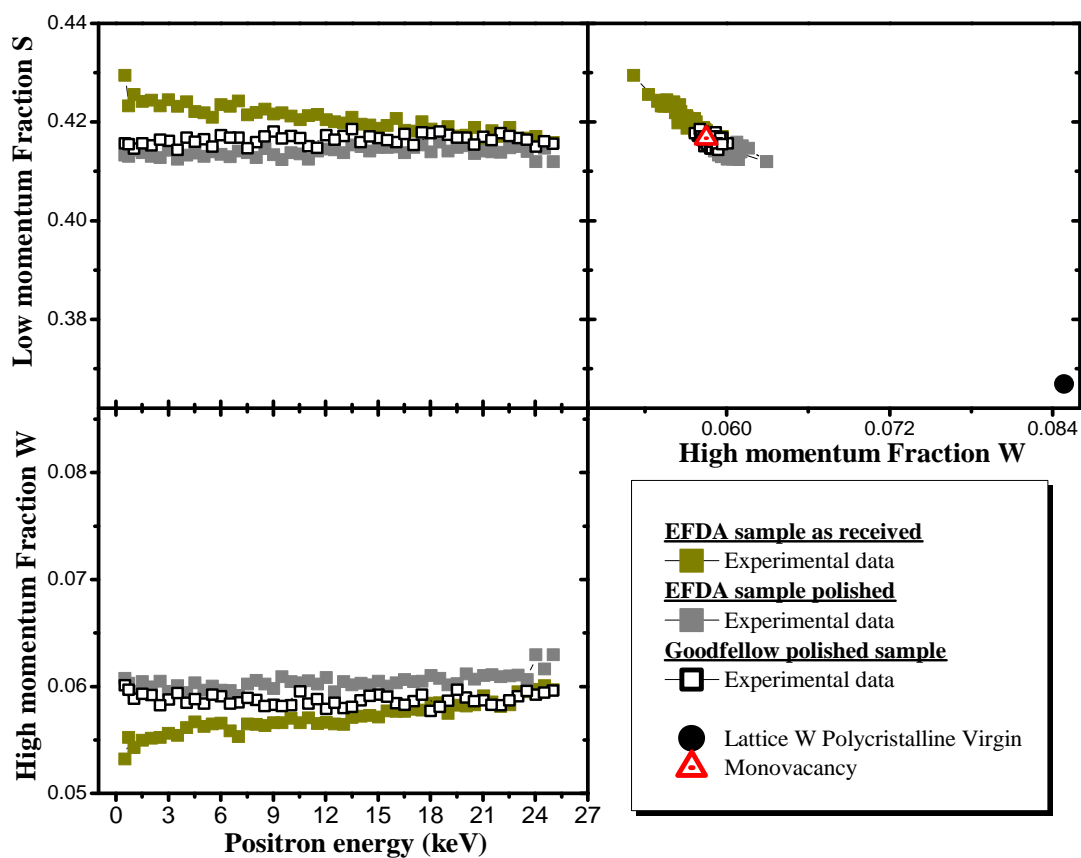


Figure III.1 : Les caractéristiques d'annihilations S et W mesurées dans un échantillon W EFDA tel que reçu, puis poli, et dans un échantillon W Goodfellow poli, en utilisant DB-PAS. Les points (S,W) du Lattice du tungstène polycristallin vierge (S_L, W_L) et de la monolacune (S_V, W_V) sont issus de l'étude précédente [1].

III.1.2. Elimination des défauts natifs

Les échantillons de tungstène tel que reçus, contiennent des défauts natifs induits lors du processus de fabrication. Quel que soit le fournisseur EFDA ou Goodfellow, les échantillons W après polissage, présentent pratiquement les mêmes types de défauts natifs. Afin d'éliminer ces défauts, les échantillons vont subir un traitement thermique à 1873 K pendant 1 heure sous un vide poussé à l'aide du four à bombardement électronique du laboratoire CEMHTI. Le choix de la température et du temps de traitement ont fait l'objet d'une étude au laboratoire CEMHTI et le détail des résultats de cette étude peut être consulté dans le rapport de thèse de P.E. Lhuillier publié en 2010 [1].

La **Figure III.2**, présente les caractéristiques d'annihilation des échantillons W EFDA et Goodfellow recuit à 1873 K pendant 1 heure sous vide, comparés à celles des échantillons W EFDA et Goodfellow non recuits. Les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) des échantillons W EFDA et Goodfellow, recuits à 1873 K sont pratiquement semblables. S décroît (resp. W croît) quand l'énergie des positons augmente. Cela suggère qu'il n'y a pas de différence entre un échantillon EFDA poli puis recuit et un échantillon Goodfellow poli puis recuit. Les données expérimentales des échantillons recuits ont été fittées avec le logiciel VepFit en utilisant un modèle à une seule couche homogène. Dans le **Tableau III.1**, sont reportées les valeurs calculées S_{Bulk} , W_{Bulk} et la longueur effective de diffusion des positons de cette couche. Les valeurs S_{Bulk} et W_{Bulk} déterminées pour les échantillons EFDA et Goodfellow sont très proches et les valeurs moyennes sont les suivantes : $S = 0.3684 \pm 0.0002$ et pour $W = 0.0845 \pm 0.0002$. Les longueurs effectives de diffusion L_{eff}^+ dans les échantillons EFDA et Goodfellow sont proches et leur valeur moyenne est de 106 ± 2 nm. Cette valeur est proche de celle obtenue par P.E. Lhuillier ($L_{\text{eff}}^+ = 107$ nm) et incluse dans le domaine de longueur de diffusion disponible dans la littérature comprise entre 80-140 nm [1]. Ces valeurs de longueurs de diffusion effectives sont proches de la longueur de diffusion intrinsèque calculée dans le tungstène sans défaut qui est de 139 nm [129]. Cela indique que la concentration des défauts dans les échantillons recuits est faible. Nous considérerons que le traitement thermique réalisé sur ces échantillons efface une grande partie des défauts natifs, ainsi ils seront considérés comme vierges vis-à-vis de la technique de détection des défauts par DB-PAS.

Ainsi, les valeurs moyennes S_{Bulk} et W_{Bulk} des échantillons EFDA et Goodfellow seront prises comme les valeurs caractéristiques d'un échantillon de tungstène vierge. Ces caractéristiques seront nommées S_L et W_L (L signifie Lattice) dans cette étude.

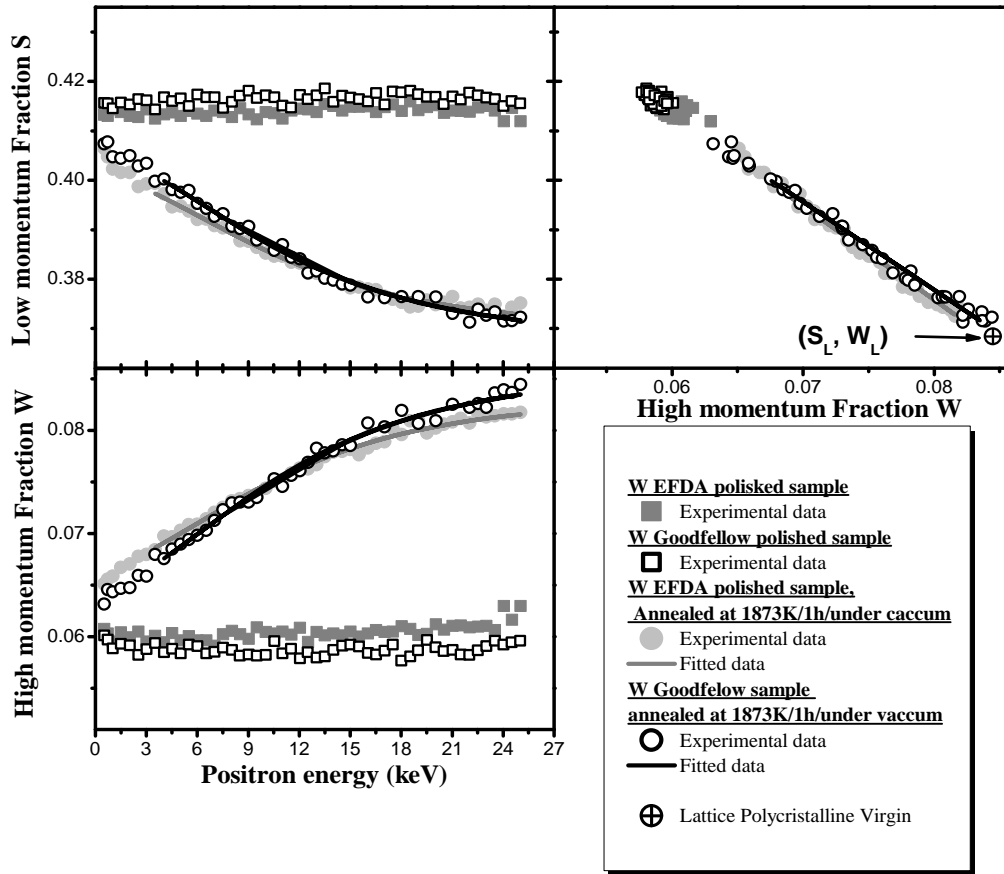


Figure III.2 : Les caractéristiques d'annihilation des échantillons EFDA et Goodfellow polis puis recuits à 1873 K/1h/v, comparés à ceux avant recuit, mesurée par la DB-PAS.

Echantillon	Température de Recuit	S_{bulk}	W_{bulk}	L_{eff}^+ (nm)
W EFDA	1873 K pendant 1h sous vide	0.3695 ± 0.0002	0.0833 ± 0.0001	107 ± 2
W Goodfellow		0.3674 ± 0.0003	0.0858 ± 0.0002	105 ± 2

Tableau III.1 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons W EFDA et Goodfellow.

III.2. Défauts lacunaires induits par irradiation avec des ions lourds

L'objectif de cette étude est d'observer l'effet de la masse des ions incidents sur la nature des défauts lacunaires induits dans le tungstène. Les ions W (ou Fe) incidents ont été choisis pour simuler l'endommagement induit par les atomes de recul qui pourraient être générés au cours des irradiations neutroniques dans les réacteurs à fusion.

Pour ITER les calculs réalisés par J. Marian et al [130] en utilisant le code SPECTER, prédisent une distribution en énergie des PKA allant de 10^{-7} à 10^3 keV dont 30% ont une énergie supérieure à 1 keV.

Pour simuler ces conditions d'irradiations neutroniques, nous avons choisi d'utiliser des ions lourds. La nature des ions a été choisie en fonction des faisceaux disponibles à JANNuS. Les premières irradiations ont été réalisées avec des ions Fe. Puis après une mise au point des faisceaux d'ions W à JANNuS et notre contact avec O. Ogorodnikova, les irradiations ont été réalisés uniquement avec des ions W.

L'énergie a été choisie afin de pouvoir faire des irradiations triple faisceaux hydrogène (H) + hélium (He) + tungstène (W), pour étudier les synergies de la présence de H, He et dpa sur l'évolution de la microstructure du tungstène. Etant donné les caractéristiques des différentes machines de la plateforme JANNuS, nous avons donc irradié pour obtenir un maximum de dpa dans la zone où H et He peuvent être implantés ($\sim 1.5 \mu\text{m}$).

Ainsi différents paramètres ont été investigués tels que la fluence (dose d'irradiation), la température d'irradiation, afin d'étudier les différents types de défauts induits dans le réseau du tungstène, en utilisant la technique de la Spectroscopie d'Annihilation de Positons.

Dans ce chapitre nous discuterons dans un premier temps les résultats obtenus dans le cas des irradiations d'ions W d'une énergie de 20 MeV avec une faible fluence induisant dans le tungstène un faible niveau de déplacement atomiques (dpa) dans la région sondée par les positons c'est-à-dire dans les 800 premiers nanomètres sous la surface. Ces résultats seront ensuite comparés à ceux obtenus par irradiation d'ions ^3He d'une énergie de 800 keV, issue d'une étude précédente [1, 73]. Dans un second temps, nous présenterons d'une part, la nature des défauts créés dans le cas des irradiations avec des ions W d'une énergie de 20 MeV et dans le cas des irradiations avec des ions Fe 10 MeV (réalisées pendant la thèse de P.E. Lhuillier) avec de fortes fluences, induisant dans le tungstène des forts niveaux de dpa dans la région sondée par les positons. D'autre part, nous étudierons le comportement de ces défauts en fonction de la température de recuit et de la température d'irradiation. Enfin, nous présenterons les résultats sur l'influence des déplacements atomique (dpa) en fonction de la profondeur d'implantation dans un même échantillon.

III.2.1. Irradiation avec des ions lourds à faible dpa

Dans cette partie, nous allons étudier en utilisant la Spectroscopie d'Annihilation de Positons lents, les défauts lacunaires induits par irradiations d'ions W d'une énergie de 20 MeV à faible fluence induisant ainsi des faibles niveaux de dpa (0.025-0.100 dpa).

Il a été déjà montré par Spectroscopie d'Annihilation de Positons lents et par la mesure du temps de vie des positons [73], la présence de défauts de type monolacune dans des échantillons de tungstène irradiés avec des ions ^3He d'une énergie de 800 keV avec des fluences induisant des niveaux de dpa similaires à ceux induits avec les ions W 20 MeV.

Dans le cas des irradiations ^3He 800 keV, les caractéristiques d'annihilations S et W évoluent avec la fluence d'irradiation pour atteindre un maximum (saturation de piégeage dans les monolacunes) à la fluence de $5.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, correspondant à 0.130 dpa dans la région sondée par les positons. Ainsi, les valeurs caractéristiques S et W de la monolacune de tungstène ont pu être déterminées. Dans ce chapitre, nous allons utiliser ces données pour discuter de l'effet de l'ion incident sur la nature des défauts induits dans le tungstène en fonction de la fluence d'irradiation.

III.2.1.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM

Des échantillons W (EFDA et Goodfellow) polis puis recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide, ont été irradiés avec des ions W d'une énergie de 20 MeV à la fluence de $\sim 1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ avec un flux moyen de $3.54 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}/\text{s}^{-1}$ (voir **Tableau III.2**). Ces irradiations ont été réalisées à JANNuS en utilisant l'accélérateur Epiméthée. Le porte-échantillon sur lequel les échantillons sont déposés, est refroidi à l'azote liquide et sa température n'a pas dépassé 91 K pendant l'irradiation. L'échantillon de tungstène B1 provient de Max-Planck-institut für Plasmaphysik (IPP.mgp) et a été irradié avec des ions W d'une énergie de 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ à 293 K (voir **Tableau III.2**).

Echantillon			Particule	Energie (MeV)	T d'irradiation (K)	Flux ($\text{cm}^{-2}/\text{s}^{-1}$)	Fluence (cm^{-2})	Rp (μm)	dpa* (0-800 nm) SRIM
EFDA	Goodfellow	Autre							
E02			W	20	91	3.54×10^{10}	1.00×10^{13}	1.6	0.025
	GP03		W	20	91	3.54×10^{10}	1.00×10^{13}	1.6	0.025
		B1	W	20	293	inconnu	3.70×10^{13}	1.6	0.100

Tableau III.2 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène avec des ions W 20 MeV à différentes fluences. (dpa* correspond au dpa dans la région sondée par les positons c'est-à-dire entre 0-800 nm).

Le profil en profondeur des ions W 20 MeV implantés, ainsi que le profil de la distribution en profondeur des déplacements atomiques (dpa) générés lors de l'irradiation dans les échantillons, ont été simulés avec le logiciel SRIM [51] et sont représentés sur la **Figure III.3**. Ces calculs ont été effectués en fixant l'énergie seuil de déplacement des atomes de tungstène à la valeur de 90 eV [49]. Les ions W 20 MeV s'implantent à une profondeur moyenne de 1.6 μm avec une concentration atomique maximale de 1.80×10^{-4}

at.% et 7.00×10^{-4} at.% respectivement pour les fluences d'irradiations de $\sim 1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Le niveau d'endommagement généré par les irradiations atteint un maximum de l'ordre de 0.056 dpa et 0.210 dpa à la profondeur de 1.3 μm respectivement pour les fluences de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. On remarque que l'endommagement estimé par SRIM est proportionnel à la fluence d'irradiation. Ce logiciel SRIM ne tient pas compte des phénomènes de recombinaisons entre lacunes et auto-interstitiels au cours de l'irradiation. Les valeurs de dpa marquée par une étoile (dpa*) mentionnées dans le **Tableau III.2**, représentent les valeurs de dpa prises près de la surface dans la région sondée par les positons (zone hachurée sur la **Figure III.3**). Il faut noter que la valeur de dpa dans cette région varie d'un facteur d'environ 1.7.

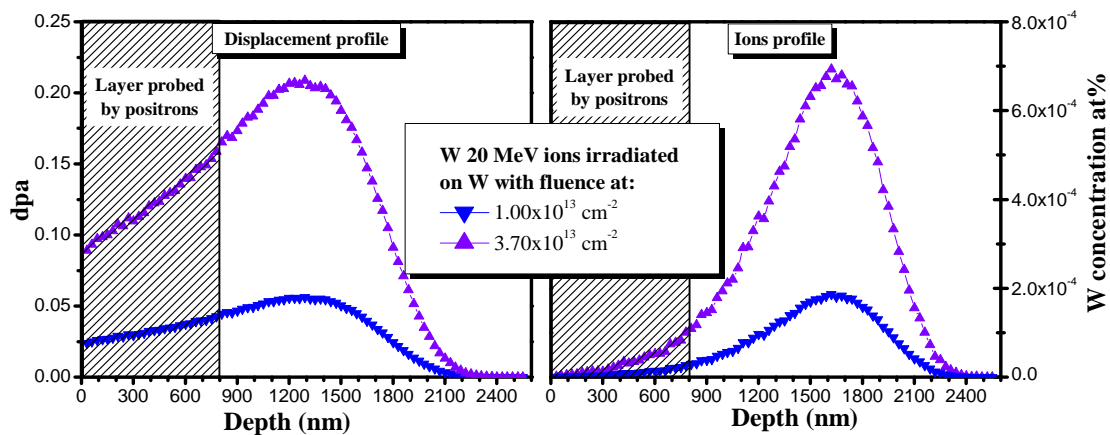


Figure III.3 : Simulation SRIM des profils de déplacement atomique et d'ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à différentes fluences dans le tungstène.

III.2.1.2. Caractérisation des défauts induits

III.2.1.2.1. Interprétation des résultats obtenues par PAS

Après irradiation, tous les échantillons ont été analysés par Spectroscopie d'Annihilation de Positons en utilisant l'accélérateur de positons lents du CEMHTI. L'énergie des positons varie entre 0.5 et 25 keV, ce qui permet de sonder les défauts induits dans les 800 premiers nanomètres sous la surface. Nous avons comparé les caractéristiques d'annihilation S et W mesurés dans trois échantillons de tungstène initialement recuit à 1873 K pendant 1 heure sous vide, puis irradiés avec des ions W 20 MeV à deux fluences différentes : deux échantillons à $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et un échantillon à $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$.

La **Figure III.4**, présente les fractions d'annihilation S et W en fonction de l'énergie des positons E , des échantillons de tungstène irradiés : deux échantillons de tungstène, un EFDA et un Goodfellow, irradiés avec des ions W 20 MeV avec une faible fluence correspondant à 0.025 dpa* et un échantillon de tungstène B1 provenant de Max-Planck-institut für Plasmaphysik, irradié avec des ions W 20 MeV à une fluence correspondant à 0.1 dpa*. De plus, les caractéristiques d'annihilation S et W d'un échantillon tungstène Goodfellow vierge (poli et recuit à 1873 K pendant 1 heure sous vide) sont aussi reportées.

Les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) des échantillons EFDA et Goodfellow irradiés à 0.025 dpa* présentent pratiquement un plateau entre 0.5 et 25 keV. Une très légère augmentation (resp. diminution) de $S(E)$ (resp. $W(E)$) est visible, cela pourrait être dû à l'augmentation des dpa quand la profondeur augmente. Les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont au-dessus (resp. en-dessous) de ceux de l'échantillon vierge sur toute la gamme d'énergie des positons. Cela signifie que les positons détectent une concentration de défauts dans les deux échantillons après irradiation. Nous pouvons constater une légère différence entre les caractéristiques d'annihilation de positons S et W mesurés pour l'échantillon EFDA et l'échantillon Goodfellow après irradiation. Elle pourrait être due à la différence de leur microstructure de départ ou de leur concentration d'impuretés. Dans tous les cas, les valeurs moyennes des caractéristiques d'annihilation de positons dans les échantillons de W (EFDA et Goodfellow) irradiés avec des ions W 20 MeV à 0.025 dpa* sont : $S = 0.420 \pm 0.007$ et $W = 0.059 \pm 0.002$.

Dans le cas de l'échantillon irradié à 0.1 dpa*, le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) présente un plateau entre 0.5 et 25 keV. Les valeurs des caractéristiques d'annihilation de positons sont : $S = 0.4313 \pm 0.0002$ et $W = 0.0533 \pm 0.0005$. Cette valeur de S (resp. W) est supérieure (resp. inférieure) à celle obtenue pour les échantillons irradiés à 0.025 dpa*. Ce qui signifie que la concentration et/ou la nature des défauts a évolué lorsque la fluence d'irradiation augmente.

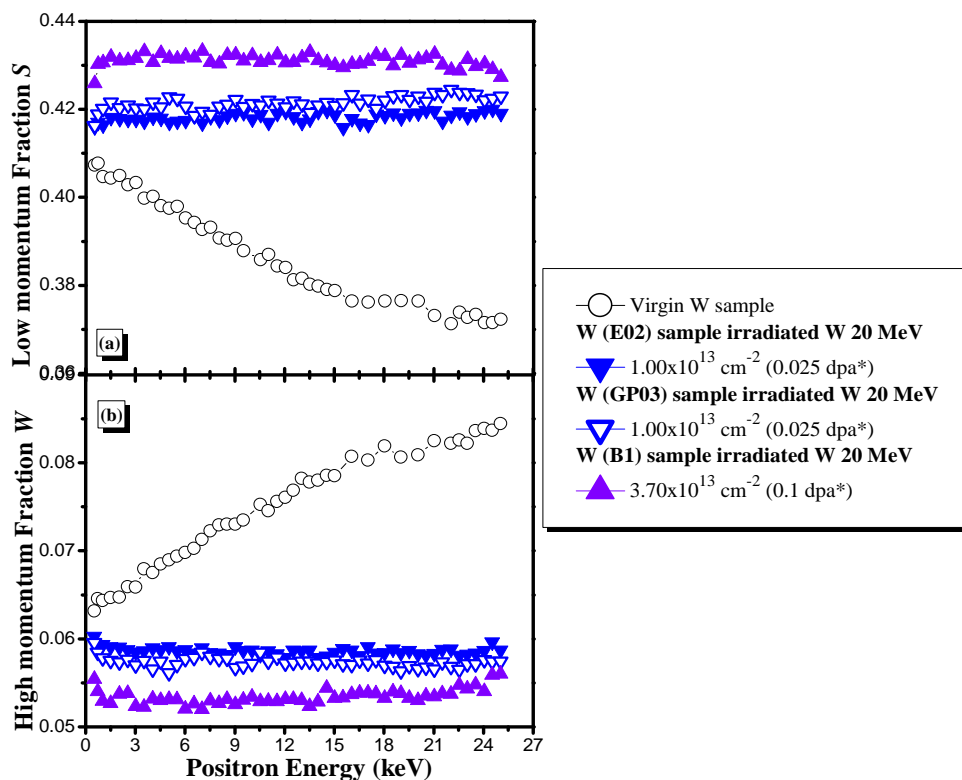


Figure III.4 : Caractéristiques d'Annihilation des positons dans des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa*) et $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa*). (a) S en fonction de l'énergie des positons E . (b) W en fonction de l'énergie des positons E .

La **Figure III.5**, présente le tracé des valeurs S en fonction de W , des échantillons de tungstène décrits ci-dessus. En dehors des valeurs expérimentales, sont également données les caractéristiques (S_V, W_V) de la monolacune de tungstène (v), identifiés dans une étude

précédente [73]. Ainsi la droite D_V , qui passe par l'état initial des échantillons (S_L, W_L) et le point (S_V, W_V), est la droite caractéristique de l'annihilation des positons piégés dans la monolacune de tungstène. De plus la droite D3, correspond à un mélange de défauts tels que des clusters v_L (avec $L \geq 30$) et des boucles de dislocations (A). La droite D3 est issue de l'étude précédente [73].

Pour les échantillons de tungstène irradiés à 0.025 dpa^* , les points (S, W) forment un agglomérat et sont légèrement au-dessus de la droite D_V caractéristique de la monolacune de tungstène. En observant de plus près le comportement des points (S, W) correspondant aux énergies de positons comprises entre 15-25 keV, on remarque qu'ils sont légèrement au-dessus du point (S_V, W_V) et sont légèrement décalés vers la droite, particulièrement pour l'échantillon Goodfellow. Cela signifie que, pour les énergies comprises entre 15-25 keV, les positons détectent des défauts lacunaires de taille supérieure à celle de la monolacune de tungstène dans les échantillons (EFDA, Goodfellow) irradiés à 0.025 dpa^* .

Dans le cas de l'échantillon B1 irradié à 0.1 dpa^* , tous les points (S, W) sont clairement au-dessus de la droite D_V et restent en-dessous de la droite D3 entre 0.5-25 keV. Les valeurs de S (resp. W) deviennent plus élevées (resp. plus faibles) que celles des échantillons irradiés à 0.025 dpa^* . Cela signifie que les positons détectent une nouvelle distribution de défauts lacunaires dans les échantillons irradiés à 0.1 dpa^* dont la concentration est plus élevée que celle détectés dans le cas des échantillons irradiés à 0.025 dpa^* . Par contre leur taille n'a pratiquement pas évolué, car les points S (W) des échantillons irradiés 0.025 dpa^* et 0.1 dpa^* s'alignent pratiquement sur la même droite D6.

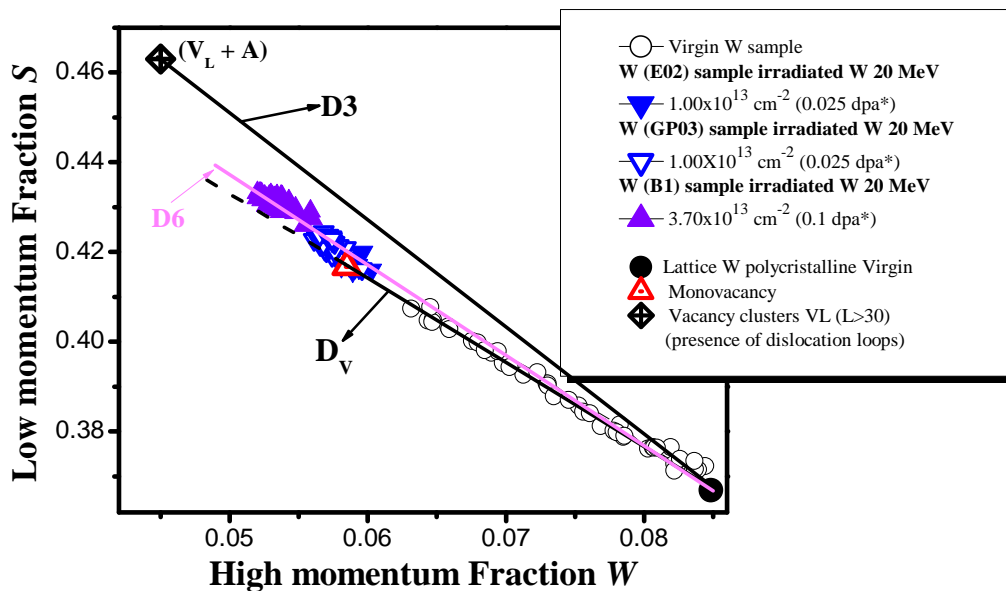


Figure III.5 : Caractéristiques d'Annihilation de positons S en fonction de W , dans les échantillons de W irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa^*), $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa^*).

III.2.1.2.2. Discussions des résultats

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à l'étude des défauts lacunaires induits par irradiation avec des ions W 20 MeV à faible dpa dans des échantillons de tungstène. La mesure des caractéristiques d'annihilation de positons S et W sur ces échantillons montre clairement la création de défauts lacunaires dont la concentration et/ou la taille évolue avec la fluence d'irradiation (ou dpa). Pour mettre en évidence l'effet de l'ion dans la création des défauts, nous allons comparer nos résultats avec ceux obtenus par P.E. Lhuillier [1] dans le cadre de sa thèse sur l'implantation avec des ions légers : ^3He d'une énergie de 800 keV avec des fluences de $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ et $5.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ correspondant à 0.025 dpa^* et 0.13 dpa^* dans la région sondée par les positons. Ces irradiations génèrent principalement des monolacunes de tungstène dont la concentration augmente avec la fluence (ou dpa).

Sur la **Figure III.6**, sont comparées les caractéristiques d'annihilation mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W de 20 MeV à faible fluence correspondant à un niveau dpa* de 0.025 dpa^* et 0.1 dpa^* , avec celles mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^3He de 800 keV à des fluences de $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ et $5.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ correspondant à 0.025 dpa^* et 0.13 dpa^* .

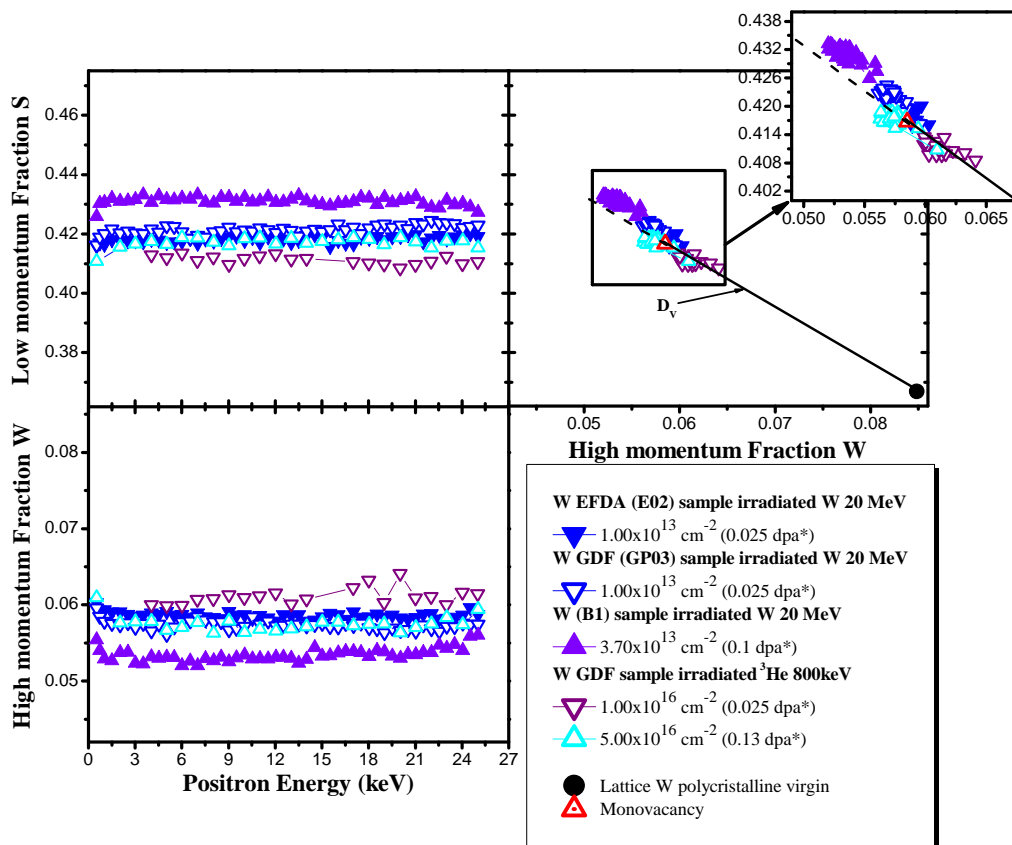


Figure III.6 : Caractéristiques annihilation de positons des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa^*), $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa^*) et des ions ^3He 800 keV à $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa^*), $5.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ (0.13 dpa^*).

Pour la même valeur de dpa*, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) obtenus pour les échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV sont au-dessus (resp. en-dessous) de celles

mesurées dans les échantillons W implantés avec des ions ^3He 800 keV. Cela confirme que le niveau d'endommagement créé par les ions W 20 MeV est supérieur à celui créé par les ions ^3He 800 keV. Les défauts lacunaires détectés dans les échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV à 0.1 dpa* ont une taille supérieure à celle de la monolacune et les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à 0.025 dpa* présentent également une petite concentration de petits amas lacunaires de taille supérieure à celle de la monolacune.

Ces mesures d'Elargissement Doppler ne nous permettent pas d'identifier la distribution en taille des amas lacunaires observés.

D'après les calculs prédits par le logiciel SRIM (voir **Figure III.7**), le profil du niveau des dpa induit par les ions ^3He 800 keV dans la région sondée par les positrons présente un gradient croissant plus marqué que celui induit par les ions W 20 MeV. Cela nous permet de dire que la taille des défauts ne dépend pas seulement du nombre de dpa induits par irradiation.

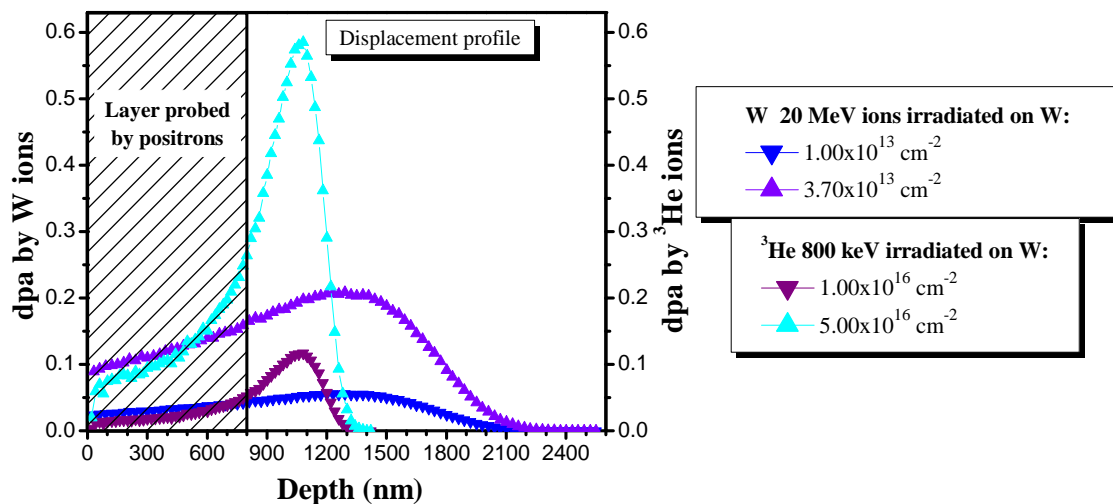


Figure III.7 : Simulation SRIM des profils des déplacements atomiques des irradiations d'ions W 20 MeV et des ions ^3He 800 keV à différentes fluence dans le tungstène.

Ainsi, même si les irradiations avec des ions lourds ou des ions légers génèrent un même nombre de dpa dans l'échantillon, la nature des défauts induits est différente. En effet l'énergie transmise par un ion lourd aux premiers atomes choqués PKA (Primary Knock on Atoms) est plus grande que celle d'un ion léger, à énergie incidente égale. Dans la **Figure III.8**, sont reportés les spectres de la distribution en énergie des PKA, $P(E,T)$, générés dans les deux conditions d'irradiations : W 20 MeV et ^3He 800 keV. Ces données ont été obtenues à l'aide du logiciel SRIM, en choisissant le paramètre de simulation « full cascade » et en cochant sur « collision détails ».

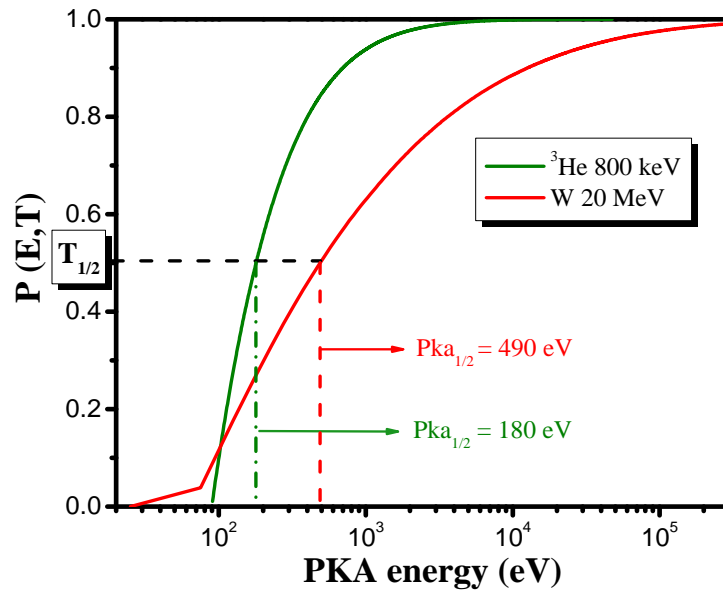


Figure III.8 : Distribution en énergie des PKA calculée avec le logiciel SRIM pour les irradiations avec des ions W 20 MeV et ^3He 800 keV dans le tungstène.

Nous pouvons observer que le spectre PKA généré par les ions ^3He 800 keV diffère fortement de celui induit par les ions W 20 MeV. Posons que $T_{1/2}$ (voir **Figure III.8**) comme une grandeur physique qui correspond à l'énergie pour laquelle la moitié des PKA ont une énergie inférieure.

Nous pouvons observer que la moitié des PKA créés par les ions ^3He 800 keV ont une énergie inférieure à 180 eV et ceux créés par les ions W 20 MeV ont une énergie inférieure à 490 eV. L'énergie $T_{1/2}$ transmise par les ions W est environ 3 fois plus élevée que celle transmise par les ions ^3He . La formation de cascade de déplacement est favorable uniquement si l'énergie transmise par les ions incidents est supérieure à cinq fois l'énergie de déplacement des atomes de la cible [131]. Dans le cas des atomes de tungstène cette valeur correspond à 450 eV. Le spectre $P(E,T)$ peut être représenté en fonction du nombre d'atomes déplacés (N) par cascade en appliquant la formule de Kinchin et Pease [132] :

$$N = \frac{0.8E}{2E_d} \quad \text{III. 1}$$

Avec

- N Nombre d'atomes déplacés par cascade
- E Energie transmise par ions incidents aux premiers atomes de recul (PKA)
- E_d Energie seuil de déplacement des atomes de la cible ($E_d = 90$ eV)

La **Figure III.9**, présente la distribution des PKA en fonction du nombre d'atomes de W déplacés par cascade, calculé dans le cas des irradiations avec des ions W 20 MeV et ^3He 800 keV dans le tungstène. On remarque que dans le cas des ions ^3He 800 keV, 82% des PKA créés n'induisent que des paires de Frenkel et seulement 18% des PKA généreront des cascades de déplacement, tandis que 53% des PKA créés par les ions W 20 MeV

participeront à la formation des cascades de déplacements. De plus, le nombre d'atomes déplacés par les ions ^3He 800 keV dans une cascade est beaucoup plus faible que celui que peuvent déplacer les ions W 20 MeV. Dans le cas des ions ^3He 800 keV, seulement 17% des PKA pourront générer des cascades dont le nombre maximal d'atomes déplacés restera limité à 9 (voir **Figure III.9**). Tandis que, dans le cas des ions W 20 MeV, 52% des PKA pourront générer des cascades (voir **Figure III.9**), le nombre d'atomes déplacés pourra atteindre 1200. Ainsi la formation et la concentration de petits amas lacunaires seront plus importantes dans le cas des irradiations avec les ions W 20 MeV que dans celles réalisées avec les ions ^3He 800 keV.

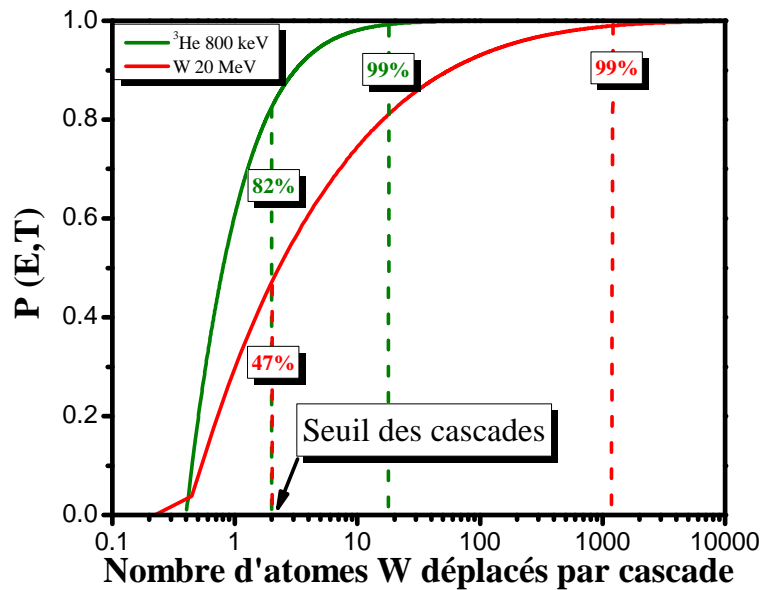


Figure III.9 : Distribution des PKA, $P(E,T)$, en fonction du nombre d'atomes de W déplacés par cascade, obtenus à l'aide du logiciel SRIM.

De plus, les calculs SRIM prévoient que plus de 10% des PKA se voient transmettre une énergie supérieure à 10 keV pour les irradiations W 20 MeV, contre 0.15% pour les irradiations ^3He 800 keV.

J. Fikar et *al* [109] ont réalisé des simulations en Dynamique Moléculaire (DM) de cascades de collisions pour différentes énergies de PKA (10 keV, 20 keV et 50 keV) dans le tungstène. Ils ont montré que des clusters de lacunes pouvaient se former dans les cascades induites pour ces énergies. Selon les potentiels utilisés la fraction de lacunes dans ces clusters peut atteindre 17% à 31%. Cela signifie qu'à côté de ces amas environ 70% à 80% de monolacunes sont générés. Il est donc possible que les caractéristiques d'annihilations mesurées après irradiation aux ions lourds correspondent à la détection d'amas lacunaires et de monolacunes isolées. Il n'est pas possible de déterminer la distribution en taille de ces défauts lacunaires avec ces mesures Doppler.

Cependant, les calculs DFT prédisent que la bilacune n'est pas stable dans le tungstène et que la trilacune a une énergie de liaison proche de 0 [59]. Il est donc probable que la taille des amas lacunaires formés soit supérieure ou égale à V_4 .

III.2.1.2.3. Conclusions

Cette étude nous a permis de mettre en évidence que la nature et la distribution des défauts induits par irradiation dans les échantillons de tungstène dépendent de la nature des ions incidents. En effet, les défauts lacunaires induits par les irradiations avec les ions W 20 MeV sont différents de ceux induits par les ions ^3He 800 keV. Pour un niveau de dpa équivalent, une prépondérance de monolacunes a été observé dans le cas des irradiations ^3He 800 keV. Dans le cas des irradiations W 20 MeV, les mesures d'Elargissement Doppler montrent la formation de petits amas lacunaires déjà à une faible dose d'endommagement à 0.025 dpa* et plus clairement à 0.1 dpa*. Il a été démontré que cette différence est probablement due à l'énergie des PKA qui est beaucoup plus élevée dans le cas des ions W 20 MeV que pour les ions ^3He 800 keV.

Les calculs de DM prédisent la formation de ces amas avec une proportion non négligeable de monolacunes. Cela suggère que les caractéristiques d'annihilation S et W mesurées correspondent à la détection d'amas lacunaires et de monolacunes comme nous le verront dans l'étude de l'évolution de ces défauts en fonction de la température de recuit.

En perspectives, il serait important de faire des mesures de durée de vie de positons afin de déterminer la taille et la fraction de ces amas lacunaires et de vérifier si ces défauts sont détectables par MET (Microscopie Electronique à Transmission). Enfin, ces résultats expérimentaux pourraient bénéficier de la comparaison avec de nouvelles simulations des cascades de collisions en Dynamique Moléculaire.

III.2.2. Irradiations avec des ions lourds à fort dpa

Cette section présente les résultats de l'étude sur la nature des défauts créés par irradiations avec des ions lourds à fort dpa. Nous étudierons aussi le comportement de ces défauts en fonction de la température de recuit (dans la **section III.3**) et de la température d'irradiation (dans la **section III.5**).

III.2.2.1. Conditions expérimentales et simulations SRIM

Le **Tableau III.3**, résume les conditions des irradiations effectuées à JANNuS (CEA Saclay) avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ sur des échantillons de tungstène EFDA et Goodfellow vierges (préalablement recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide), et avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ sur des échantillons de tungstène Goodfellow vierges. L'échantillon de tungstène nommé A1, a été fourni par Max-Planck-Institut für Plasmaphysik (IPP.mgp) et a été irradié avec des ions W d'une énergie de 20 MeV à la fluence de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.

Echantillon			Particule	Energie (MeV)	T d'irradiation (K)	Flux ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	Fluence (cm^{-2})	Rp (μm)	dpa* (0-800 nm) SRIM
EFDA	Goodfellow	Autre							
		A1	W	20	293	inconnu	2.00×10^{14}	1.6	0.56
E05	GP04		W	20	91	4.47×10^{10}	3.70×10^{14}	1.6	1.00
	GH08		Fe	10	201	5.00×10^{12}	6.09×10^{15}	1.8	2.50
E01	GR03		W	20	91	1.58×10^{11}	4.49×10^{15}	1.6	12.00

Tableau III.3 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences. Les valeurs de dpa marquées par une étoile (dpa*) dans le tableau sont présent proche de la surface dans la zone sondée par les positons (0-800 nm).

La **Figure III.10**, présente le profil des déplacements par atomes et le profil d'implantation des ions dans le tungstène, calculés à l'aide du logiciel SRIM pour chaque ion et à différentes fluences. L'irradiation avec les ions W 20 MeV génère un niveau de dpa à Rp (1.3 μm) qui est de l'ordre de 1.2 dpa, 2.2 dpa et 25.0 dpa respectivement pour les fluences $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Dans le cas de l'irradiation avec les ions Fe 10 MeV, on obtient 9.0 dpa à Rp (1.5 μm) pour la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Nous avons vu précédemment que 53% des PKA créés par les ions W 20 MeV génèrent des cascades de déplacements dans le tungstène. Dans le cas des ions Fe 10 MeV, les calculs SRIM montrent que 46% des PKA créés pourront participer à la formation des cascades de déplacements (**Figure III.12**). De plus, le nombre d'atomes déplacés varie entre 2 et 335 dans le cas des ions Fe 10 MeV (**Figure III.12**) alors que dans le cas des ions W 20 MeV, il atteint une valeur environ 4 fois supérieure. En revanche, les ions Fe 10 MeV génèrent beaucoup plus de cascades de déplacement d'atomes de W que ceux générés par les ions ^3He 800 keV (entre 2 et 9, voir **Figure III.9**). De plus pour les irradiations Fe 10 MeV, les calculs SRIM prévoient qu'environ 7% des PKA se voient transmettre une énergie supérieure à 10 keV, contre 0.15% et 10% respectivement pour les irradiations avec les ^3He 800 keV et les ions W 20 MeV.

Il est très probable qu'une concentration moins importante d'amas lacunaires puissent être induite dans les échantillons de tungstène, au cours de l'irradiation avec les ions Fe 10 MeV comparée à celle induite par irradiation avec les ions W 20 MeV.

Après irradiation, tous les échantillons ont été caractérisés par Spectroscopie d'Annihilation de Positons avec l'accélérateur de positons lents du CEMHTI.

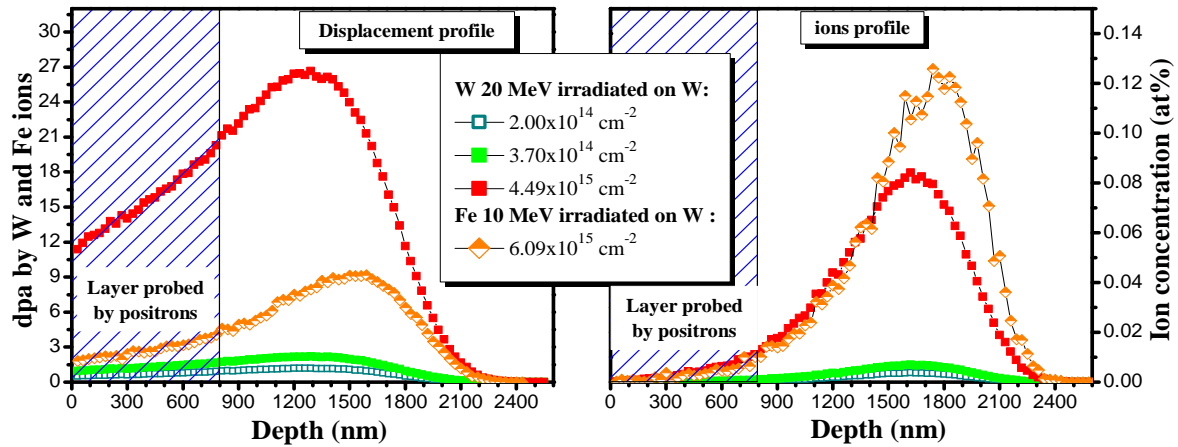


Figure III.10 : Simulation SRIM des profils des déplacements atomiques et d'ions des irradiations avec les ions W 20 MeV et Fe 10 MeV dans le tungstène.

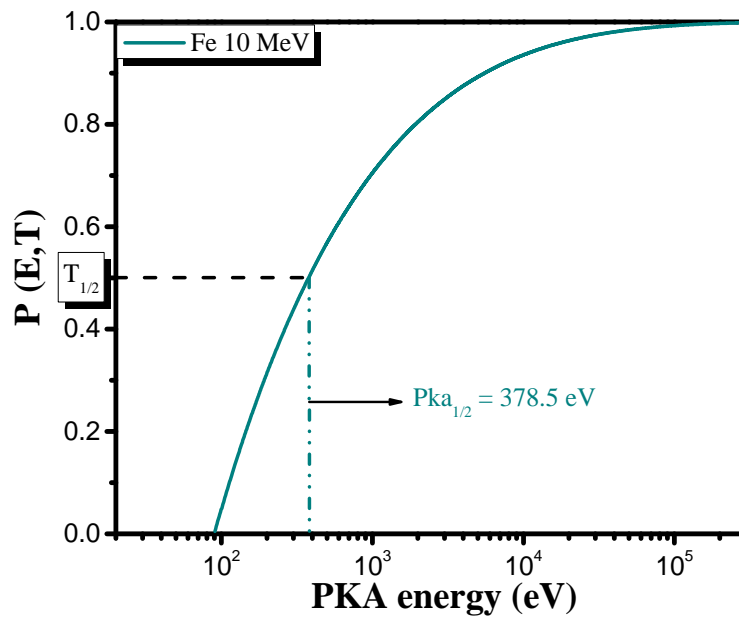


Figure III.11 : Distribution en énergie des PKA calculées avec les données obtenus par le logiciel SRIM pour les irradiations avec des ions Fe 10 MeV dans le tungstène.

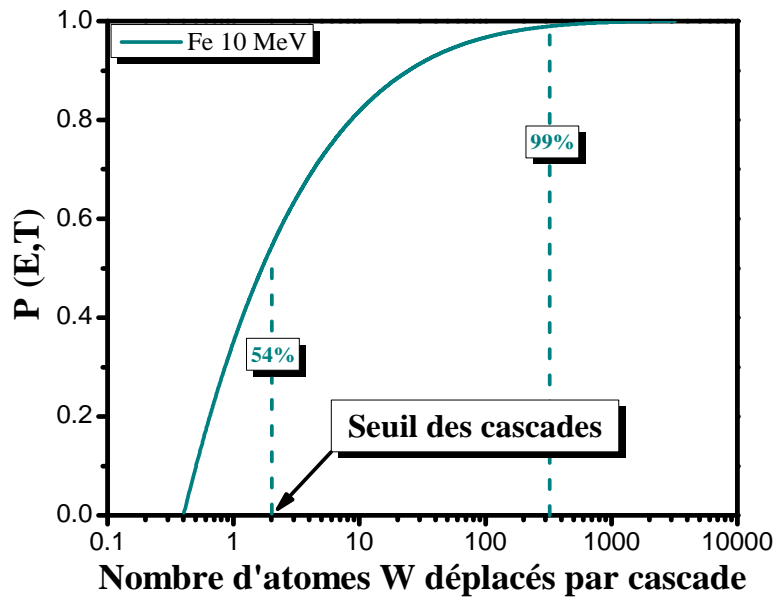


Figure III.12 : Distribution des PKA, $P(E,T)$, en fonction du nombre d'atomes de W déplacés par cascade, obtenus à l'aide du logiciel SRIM.

III.2.2.2. Caractérisation des défauts d'irradiation

III.2.2.2.1. Résultats PAS

Sur la **Figure III.13**, sont tracés les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) des échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à 0.56 dpa*, 1.00 dpa* et 12.00 dpa* et avec des ions Fe 10 MeV à 2.50 dpa*. Ils sont très semblables et présentent tous un plateau entre 6-25 keV avec une valeur moyenne de $S = 0.4398 \pm 0.0002$ et une valeur de $W = 0.05176 \pm 0.00006$. Cela signifie que les positons détectent une distribution de défauts semblables dans les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à 0.56, 1.00, 12.00 dpa* et dans les échantillons irradiés avec des ions Fe 10 MeV à 2.50 dpa*. Il faut noter que les valeurs des caractéristiques d'annihilation S (resp. W) obtenues, sont supérieures (resp. inférieures) à celles mesurées dans le cas des échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à faibles fluences correspondant à 0.025 dpa* et 0.100 dpa*. Nous constatons que les profils $S(E)$ et $W(E)$ (voir **Figure III.13**) ne présentent pas de plateau entre 0.5 keV et 6 keV comme ceux des échantillons irradiés 0.025 dpa* (voir **Figure III.6**). Ceci est sûrement lié à un problème de diffusion des positons, car la surface présente des caractéristiques d'annihilation spécifiques qui dépendent de son état. Dans la majorité de ces échantillons, les caractéristiques de surface sont de l'ordre de $S \approx 0.42$ et $W \approx 0.056$. Pour les faibles énergies, une fraction des positons peut s'annihiler à la surface par rétrodiffusion. Cela explique pourquoi S augmente et W diminue dans le domaine d'énergie 0.5-6 keV.

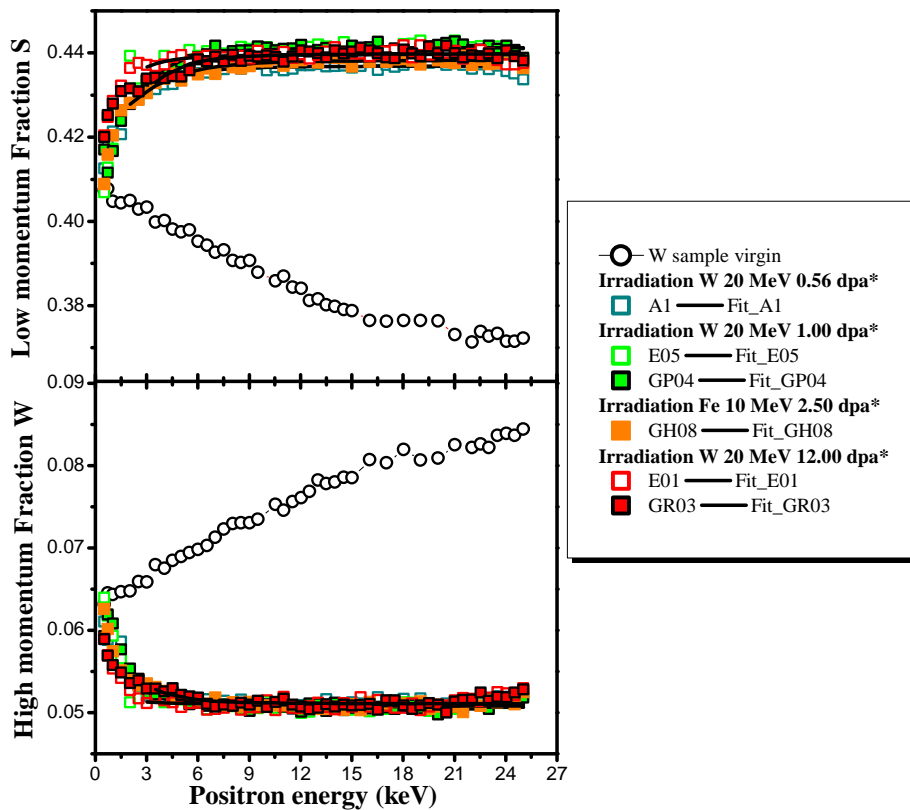


Figure III.13 : Caractéristiques annihilation de positons S et W en fonction de l'énergie des positons E , dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).

Sur la **Figure III.14**, les points (S,W) de tous les échantillons de tungstène irradiés se regroupent sur les mêmes tendances. Cela signifie que les défauts détectés par les positons semblent être de même nature pour tous les échantillons irradiés aux ions lourds. De plus, les points (S,W) correspondant aux énergies de positons comprises entre 6-25 keV (voir **Figure III.15**) sont au-dessus du point caractéristique de la monolacune de tungstène et se décalent vers la droite, c'est-à-dire sont au-dessus de la droite D_V (droite caractéristique de la monolacune). Ceci indique que la taille moyenne des défauts lacunaires détectés dans les échantillons irradiés à fort dpa* est supérieure à celle de la monolacune de tungstène (v). Les irradiations avec des ions lourds à fort dpa* induisent des défauts complexes susceptibles d'être des amas lacunaires. De plus les points (S,W) sont aussi situés en-dessous de la droite D_3 . Cela suggère que la taille des amas lacunaires est plus petite que celle des défauts obtenus après recuit dans une étude précédente [73], identifiés comme étant des amas lacunaires V_{30} en présence de boucles de dislocations, en utilisant la spectroscopie de temps de vie des positons.

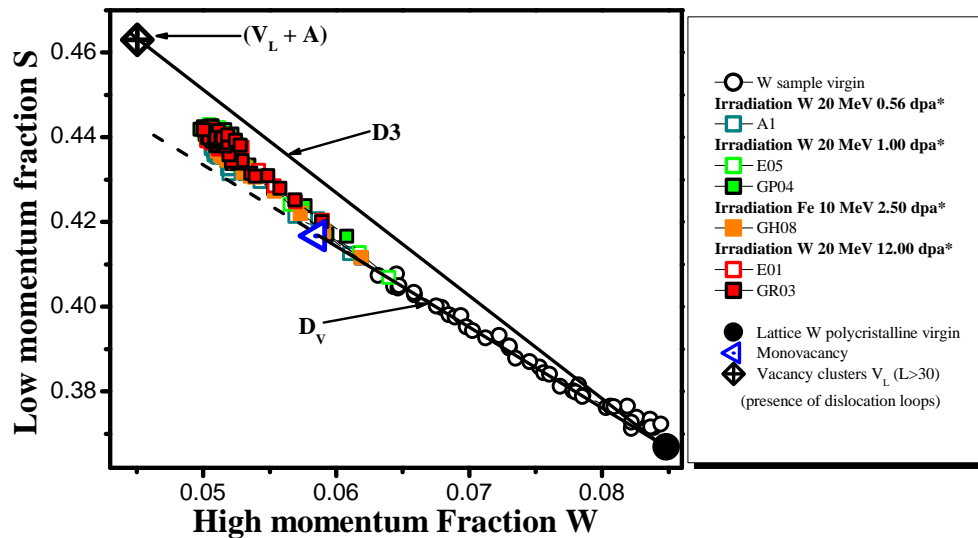


Figure III.14 : Caractéristiques annihilation de positons S en fonction de W , dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).

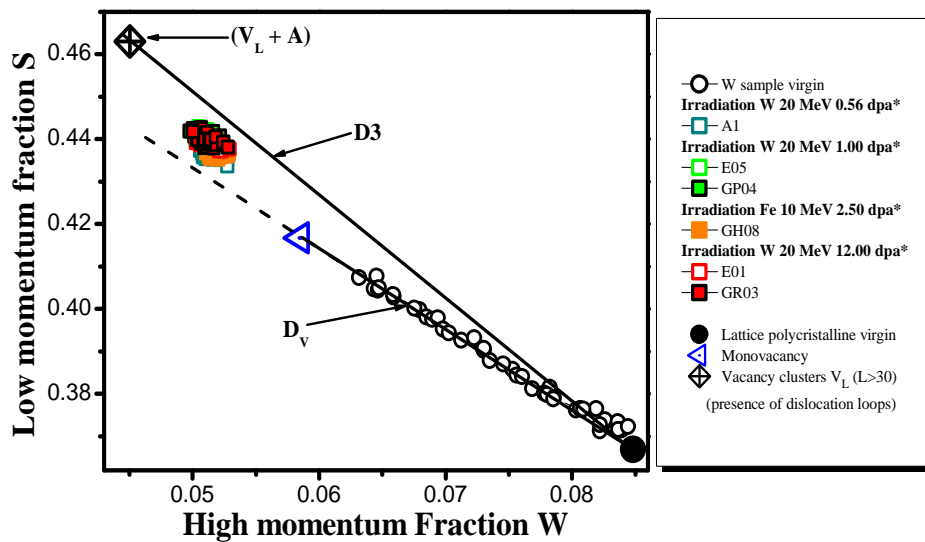


Figure III.15 : Caractéristiques annihilation de positons S en fonction de W prises aux énergies de positons comprises entre 6-25 keV, dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).

Toutes les données expérimentales des échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à 0.56 dpa*, 1.00 dpa* et 12.00 dpa* et avec des ions Fe 10 MeV à 2.50 dpa* ont pu être fittées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une seule couche homogène, cela confirme le fait que l'augmentation de S et la diminution de W entre 0.5-6 keV soit liée à un problème de rétrodiffusion des positons vers la surface. Les données sont résumées dans le **Tableau III.4** et les courbes $S(E)$ et $S(W)$ correspondant au Bulk des échantillons irradiés (800 nm sous la surface) ont été tracées respectivement sur la **Figure III.13** et **Figure III.16**. Nous pouvons constater que les points $(S_{\text{Bulk}}, W_{\text{Bulk}})$ de tous les échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV et Fe 10 MeV se regroupent pratiquement au même endroit (voir **Figure III.16**).

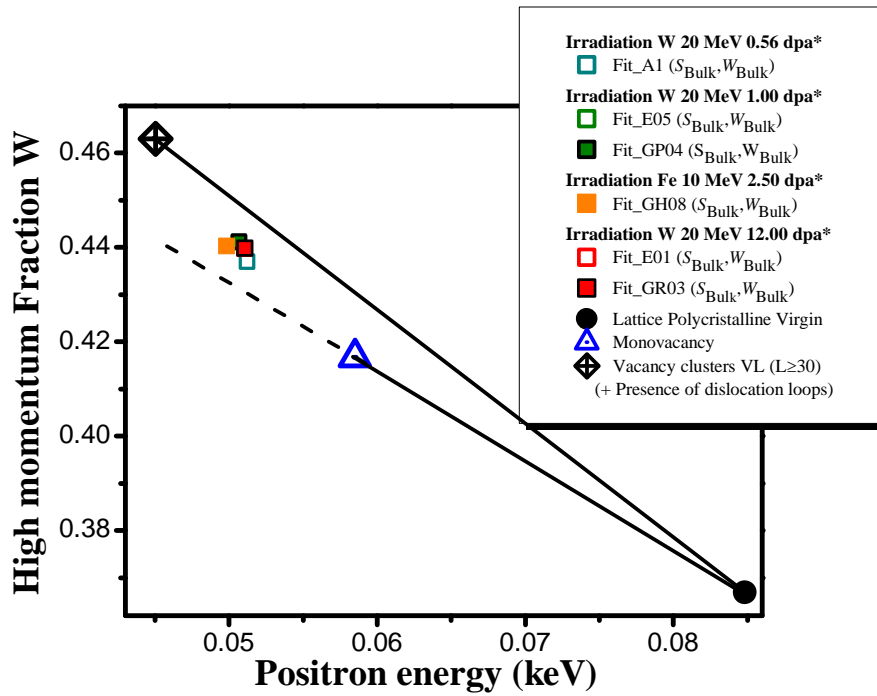


Figure III.16 : Les points S en fonction de W fittés pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).

Echantillon	Condition d'irradiation	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L^{eff} (nm)
		S_{surface}	W_{surface}	S_{bulk}	W_{bulk}	
A1	W 20 MeV à 0.56 dpa*	0.425 ± 0.001	0.0530 ± 0.0005	0.4370 ± 0.0002	0.05124 ± 0.00006	10.91 ± 0.8
E05	W 20 MeV à 1 dpa*	0.414 ± 0.002	0.058 ± 0.001	0.4411 ± 0.0002	0.05068 ± 0.00006	5.89 ± 0.3
GP04		0.414 ± 0.002	0.0587 ± 0.0007	0.4412 ± 0.0002	0.05067 ± 0.00006	7.56 ± 0.3
GH08	Fe 10 MeV à 2.5 dpa*	0.4244 ± 0.0006	0.0547 ± 0.0003	0.4403 ± 0.0002	0.04983 ± 0.00005	12.32 ± 0.4
E01	W 20 MeV à 12 dpa*	0.429 ± 0.002	0.0518 ± 0.0008	0.4397 ± 0.0002	0.05105 ± 0.00006	7.00 ± 0.9
GR03		0.410 ± 0.003	0.059 ± 0.002	0.4398 ± 0.0002	0.05108 ± 0.00006	7.02 ± 0.3

Tableau III.4 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés avec des W 20 MeV à 0.56 dpa*, 1 dpa*, 12 dpa* et un échantillon de tungstène Goodfellow irradié Fe 10 MeV à 2.5 dpa*.

III.2.2.2.2. Discussions des résultats

Les données obtenues par Spectroscopie d'Annihilation de Positons, nous donnent des informations intéressantes sur la nature des défauts induits par irradiation avec des ions lourds (W 20 MeV, Fe 10 MeV) à fort dpa*. Les profils $S(E)$ et $W(E)$ sont pratiquement identiques dans le cas des échantillons (EFDA, Goodfellow, etc...) irradiés avec des ions lourds entre 0.56-12.00 dpa*. Nous pouvons remarquer que l'allure de la courbe de $S(E)$ et $W(E)$ est différente selon la profondeur sondée par les positons. Pour les énergies de positons comprises entre 0.5-6 keV (proche surface), le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) est croissant (resp. décroissant), tandis que, entre 6-25 keV (en profondeur) les profils $S(E)$ et $W(E)$ présentent

un plateau. Les résultats VEPFIT nous indiquent que les positons voient les 800 nm sous la surface comme une couche homogène. La variation des $S(E)$ et $W(E)$ observée entre 0.5 keV et 6 keV peut donc correspondre à la variation de la fraction de positons s'annihilant à la surface. Celle-ci dépend du profil d'implantation des positons à ces énergies et de la longueur de diffusion effective dans la couche sous la surface. Pour les énergies de positons supérieures à 6 keV, tous les points (S, W) se regroupent au même endroit et sont clairement au dessus de D_V . Cela signifie que, les positons détectent des défauts lacunaires de types amas lacunaires dont la distribution moyenne en taille est supérieure à celle de la monolacune. En outre, le fait que les valeurs de S et W n'évoluent pas entre 0.56 dpa* et 12.00 dpa*, suggère que la distribution en taille des défauts n'évolue plus à partir de 0.56 dpa*, qui pourraient représenter un niveau de piégeage maximal des positons dans un ou plusieurs types de défauts lacunaires (mv).

Une étude expérimentale réalisée par N. Igata et al [133] a montré que le gonflement du tungstène (W) $\Delta V/v$ a tendance à saturer à partir de 0.50 dpa dans le cas des irradiations avec des ions O^+ et Ar^+ d'une énergie de 300 keV dans le tungstène.

De même A.L. Suvorov et al [134], a pu observer par Microscopie Ionique à effet de Champ, des cavités dans des échantillons de tungstène W-1.5% ThO_2 et W-5% Re irradiés respectivement avec des ions Ni^+ 35 keV à la fluence de 5.00×10^{14} ions/cm² générant 1.3 dpa à $R_p = 6$ nm et avec des ions La^+ 35 keV à la fluence de 1.00×10^{16} ions/cm² générant 43 dpa à $R_p = 4$ nm. Dans ces deux échantillons, les défauts induits correspondaient à des amas lacunaires contenant entre 10 et 20 lacunes (voir **Figure III.17**). Cette expérience montre que les mêmes types de défauts sont observés entre 1.3 dpa et 43 dpa. Cela signifie que la saturation en taille des défauts est déjà atteinte à 1.3 dpa au moins.

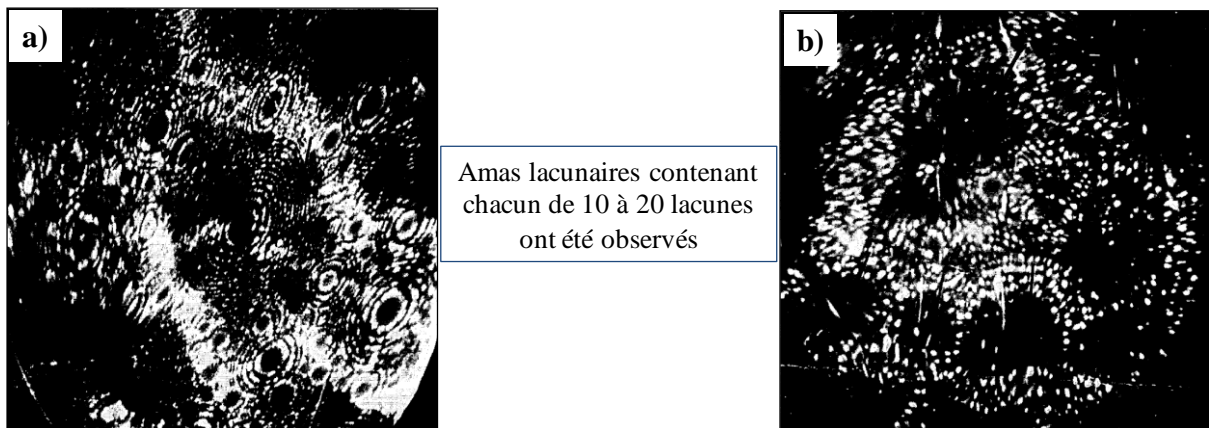


Figure III.17 : Images obtenues par microscopie ionique de champ [134]. a) image correspondant à l'alliage W 1,5% ThO_2 qui a été irradié par des ions Ni^+ avec une énergie de 35 keV à une fluence de 5.00×10^{14} ions/cm² (correspond à 1.3 dpa à $R_p = 6$ nm). b) image correspondant à l'alliage W-5% Re qui a été irradié par des ions La^+ avec une énergie de 35 keV à la fluence de 1.00×10^{16} ions/cm² (correspond à 43 dpa à $R_p = 4$ nm).

Il faut aussi noter les résultats des travaux de X. Yi et al [112]. Ces auteurs ont réalisé des expériences de MET in situ sous irradiation avec des ions W 150 keV à des fluences correspondant à 0.01 dpa et 1 dpa dans des lames minces de tungstène (W). Ils ont observé la

formation de boucles de lacunes avec des densités de 10^{17} cm^{-2} pour 1 dpa. Bien que ces expériences soient réalisées à des températures élevées (de l'ordre de 773 K), X. Yi a aussi observé comme F. Häussermann [113, 114] la formation de ces boucles à RT, c'est le premier défaut observé dès 0.01 dpa. Nous ne pouvons pas écarter la probabilité que ce type de défauts contribue à la distribution détectée par les positons. En effet les positons peuvent être piégés dans ce type de défaut qui correspond à un arrangement 2D de lacunes. Il est probable que les caractéristiques d'annihilation de ces défauts soient proches de celles des monolacunes. Ainsi la distribution de défauts observés dans les échantillons de tungstène irradiés W 20 MeV à fort dpa peut être comprise des monolacunes, des boucles de lacunes et des amas lacunaires de type 3D avec des tailles de 10-20 lacunes. Cette distribution correspond à une même valeur de S et W pour des irradiations réalisées à une dose d'endommagement variant de 0.56 dpa à 12 dpa. Il se peut cependant que les fractions de chaque type de défauts ne soient pas équivalentes.

En comparant ces résultats à ceux obtenus pour des irradiations à faible dpa on constate que la distribution en taille des amas lacunaires est différente. Il semble que les positons détectent plus d'amas lacunaires que de monolacune et/ou des amas lacunaires plus gros, dans le cas des irradiations à des fort dpa. Cette différence de concentration et/ou de taille des amas lacunaires dans les deux cas d'irradiations (faible et fort dpa) est sûrement due à une accumulation de cascades de déplacements atomiques favorisant une augmentation de la densité locale des défauts. L'accumulation de cascades augmente avec la fluence d'irradiation. Ainsi la concentration et/ou taille des amas lacunaires peuvent évoluer suivant les conditions d'irradiations tant que la saturation de formation des défauts n'est pas atteinte.

III.2.2.2.3. Conclusions

Les irradiations avec des ions W 20 MeV à 0.56, 1.00 et 12.00 dpa* et des ions Fe 10 MeV à 2.50 dpa*, induisent dans les échantillons tungstène des défauts complexes de type amas lacunaires de taille supérieure à celle de la monolacune dans la région sondée par les positons (0-800 nm). Nous avons vu qu'à partir de 0.56 dpa* les caractéristiques d'annihilation S mesurées ne varient plus indiquant que la distribution en taille moyenne des défauts lacunaires reste la même. Cette distribution est cependant bien différente de celle observée à faible dpa. Les amas lacunaires dans le cas des irradiations à forts dpa sont à priori plus gros et/ou de concentration plus élevée (avec un rapport amas lacunaire/monolacune plus grand) que ceux qui ont été détectés par les positons dans le cas des irradiations à faibles dpa.

Il y a peu de variation de la distribution en taille des défauts lacunaires, mais il semble que l'irradiation avec les ions W 20 MeV (0.56 dpa*) et celle avec les ions Fe 10 MeV (2.5 dpa*) conduisent à une distribution en amas lacunaires différente qui est légèrement inférieure en terme de concentration et/ou en taille pour cette dernière. Nous verrons plus tard que les recuits réalisés après irradiation mettront en évidence des différences que les mesures Doppler effectuées directement après irradiation distinguent difficilement.

En perspective, il serait nécessaire de réaliser des investigations en mesurant le temps de vie des positons sur les échantillons de tungstène irradiés avec des ions lourds à fort dpa. Les calculs théoriques des caractéristiques S et W ainsi que l'évolution du temps de vie des positons [74] dans les défauts lacunaires nous permettraient d'obtenir des informations sur la nature des amas lacunaires induits après irradiations aux ions lourds à fort dpa. De plus des expériences MET sont en cours pour étudier la distribution des gros défauts.

III.2.3. Nature des défauts lacunaires en fonction de la profondeur

Cette section présente les résultats de l'étude sur la nature des défauts lacunaires dans les échantillons de tungstène induits par irradiation avec des ions lourds dans la région profonde proche de Rp (1300 nm).

Ces investigations ont été réalisées sur les échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

III.2.3.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM

Les échantillons de tungstène vierges (recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide) ont été irradiés par des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, grâce au dispositif JANNuS de Saclay (**Tableau III.5**). Dans un premiers temps, ces échantillons irradiés ont été analysés sur une profondeur d'environ 800 nm par PAS en utilisant l'accélérateur de positons lents du CEMHTI. Dans un second temps, nous avons réalisé un décapage électrolytique sur chaque échantillon afin d'éliminer les premiers 800 nm (voir conditions du décapage **chapitre II section II.3.1 page 55**). Ensuite, les échantillons sont analysés par PAS en utilisant l'accélérateur de positons lents du CEMHTI, pour pouvoir sonder cette fois-ci la profondeur comprise en 800-1600 nm.

La **Figure III.18** et la **Figure III.19**, présentent le profil d'implantation des ions et le profil de déplacement d'atomes calculés par SRIM respectivement pour la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Nous allons nous intéresser aux doses d'endommagement générées dans la région comprise entre 800-1600 nm, la partie sondée par les positons hachurée en rouge. Dans cette région le niveau du dpa moyen est environ de 0.056 dpa et 25 dpa respectivement pour la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, soit en moyenne 2 fois supérieur à celui induit dans la région comprise entre 0-800 nm. Cette différence du niveau de dpa en fonction de la profondeur peut avoir un impact ou non sur la distribution (concentration, taille, nature) des défauts lacunaires.

Echantillon		Conditon d'irradiation			Epaisseur décapée (nm)	
		Particule	Energie (MeV)	Fluence (cm^{-2})		Température (K)
DF-W-A-C-A04	E04	W	20	1.00×10^{13}	91	800
W-P-H-R03	GR03			4.49×10^{15}		

Tableau III.5 : Conditions d'irradiations et épaisseur décapée sur les échantillons de tungstène irradiés W 20 MeV à différentes fluences.

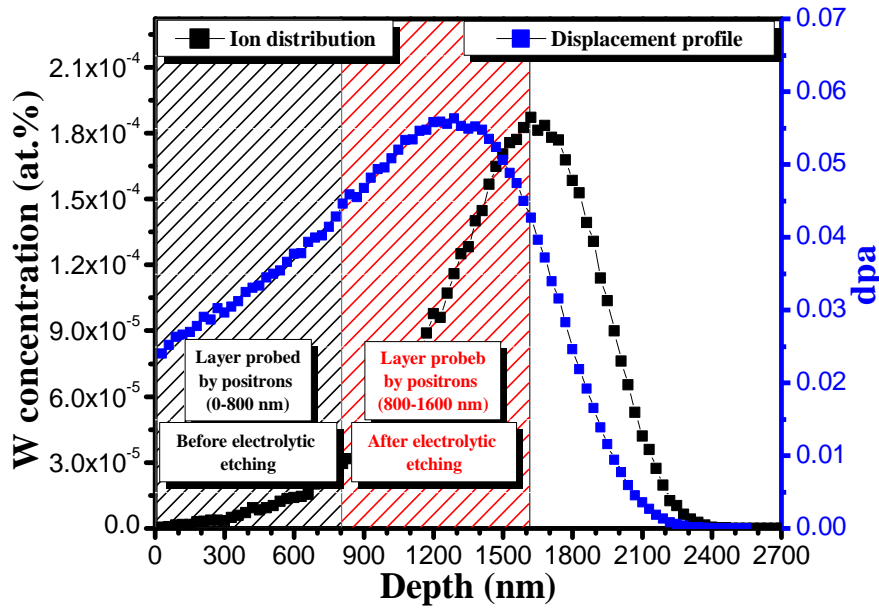


Figure III.18 : Simulation SRIM du profil des déplacements d'atomes et celui des ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$.

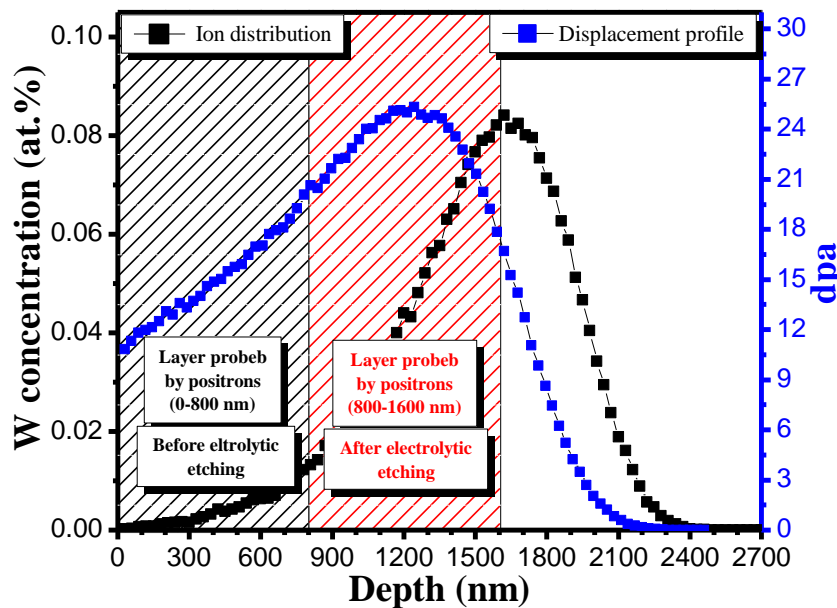


Figure III.19 : Simulation SRIM du profil des déplacements d'atomes et celui des ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

III.2.3.2. Résultats

III.2.3.2.1. Cas des irradiations W 20 MeV à faible fluence

La Figure III.20, présente les profils S et W en fonction de l'énergie des positons E , et les points S en fonction de W , pour les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ correspondant respectivement à 0.025 dpa et à 0.056 dpa avant et après décapage. Le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) dans le cas de l'échantillon irradié puis décapé

sur 800 nm, est au-dessus (resp. en-dessous) de celui de l'échantillon irradié, pour l'énergie des positons comprise entre 0.5-21 keV. Cela signifie que la concentration et/ou la taille des défauts lacunaires détectés dans l'échantillon irradié puis décapé sur 800 nm sont supérieures à celles de l'échantillon irradié et non décapé. Pour les énergies de positons variant entre 21-25 keV, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont pratiquement superposés.

Les points (S,W) dans le cas de l'échantillon irradié puis décapé sont décalés vers le haut comparé à ceux de l'échantillon irradié et non décapé et sont légèrement au-dessus de la droite D_V , pour les énergies de positons comprises entre 0.5-25 keV. Cela suggère que les positons détectent une distribution de défauts lacunaires dans l'échantillon irradié puis décapé (c'est-à-dire dans la zone 800-1600 nm) différente de celle détectée dans l'échantillon irradié et non décapé (c'est-à-dire dans la zone 0-800 nm). Cependant les points (S,W) sont sur la même droite quelle que soit la profondeur sondée. Cela suggère que seule la concentration des défauts augmente légèrement quand la zone profonde est sondée.

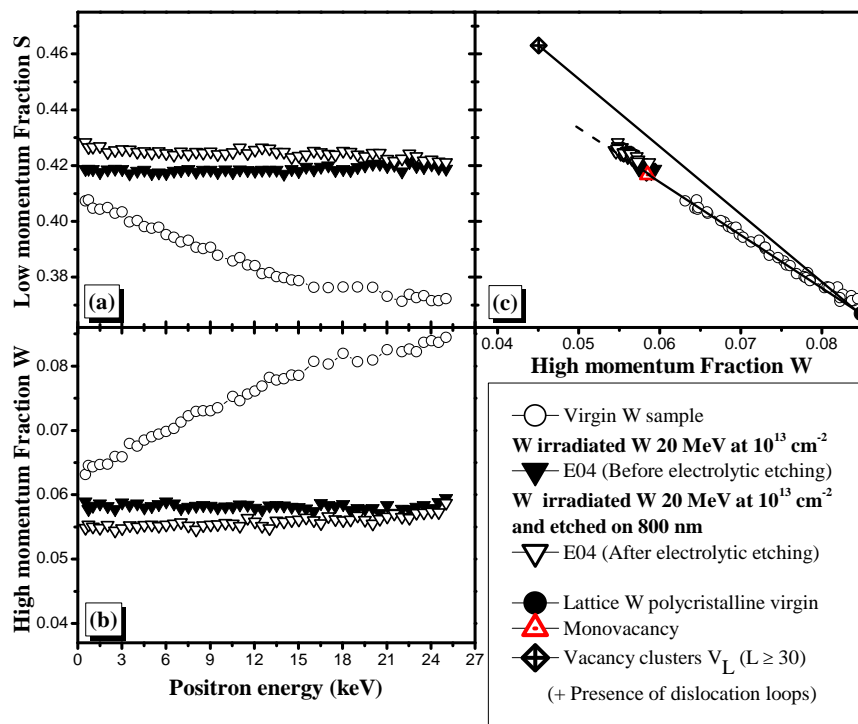


Figure III.20 : Caractéristiques annihilation de positons avant et après décapage électrolytique (sur 800 nm) de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W .

Finalement sur toute la profondeur endommagée (0-1600 nm) les caractéristiques d'annihilation des positons S et W ne varient que très peu pour une augmentation du niveau de dpa d'un facteur 2.3. Cela peut être dû à la technique de mesure. En effet nous avons vu qu'au **Chapitre II, section II.5.3.1.1, page 74**, que S et W ne varient que très peu lorsque le piégeage des positons approche la saturation même si la concentration de défauts augmente de façon non négligeable. Sur le **Figure II.24**, nous pouvons voir que $\Delta S \approx 0.002$, pour une concentration qui varie d'un facteur 10 (de 10^{26} m^{-3} à 10^{27} m^{-3}). De plus, les calculs OKMC

de A. De Backer et *al* [106], montrent que dans le cas des implantations ^3He 800 keV dans le tungstène, quand la fluence d'implantation augmente, la concentration des monolacunes [v] ne croit pas de manière linéaire, cela est dû au phénomène de recombinaison des défauts. Lorsque le niveau de dpa augmente, le taux de recombinaison augmente ce qui entraîne la formation de moins de monolacunes par rapport aux amas lacunaires.

III.2.3.2.2. Cas des irradiations W 20 MeV à forte fluence

La **Figure III.21**, présente les profils S et W en fonction de l'énergie des positons E , et les points S en fonction de W , pour les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ correspondant respectivement à 12 dpa et à 25 dpa avant et après décapage.

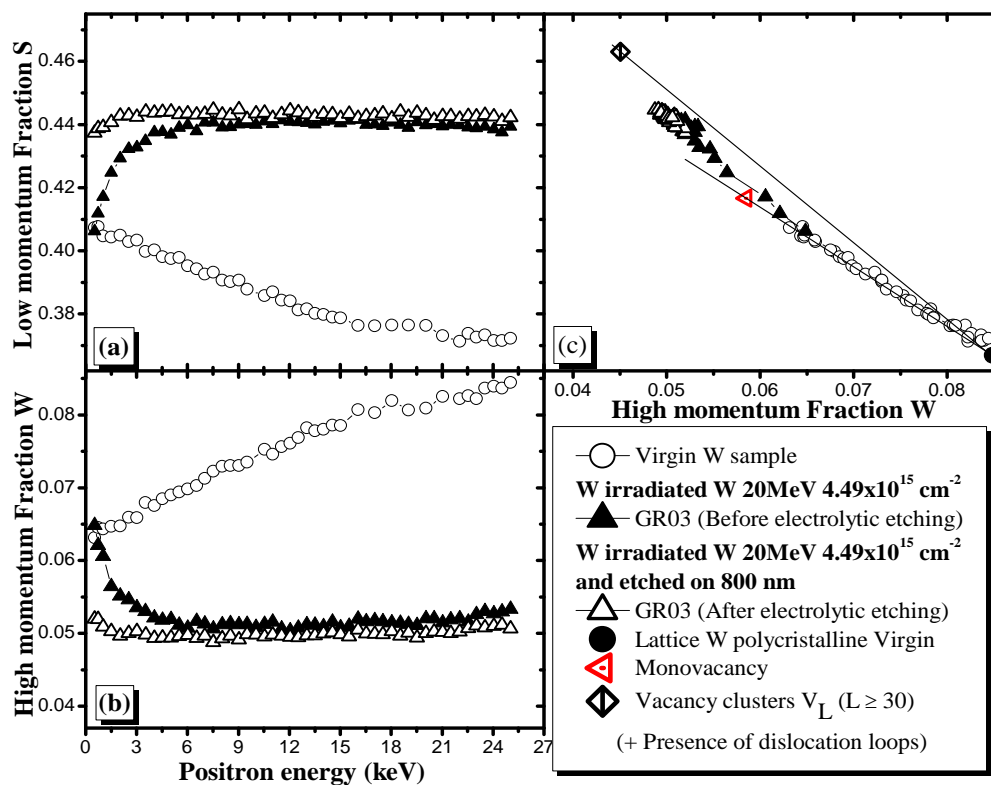


Figure III.21 : Caractéristiques d'annihilation de positons avant et après décapage électrolytique (sur 800 nm) de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W .

Les profils $S(E)$ et $W(E)$ présentent un plateau entre 2-25 keV, pour l'échantillon irradié puis décapé sur 800 nm. Cela suggère que la distribution des défauts est pratiquement constante sur toute la profondeur sondée par les positons entre 2-25 keV. De plus, le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) dans le cas de l'échantillon irradié puis décapé, est au-dessus (resp. en-dessous) de celui de l'échantillon irradié entre 0.5-8 keV. Cela suggère que les caractéristiques d'annihilation de surface entre les deux échantillons irradiés puis décapé ou non décapé sont différentes. Entre 8-25 keV, les profils $S(E)$ et respectivement $W(E)$ sont quasi-superposés.

En comparant les points (S, W) avant et après décapage de l'échantillon irradié, on constate qu'ils se superposent pour les énergies de positons comprise entre 8-25 keV. Nous pouvons alors dire que la concentration et/ou la taille des défauts lacunaires détectés dans l'échantillon irradié puis décapé sur 800 nm semblent être les mêmes que ceux détectés par les positons dans l'échantillon irradié et non décapé entre 8-25keV.

Ces résultats confirment la saturation du signal des caractéristiques d'annihilation S et W qui semble être dû à une distribution d'amas lacunaires qui ne varie plus en fonction des dpa (entre 12 dpa et 25 dpa).

III.2.3.3. Discussions des résultats

Le décapage électrolytique nous a permis d'analyser les échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la profondeur où l'endommagement (dpa) est maximal.

Dans le cas de l'irradiation W 20 MeV à faible fluence, le niveau d'endommagement proche surface avant le décapage est de l'ordre de 0.025 dpa (dans la région 0-800 nm), tandis que la valeur maximale de dpa est de 0.056 dpa (entre 800-1600 nm) après décapage, soit environ 2 fois plus. Les résultats PAS, montrent que les valeurs des caractéristiques d'annihilation S et W de l'échantillon irradié et non décapé sont inférieures à celles de l'échantillon irradié puis décapé. Cela signifie que, entre 0.025 et 0.056 dpa, la distribution en termes de concentration a tendance à augmenter quand le niveau de dpa augmente.

Dans le cas de l'échantillon irradié avec des ions W 20 MeV à forte fluence, le niveau de dpa proche de la surface avant décapage est de l'ordre de 12 dpa, alors que la valeur maximale d'endommagement est de 25 dpa après décapage. Les données PAS, montrent que les caractéristiques d'annihilation des positons S et W sont pratiquement similaires, sauf en proche surface pour l'échantillon irradié et non décapé où les valeurs des caractéristiques d'annihilation S (rep. W) sont supérieures (resp. inférieures). Les données expérimentales ont été fittées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une seule couche homogène (**Figure III.22**) et les résultats sont résumés dans le **Tableau III.6**.

Echantillon	Condition d'irradiation	Décapage électrolytique	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L_{eff}^+ (nm)
			$S_{surface}$	$W_{surface}$	S_{bulk}	W_{bulk}	
GR03	W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$	avant décapage	0.411 ± 0.002	0.0581 ± 0.001	0.4402 ± 0.0002	0.05143 ± 0.00005	6 ± 1
GR03	W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$	décapé sur 800 nm	0.431 ± 0.002	0.053914 ± 0.0006	0.4431 ± 0.0002	0.04982 ± 0.00005	3 ± 1

Tableau III.6 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation S , W et la longueur de diffusion effective L_{eff}^+ avant et après décapage électrolytique de l'échantillon Goodfellow irradié avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

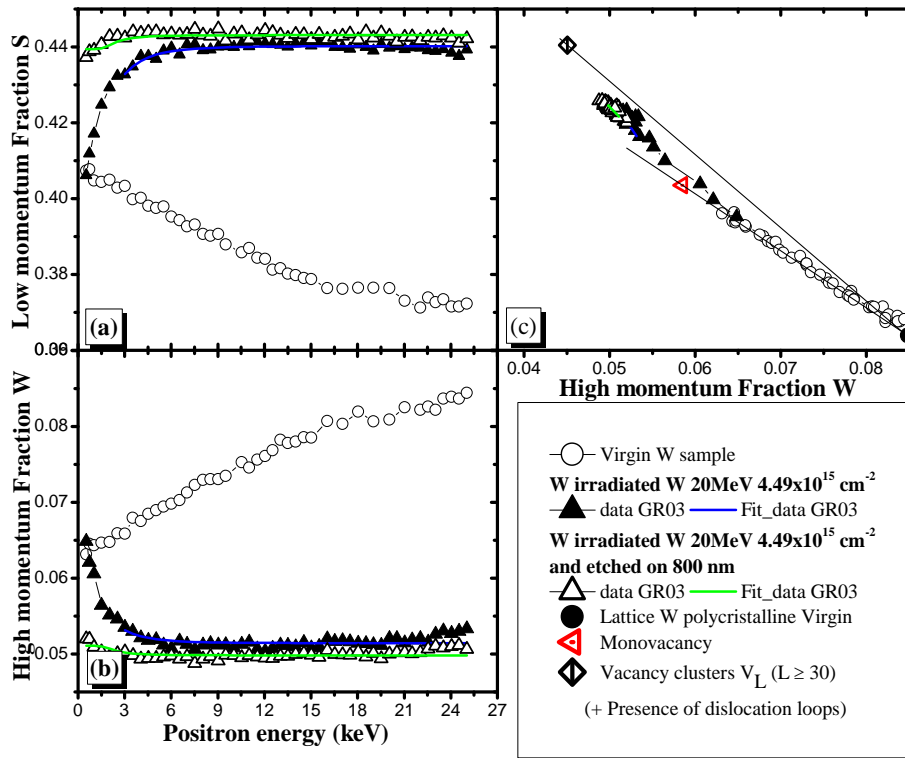


Figure III.22 : Comparaison des spectres théoriques calculés à partir des données expérimentales mesurées avant et après décapage électrolytique de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W .

Nous pouvons constater que, après le décapage, la valeur S dans le Bulk (S_{Bulk}) (resp. W_{Bulk}) est légèrement supérieure pour l'échantillon irradié puis décapé comparée à celle de l'échantillon non décapé. Cela suggère que la concentration et/ou la taille des amas lacunaires est légèrement supérieure après décapage. Ce qui est sûrement dû à l'augmentation du niveau d'endommagement (dpa) dans la zone sondée par les positons (12 dpa avant décapage contre 25 dpa après décapage). L'augmentation de S et la diminution de W est corrélée avec la diminution de la longueur de diffusion effective L_{eff}^+ qui indique que le taux de piégeage a légèrement augmenté quand la zone profonde est sondée. Mais de façon générale nous constatons qu'entre 12 dpa et 25 dpa, la concentration et/ou la taille des défauts évoluent très peu. En effet il se peut que la distribution des défauts diffère légèrement, c'est-à-dire que la probabilité de présence de petit défauts lacunaires tels que la monolacune soit plus faible entre 800 nm et 1600 nm que dans la zone proche de la surface (0-800 nm). De plus la valeur de S à la surface (S_{surface}) (resp. W_{surface}) mesurée après décapage est supérieure (resp. inférieure) à celle mesurée avant décapage. Cela suggère que l'état de surface après décapage est différent de celui existant juste après l'irradiation.

Notons que l'évolution très faible des caractéristiques d'annihilation après décapage dans le cas des irradiations à forte fluence, ne s'explique pas par le fait les caractéristiques d'annihilation S et W aient atteint leur maximum, mais plutôt par le fait que la saturation de piégeage des positons dans les amas lacunaires formés soit atteinte. Nous allons voir plus loin dans la prochaine partie sur « l'étude du comportement des amas lacunaires en fonction de la

température de recuit », que les valeurs de S (resp. W) peuvent encore évoluer vers de plus grandes (resp. petites) valeurs.

III.2.3.4. Conclusions

Dans cette section, l'étude des défauts lacunaires en fonction de la profondeur et du niveau de dpa dans les échantillons de tungstène irradiés avec des ions lourds, montrent que la distribution des défauts lacunaires évolue avec le niveau de dpa, et est clairement visible dans le cas de l'irradiation à faible fluence (entre 0.025 dpa et 0.056 dpa). Cependant dans le cas de l'irradiation à forte fluence, l'augmentation du niveau du niveau de dpa entre 12 dpa et 25 dpa ne modifie que de trop peu la concentration et/ou la taille des défauts lacunaires, ce qui signifie qu'il existe un niveau de dpa pour lequel la saturation de piégeage des positons est atteinte. Cela confirme les résultats qui ont été obtenus dans la zone proche de surface sur des échantillons irradiés à différentes fluences (**section III.2.2**).

En perspective, il serait intéressant de réaliser des irradiations avec des fluences moyennes afin de pouvoir déterminer le niveau de dpa à partir duquel la saturation de piégeage des positons est atteinte.

III.3. Comportements des amas lacunaires en fonction de la température de recuit

Nous avons vu que les irradiations avec les ions lourds (W 20 MeV et Fe 10 MeV) à fort dpa*, induisent dans les échantillons de tungstène des défauts complexes de type amas lacunaires. Dans cette section, nous allons focaliser notre étude sur le comportement de ces amas lacunaires en fonction de la température de recuit, afin de pouvoir identifier les différents phénomènes physiques tels que la migration, l'agglomération, l'élimination ou la dissociation de ces amas lacunaires. Pour réaliser ces investigations, des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences, ont été recuits à plusieurs températures et analysés par Spectroscopie d'Annihilation de Positons avec l'accélérateur de positons lents du CEMHTI.

III.3.1. Méthode de traitement appliquée

Pour étudier l'influence de la température de recuit sur l'évolution des amas lacunaires induits dans les échantillons de tungstène par irradiation aux ions lourds, nous avons choisi de suivre la méthodologie suivante : Un seul échantillon irradié aux conditions données a été recuit à différentes températures pendant 1 heure sous vide dans un four à bombardement électronique du CEMHTI (décrit au **Chapitre II, section II.2 page 53**) entre la température ambiante (RT) et 1923 K. Entre chaque recuit, l'échantillon est caractérisé par Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS). Dans la suite, sont présentés les résultats obtenus pour les échantillons de tungstène (EFDA) irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 1.00 dpa*, 12.00 dpa*) et un échantillon de tungstène (Goodfellow) irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 2.50 dpa*).

III.3.2. Stades de recuit des amas lacunaires induits par les ions W

Ici sont présentés les résultats des mesures PAS sur l'échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (générant 1 dpa* dans la région sondée par les positons) et recuit à différentes températures allant de RT à 1923 K pendant 1 heure sous vide. Sur la **Figure III.23**, les profils S en fonction de l'énergie des positons E et S en fonction de W , mesurés entre chaque recuit sont présentés. De plus, ces résultats sont comparés à ceux obtenus sur un échantillon de tungstène EFDA vierge (recuit à 1873 K pendant 1 heure sous vide). Les points (S, W) de la monolacune et du mélange de défauts ($v_L + A$) identifié comme étant des amas lacunaires v_L (avec $L \geq 30$) en présence de boucles de dislocations [73], sont aussi reportés.

Entre **RT et 623 K**, les courbes $S(E)$ présentent la même forme avec un plateau pour les énergies de positons comprises entre 6-25 keV. Le niveau du plateau augmente rapidement avec la température de recuit (voir **Figure III.23.a**). Cela signifie que la distribution en termes de concentration et/ou de taille des défauts a changé entre RT et 623 K. Les points (S, W) se déplacent de plus en plus vers la droite D3 quand la température

augmente. A 523 K, les points (S,W) passent au-dessus du point $(v_L + A)$ et de la droite D3 et à 623 K, cette évolution est encore plus marquée (voir **Figure III.23.b**). Ceci implique que la nature des défauts a changé au cours des recuits.

Entre **623 K et 1023 K**, les courbes $S(E)$ présentent un plateau pour les énergies de positons comprises entre 6-25 keV. Quant à la valeur, elle varie peu. A 823 K, le profil $S(E)$ atteint un maximum et reste quasi-identique jusqu'à 1023 K (voir **Figure III.23.c**). Les points (S,W) continuent de s'écarter de la droite D3 jusqu'à 823 K. Entre 823 K et 1023 K tous les points (S,W) se regroupent pratiquement au même endroit et s'alignent sur une droite D4, dont la valeur absolue de la pente est supérieure à celle de D3 (voir **Figure III.23.d**). Cela signifie qu'à partir de 823 K jusqu'à 1023 K, les positons détectent une nouvelle distribution d'amas lacunaires dont la taille moyenne est supérieure à celle identifiée au point $(v_L + A)$. Il faut noter que les défauts identifiés au points $(v_L + A)$ dans l'étude précédente [73], constitue un mélange de défauts, ce qui ne nous permet pas de savoir si les défauts détectés dans nos échantillons ont une taille supérieure aux amas lacunaires v_L (avec $L \geq 30$).

Entre **1023 K et 1423 K**, le niveau des courbes $S(E)$ diminue à partir de 1123 K. De plus l'allure des profils $S(E)$ a changé et ne présentent plus de plateau sur toute la gamme d'énergie des positons à partir de 1123 K (**Figure III.23.e**). Ce qui signifie que la distribution en profondeur des défauts a changé et que la concentration et/ou la taille des défauts détectés sont plus importantes dans la région profonde que dans la région proche de la surface de l'échantillon. Les points (S,W) quittent la droite D4 et se dirigent vers D_V au fur et à mesure que la température augmente (**Figure III.23.f**). Cela suggère que la distribution en taille des défauts tend vers des plus faibles tailles quand la température augmente.

Au-delà de **1423 K et jusqu'à 1923 K**, le niveau des courbes $S(E)$ continue à diminuer (**Figure III.23.g**). L'allure des profils $S(E)$ change de nouveau pour devenir décroissante et se rapproche de celle de l'échantillon vierge au fur et à mesure que la température de recuit augmente. Entre 1823 K et 1923 K, les profils $S(E)$ sont quasi-superposés pour les énergies de positons comprises entre 0.5-25 keV. Entre 0.5-12 keV ils se superposent à celui de l'échantillon vierge alors qu'entre 12-25 keV, ils sont légèrement au-dessus de celui-ci. La plupart des points (S,W) (**Figure III.23.h**) passent en-dessous de la droite D3 à partir de 1523 K. Entre 1823-1923 K, les points (S,W) s'alignent sur la droite D_V , comme celui de l'échantillon vierge, à la seule différence qu'ils sont légèrement plus éloignés du point Lattice (S_L, W_L) . Cela signifie que la nature et la concentration des défauts a fortement évolué dans ce domaine de température comprise entre 1823-1923K, et les caractéristiques d'annihilation des positons se rapprochent de celles mesurées dans un échantillon vierge sans atteindre la même qualité.

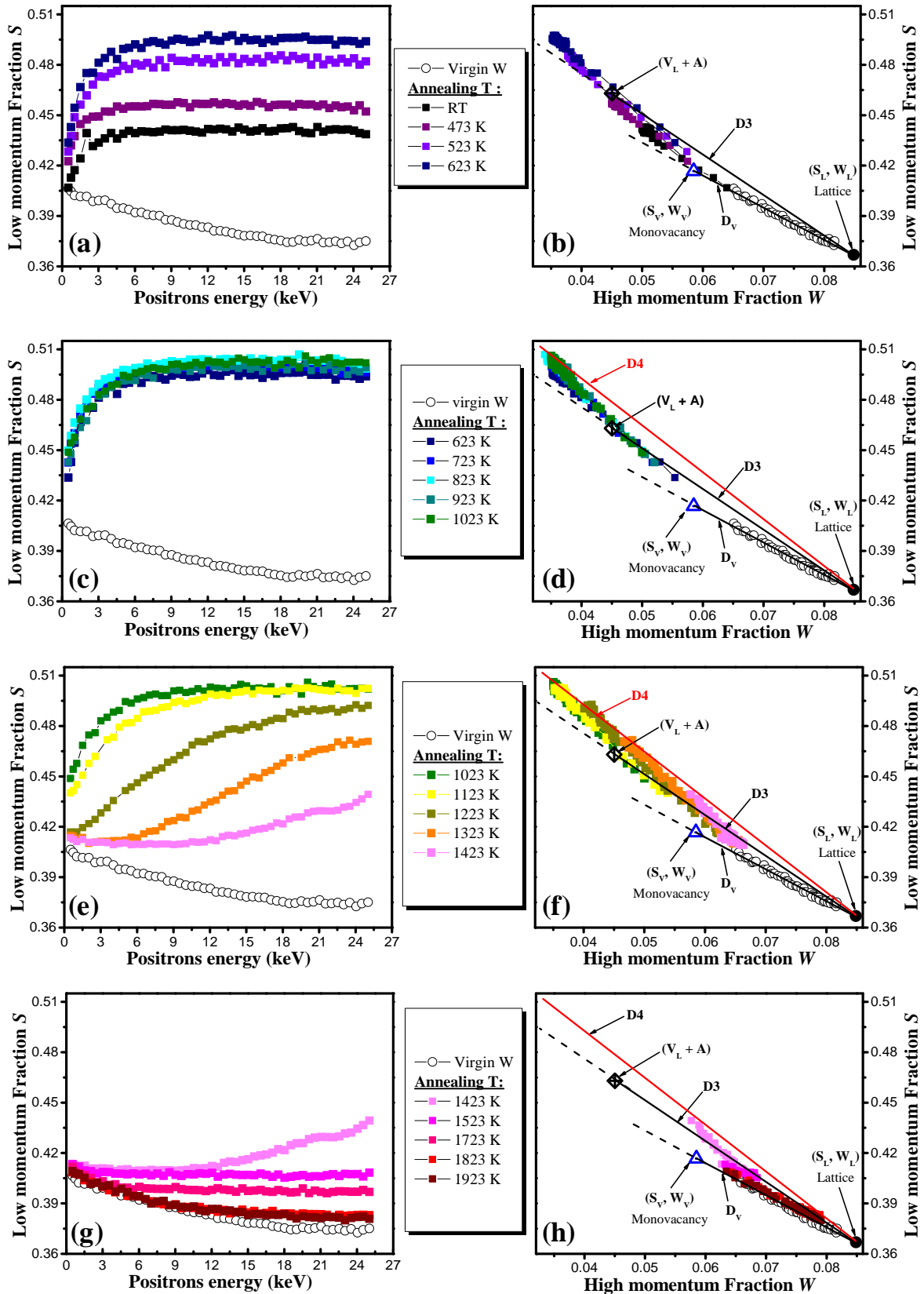


Figure III.23 : Evolution des caractéristiques d'annihilation en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 1 dpa*). a), c), e) et g) les profils S en fonction de l'énergie des positons E . b), d), f) et h) les points $S(W)$ dépendant de la température de recuit.

III.3.3. Etude des défauts en fonction de la profondeur

Pour observer plus clairement le comportement des défauts en fonction de la température de recuit et de la profondeur, nous avons représenté les courbes S en fonction de la température de recuit et les points (S, W) dépendant de la température de recuit pour trois énergies de positons différentes : 3 keV, 9 keV et 24 keV. Les différentes énergies de positons ont été choisies de manière à ce qu'à 3 keV, les positons ne sondent que la région proche de la surface avec une profondeur moyenne d'environ 10 nm. A 24 keV, les positons sondent la zone profonde à une profondeur moyenne d'environ 340 nm. Ensuite, une énergie intermédiaire de 9 keV correspondant à une profondeur moyenne de 64 nm, sera aussi étudiée. Pour limiter l'influence de la dispersion des mesures, nous avons choisi de faire une moyenne de 3 points consécutifs des valeurs de S et W calculée selon les équations ci-dessous :

$$S_m(E) = \frac{1}{3} \sum_{E-0.5}^{E+0.5} S(E) \quad \text{III. 2}$$

$$W_m(E) = \frac{1}{3} \sum_{E-0.5}^{E+0.5} W(E) \quad \text{III. 3}$$

III.3.3.1. Cas des échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV

Dans un premier temps nous décrivons les résultats des caractéristiques d'annihilation S et W obtenues pour l'énergie des positons prise à 24 keV, puis à 9 keV et enfin à 3 keV pour l'irradiation à 1 dpa*.

III.3.3.1.1. Caractéristiques d'annihilation S et W à 24 keV pour 1 dpa*

La **Figure III.24**, présente les courbes S en fonction de la température de recuit (T) et les points (S, W) dépendant de la température de recuit pour les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, correspondant à 1 dpa*. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 24 keV. En dehors des valeurs expérimentales, sont également données les caractéristiques (S_v, W_v) de la monolacune de tungstène (v), ainsi que la droite D_v , caractéristique de la monolacune de tungstène. De plus la droite D_3 , correspondant à la détection d'un mélange de défauts tels que des clusters v_L (avec $L \geq 30$) et des boucles de dislocations (A).

Nous remarquons que pour l'échantillon irradié à 1 dpa*, l'évolution de S en fonction de la température de recuit n'est pas monotone et est marquée par la présence de plusieurs stades de recuit.

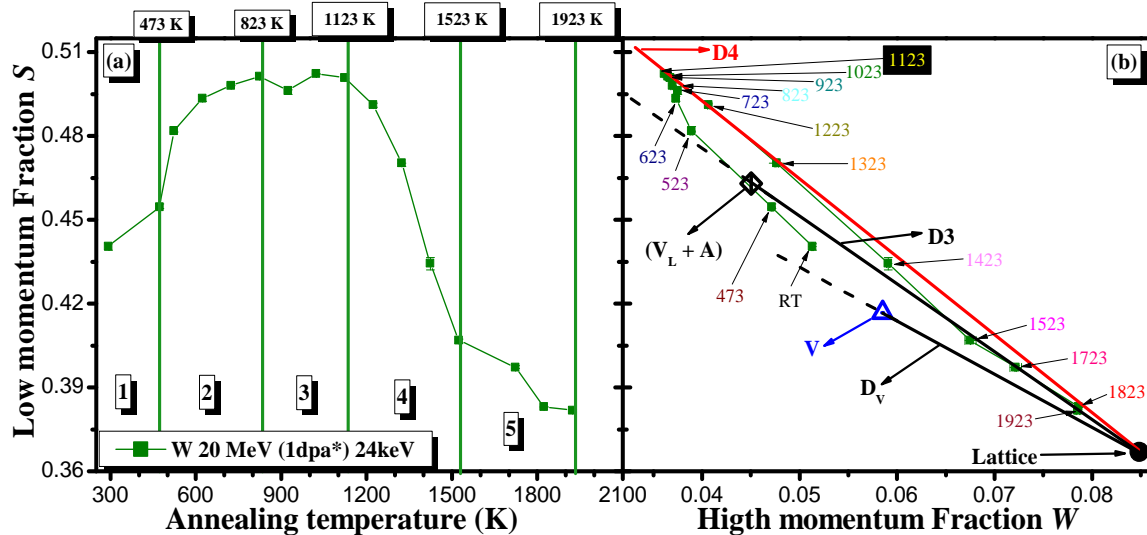


Figure III.24 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 24 keV.

Stade 1 : entre RT-473 K, nous observons une légère augmentation de S , qui indique une évolution de la distribution des défauts lacunaires. Les points (S,W) se dirigent vers la droite D3. Cela signifie que la distribution moyenne en taille des amas lacunaires détectés par les positons a augmenté.

Stade 2 : entre 473-823 K, nous constatons une augmentation brutale de S jusqu'à 623 K, puis entre 623 K et 823 K, cette augmentation devient plus douce quand la température augmente. Cela signifie que la distribution des défauts lacunaires a continué à évoluer. Les points (S,W) se positionnent au dessus de la droite D3 à partir de 523 K. Lorsque la température de recuit augmente, les points (S,W) se dirigent vers une droite nommée D4 pour se positionner sur cette droite quand la température atteint 823 K. La valeur absolue de la pente de la droite D4 est supérieure à celle de la droite D3. Cela suggère que la taille moyenne des amas lacunaires a augmenté et est supérieure à celle identifiée sur la droite D3.

Stade 3 : entre 823-1123 K, les valeurs de S sont relativement constantes. De plus les points (S,W) restent pratiquement au même endroit sur la droite D4, cela suggère que la distribution en termes de concentration et de taille des défauts lacunaires varie peu. Cette observation doit être nuancée pour la température de recuit à 923 K. La valeur de S (resp. W) diminue (resp. augmente). Nous discuterons plus tard de ce constat.

Stade 4 : entre 1123-1523K, nous remarquons une diminution brutale de S , cela indique une décroissance importante de la concentration et/ou de taille des amas lacunaires. Les points (S,W) évoluent sur la droite D4 et se dirigent vers le point Lattice entre 1123-1323 K. Cela suggère que, la concentration des amas lacunaires détectés par les positons diminue après le recuit des échantillons entre 1123-1323 K. A partir de 1423 K, les points (S,W) se

dirigent vers la droite D3 et à 1523 K les points (S, W) se positionnent sur la droite D3. Cela signifie que la taille des amas lacunaires diminue à nouveau.

Stade 5 : entre 1523-1923 K, la valeur de S diminue encore mais plus lentement que dans le stade précédent. Les points (S, W) évoluent sur la droite D3 et se rapprochent de plus en plus du point Lattice (S_L, W_L) quand la température augmente. Cela suggère que la distribution en termes de concentration et de taille des défauts a diminué, mais la taille reste supérieure à celle de la monolacune.

III.3.3.1.2. Caractéristiques d'annihilation S et W à 9 keV pour 1 dpa*

Sur la **Figure III.25**, nous remarquons qu'à 9 keV, l'évolution des caractéristiques d'annihilation S et W est globalement équivalente à celle mesurée à 24 keV et les stades de recuit 1-3 sont identiques alors que les stades de recuit 4 et 5 sont différents.

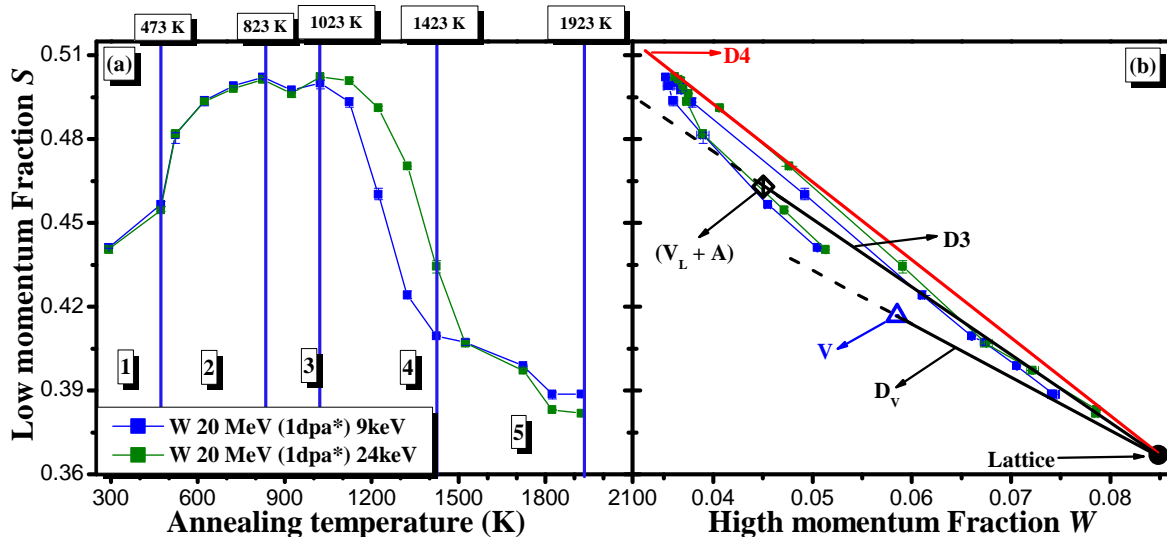


Figure III.25 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 9 keV et à 24 keV.

Le **stade 4 :** s'étend de 1023-1423 K, au lieu de 1123-1523 K pour l'énergie de positons de 24 keV. Nous constatons une diminution très rapide de S . Les points (S, W) évoluent en-dessous de la droite D4 puis passent légèrement en-dessous de la droite D3 entre 1323-1423 K en se dirigeant vers le point Lattice. Notons que les valeurs de S prises à 9 keV sont plus faibles comparées à celles prises à 24 keV. Cela suggère que la décroissance de la concentration et de la taille des amas lacunaires intervient à plus faibles températures de recuit dans le cas des amas lacunaires détectés à 9 keV.

Le **stade 5 :** se situe entre 1423-1923 K, au lieu de 1523-1923 K pour l'énergie de positons de 24 keV. Les valeurs de S diminuent plus lentement par rapport au **stade 4** comme pour les mesures à 24 keV. Les points (S, W) évoluent en-dessous de la droite D3 (au lieu de

rester sur la droite D3 comme observé à 24 keV) et se dirigent de plus en plus vers le point Lattice (S_L, W_L) quand la température augmente. Cela signifie que la concentration des amas lacunaires continue à diminuer et que leur taille devient de plus en plus petite quand la température augmente. Notons que les valeurs de S sont plus élevées à 9 keV qu'à 24 keV entre 1723 K et 1923 K, cela est sûrement dû à la fraction d'annihilation des positons à la surface qui est plus importante pour des positons de 9 keV, liée à leur diffusion vers la surface rendue possible par la faible concentration de pièges.

III.3.3.1.3. Caractéristiques d'annihilation S et W à 3 keV pour 1 dpa*

Sur la **Figure III.26**, Les caractéristiques d'annihilation S et W mesurées à l'énergie des positons de 3 keV ont la même tendance d'évolution que celles mesurées à 9 keV. Le **stade 4** est décalé vers de plus faibles températures, 1023-1323 K au lieu de 1023-1423 K dans le cas de l'énergie de 9 keV. De plus, à 3 keV un changement majeur peut être observé, les valeurs de S sont plus faibles à 3 keV qu'à 9 keV et 24 keV et les points (S, W) se positionnent en-dessous de ceux mesurés à 9 keV. Au **stade 5**, notons que les valeurs de S mesurées à 3 keV sont plus élevées que celles mesurées à 9 keV entre 1723 K et 1923 K, ce qui s'explique par une plus grande fraction d'annihilation des positons à la surface.

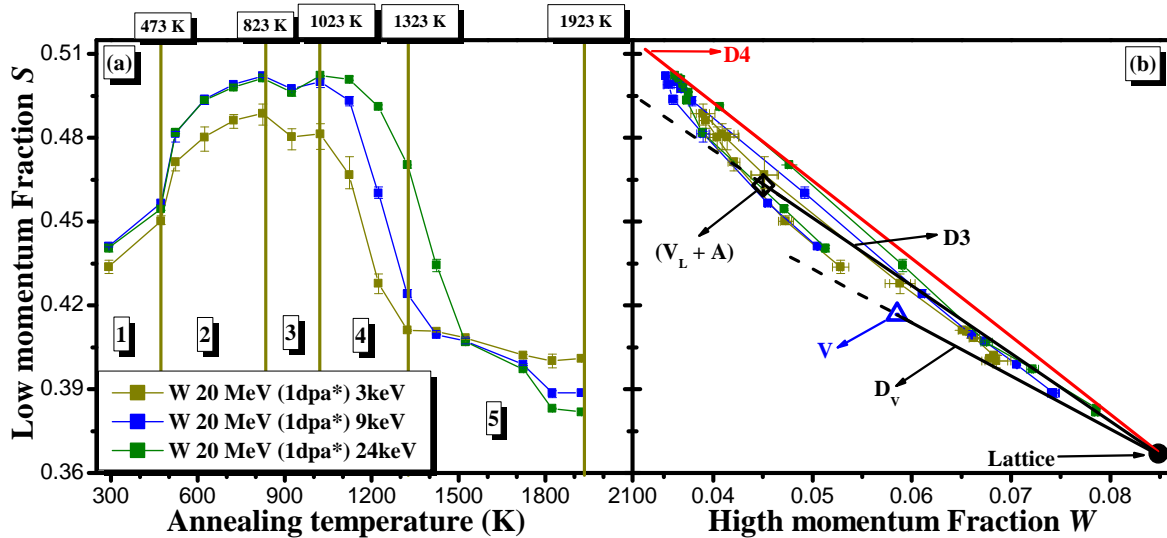


Figure III.26 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 3 keV, 9 keV et à 24 keV.

III.3.3.1.4. Discussions des stades de recuit obtenus avec les irradiations W 20 MeV à 1 dpa*

Pour comprendre les différents stades de recuit constatés précédemment, nous allons discuter des différents processus qui pourraient être mis en jeu à chaque stade.

Energie des positons de 24 keV

Les stades de recuit 1 et 2, montrent une légère augmentation de la valeur de S entre RT et 473 K. Cette augmentation est beaucoup plus marquée entre 473-623 K. De plus les points (S,W) se décalent de plus en plus vers la droite D3 et passent au-dessus de celle-ci quand la température de recuit atteint 523 K pour les énergies de positons de 24 keV. Lorsque la température de recuit atteint 823 K, les valeurs de S atteignent un niveau maximum. Les points (S,W) se positionnent sur la droite D4 (de pente supérieure à celle de D3) uniquement pour l'énergie de positon de 24 keV. Cela suggère que la concentration et la nature des défauts ont évolué entre RT-823 K, et que les positons détectent des amas lacunaires dont la distribution moyenne en taille est supérieure à celle détectée au point (v_L+A) correspondant à un mélange de défauts de type amas lacunaire v_L ($L \geq 30$) en présence de boucles de dislocation.

Ces amas lacunaires peuvent être formés dans la mesure où la température de recuit peut favoriser la mobilité des petits défauts lacunaires. Ainsi ils pourront s'agglomérer entre eux ou avec d'autres petits amas lacunaires pour former de gros amas lacunaires. Cependant il est intéressant de noter que ce phénomène de migration/agglomération se produit dans le même domaine de température que celui où a été observé l'agglomération des monolacunes entre 473 K et 623 K [1, 73]. Ainsi, nous proposons que la formation des gros amas lacunaires dans nos échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*, vient du fait que l'irradiation induit dans les échantillons non seulement une concentration de petits amas lacunaires, mais aussi une quantité non négligeable de défaut simple telle que la monolacune, qui peuvent migrer puis s'agglomérer entre elles et/ou avec les petits amas lacunaires existant après irradiation.

Au stade de recuit 3, nous avons noté que pour les positons de 24 keV, les valeurs de S sont quasi-monotones et que les points (S,W) se regroupent pratiquement au même endroit entre 823-1123 K, sauf pour la température de recuit à 923 K. Cela suggère que soit la concentration et la distribution moyenne en taille des défauts lacunaires sondées par les positons varie très peu ou que la technique n'est plus sensible à ces évolutions. Nous supposons que la température de recuit de 923 K, pourrait être favorable à la dissociation de certains amas lacunaires dont la quantité est non négligeable pour que les positons puissent détecter une baisse de leur concentration et/ou taille. Les lacunes ainsi libérées peuvent à leurs tours s'agglomérer avec d'autres amas lacunaires plus stables.

Aux stades de recuit 4 et 5, nous avons observé une diminution rapide de S entre 1123-1523 K suivie d'une diminution plus lente de S entre 1523-1923 K pour l'énergie de positons de 24 keV. Les points (S,W) se déplacent sur la droite D4 et en direction du point

Lattice caractéristique de l'état vierge des échantillons de tungstène entre 1123 K et 1323 K. Ce comportement suggère que la distribution en taille moyenne des amas lacunaires ne change pas ou que la technique n'est plus sensible aux variations de taille, et que la concentration en amas lacunaires diminue. Ces changements de distribution pourraient être soit liés à la dissociation des amas lacunaires qui a lieu pour des températures de recuit supérieures à 1123 K, suivie de leur élimination à la surface ou aux joints de grain ou à une agglomération des amas lacunaires pour former des cavités, induisant une réduction de leur densité. Si les valeurs de S et W correspondent à la saturation de piégeage des positons dans ces amas lacunaires (saturation en taille), on ne peut plus observer de variation de S et W dans le cas où l'agglomération se poursuit après 1123 K. A partir de 1423 K jusqu'à 1923 K, nous observons que les points (S, W) passent en-dessous de D4 pour se positionner sur D3 à partir de 1523 K. Entre 1823-1923 K, les points (S, W) se positionnent sur D3, mais sont très proches du point Lattice (S_L, W_L), il est donc difficile de savoir si ces points appartiennent à une droite spécifique puisque l'écart entre les droites D_V , D3 et D4 est très serré. De plus, pour un échantillon vierge les points (S, W) à 24 keV sont à peu près au même endroit que ceux des échantillons irradiés puis recuits entre 1823-1923 K. Ce qui suggère que la concentration de pièges est faible après ces recuits à hautes température.

Différence entre l'énergie des positons de 9 keV et de 24 keV

L'évolution des caractéristiques d'annihilation des positons mesurés à 9 keV en fonction de la température montre une nette différence au niveau des **stades de recuit 4 et 5**.

La diminution des valeurs de S est décalée vers de plus faibles températures de 1023 K à 1423 K au lieu de 1523 K pour l'énergie de 24 keV. Les points (S, W) se déplacent vers la droite D_V et en direction du point Lattice à partir de 1023 K et à 1323 K ils se positionnent sur la droite D3 tandis que pour l'énergie de 24 keV les points (S, W) se positionnent sur la droite D3 qu'à partir de 1523 K. Cela suggère que la diminution de la concentration et/ou de la distribution moyenne en taille des gros amas lacunaires a lieu à des températures plus basses quand l'énergie de positons devient plus faible, c'est-à-dire plus près de la surface.

Nous pouvons noter aussi que les valeurs de S à 9 keV sont supérieures à celles de S à 24 keV entre 1823-1923 K. Ce constat est logique si l'on compare les profils $S(E)$ et $W(E)$ obtenus pour l'échantillon irradié puis recuit (1823-1923 K) et ceux mesurés dans un échantillon de tungstène vierge (voir **Figure III.23.a** et **Figure III.23.h**). En effet les valeurs des caractéristiques d'annihilation S sont plus élevées en proche surface que dans le Bulk. Cela est dû au fait que, près de la surface, la fraction d'annihilation à la surface devient de moins en moins négligeable quand la concentration de pièges à positons devient faible, de plus la probabilité pour la formation des positroniums devient plus grande, ce qui peut entraîner une augmentation de la valeur de S .

Différence entre l'énergie des positons de 3 keV et de 9 keV

Dans le cas de l'énergie des positons de 3 keV, l'évolution des caractéristiques d'annihilation des positons mesurés en fonction de la température montre plusieurs différences aux différents stades de recuit.

Aux stades de recuit 1 et 2, l'évolution des valeurs de S en fonction de la température est nettement plus faible comparées à celles mesurées à plus forte énergie de positons (24 keV et 9 keV). Les points (S,W) se placent en-dessous de la droite D4, mais ils restent largement au-dessus de la droite D3. Cela suggère que la concentration et/ou la distribution moyenne en taille des gros amas lacunaires formés à 823 K détectée par les positons est d'autant plus petite à 3 keV qu'à 9 keV ou à 24 keV. Or les données expérimentales mesurées dans l'échantillon irradié W 20 MeV à 1 dpa* puis recuits entre 473 K et 823 K, ont pu être modélisées avec une structure à une couche homogène, voir à l'**Annexe 1 (A1-Figure. 1 et A1-Tableau. 1, page 215)**. Cela indique que la diminution des valeurs de S mesurées pour l'énergie des positons de 3 keV comparées à celles mesurées à 9 keV ou 24 keV, vient du fait qu'à 3 keV, la fraction d'annihilation des positons à la surface est plus importante, contribuant ainsi à la diminution des valeurs de S proche de la surface. Ce qui signifie que la taille moyenne des défauts pourrait être la même avec des concentrations plus ou moins égales. Au **stade de recuit 3**, nous observons une diminution de la valeur de S entre 823-1023 K. Or dans le cas des énergies des positons de 24 keV et de 9 keV, nous avons observé une diminution de S qu'à la température de 923 K. Il est donc probable que lors de la dissociation de certains gros amas lacunaires à 923 K, les lacunes ainsi libérées entre en compétition entre leurs éliminations en surface et leurs piègeages par d'autres amas lacunaires plus gros et plus stables. Nous pouvons noter que cette compétition a tendance à favoriser l'élimination des lacunes libérés en proche surface. Aux **stades de recuit 4 et 5**, les points (S,W) se positionnent pratiquement sur la droite D3 et en direction du point Lattice à partir de 1223 K, contrairement à 1323 K pour 9 keV et à 1523 K pour 24 keV. Cela suggère que lors de la dissociation des gros amas lacunaires, les lacunes libérées ont plus tendance à s'éliminer en surface qu'à être piégées une seconde fois par d'autres amas lacunaires plus stable, c'est pourquoi le phénomène d'élimination devient visible à des températures plus basses lorsque que l'on sonde les défauts en proche surface. Notons que les valeurs de S à 3 keV sont supérieures à celles de S à 9 keV et de S à 24 keV entre 1823-1923 K. Ce constat a déjà été expliqué pour l'énergie des positons de 9 keV (paragraphe ci-dessus).

Modélisation des données expérimentales du recuit à 1923 K

Les données expérimentales des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon irradié W 20 MeV à 1 dpa* puis recuit à 1923 K ont été modélisées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une couche homogène (**Annexe 2, A2-Figure 1, page 216**). La longueur de diffusion effective est de 56 ± 1 nm (**Tableau III.7**), au lieu de 106 ± 2 nm dans le cas d'un échantillon de tungstène vierge. Ceci implique l'existence d'une concentration de défauts dans l'échantillon irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa* même après recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.

Echantillon	Irradiation	Température de recuit (K)	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L_{eff}^+ (nm)
			S_{surface}	W_{surface}	S_{bulk}	W_{bulk}	
E2	W 20 MeV à 1 dpa*	1923	0.4041 ± 0.0004	0.0657 ± 0.0002	0.3803 ± 0.0002	0.0791 ± 0.0001	56 ± 1

Tableau III.7 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.

III.3.3.1.5. Echantillons irradiés avec les ions W 20 MeV à 12 dpa*

Les figures $S(E)$, $W(E)$ et $S(W)$ mesurées à toutes les températures de recuits sont reportées en **Annexe 3, A3-Figure. 1, page 219**.

La **Figure III.27**, compare les caractéristiques d'annihilation des positons S et W des échantillons de tungstène EFDA irradiés avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* et 1 dpa* aux énergies de positons prises à 3 keV, 9 keV et à 24 keV.

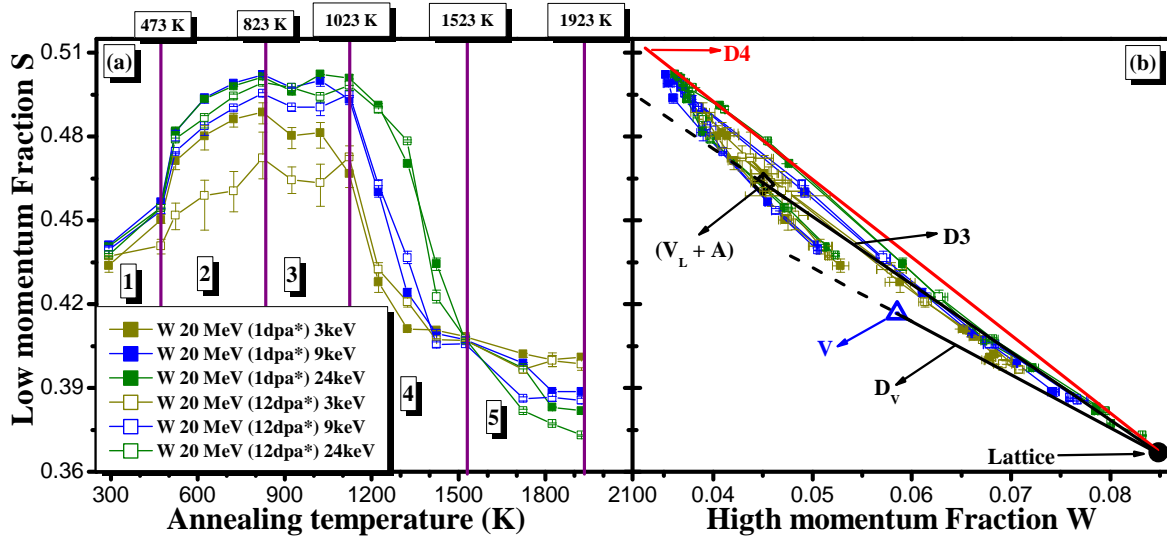


Figure III.27 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* et 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 3 keV, 9 keV et à 24 keV.

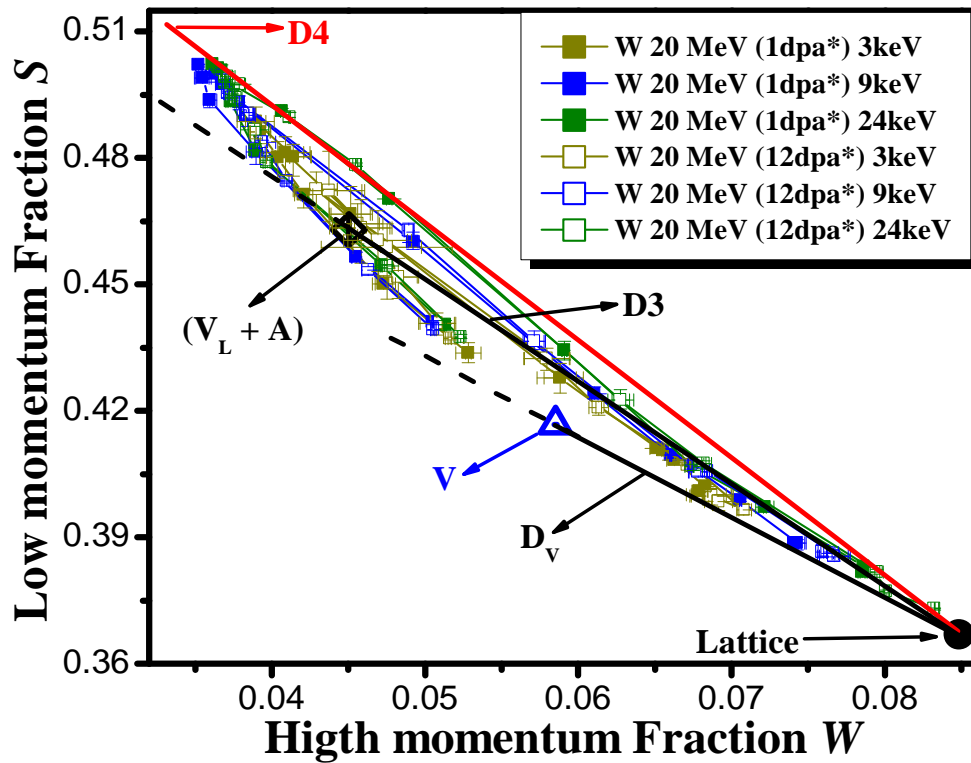


Figure III.28 : Agrandissement de la Figure III.27.b.

Dans une première lecture des données obtenues par PAS, nous pouvons dire que les irradiations générant 12 dpa* ont les mêmes stades de recuit que ceux observés pour l'irradiation générant 1 dpa*. Par contre, des différences sont observées sur les niveaux des valeurs des caractéristiques d'annihilation S et W mesurées pour chaque énergie de positons. Trois différences essentielles sont observées :

- Pour les **stades de recuit 1, 2 et 3**, les valeurs de S sont plus faibles pour 12 dpa* quand l'énergie des positons devient plus faible et que les positons sondent plus près de la surface. Les points (S, W) n'atteignent pas la droite D4, indiquant que même si l'agglomération a lieu, la taille atteinte par les amas lacunaires détectée, est plus faible pour la plus forte fluence. A 923 K, nous pouvons constater que la déflexion de S est plus marquée pour 12 dpa* qu'à 1 dpa*.
- Pour le **stade de recuit 4**, la diminution de S est légèrement moins prononcée et les points (S, W) tendent moins rapidement vers la droite D3 pour 12 dpa*. Cela indique que la concentration et/ou la taille des amas lacunaires détectés dans l'échantillon irradié à 12 dpa* est légèrement plus élevée comparée à celle mesurée dans l'échantillon irradié à 1 dpa*.
- Pour le **stade de recuit 5**, les valeurs de S sont moins élevées et les points (S, W) sont plus proches du points Lattice quand la température de recuit augmente (1523-1923 K) pour 12 dpa*, indiquant que la concentration des défauts est moins importante.

Les données expérimentales des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon irradié W 20 MeV à 12 dpa* puis recuit à 1923 K ont été fittées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une couche homogène (**Annexe 2, A2-Figure 2, page 217**). La longueur de diffusion effective est de 82 ± 1 nm (**Tableau III.8**). Elle est inférieure à celle observée dans les échantillons vierges (106 ± 2 nm). Cela signifie que le recuit à 1923 K. n'éliminent pas la totalité des défauts dans l'échantillon irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa*. Cependant la longueur de diffusion effective obtenue pour ces conditions d'irradiation est plus longue que celle obtenue pour un recuit à la même température d'un échantillon irradié à plus faible fluence correspondant à 1 dpa* (56 ± 1 nm). Cela indique que la concentration de défauts présents dans cet échantillon irradié à 12 dpa* est plus faible que celle détectée dans l'échantillon irradié à 1 dpa*.

Echantillon	Irradiation	Température de recuit (K)	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L^+ eff (nm)
			$S_{surface}$	$W_{surface}$	S_{bulk}	W_{bulk}	
E5	W 20 MeV à 12 dpa*	1923	0.3999 ± 0.0003	0.0678 ± 0.0002	0.3718 ± 0.0002	0.0843 ± 0.0002	82 ± 1

Tableau III.8 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.

L'ensemble de ces différences pourraient être dues à une différence de distribution des défauts générée dans les échantillons par irradiation avec les ions W 20 MeV à 1 dpa* et 12 dpa*. Nous avons vu précédemment à la **section III.2**, que cette distribution pouvait être constituée de monolacunes, de boucles de lacunes (qui peuvent avoir des caractéristiques d'annihilation de positons très proches de celles de la monolacune) et d'amas lacunaires 3 D. Il semblerait que la fraction de monolacunes soit plus importante dans les irradiations à 1 dpa* comparée à 12 dpa*, ce qui favoriserait la formation de plus gros amas lors des recuits qui seraient plus stables. Cela pourrait aussi expliquer la plus faible concentration/taille des amas lacunaires observée près de la surface dans les irradiations à 12 dpa*.

Entre outre, il a été rapporté dans les travaux de X. Yi et al [112] réalisés sur des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 150 KeV, que la densité des défauts augmente de façon linéaire avec la fluence jusqu'à $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (environ 0.4 dpa) et pour les fluences supérieures jusqu'à 10^{18} cm^{-2} (1 dpa), le taux d'accumulation des défauts ralentit. Cela peut être dû à l'augmentation de la probabilité de chevauchement des cascades de collisions qui est estimé à $5.09 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ (0.05 dpa) favorisant l'augmentation du taux de recombinaison entre les lacunes et les interstitiels.

Pour pouvoir estimer la fluence des ions W 20 MeV à partir de laquelle la probabilité de recouvrement des cascades pourrait être atteinte, nous avons réalisé à l'aide de SRIM une simulation de la trajectoire d'un ion W d'énergie de 20 MeV dans le tungstène (**Figure III.29**), ainsi nous avons pu estimer la taille moyenne des cascades de collision que pourraient induire un ion W 20 MeV, elle serait environ de 20 nm de diamètre. Donc, le

nombre d'ions qui pourrait être introduit dans un carré d'une surface de 1 cm^2 sans qu'il y ait un recouvrement des cascades est de l'ordre de 3.2×10^{11} . Ceci implique que lorsque la fluence d'irradiation avec des W 20 MeV dans le tungstène est supérieure à $3.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à environ 0.001 dpa), il pourrait y avoir une probabilité de recouvrement des cascades.

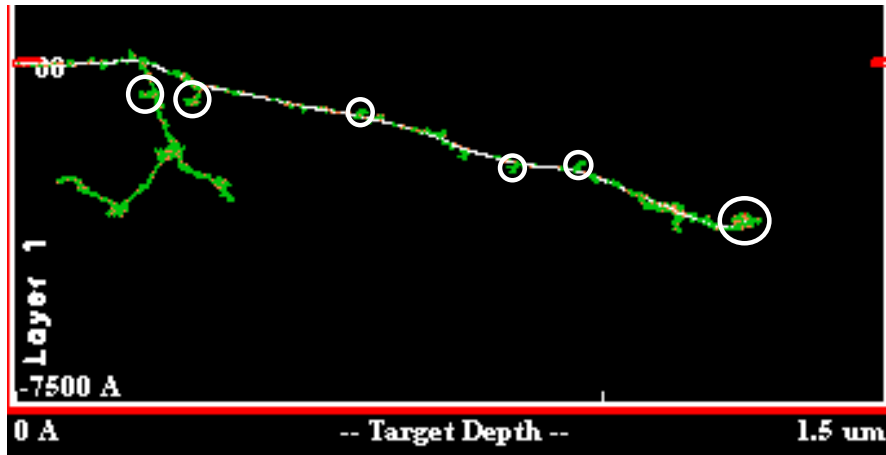


Figure III.29 : Simulation SRIM de la trajectoire des ions de recul dans le cas d'une irradiation avec un ion W 20 MeV dans le tungstène. Les zones encadrées en blanc représentent des cascades de collisions générées par les premiers atomes de recul (PKA)

Cette méthode d'estimation de la fluence seuil des cascades de collisions a été vérifiée en utilisant un ion W 150 keV. Nous avons pu estimer un diamètre moyen de 4.1 nm et une fluence limite de $7.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ au-delà de laquelle les cascades de collisions devraient se chevaucher, qui est en bon accord avec celle obtenue par X. Yi et *al* ($5.09 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) [112].

Ainsi, on peut s'attendre dans notre cas à ce que la distribution en terme de proportion de chaque défauts induits après irradiation dans l'échantillon irradié W 20 MeV à 12 dpa* soit différente de celle de l'échantillon irradié W 20 MeV à 1 dpa*. Si la proportion de petits défauts lacunaires de type monolacune est différente dans les échantillons irradiés et varie selon la dose d'irradiation : nous pouvons supposer que l'irradiation W 20 MeV à 1 dpa* dans le tungstène induit une quantité de petits défauts (monolacune) supérieure à celle de l'irradiation W 20 MeV à 12 dpa* dans le tungstène. Il semble que l'agglomération pourrait se produire un peu différemment avec des valeurs de S plus faibles, car on peut s'attendre à ce que l'énergie de migration des défauts lacunaires pourrait dépendre de leur taille et pourrait être la plus basse pour la monolacune.

III.3.3.2. Echantillons irradiés avec les ions Fe 10 MeV

Les figures $S(E)$, $W(E)$ et $S(W)$ mesurées à toutes les températures de recuits sont reportées en **Annexe 3, A3-Figure. 2, page 220**.

La **Figure III.30**, présente les courbes S en fonction de la température de recuit (T) et les points (S, W) dépendant de la température de recuit pour l'échantillon irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, correspondant à 2.5 dpa*. Les caractéristiques

d'annihilation (S_V, W_V) de la monolacune de tungstène (v), ainsi que la droite D_V et D3 sont également représentées.

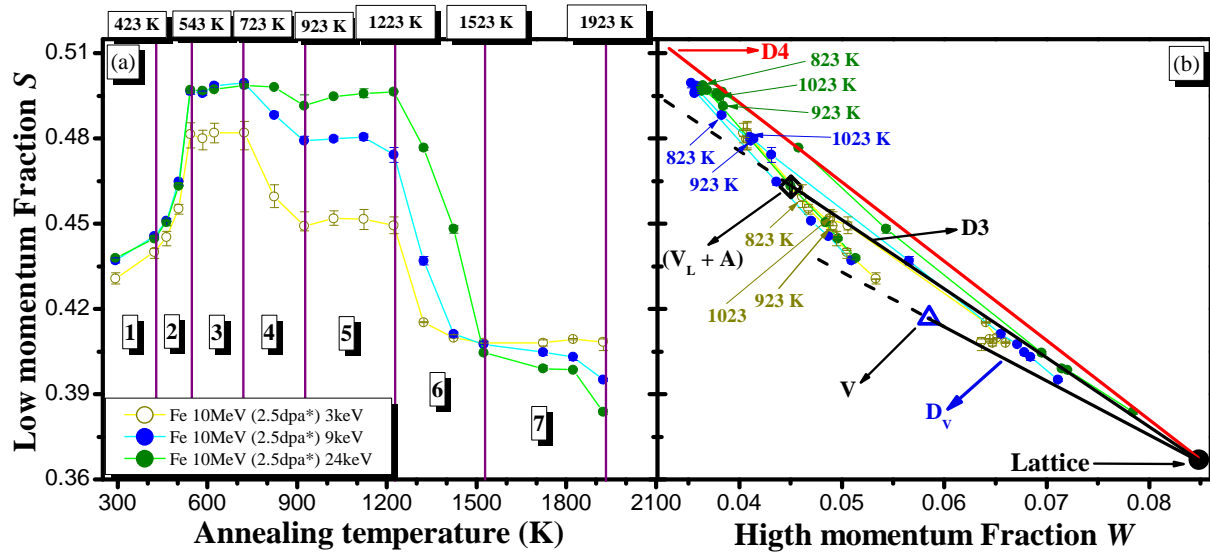


Figure III.30 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie de positons à 3 keV, 9 keV et 24 keV.

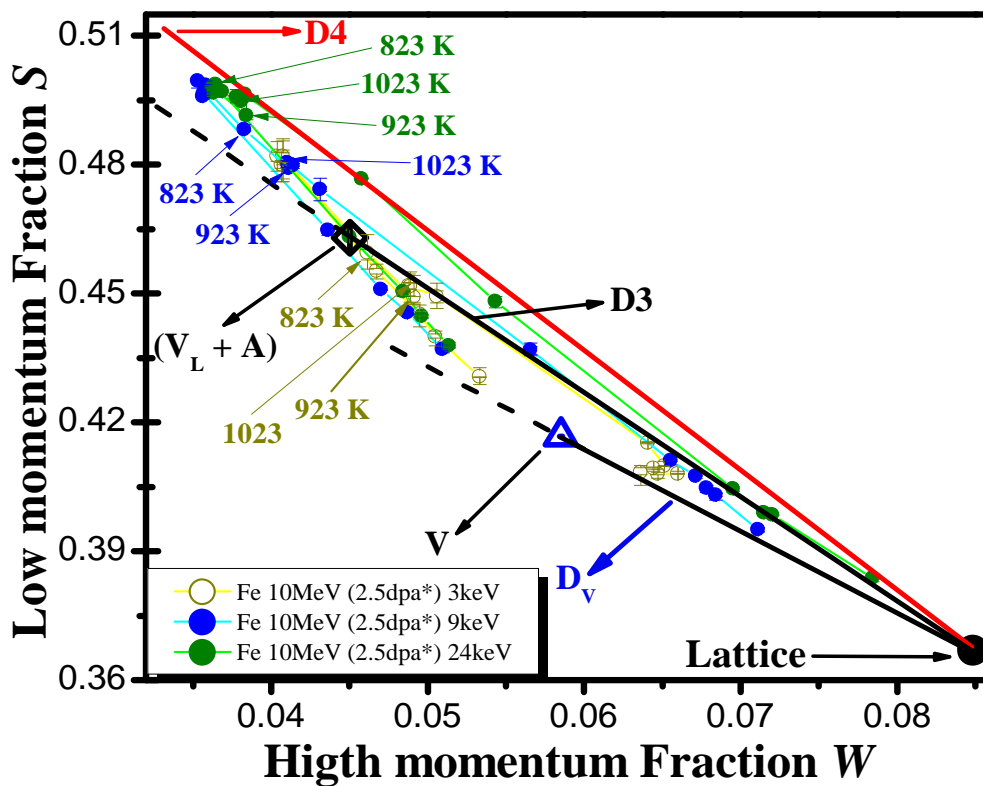


Figure III.31 : Agrandissement de la Figure III.30.b.

Nous constatons que l'allure de la courbe $S(T)$ évolue avec l'énergie des positons. Elle est proche de celle obtenue pour les irradiations W 20 MeV à 24 keV et devient plus complexe pour les faibles énergies lorsque les positons sondent plus près de la surface. En particulier le petit changement observé à environ 923 K pour les irradiations W 20 MeV est ici très marqué. Ainsi 7 stades de recuit peuvent être distingués pour cette irradiation Fe 10 MeV au lieu de 5 identifiés dans les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV. Dans la suite, les stades de recuit sont décrits successivement pour les 3 énergies des positons : 24 keV, 9 keV et 3 keV.

Pour l'énergie des positons de 24 keV

Stade 1' et **stade 2'** : S augmente et les points (S,W) se décalent vers la droite D3 pour se positionner près de la droite D4 à la température de recuit de 543 K, cela indique que la concentration et la taille moyenne des défauts ont évolué et à 543 K des amas lacunaires de grande taille se sont formés.

Stade 3' : entre 543-723 K, les valeurs de S n'évoluent pratiquement pas. Les points (S,W) restent au même endroit légèrement en-dessous de la droite D4, ce qui signifie que la taille moyenne et en concentration des amas lacunaires ne change pratiquement pas.

Stade 4' : entre 723 K et 923 K, les valeurs de S diminuent, et les points (S,W) se dirigent à nouveau vers la droite D3 en direction du point Lattice (S_L, W_L) . Cela suggère que la distribution des amas lacunaires en termes de concentration et/ou de taille diminue. **Stade 5'** : entre 923-1223 K, les valeurs de S ont une légère tendance à augmenter et les points (S,W) se décalent légèrement vers la droite D4 et se positionnent sur celle-ci entre 1023 K et 1223 K. Cela suggère que la distribution en termes de concentration et/ou de taille des défauts a encore évolué vers la formation d'amas lacunaires plus gros que ceux qui ont été détectés par les positons dans l'échantillon irradié Fe 10 MeV (2.5 dpa*) puis recuit à 543 K et 723 K. **Stade 6'** : entre 1223-1523K, nous remarquons une diminution brutale de S et les points (S,W) évoluent d'abord sur la droite D4 et se dirigent vers le point Lattice. Cela indique que, la concentration des amas lacunaires détectés par les positons diminue après le recuit des échantillons entre 1223-1323 K. Entre 1323-1523 K les points (S,W) se décalent vers la droite D3 et se dirigent vers le point Lattice, indiquant que la taille moyenne des gros amas lacunaires diminue.

Stade 7' : entre 1523-1923 K, les valeurs de S diminuent légèrement et les points (S,W) évoluent sur la droite D3 et sont proches du point Lattice à 1923 K. Ces évolutions suggèrent que la concentration des défauts lacunaires diminue.

Différence entre les énergies des positons de 9 keV et 24 keV

L'évolution des caractéristiques d'annihilation S et W mesurés à 9 keV sont pratiquement identiques à ceux mesurés à 24 keV spécialement pour les stades de recuit 1', 2' et 3'. Des différences sont observables à partir du stade de recuit 4'.

Au stade de recuit 4', entre 723 K et 923 K nous constatons que la diminution des valeurs de S est plus prononcée à 9 keV qu'à 24 keV et les points (S,W) mesurés à 9 keV se positionnent en-dessous de ceux mesurés à 24 keV. Cela signifie que la concentration et/ou la taille moyenne des amas lacunaires diminue d'autant plus que les positons sondent près de la surface. **Au stade de recuit 5'**, les valeurs de S ont une légère tendance à augmenter de nouveau et les points (S,W) varient peu entre 923 K et 1123 K au lieu de 1223 K pour 24 keV. Cela suggère qu'à 9 keV la concentration et/ou la taille moyenne des amas lacunaires ont une légère tendance à augmenter entre 923 K et 1023 K par rapport à celle mesurée au stade 4'. De plus, les valeurs de S sont plus faibles à 9 keV qu'à 24 keV et les points (S,W) se positionnent en-dessous de ceux mesurés à 24 keV. Cela signifie qu'à 9 keV la concentration et/ou la taille moyenne des amas lacunaires est inférieure à celle mesurée à 24 keV.

Au stade de recuit 6', la diminution des valeurs de S est décalée vers de plus faibles températures de 1123 K à 1423 K au lieu de 1223 K-1523 K pour l'énergie de 24 keV. Les points (S,W) évoluent vers la droite D3 en se dirigeant vers le point Lattice puis passent en-dessous de celle-ci à partir de 1423 K, contrairement à 24 keV à cette même température, les points (S,W) se placent au-dessus de la droite D3. Cela indique que la concentration et/ou la taille moyenne des amas lacunaires diminue et est plus faible que celle mesurée à 24 KeV.

Le stade de recuit 7', se situe entre 1423 K et 1923 K au lieu de 1523-1923 K pour l'énergie de positons de 24 keV. Les valeurs de S varie peu et les points (S,W) évoluent en-dessous de la droite D3 et se dirigent vers la droite D_V , au lieu de rester sur la droite D3 comme nous avons pu l'observer à 24 keV. Cela signifie que la concentration des amas lacunaires continue a diminué et que leur taille devient de plus en plus petite quand la température augmente. Il est important de noter que les valeurs de S sont plus élevées à 9 keV qu'à 24 keV entre 1723 K et 1923 K, cela est sûrement dû à la fraction d'annihilation des positons à la surface qui est plus importante pour des positons de 9 keV.

Différence entre l'énergie des positons de 3 keV et 9 keV

Les **stades de recuit 1', 2', 3', 4', 5', et 6'** pour l'énergie des positons de 3 keV sont identiques à ceux observés à 9 keV, mais les valeurs de S sont largement plus faibles et les points (S,W) se positionnent en-dessous de ceux mesurés à 9 keV. Par contre pour le **stade de recuit 7'**, la gamme de température de recuit ne change pas (1423 K-1923 K), mais les valeurs de S sont supérieures à celles mesurées à 9 keV et les points (S,W) sont décalés vers le haut et se positionnent sur la droite D_V pour la plus haute température de recuit (1923 K).

Ces différences d'évolutions des caractéristiques d'annihilation en fonction de la température, indiquent que la concentration et/ou la taille des défauts n'est pas homogène sur toute la profondeur sondée par les positons avant et après recuit et elle a tendance à être plus faible lorsque les positons sondent près de la surface.

Modélisation des données expérimentales du recuit à 1923 K

Les données expérimentales des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon irradié Fe 10 MeV à 2.5 dpa* puis recuit à 1923 K ont été modélisées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une couche homogène (**Annexe 2, A2-Figure 3, page 218**). La longueur de diffusion effective est de 79 ± 1 nm (**Tableau III.9**). Cette valeur de longueur de diffusion effective est relativement plus proche de celle calculée pour l'échantillon irradié W 20 MeV à 12 dpa* (82 ± 1 nm) qu'à 1 dpa* (56 ± 1 nm). Cela indique que la concentration de défauts restante dans l'échantillon irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa* puis recuit à 1923 K est beaucoup plus proche à celle de l'échantillon irradié W 20 MeV à 12 dpa* puis recuit à 1923 K qu'à celle de l'échantillon irradié W 20 MeV à 1 dpa* puis recuit à 1923 K.

Echantillon	Irradiation	Température de recuit (K)	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L_{eff}^+ (nm)
			S_{surface}	W_{surface}	S_{bulk}	W_{bulk}	
E5	Fe 10 MeV à 2.5 dpa*	1923	0.4085 ± 0.0004	0.0629 ± 0.0002	0.38256 ± 0.0002	0.0789 ± 0.0002	79 ± 1

Tableau III.9 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.

III.3.3.3. Comparaison entre les échantillons irradiés W 20 MeV et Fe 10 MeV

Sur la **Figure III.32**, nous pouvons remarquer que, dans le cas de l'échantillon irradié Fe 10 MeV (2.5 dpa*), l'évolution de S en fonction de la température de recuit est marquée par la mise en évidence de 2 stade de recuit entre 723 K et 1223 K qui sont moins visibles pour les échantillons irradiés W 20 MeV (1 dpa* et 12 dpa*). De plus, sur la **Figure III.32.a**, ont été ajoutés les valeurs de S mesurées pour des positons de 24 keV en fonction de la température de recuit (RT-1773 K) pour l'échantillon irradié avec des ions ^3He 800 keV à la fluence de 10^{16} cm^{-2} (correspondant à 0.025 dpa*) [1].

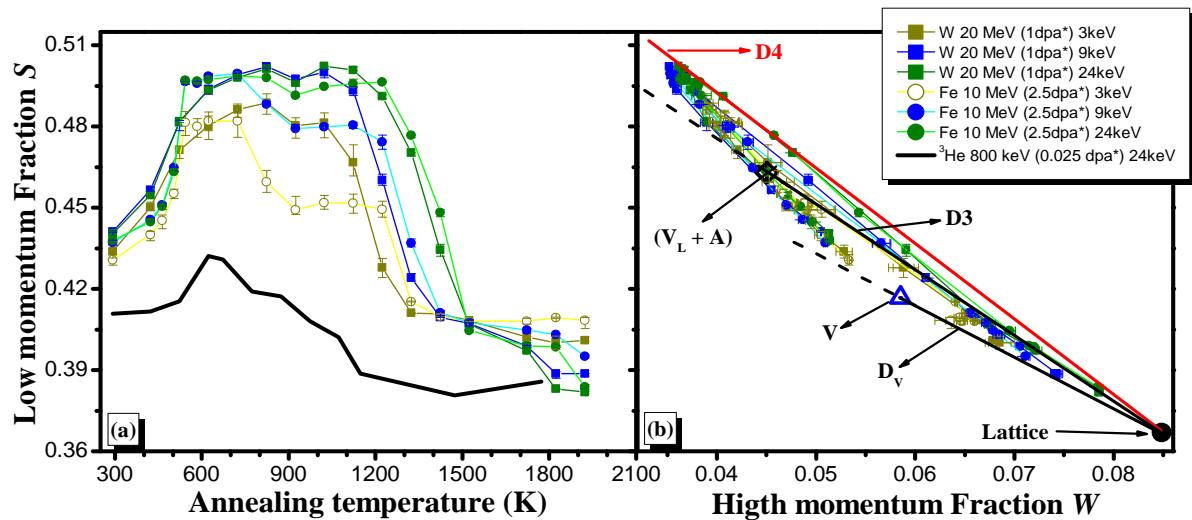


Figure III.32 : Comparaison des évolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa* et un échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température. Les valeurs de S et W sont relevées pour l'énergie des positons de 3 keV, 9 keV et 24 keV. La courbe noire sur la figure (a) représente les valeurs de S prise à l'énergie des positons de 24 keV en fonction de la température de recuit (RT-1773 K) pour un échantillon de tungstène irradié ^3He 800 keV à la fluence de 10^{16} cm^{-2} (correspondant à 0.025 dpa*)

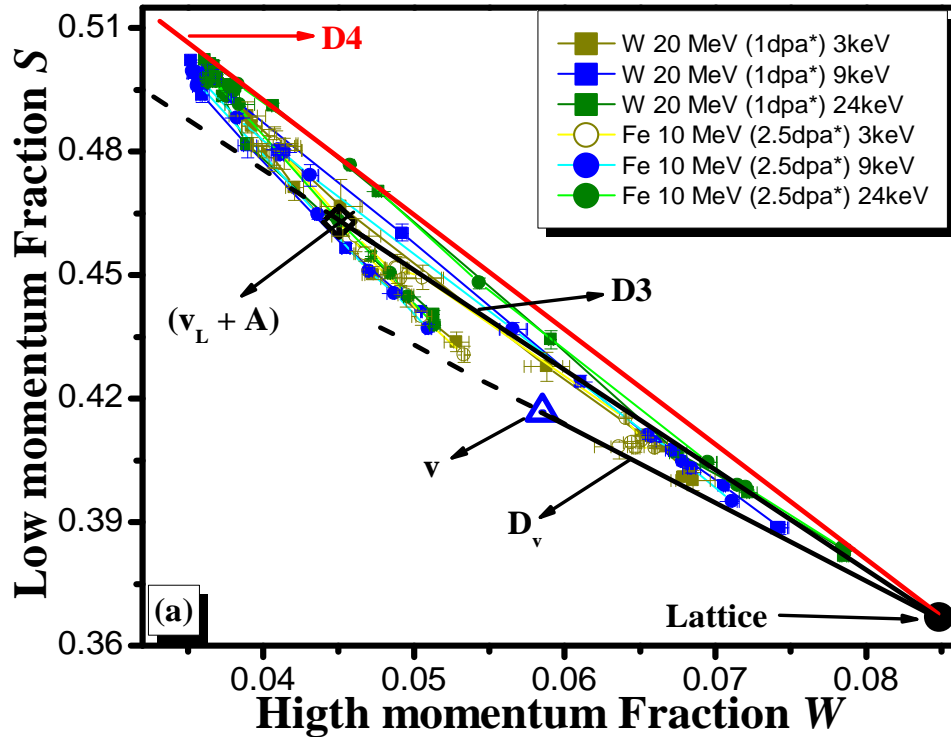


Figure III.33 : Agrandissement de la Figure III.32.b.

Les évolutions des caractéristiques d'annihilation S et W relevées au **stade 1'** et au **stade 2'** sont pratiquement les mêmes que celles constatées au **stade 1** et au **stade 2**, à une différence près : le niveau maximal des valeurs (S, W) est atteint à 543 K dans le cas de irradiation Fe 10 MeV contrairement, à 823 K dans le cas des irradiations W 20 MeV.

De plus, le niveau maximal atteint par les points (S, W) dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV est légèrement inférieur à celui atteint par les points (S, W) dans le cas des irradiations W 20 MeV, indiquant que la taille des amas lacunaires et la température de recuit à la quelle ils se forment sont différentes. Cela peut s'expliquer part le fait que, l'irradiation avec les ions Fe 10 MeV induit une distribution de défauts lacunaires différente de celle induite par les ions W 20 MeV. Comme nous l'avons vu pour l'irradiation W 20 MeV, la distribution des défauts varie en fonction du dpa, il est aussi possible que selon l'ion incident et à dpa égal, la distribution des défauts lacunaires induite puisse être influencée. En effet nous avons vu à la **section III.2.2.1 (page 103)**, que les calculs SRIM prévoient que l'énergie des PKA est plus faible pour les ions Fe 10 MeV. Les calculs DM [108] montre la fraction de clusters lacunaires ou d'interstitiels varient en fonction de l'énergie des PKA. Cela suggère que la distribution en taille des défauts lacunaires est différente entre les irradiations Fe 10 MeV et W 20 MeV.

Pour les irradiations Fe 10 MeV la phase d'agglomération des défauts lacunaires sature à 543 K soit à une température environ 300 K plus faible que dans le cas des irradiations W 20 MeV. Cela suggère que la concentration de monolacunes mobilisable est plus grande dans le cas de l'échantillon irradié Fe 10 MeV. Nous pouvons aussi constater que cette température est plus élevée pour les irradiations ^3He 800 keV [1]. Cela suggère que dans

l'échantillon irradié Fe 10 MeV, les germes de nucléation des amas lacunaires sont déjà présents après irradiation facilitant la formation de plus gros amas contrairement aux irradiations He 800 keV pour lesquelles l'instabilité des bilacunes en particulier peut limiter la cinétique de formation d'amas lacunaires plus gros.

Des expériences FIM réalisée par D. Pramanik et *al* [135] dans des échantillons de tungstène irradiés avec différent monomères et dimère, montrent que la distribution de la fraction de lacunes dans les amas lacunaires générés est différente. En comparant W et Ag on constate que plus la masse de l'ion incident est petite, plus la fraction des monolacunes est importante tandis que moins la fraction des gros amas lacunaires est importante.

M_1	1	2	3	4	>5
Ag	0.22	0.09	0.04	0.001	0.63
Ag ₂	0.237	0.06	0.02	0.025	0.65
W	0.12	0.023	0.019	0.019	0.81
W ₂	0.09	0.04	0.00	0.00	0.84
Mo	0.2	0.07	0.035	0.00	0.68

Tableau III.10 : Fraction de lacunes dans les amas lacunaires (mv) induits par irradiation avec différents monomères ou dimères dans le tungstène, observée par FIM [135].

Cela nous mène à conclure que dans le cas des irradiations avec les ions Fe 10MeV, la fraction élevée de monolacunes va entrainer la saturation en taille des gros amas lacunaires à plus basse température.

Le **stade 4'** et le **stade 5'**, montrent clairement une diminution de la distribution en taille et en concentration des défauts lacunaires à partir de la température de recuit de 723 K jusqu'à 923 K. Puis entre 923-1223 K, la distribution (concentration et taille) des amas lacunaires a tendance à croître.

Cette évolution est très marquée lorsque les positons sondent près de la surface. Nous avons vu que la distribution après irradiation pouvait être constitué de monolacunes, de boucles de lacunes et d'amas lacunaires. Après le recuit à 543 K, nous supposons qu'une large partie des monolacunes à disparue par agglomération. La distribution de défauts est donc essentiellement constituée d'amas lacunaires et peut être de boucles lacunaires. La présence de cavités a été observée dans des échantillons de tungstène (W) irradiés Fe 10 MeV et recuits à 1773 K (**section III.4 page 144**). Cependant, le comportement des boucles lacunaires en fonction de la température n'est pas encore connu. Lorsque la température augmente dans le stade 4', les positons détectent une distribution en taille et concentration réduite. Cette évolution est essentiellement observée près de la surface (positons de 3 keV) et peut s'expliquer essentiellement de 2 façons : soit par recombinaison des défauts lacunaires avec les interstitiels, soit par la dissociation de certains amas lacunaires.

D'après les calculs utilisant le potentiel dérivé réalisés par P.M. Derlet et *al* [62], les interstitiels sont très mobiles dans le tungstène à la température ambiante ($E_{\text{SIA}}^m=0.013$ eV).

Une grande partie peut s'éliminer par diffusion surtout près de la surface ou des joints de grain, d'autres pourraient former des clusters comme cela est attendu par les calculs de dynamique moléculaire de C. Björkas et *al* [108] et observé par MET (boucles d'interstitiels) par X. Yi et *al* [112]. De plus la fraction des clusters de SIA dépend de l'énergie des PKA [108], elle croit quand l'énergie des PKA augmente. La diminution de la taille et de la concentration des défauts lacunaires est plus marquée près de la surface dans la région où la fraction d'interstitiels devrait être la plus faible et de façon plus marquée dans les irradiations Fe 10 MeV pour lesquelles l'énergie des PKA est plus faible. Cela suggère que les recombinaisons v -SIA ne sont pas le phénomène majeur qui conduit à ce stade 4'. Il semblerait donc qu'il soit relié à une dissociation de certains amas lacunaires ou à leur mobilité.

L'énergie de dissociation des amas lacunaires dépend du nombre de lacunes contenues dans l'amas, elle a tendance à croître avec le nombre de lacunes constituant l'amas lacunaires [59]. Ainsi, si l'échantillon irradié avec les ions Fe 10 MeV et recuit à 923 K contient des amas lacunaires de taille plus faible que pour les échantillons irradiés W 20 MeV, leur dissociation sera possible à plus basse température. Ce phénomène est très clairement observé par les irradiations ^3He 800 keV pour lesquelles la température de dissociation est observée dès 673 K [1].

Ce stade 4' de recuit n'existe pas ou est difficilement observable dans le cas des échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV (1 dpa* et 12 dpa*) surtout pour les énergies de positons de 24 keV et 9 keV. A 923 K, nous pouvons voir que la valeur de S diminue légèrement puis elle augmente de nouveau jusqu'à 1223 K. Il se peut qu'il s'agisse du même phénomène observé dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV, mais de faible intensité.

Le **stade 6'** et le **stade 7'** sont respectivement comparables au **stade 4** et au **stade 5**. Ces stades sont marqués par une diminution forte puis lente de la valeur de S et des points (S, W) qui se rapprochent de ceux d'un échantillon vierge sans les atteindre strictement. Il est fort probable d'une part qu'entre 1223-1923 K, une grande partie des amas lacunaires puissent se dissocier puis s'éliminer à la surface des échantillons et d'autre part qu'une partie des amas lacunaires puissent continuer à grossir pour former des défauts plus étendus tels que des cavités. C'est ce que nous tenterons de vérifier par des observations MET et les résultats seront présentés dans la prochaine **section III.4**.

III.3.3.4. Résumé

L'étude du comportement des petits amas lacunaires induits dans des échantillons de tungstène par irradiation aux ions lourds (W 20 MeV et Fe 10 MeV) en fonction de la température de recuit a permis de mettre en évidence différents stades de leur évolution. Nous avons pu identifier le stade de migration des défauts entre 473-823 K dans le cas des irradiations W 20 MeV et entre 423-543 K dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV, qui entraîne l'agglomération de monolacunes et de petits amas lacunaires pour former de gros amas lacunaires. Nous pouvons aussi noter que la taille moyenne des gros amas lacunaires dépend de la distribution initiale des défauts lacunaires induit après irradiation, elle a tendance à être plus grande pour les échantillons irradié W 20 MeV.

Cependant la migration des défauts lacunaires dans cet intervalle de température peut être associée à celle des monolacunes qui peuvent être créés conjointement avec les petits amas lacunaires après irradiation. De plus, la répartition locale des défauts lacunaires dans l'échantillon après irradiation, peut favoriser ou non la formation de gros amas lacunaires à plus basse température de recuit. En effet dans le cas des échantillons irradiés avec des ions Fe 10 MeV (2.5 dpa*), la taille maximale des gros amas lacunaires est atteinte à la température de recuit de 543 K au lieu de 823 K dans le cas des échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV (1 dpa* et 12 dpa*). Cela est dû à la fraction de monolacunes qui est plus importante dans le cas des échantillons irradiés avec les ions Fe 10 MeV.

A partir de 723 K jusqu'à 923 K, nous observons clairement une dissociation des amas lacunaires les moins stables dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV. Dans le cas des échantillons irradiés W 20 MeV, la dissociation de ces amas lacunaires existe peut-être à la température de 923 K, mais est difficilement observable, indiquant une plus faible proportion de ces amas.

A partir de 1123 K dans le cas des irradiations W 20 MeV et 1223 K dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV, nous constatons une diminution de la concentration et de la taille des amas lacunaires par dissociation ou migration. Les lacunes libérées par dissociation peuvent à leur tour migrer puis s'éliminer à la surface ou aux joints de grain ou contribuer à former des cavités, jusqu'à 1523 K.

Enfin, entre 1523-1923 K, on constate que les caractéristiques d'annihilation S et W se rapproche de celles d'un échantillon vierge, mais sans les atteindre. Nous supposons qu'il reste encore une petite concentration de défauts dans le cas des échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV et de ceux irradiés avec des ions Fe 10 MeV. Il est fort probable que des complexes lacunes-impuretés, du Fe dans le cas de l'échantillon irradié avec des ions Fe 10 MeV, des défauts plus étendus, soit des cavités, stables à haute température se soient formés.

En perspective, cette étude doit s'orienter vers des mesures de temps de vie des positons sur les échantillons irradiés aux ions lourd à fort dpa. Cela pourrait nous aider à déterminer la taille des petits amas lacunaires et la fraction de monolacunes, de boucles de

lacunes induites juste après irradiation, ainsi que la taille des gros amas lacunaires détectée après recuits. Il serait intéressant de réaliser des expériences en MET à des températures spécifiques qui viendront compléter les interprétations des résultats obtenus par PAS. En outre, il serait aussi intéressant de calculer les valeurs des énergies de migration et de dissociation des amas lacunaires et de modéliser ces expériences avec des codes tels que la dynamique des clusters par exemple, parce que les calculs OKMC seraient limités en raison du nombre élevé d'objets qui doivent être impliqués et suivis pour ces irradiations à avec des ions lourd à fort dpa.

III.4. Microscopie Electronique à Transmission : distribution des cavités

A fin de compléter les caractérisations des défauts induits et en particulier de voir si des cavités sont observées dans les échantillons de tungstène irradiés avec des ions lourds puis recuits à haute température (1523-1923 K), nous avons réalisé des observations au Microscope Electronique à Transmission (MET).

III.4.1. Echantillon de tungstène irradié Fe 10 MeV

III.4.1.1. Clichés MET obtenus

L'échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K, a été observé par MET. Les images sous-focalisées et sur-focalisées sont données dans la **Figure III.34**. Il nous a été possible de mettre en évidence la présence d'une majorité de cavités de forme sphérique et quelques cavités de forme facettée (**Figure III.35**) dans cet échantillon. En effet les cavités apparaissent sous forme d'un point blanc entouré d'un halo sombre ou sous forme d'un point noir entouré d'un halo blanc respectivement en condition de sous-focalisation ou de sur-focalisation.

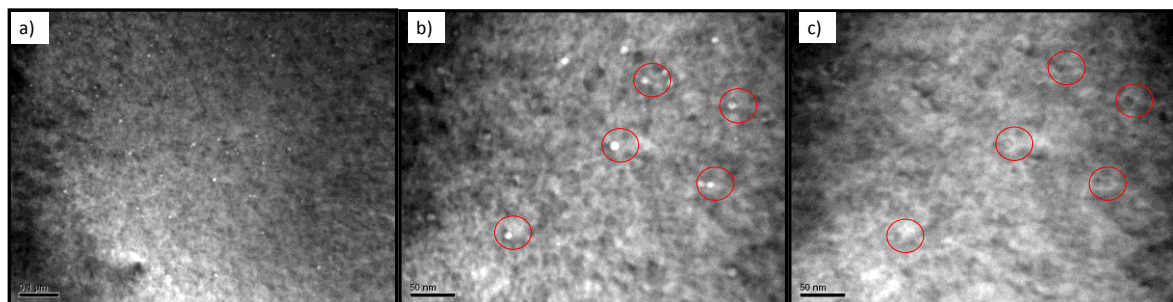


Figure III.34 : Clichés obtenus par MET réalisés sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1h sous vide. a) En condition de sous-focalisation échelle 0.1 μm . b) En condition de sous-focalisation échelle 50 nm. c) En condition de sur-focalisation échelle 50 nm.

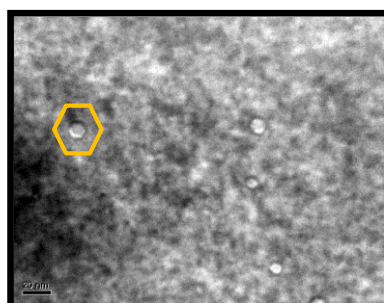


Figure III.35 : Image d'une cavité facettée (encrclée en jaune) obtenue par MET en condition de sous-focalisation réalisées dans un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1h sous vide.

La **Figure III.36**, présente une image reconstruite à partir d'un ensemble de clichés obtenus par MET sur toute la région irradiée de la surface jusqu'à 2250 nm de profondeur. Nous pouvons constater que la présence de cavité est pratiquement inexistante pour des profondeurs supérieures à 1500 nm sous la surface.

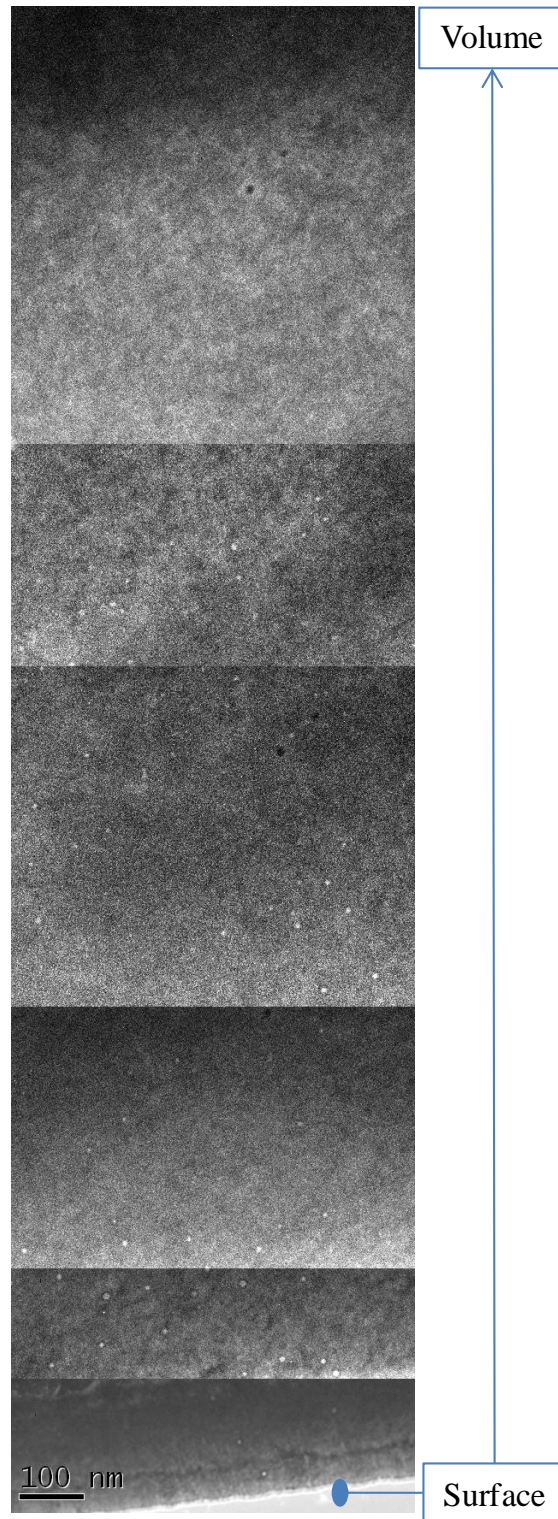


Figure III.36 : Image reconstruite à partir d'un ensemble de clichés MET obtenus sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1 heure sous vide.

III.4.1.2. Caractérisations de la distribution des cavités

L'image reconstruite avec les clichés MET réalisés sur l'échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV a été caractérisée par la méthode de dépouillement décrite dans le **Chapitre II, section II.4.4 (Figure III.37)**. Les valeurs de diamètres moyens et de densités obtenues dans la région d'intérêt sont rassemblées dans le **Tableau III.11**. Pour calculer la densité des défauts, nous avons fait une approximation sur l'épaisseur de la lame mince à 120 nm, car elle a été mesurée par EELS et varie entre 102 nm (au bord) et 130 nm (à RP du profil d'endommagement prédit par SRIM, environ à 1500 nm) et l'incertitude relative $\frac{\Delta e}{e} = 20\%$.

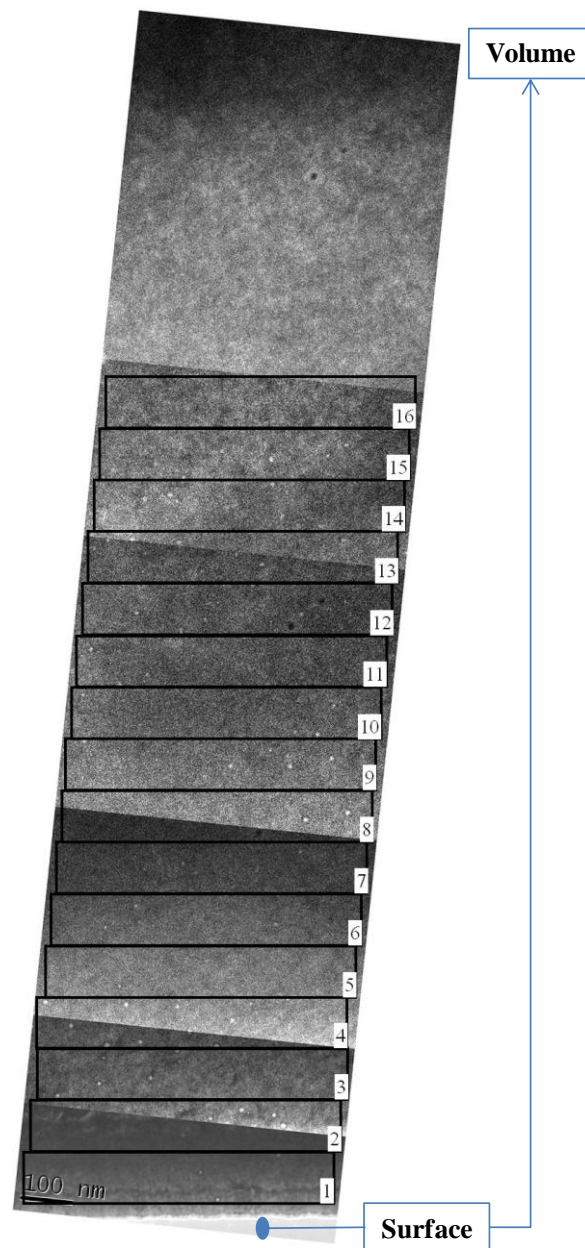


Figure III.37 : dépouillement de l'image reconstruite à partir de clichés MET effectuées sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.

Numero rectangles	Nombre de cavités par rectangle	Diametres des cavités	Diametre moyen des cavités	
			Valeur	Incertitude
1	3	8.00, 9.33, 10.67	9.33	5.39
2	5	10.67, 9.33, 9.33, 8.00, 8.00	9.07	4.06
3	5	8.00, 8.00, 9.33, 10.67, 5.33	8.27	3.70
4	11	9.33, 13.33, 9.33, 9.33, 12.00, 9.33, 8.00, 10.67, 6.67, 8.00, 9.33	9.57	2.89
5	1	6.67	6.67	6.67
6	3	8.00, 6.67, 9.33	8.00	4.62
7	3	9.33, 8.00, 9.33	8.89	5.13
8	2	12.00, 10.76	11.34	8.02
9	5	10.67, 9.33, 6.67, 9.33, 12.00	9.60	4.29
10	3	6.67, 9.33, 8.00	8.00	4.62
11	2	9.33, 10.67	10.00	7.07
12	2	10.67, 10.67	10.67	7.54
13	4	9.33, 8.00, 10.67, 9.33	9.33	4.67
14	4	10.67, 8.00, 10.76, 10.76	10.00	5.00
15	3	9.33, 12.00, 9.33	10.22	5.90
Nombre total de cavité	56	Diametre moyen de toutes les cavités	9.31 ± 1.24	1.24

Tableau III.11 : Diamètre moyen et densité en nombre de la population de cavités dans la région d'intérêt de l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.

III.4.1.2.1. Distribution en taille des cavités

Le diamètre moyen des cavités en fonction de la profondeur est présenté sur la **Figure III.38**. Le résultat obtenu montre que les valeurs du diamètre moyen des cavités en fonction de la profondeur sont relativement proches compte tenu de la barre d'erreur. La valeur du diamètre moyen est $9.31 \pm 1.24 \text{ nm}$.

La **Figure III.39**, représente la distribution des cavités en fonction de la taille pour l'échantillon de tungstène irradié Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K. D'une manière générale, la distribution en taille des cavités varie entre 5-14 nm, avec une majorité de cavités, environ 80%, qui ont une taille comprise entre 8-11 nm.

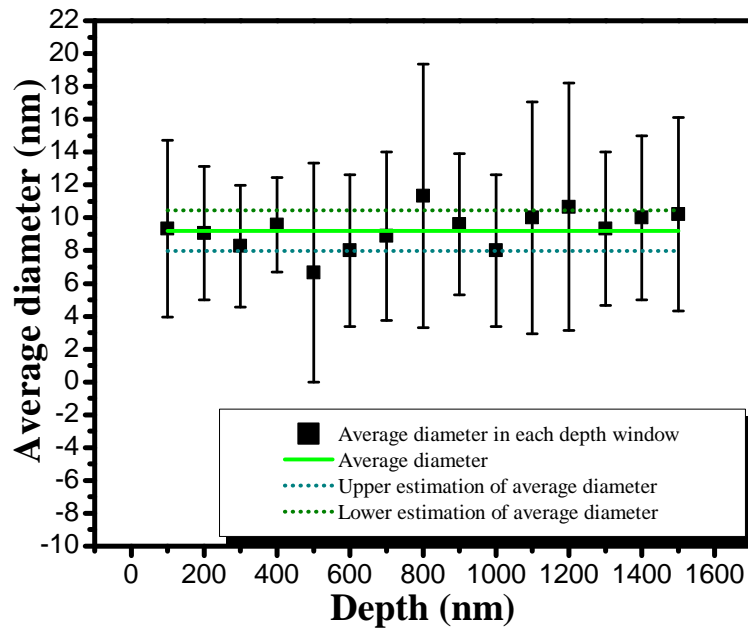


Figure III.38 : Diamètre moyen des cavités observées dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.

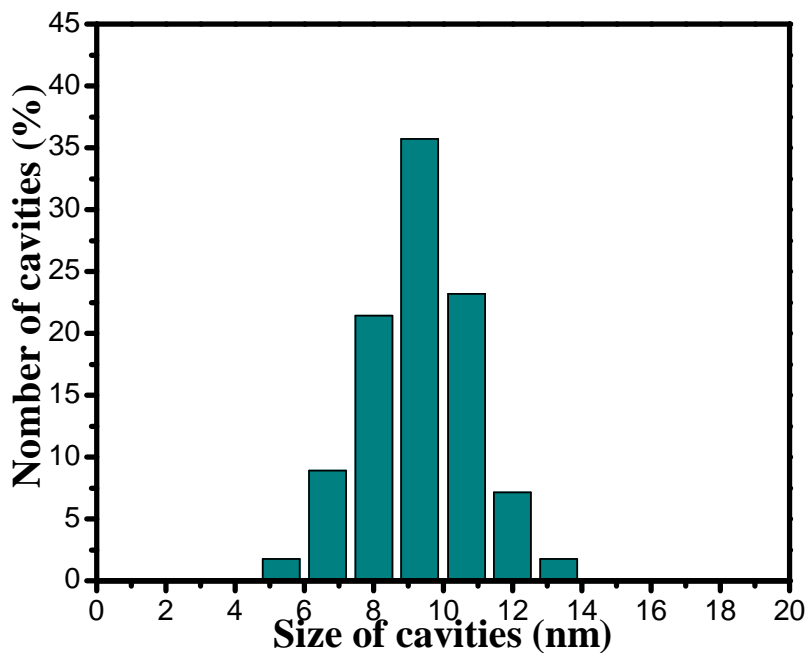


Figure III.39 : Nombre de cavités (en%) en fonction de taille des cavités observées dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.

Concernant les cavités de forme facettée, leur diamètre moyen est proche des cavités de forme sphérique et est environ égal à 9 ± 2 nm. Malheureusement nous n'avons pas assez d'image MET pour pouvoir déterminer leur densité en nombre.

III.4.1.2.2. Distribution de la densité des cavités en profondeur

La **Figure III.40** représente la distribution de la densité en fonction de la profondeur, obtenue à partir de la méthode de calcul de la densité décrite dans **le chapitre II, page 61**. Les résultats montrent que la densité moyenne en nombre est de $5.15 \times 10^{20} \pm 1.72 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$. De plus la distribution de la densité en fonction de la profondeur est pratiquement constante, en prenant en compte la barre d'erreur. A la profondeur de 400 nm, la densité des cavités est relativement élevée ($1.52 \times 10^{21} \pm 7.61 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$), avec une valeur 2 fois supérieure à la valeur de la densité moyenne des cavités. Cette surconcentration de la densité des cavités à la profondeur de 400 nm peut être liée au phénomène de migration des amas lacunaires de la zone profonde vers la surface de l'échantillon.

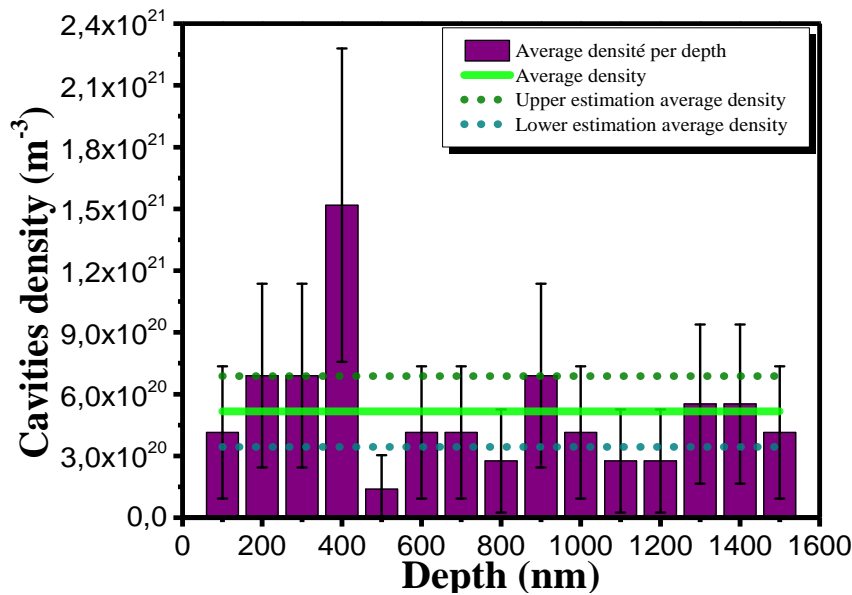


Figure III.40 : Profil de la densité des cavités en fonction de la profondeur mesurés dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.

III.4.2. Echantillons de tungstène irradiés W 20 MeV

L'échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ a été observé par MET. Sur la **Figure III.41**, nous n'observons pas une réelle différence au niveau de la microstructure entre la zone irradiée et non irradiée. En grandissant l'échelle dans la zone irradiée (**Figure III.42**) et non irradiée (**Figure III.43**), nous constatons une forte présence de défauts « Blacks dots », en revanche, aucune cavité n'a été détectée. La présence de « Blacks dots » sur l'ensemble de la lame mince est sans doute induite pendant la découpe de la lame mince par FIB. C'est pourquoi, la préparation des lames minces est une étape délicate pour obtenir des images de qualité. Nous n'avons pas pu observer des cavités dans l'échantillon irradiée W 20 MeV et non recuit, il se peut que la qualité de la lame mince ne soit pas suffisante (exemple : lame trop épaisse) ou à ce stade la taille des défauts soit inférieure à la limite de détection de la technique MET (2 nm).

Malheureusement, toutes les autres investigations sur les échantillons de tungstène irradiés avec des W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à haute température, n'ont pas été concluantes à cause des difficultés liées à la préparation des lames minces.

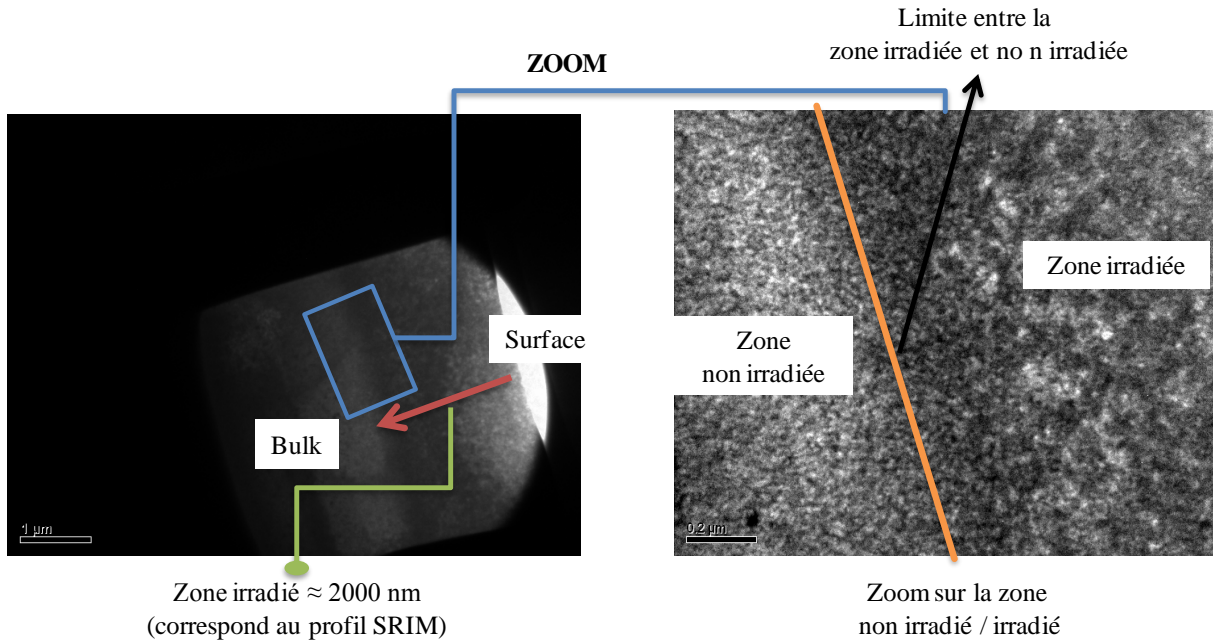


Figure III.41 : Clichés MET obtenus sur un échantillon de tungstène irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.

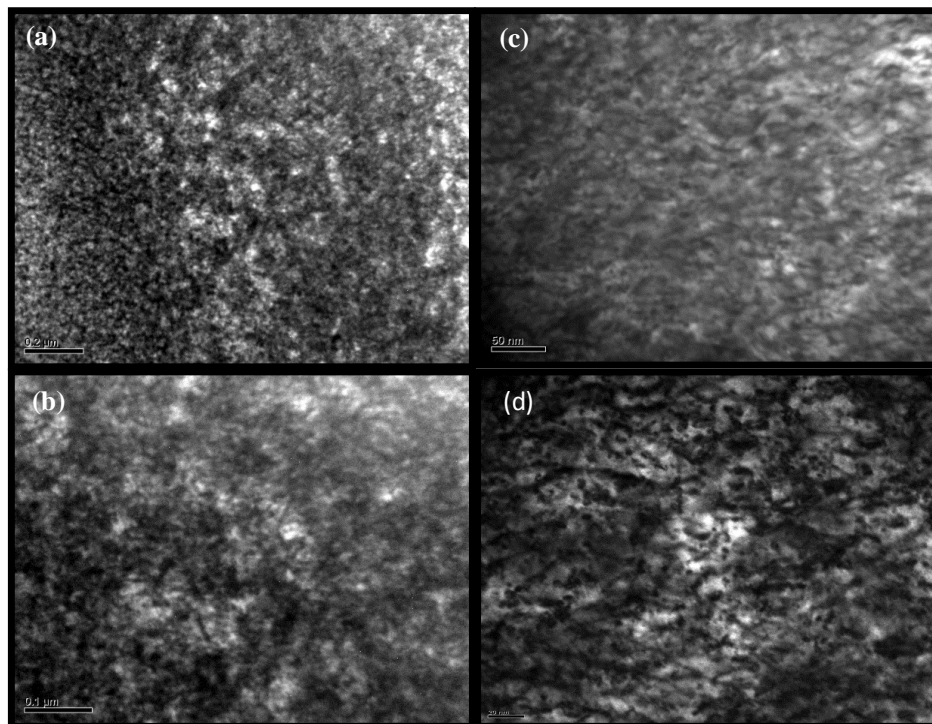


Figure III.42 : Clichés MET de la zone irradiée, obtenus dans l'échantillon irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. (a) Echelle à 0.2 μm. (b) Echelle à 0.1 μm. (c) Echelle à 50 nm d) échelle à 20 nm.

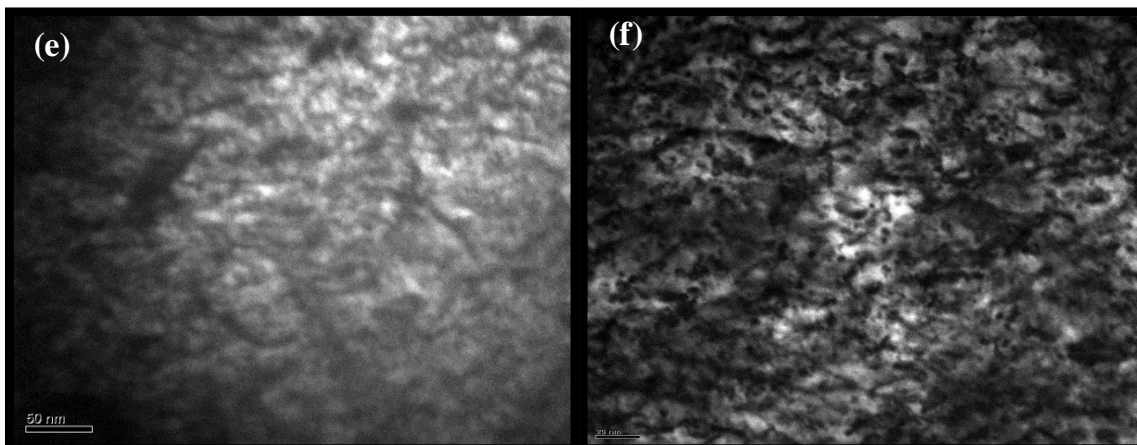


Figure III.43 : Clichés MET de la zone non irradiée, obtenus dans l'échantillon irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. (e) Echelle à 50 nm. (f) Echelle à 20 nm.

III.4.3. Discussions

Les observations réalisées par MET, conforte l'hypothèse que nous avons émise à partir des résultats PAS obtenus sur les échantillons de tungstène irradiés avec les ions lourds, puis recuit à haute température (1523-1923 K). En effet, pour ces échantillons, nous avons constaté que les caractéristiques d'annihilation S et W se rapprochent, sans les atteindre, de celles de l'échantillon vierge. Nous avons suggéré qu'à ces stades de recuit les positons pourraient détecter des défauts stables tels que de gros amas lacunaires (cavités). L'analyse par MET de l'échantillon irradié avec des ions Fe 10 MeV, puis recuit à 1773 K, met en évidence l'existence d'une population de cavités pratiquement homogène de la surface jusqu'à 1500 nm de profondeur, avec une forte densité de cavités à la profondeur de 400 nm. Elle pourrait être liée à la migration des amas lacunaires de la zone profonde vers la surface. Cette supposition pourrait être confortée, si nous arrivons à obtenir des clichés MET dans des échantillons irradiés puis recuit à une température plus élevée (1923 K), l'existence d'une surconcentration de cavités à une profondeur inférieure à 400 nm. La densité moyenne en nombre des cavités est de $5.15 \times 10^{20} \pm 1.72 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$, avec un diamètre moyen de $9.31 \pm 1.24 \text{ nm}$ pour la température de recuit de 1773 K. Nous pouvons supposer que le recuit à 1923 K, la densité moyenne en nombre des cavités serait plus faible. Cela a été clairement montré par les expériences de M. Fukuda, A. Hasegawa et *al* [136]. En effet, ces derniers ont réalisé des irradiations avec des neutrons ($E_n > 0.1 \text{ MeV}$) dans des échantillons de tungstène pur et dopés au La et K. La température d'irradiation, la fluence des neutrons et l'endommagement (dpa) étaient dans la gamme de 804-1029 K, $3.3\text{-}3.7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ et 0.42-0.47 dpa, respectivement. Nous pouvons observer sur la **Figure III.44** que la taille moyenne des cavités a tendance à augmenter quand la température d'irradiation augmente, tandis que la densité en nombre des cavités a tendance à diminuer.

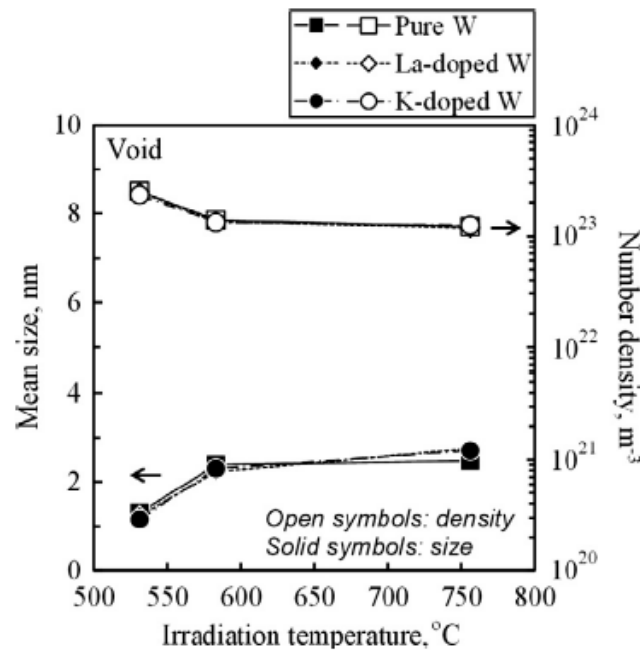


Figure III.44 : Evolution de taille moyenne (échelle de gauche) et de la densité en nombre (échelle de droite) des cavités [136].

III.4.4. Conclusions

Dans cette partie, nous avons voulu corréler les résultats PAS avec des observations MET. Nous avons pu mettre en évidence par MET la présence de cavités dans un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K. En outre, même si nous n'avons pas pu obtenir des clichés MET de la présence de cavités sur les échantillons irradiés W 20 MeV à différente fluence ($3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) puis recuit à haute température, mais il est probable qu'une distribution d'amas lacunaires (cavités) soit aussi présente. Néanmoins, en se basant sur les valeurs des caractéristiques d'annihilation S et W , nous supposons que la densité moyenne et/ou le diamètre moyen des cavités semblent être plus faibles que celles identifiées dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV, car leurs caractéristiques d'annihilation S et W sont plus proches de D_V et du point Lattice (S_L, W_L).

En perspective, il serait intéressant de réaliser dans un premier temps des observations MET sur les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à différente fluence ($3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) puis recuits à 1773 K. Ensuite à des températures spécifiques, notamment à 823 K et à 1923 K. Cela nous permettrait de corréler les informations et interprétations issues des résultats des deux techniques PAS et MET, sur l'évolution des amas lacunaires (cavités) et des autres défauts de types boucles lacunaires ou d'interstitiels. Il serait donc important de poursuivre l'optimisation des paramètres du décapage électrolytique pour affiner et éliminer les défauts sur les lames minces de tungstène induits par le découpage FIB, afin d'obtenir des lames minces de qualité permettant une meilleure observation au MET. Entre autre, il serait aussi intéressant de réaliser des observations MET in-situ en cours d'irradiations, en particulier pour suivre l'évolution des amas d'interstitiels pour mieux comprendre s'ils sont impliqués dans l'évolution des amas lacunaires et comment.

III.5. Nature des défauts en fonction de la température d'irradiation

Dans cette section nous avons étudié l'effet de la température d'irradiation sur la nature et le comportement des défauts induits dans le tungstène. La température d'irradiation a été choisie de façon à ce qu'on soit dans l'intervalle de température qui permettra de déclencher le phénomène de migration des monolacunes pendant l'irradiation. Ces conditions d'irradiations ont été réalisées dans le but de se rapprocher de l'environnement du réacteur à fusion nucléaire c'est-à-dire un bombardement neutronique (neutron de 14.1 MeV) et des températures maximales de fonctionnement avoisinant 1773 K [24] subi par le divertor d'ITER. Après irradiation les échantillons ont été analysés par la Spectroscopie d'Annihilation de Positons en utilisant l'accélérateur de positons de lents du CEMHTI.

III.5.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM

Des échantillons de tungstène EFDA et Goodfellow polis et recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide ont été irradiés à la température de 873 K avec des ions W d'une énergie de 20 MeV à la fluence de $4.48 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (voir **Tableau III.12**). Ces irradiations ont été réalisées à JANNUS en utilisant l'accélérateur Epiméthée. Le porte-échantillon sur lequel les échantillons sont fixés, est chauffé à 873 K pendant l'irradiation, portant ainsi la température des échantillons à 873 K par conductivité thermique.

Irradiation à JANNUS											
REALISATIONS											
Echantillons		Date	Particule	Energie particule (MeV)	Température (K)	Flux ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	Temps (min)	Fluence (cm^{-2})	Rp (nm)	dpa à Rp	dpa* (region 700nm)
DF-W-A-C-A23	E23	01/03/2013	W	20	873	2.66×10^{11}	281	4.48×10^{15}	1300	25	12
DF-W-A-C-A24	E24	01/03/2013	W	20		2.66×10^{11}	281	4.48×10^{15}			
W-P-H-R09	G9	01/03/2013	W	20		2.66×10^{11}	281	4.48×10^{15}			

Tableau III.12 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène irradiés à la température de 873 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.48 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Les valeurs de dpa marquées par une étoile (dpa*) dans le tableau sont prises proche de la surface dans la zone sondée par positrons (0-800 nm).

Le calcul de l'endommagement (dpa) a été réalisé à l'aide du logiciel SRIM (voir section III.2.2.1, Figure III.10, page 104). Il est à noter que le logiciel de simulation SRIM ne tient pas compte de la température imposée à l'échantillon au cours de l'irradiation, qui peut modifier le profil de l'endommagement en fonction de la profondeur. Les valeurs de dpa marquées par une étoile (dpa*) dans le **Tableau III.12** sont la moyenne en proche surface dans la zone sondée par positrons (0-800 nm).

III.5.2. Caractérisation des défauts induits par irradiation en température

III.5.2.1. Interprétation des résultats PAS

La **Figure III.45**, présente les profils S et W en fonction de l'énergie E des positons, puis les points S en fonction de W , des échantillons de tungstène (EFDA et Goodfellow) irradiés à 873 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.48 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (12 dpa*). Pour les échantillons de tungstène EFDA irradiés, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont pratiquement superposés et ont une allure croissante (resp. décroissante), tandis que dans le cas de l'échantillon Goodfellow irradié, le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) est légèrement au-dessus (resp. légèrement en-dessous) de ceux des échantillons EFDA. De plus pour tous les échantillons, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont au-dessus (en-dessous) de celui de l'échantillon vierge. Cela signifie que les positons détectent une distribution (en terme de concentration et/ou de taille) de défaut équivalente dans les échantillons EFDA irradiés et légèrement supérieure dans le cas de l'échantillon Goodfellow irradié.

Les points (S, W) pour les trois échantillons de tungstène irradiés s'alignent tous sur la droite D5 qui passe par les points (S_V, W_V) . De plus, entre 7-25 keV les points (S, W) sont au-dessus du point $(v_L + A)$. Ceci indique que la taille moyenne des défauts lacunaires détectés dans les trois échantillons est supérieure à celle qui a été détectée au point $(v_L + A)$ identifiée comme étant un mélange de défauts tels que des amas lacunaires v_L ($L \geq 30$) en présence de boucle de dislocation (A).

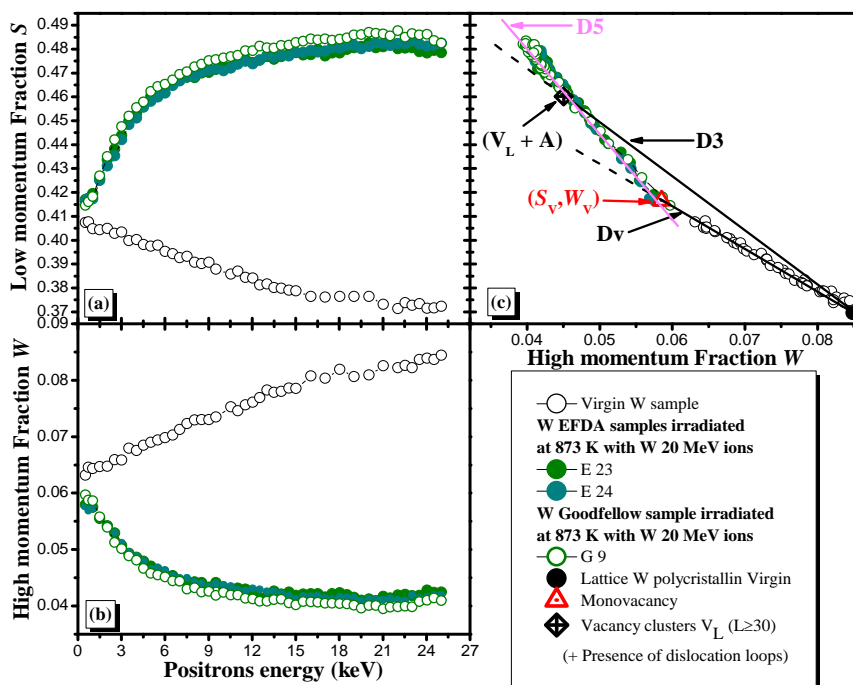


Figure III.45 : Les caractéristiques d'annihilation de positons S et W en fonction de l'énergie des positons E , dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à la température de 873 K avec des ions W 20 MeV à 12.00 dpa*. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W .

III.5.2.2. Comparaison entre les échantillons irradiés en température et ceux recuits après irradiations

Pour tenter de comprendre l'influence de la température d'irradiation sur l'évolution des défauts lacunaires, nous avons comparés les mesures PAS obtenues pour les échantillons de tungstène EFDA irradiés à la température de 873 K avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* et l'échantillon de tungstène EFDA (E5) irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* et à 91 K puis recuit à 823 K.

Sur la **Figure III.46**, nous constatons que les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) des échantillons EFDA irradiés à la température de 873 K sont largement en-dessous (resp. au-dessus) de celui de l'échantillon EFDA irradié à 91 K puis recuit à 823 K. Cela signifie que la concentration des défauts dans les échantillons irradiés à 873 K est inférieure à celle de l'échantillon irradié à 91 K puis recuit à 823 K. De plus les points (S,W) des échantillons irradiés à 873 K se positionnent en-dessous de ceux de l'échantillon irradié à 91 K puis recuit à 823 K. Cela suggère que la taille moyenne des défauts détectés dans les échantillons irradiés à 873 K avec des ions W 20 MeV (12 dpa*) est inférieure à celle de l'échantillon irradié avec des ions W 20 MeV (12 dpa*) à 91 K puis recuit à 823 K.

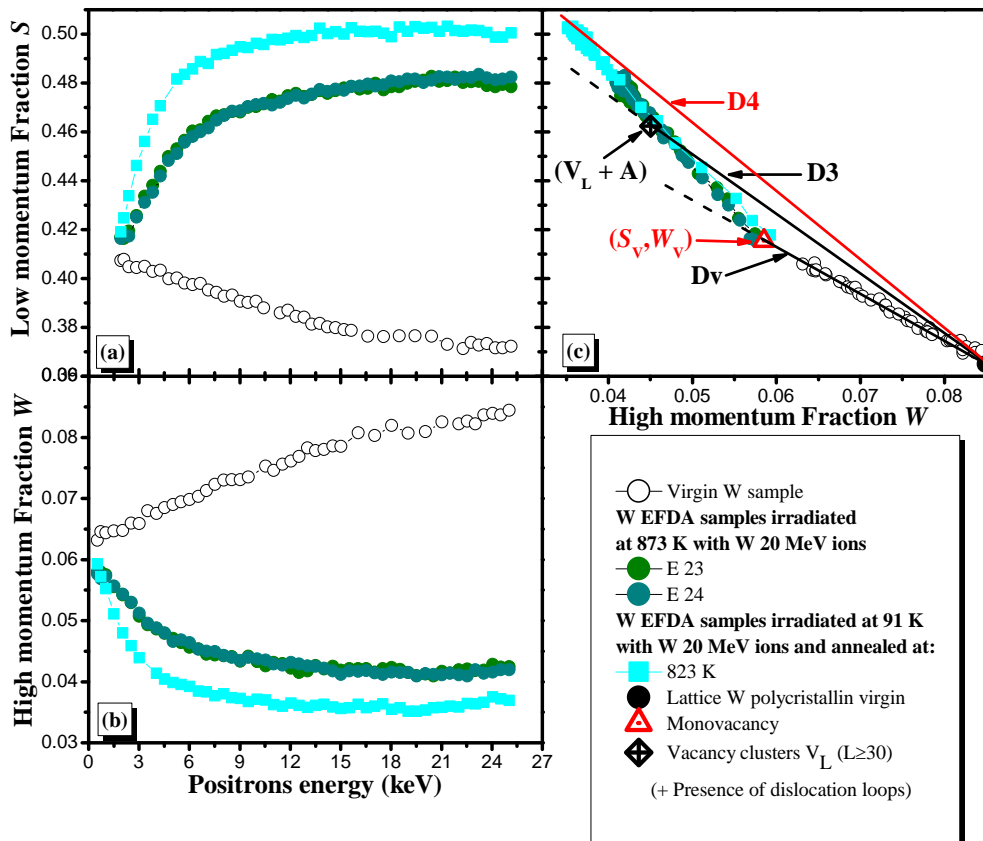


Figure III.46 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation de positons S et W en fonction de l'énergie des positons E , entre les échantillons de tungstène EFDA irradiés à 873 K avec des ions W 20 MeV à 12.00 dpa* et les échantillons de tungstène EFDA irradiés avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* puis recuits à 823 K. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W correspondants.

III.5.2.3. Discussions des résultats

Tout d'abord les résultats concernant les échantillons irradiés à 873 K avec des ions W 20 MeV (12 dpa*) montrent que la distribution en termes de concentration et de taille des défauts lacunaires détectés par les positons est plus grande que celles des échantillons irradiés avec les ions W 20 MeV (12 dpa*) à 91 K (voir **pages 103-105**). Cette différence est liée à la température à laquelle les échantillons ont été irradiés. A 873 K, l'agglomération des défauts lacunaires est possible puisque la monolacune est mobile à partir de 423 K. Nous observons une légère différence dans la distribution des défauts entre les échantillons EFDA et Goodfellow après irradiation à 873 K par des ions W 20 MeV et est légèrement plus élevée dans le cas de l'échantillon de tungstène Goodfellow. Cette différence peut être due à la microstructure des échantillons EFDA qui est certes peu différente de celle des échantillons Goodfellow.

De plus, la comparaison entre l'échantillon irradié avec des ions W 20 MeV (12 dpa*) à 91 K puis recuit à 823 K et les échantillons irradiés à 873 K avec les mêmes ions et à la même dose, révèle une différence notable de la distribution en terme de concentration et de taille moyenne des défauts lacunaires détectés par les positons. Nous observons clairement que la concentration et/ou la taille moyenne des défauts lacunaires sont largement supérieures dans le cas des échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV (12 dpa*) à 91 K puis recuit à 823 K par rapport à celles des échantillons irradiés à 873 K.

Pendant l'irradiation, différents processus sont mis en jeu et déterminent la distribution des défauts après irradiation en fonction de la température :

- Création des défauts simples ou complexes dans les cascades de déplacements atomiques
- Recombinaison des lacunes avec les interstitiels
- Elimination sur les puits de potentiels tels que les joints de grain, la surface
- Agglomération / dissociation

Ces différents processus se produisent avec différentes constantes de temps qui dépendent de la température. Il faut noter que la création des défauts est un processus très court, soit quelques picosecondes selon les calculs de cascades de collisions. De plus l'agglomération est fortement liée à la probabilité pour que les défauts se rencontrent et donc à la densité locale des défauts augmentant la probabilité pour qu'elle se produise. Ainsi la concentration des différents défauts à la fin de l'irradiation va dépendre de la température, du flux et de la durée de l'irradiation.

Dans le tungstène irradié à 91 K, seuls les interstitiels sont mobiles [59] pendant l'irradiation. Ils participent à la formation de clusters d'interstitiels et à la recombinaison d'une fraction de lacunes. Les différents recuits effectués sur les échantillons irradiés à 91 K modifient (comme nous l'avons vu à la **section III.3, page 119**) la distribution des défauts. Dès que la température devient suffisante pour que la probabilité de migration des

monolacunes soit élevée (≥ 423 K), l'élimination des monolacunes devient possible et leur agglomération entre elles ou sur des amas déjà existants conduisent à augmenter la taille moyenne de la distribution des amas lacunaires. Il faut noter ici que la durée des recuits réalisés dans ces études est de 1 heure, il est probable que l'équilibre de toutes les transformations possibles ne soient pas atteint pour toutes les réactions possibles. Notons tout d'abord que l'ion, son énergie et les flux d'irradiation pour les deux températures sont proches ($1.58 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'irradiation à froid, 91 K, et $2.66 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour celle effectuée à 873 K) et donc la création des défauts est donc similaire.

Dans le tungstène irradié à 873 K, les interstitiels et les lacunes sont mobiles dès le début de l'irradiation. L'élimination des lacunes sur les puits (joints de grain, surface...) est donc possible, et la probabilité de recombinaison lacunes / interstitiels est plus importante qu'à 91 K. Enfin, la densité locale de monolacunes sera donc plus faible que celle accumulée à 91 K et disponible pour s'agglomérer pendant le recuit. L'agglomération de ces monolacunes sera donc moins probable pendant l'irradiation à haute température et la distribution des défauts à la fin de l'irradiation sera donc différente.

Nous supposons que, l'écart de la distribution (concentration, taille) entre les échantillons irradiés à 873 K et celle de l'échantillon irradié à 91 K puis recuit à 823 K, vient probablement de la compétition entre l'agglomération et élimination des défauts lacunaires. Cette compétition peut s'orienter en faveur de l'agglomération des défauts lacunaires lorsque la concentration initiale des défauts lacunaires est grande.

III.5.2.4. Conclusions

Dans cette partie, nous avons voulu comparer l'évolution des défauts lacunaires, induits par irradiation avec des ions lourds, en fonction de la température imposée pendant ou après irradiation. Nous constatons qu'à fluence d'irradiation et de température de recuit (823-873 K) pratiquement égales, le phénomène de migration entraînant les processus d'agglomération et d'élimination des défauts lacunaires est déclenché dans les deux cas de figures. Par contre, nous remarquons que la concentration et la taille des défauts lacunaires détectés par PAS sont plus faibles lorsque la température est imposée pendant l'irradiation. Cela est sans doute lié à une compétition entre l'agglomération des défauts lacunaires entre eux et l'élimination des défauts lacunaires aux joints de grain ou en surface, au cours de la migration des défauts. La concentration initiale des défauts lacunaires est un paramètre important qui va favoriser l'un des processus au détriment de l'autre. Lorsque la concentration initiale des défauts lacunaires est élevée, les défauts ont plus tendance à s'agglomérer entre eux.

Il faudrait confirmer cette hypothèse en modélisation en utilisant le code OKMC (Object Kinetic Monte Carlo) ou dynamique des clusters. Les caractéristiques d'annihilation S et W donnent des informations sur la taille moyenne de défauts et la mesure de temps de vie des positons donnent des informations sur la nature des défauts, cela pourrait nous permettre d'essayer de mieux connaître la distribution en taille.

III.6. Conclusions du chapitre III

Dans ce chapitre, l'investigation s'est portée sur les défauts lacunaires induits par irradiation avec des ions lourds (W 20 MeV, Fe 10 MeV) dans des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) et sur les mécanismes d'évolutions de ces défauts en fonction de la température.

Dans la première section, nous avons caractérisé les échantillons de tungstène de différents fournisseurs : EFDA et Goodfellow. Après le traitement thermique à 1873 K pendant une heure sous vide, les résultats obtenus par Spectroscopie d'Annihilation de Positons, montre que les échantillons peuvent être considérés comme vierges de défauts.

La seconde section, porte sur l'étude de la distribution des défauts lacunaires en termes de concentration et de taille générés dans le tungstène par différentes conditions d'irradiations. La nature des défauts lacunaires induits par irradiation dépendent non seulement du niveau de dpa mais aussi de l'énergie des PKA générés par l'ion incident. Nous avons pu le constater en comparant les défauts lacunaires induits avec des ions W 20 MeV ou avec des ions ^3He 800 keV à dpa égal. Des petits amas lacunaires ont tendance à se former dans les échantillons de tungstène lorsque l'énergie des PKA générés par les ions est importante même à faible dpa. L'irradiation aux ions lourds (W 20 MeV et Fe 10 MeV) dans les échantillons de tungstène montre clairement que entre 0.1 dpa et jusqu'à 12 dpa, des petits amas lacunaires se forment et la saturation en taille est atteinte dès 0.56 dpa.

Le suivi du comportement des défauts lacunaires en fonction de la température de recuits, met en évidence différents stades de leur évolution. Le stade d'agglomération des défauts lacunaires s'effectue entre 473-823 K dans le cas des irradiations W 20 MeV et entre 423-543 K dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV, soit pratiquement la même gamme de température que celui de la monolacune de tungstène, ceci est lié à la migration des monolacunes comme cela a déjà été observé pour former de gros amas lacunaires. A plus forte température, 823 K pour la zone proche de la surface et profonde dans le cas de l'échantillon irradié Fe 10 MeV et 1223 K pour la zone profonde dans le cas de l'échantillon irradié W 20 MeV, la concentration et la taille des gros amas lacunaires diminue. A plus haute température, 1923 K, les caractéristiques d'annihilation sont proches de celles d'un échantillon vierge mais sans les atteindre. Des observations MET montrent la présence d'une densité non négligeable de cavités, dans l'échantillon irradié Fe 10 MeV recuit à 1773 K.

Nous constatons aussi que lors de la migration et de l'agglomération des défauts, la taille moyenne des amas lacunaires formés est supérieure à celle atteinte par les monolacunes seules : un mélange de défauts tels que des amas lacunaires v_L ($L \geq 30$) en présence de boucles de dislocations. De plus, même si les caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons irradiés entre 0.56 dpa et 12 dpa sont semblables, nous remarquons que, au cours des recuits la distribution initiale des défauts lacunaires est différente en fonction du niveau de dpa et de énergie des PKA. Celle-ci, tend vers une distribution de plus en plus importante de gros défauts lacunaires quand le niveau de dpa et/ou l'énergie des PKA augmente.

Ensuite, l'étude de l'évolution des défauts lacunaires, induits par irradiation en température avec des ions lourds, nous a permis de montrer que, le phénomène de migration et d'agglomération et d'élimination des défauts lacunaires est déclenché quand la température imposée pendant l'irradiation devient supérieure au seuil de ces processus. Par contre, la concentration et la taille des défauts lacunaires sont plus élevées lorsque la température est imposée après irradiation. C'est la compétition entre les processus d'agglomération et d'élimination des défauts lacunaires qui dirige la distribution finale.

En perspective, il serait intéressant de réaliser des mesures de temps de vie des positons pour permettre l'identification de la nature des amas lacunaires. De plus, il faut compléter ces caractérisations avec des analyses MET pour déterminer la population des autres défauts tels que les boucles lacunaires ou d'interstitiels et la densité des cavités générées. Ces informations pourront être utilisées pour obtenir par le biais de la simulation avec la dynamique des clusters, des valeurs des énergies de migration et de dissociation des amas lacunaires.

CHAPITRE IV

IV. ETUDE DE L'INTERACTION DE L'HELIUM ET DES DEFAUTS LACUNAIRES DANS LE TUNGSTENE	161
IV.1. IMPLANTATION DE HE A FORT HE/DPA	161
IV.1.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM.....	162
IV.1.2. Identification des défauts après implantation	166
IV.1.3. Evolution en fonction de la température de recuit des défauts lacunaires en présence d'hélium	172
IV.1.4. Conclusions	182
IV.2. COMPORTEMENT DES AMAS LACUNAIRES EN PRESENCE D'HELIUM.....	184
IV.2.1. Conditions expérimentales d'irradiation	184
IV.2.2. Simulation SRIM.....	185
IV.2.3. Défauts induits à 128 K	187
IV.2.4. Evolution de la nature des défauts en fonction de la profondeur et du ratio He/dpa	189
IV.2.5. Influence de la température de recuit sur l'évolution des défauts lacunaires en présence ou non d'hélium.....	192
IV.2.6. Evolution des défauts lacunaires en présence d'hélium en fonction de la température d'irradiation.....	197
IV.2.7. Conclusions du chapitre IV	199

IV. Etude de l'interaction de l'hélium et des défauts lacunaires dans le tungstène

Le tungstène, candidat potentiel pour recouvrir les premières parois du divertor d'ITER, sera soumis d'une part à d'intense bombardement neutronique et d'autre part exposé à des flux de chaleur et de particules intenses telles que des ions d'hélium (He) produits par la réaction de fusion.

L'implantation d'hélium dans les matériaux peut induire des changements dans la microstructure et donc détériorer les propriétés mécaniques du matériau. De nombreuses études portant sur le comportement de l'hélium implanté dans le tungstène ont déjà été publiés. Par exemple, V.N. Chernikov et *al* [137] et D. Nishijima et *al* [138] montrent que, lorsque des ions (He) sont introduits à faible énergie incidente (< 50 eV) avec une grande fluence ($\sim 10^{22}$ cm⁻²) dans des échantillons de tungstène, des bulles d'héliums sont observées à proximité de la surface. Le mécanisme de formation de bulles et de défauts complexes (lacune et hélium) n'a pas encore été complètement compris. En 2009, C. Becquart et *al* [66] ont publié des résultats sur le comportement de l'hélium dans le tungstène en utilisant la modélisation OKMC, il a été démontré que la présence d'hélium joue un rôle majeur dans l'agglomération de défauts lacunaires et donc la formation de bulles / cavités.

Le but de cette étude est d'obtenir des informations sur les différents mécanismes tels que la migration, la diffusion, la formation de bulles d'hélium, en présence des défauts lacunaires simples ou amas lacunaires. Différentes conditions d'implantations de l'hélium ont été investiguées afin d'étudier dans un premier temps l'influence de l'hélium sur l'évolution des défauts simples (He/dpa) puis en fonction de la température de recuit. Dans un second temps, nous étudierons le comportement des amas lacunaires induits par les ions lourds en présence d'hélium avec un rapport He/dpa proche de celui attendu par le divertor d'ITER.

IV.1. Implantation de He à fort He/dpa

L'objectif de la présente étude est d'étudier par Spectroscopie d'Annihilation de Positons, l'interaction entre les lacunes et l'hélium. Nous étudierons l'effet de l'introduction de l'hélium sur les défauts lacunaires de type monolacunes en implantant dans le tungstène des ions ⁴He 60 keV à différente fluence. Ensuite nous suivrons leurs évolutions en fonction de la température de recuit. Entre autres la distribution, la concentration et la nature des défauts induits après implantation seront comparées avec celles obtenues par la modélisation en utilisant le modèle OKMC développée par C. Becquart et *al*. L'analyse et l'interprétation des résultats de l'évolution de la nature des défauts en fonction de la température de recuit seront complétées avec celles obtenues dans une étude précédente dans laquelle le relâchement de hélium a été mesuré par NRA (Analyse par réaction Nucléaire) dans des échantillons de tungstène implantés avec des ions ³He 60 keV à différentes fluences [1].

IV.1.1. Conditions expérimentales et simulation SRIM

Echantillon et préparation

Les échantillons utilisés dans ce travail sont découpés dans des feuilles de tungstène polycristallin laminées à froid d'une épaisseur de 150 μm avec une pureté nominale de 99.95% en masse. Les échantillons ont été polis mécaniquement sur une face et recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide poussé (5×10^{-6} - 2×10^{-6} mbar) dans un four à bombardement électronique du CEMHTI. Le traitement thermique a été effectué dans le but d'induire une recristallisation et de réduire la concentration importante de défauts induits par le laminage / polissage dans la région proche de la surface des échantillons. La qualité des échantillons a été vérifiée par DB-PAS après recuit à 1873 K durant 1 heure sous vide. Les résultats ont montré que la préparation est reproductible et qu'elle conduit à une concentration de défauts négligeable (voir chapitre III, section III.1, page 89).

Implantation d'hélium 60 keV et simulation SRIM

Les implantations d'hélium sont effectuées avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV à deux fluences différentes (10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2}) avec le même flux de $10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Les implantations ont été réalisées avec l'accélérateur électrostatique 200 kV de Pprime de Poitiers. Pendant les implantations, la température du support d'échantillons est maintenue en dessous de 333 K. Pour alléger la lecture de ce document, les deux cas de fluence seront libellés respectivement en Basse Fluence (BF) pour 10^{14} cm^{-2} et Haute Fluence (HF) pour 10^{15} cm^{-2} dans le texte ci-après.

La **Figure IV.1**, présente les profils de l'hélium et des déplacements par atome (dpa) calculés en utilisant le logiciel SRIM [51]. La concentration maximale de l'hélium est située à environ 160 nm de profondeur où elle atteint $8.9 \times 10^{-3} \text{ at.}\%$ pour BF et $8.9 \times 10^{-2} \text{ at.}\%$ pour HF. Le maximum de l'endommagement (dpa) est situé à environ 120 nm de profondeur où la dose est estimée à $2.5 \times 10^{-3} \text{ dpa}$ pour BF et à $2.5 \times 10^{-2} \text{ dpa}$ pour HF.

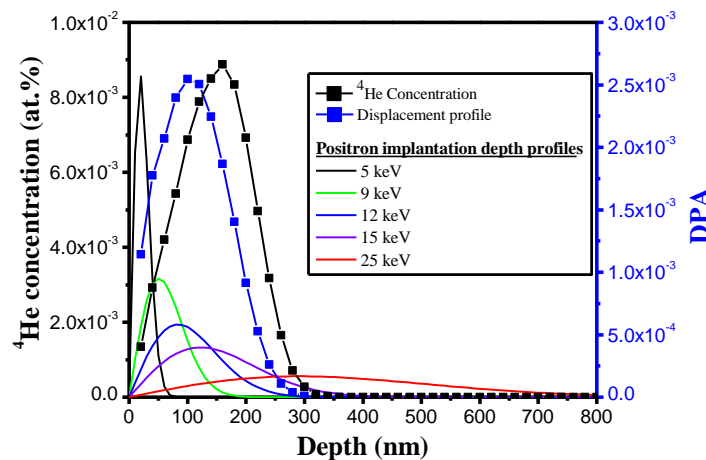


Figure IV.1 : Simulation SRIM du profil de déplacement par atome (dpa) et du profil des ions ^4He d'une énergie de 60 keV avec une fluence de 10^{14} cm^{-2} dans le tungstène. De plus, les profils d'implantations des positons entre 5-25 keV dans le tungstène y sont représentés.

Dans une étude expérimentale précédente réalisée par Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS) dans des échantillons de tungstène irradiés avec des ions ^3He d'une énergie de 800 keV [1], et récemment confirmée par la modélisation en utilisant le code Objets Kinetic Monte Carlo (LAKIMOCA) [106], il a été démontré que SRIM surestime la concentration de lacunes présentes dans les matériaux à la fin de l'implantation. On peut estimer que la production de lacunes est reliée à un coefficient d'efficacité qui est le rapport entre la concentration de lacunes obtenue expérimentalement (pour implantation avec les ions ^3He 800 keV) et la concentration de lacunes calculée par SRIM : $[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}/[v]_{\text{SRIM}}$. Il a été démontré que ce rapport évolue avec la fluence : $[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}/[v]_{\text{SRIM}}$ a une valeur de 0.080 pour la dose d'endommagement estimée à 2.5×10^{-3} dpa et diminue à 0.017 pour la dose d'endommagement dix fois plus élevée (2.5×10^{-2} dpa) [1].

En utilisant ce coefficient d'efficacité, nous avons évalué la valeur du ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ à laquelle on pouvait s'attendre à Rp dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV pour les deux fluences. Ces valeurs sont données dans le **Tableau IV.1**, avec celles du niveau d'endommagement (en dpa). Pour BF le ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ est inférieur à 1 et pour HF, le ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ est supérieur à 1. De plus sur la **Figure IV.2**, on peut observer que ce ratio est toujours supérieur à 1 même en proche surface (≥ 20 nm) pour HF, et dans le cas de BF il devient supérieur à 1 à partir de 190 nm de profondeur.

Echantillon	Particule	Energie (keV)	T d'implantation (K)	Flux ($\text{cm}^{-2}/\text{s}^{-1}$)	Fluence (cm^{-2})	Valeurs attendues à Rp				Observation qualitative
						dpa (SRIM)	$[\text{He}]_{\text{SRIM}}$ (cm^{-3})	$[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ (cm^{-3})	$[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$	
W Goodfellow	^4He	60	333	1.00×10^{11}	1.00×10^{14}	2.50×10^{-3}	5.70×10^{18}	1.32×10^{19}	0.43	< 1
W Goodfellow	^4He	60	333	1.00×10^{11}	1.00×10^{15}	2.50×10^{-2}	5.70×10^{19}	2.80×10^{19}	2.04	> 1

Tableau IV.1 : Les valeurs des dpa et le rapport en fonction de la fluence pour les implantations réalisées dans des échantillons de tungstène avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV.

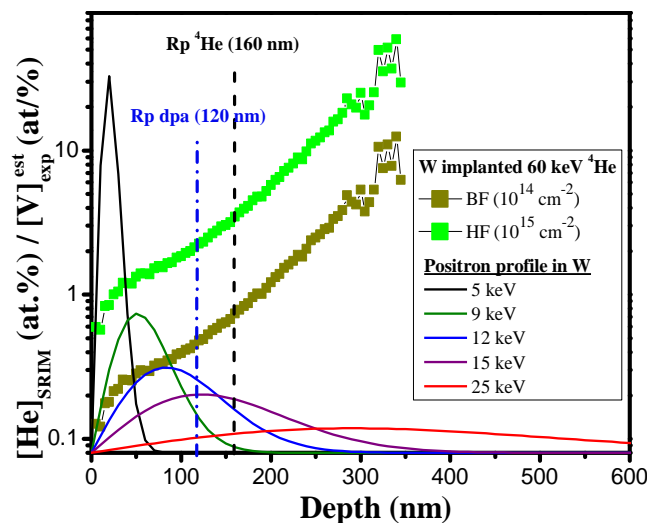


Figure IV.2 : Ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}} (\text{at.}\%) / [v]_{\text{exp}}^{\text{est}} (\text{at.}\%)$ en fonction de la profondeur, pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} .

Pour évaluer ce ratio nous avons utilisé la concentration d'hélium calculée par SRIM. Dans une étude précédente [1], le profil des ions ^3He implantés à 500 keV dans le tungstène calculé par SRIM a été comparé à celui mesuré par NRA (**Figure IV.3**). Le maximum du pic mesuré par NRA est à la même profondeur que celui calculé par SRIM et la concentration est inférieure d'un facteur d'environ 0.73. Même si une telle différence existait pour les conditions d'implantation utilisées dans nos échantillons, il faut noter que le ratio $[\text{He}]/[v]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ serait encore supérieur à 1 pour l'implantation à HF.

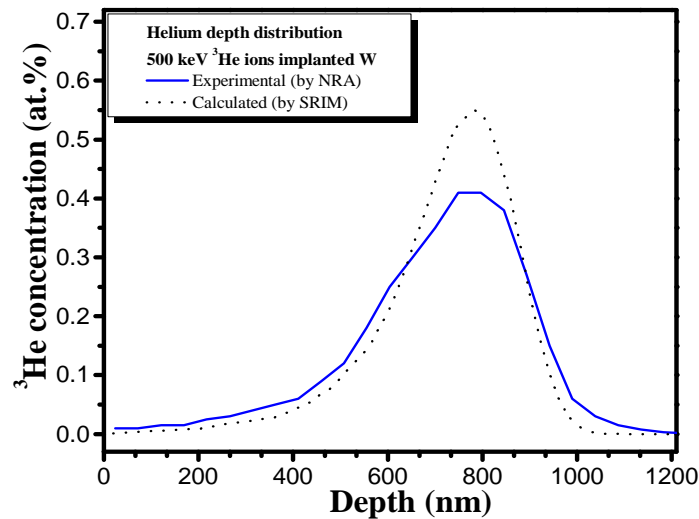


Figure IV.3 : Distribution d'hélium en profondeur mesurée expérimentalement sur un échantillon de tungstène Goodfellow poli et non recuit, implanté avec des ^3He 500 keV à la fluence de 10^{16} cm^{-2} par NRA (Analyse par Réaction Nucléaire), comparée à celle calculée par SRIM [1].

Dans la **Figure IV.4**, le profil d'implantation des positons en fonction de la profondeur dans le tungstène est tracé pour plusieurs énergies de 5 à 25 keV avec l'évolution du ratio $[\text{He}](\text{at.})/\text{dpa}$ en fonction de la profondeur, tel que calculé par SRIM. Pour les énergies de positons de 5 keV et 15 keV correspondant respectivement à la profondeur d'implantation moyenne de 20 nm et 130 nm, les positons sondent des zones où le ratio $[\text{He}](\text{at.})/\text{dpa}$ varie de 1.5 à 4.5 (at.)/dpa, respectivement pour les deux fluences BF et HF. Le ratio $[\text{He}](\text{at.})/\text{dpa}$ varie donc d'un facteur 3, c'est-à-dire qu'à 15 keV les positons vont sonder une région qui contient trois fois plus d'hélium qu'à 5 keV.

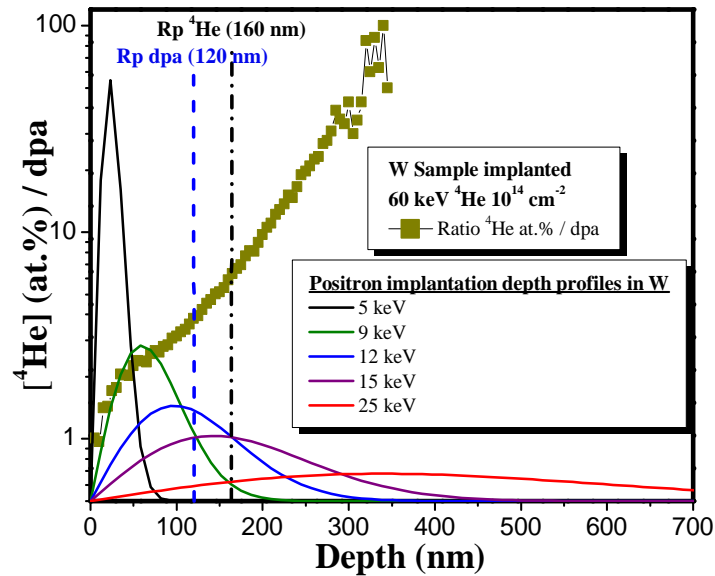


Figure IV.4 : Profils des positons et du ratio $[^4\text{He}]$ at.% / dpa en fonction de la profondeur, obtenus à l'aide du logiciel SRIM pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} .

Des expériences d'Analyse par Réaction Nucléaire (NRA) ont été réalisées dans une étude précédente [1, 139] sur des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^3He d'énergie 60 keV avec des fluences allant de 2.00×10^{13} à $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. La quantité d'hélium mesurée juste après implantation est très proche de la quantité introduite initialement. Ceci indique qu'aucune désorption n'a été détectée et toute la quantité d'hélium implantée a été piégée. La **Figure IV.5**, illustre la fraction d'hélium libérée en fonction de la température de recuit des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^3He 60 keV à différentes fluences, allant de 2.00×10^{13} à $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Ces données seront examinées plus loin dans ce chapitre et corrélées avec les résultats obtenus par Spectroscopie d'Annihilation de Positons, en particulier pour les deux fluences connues 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} .

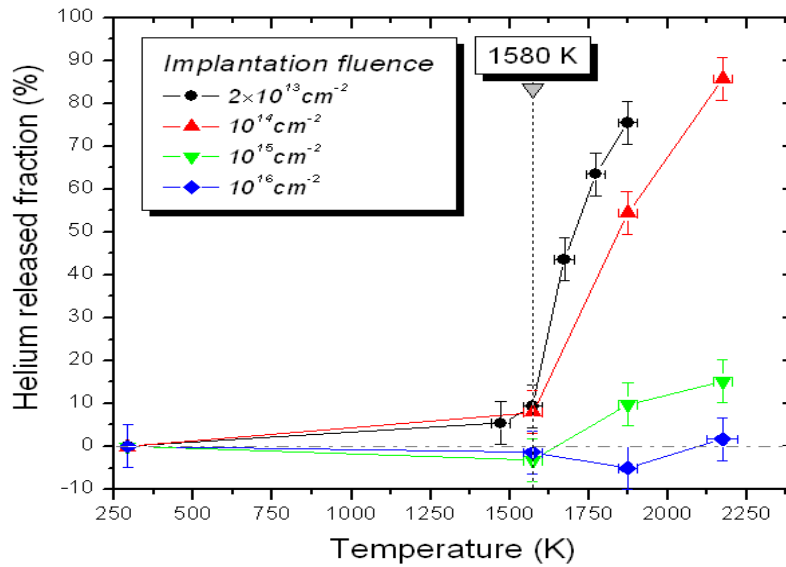


Figure IV.5 : Fraction d'hélium libéré après recuit pour des implantations d'ions ^3He d'une énergie de 60 keV à différentes fluences dans des échantillons de tungstène [1].

IV.1.2. Identification des défauts après implantation

IV.1.2.1. Description des résultats

La **Figure IV.6**, présente les profils $S(E)$ et les points (S,W) pour les échantillons implantés à BF et HF. Sont également mentionnés les caractéristiques (S,W) du point Lattice et de la monolacune de tungstène (v), identifiés dans une étude précédente [1, 73] ainsi que la droite D_V caractéristique de l'annihilation des positons dans la monolacune.

Sur la **Figure IV.6.a**, pour les deux fluences, les profils $S(E)$ après implantation, sont au-dessus de celui mesuré dans l'échantillon vierge lorsque l'énergie des positons est supérieure à 3 keV. Cela signifie que les échantillons implantés présentent des défauts de types lacunaires. De plus, le profil $S(E)$ de l'échantillon implanté à BF est en-dessous de celui obtenu pour l'échantillon implanté à HF. Cela suggère que l'échantillon implanté à HF présente une concentration de défauts lacunaires plus élevée que celui implanté à BF. Les points (S,W) (voir **Figure IV.6.b**) décrivent un segment de droite D1 pour BF et D2 pour HF. De plus, les deux droites D1 et D2 présentent une pente dont la valeur absolue est plus faible que celle de la droite de la monolacune D_V , particulièrement dans le cas de l'échantillon implanté à BF (D1). Ces résultats suggèrent que la nature des défauts détectés est différente de la monolacune v et que le volume libre apparent est plus petit que celui de v .

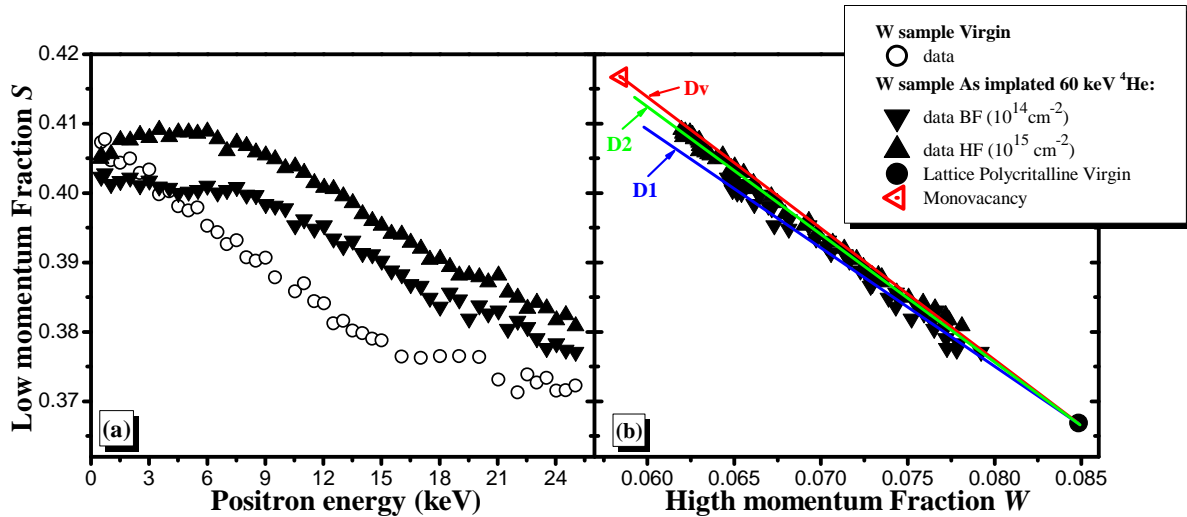


Figure IV.6 : Caractéristiques d'annihilation de positons S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) et 10^{15} cm^{-2} (HF).
 (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Les points S en fonction de W .

IV.1.2.2. Discussions des résultats

Les données expérimentales des échantillons implantés ont été modélisées à l'aide du logiciel VepFit (**Figure IV.7**) avec une structure à deux couches homogènes et les résultats ont été résumés dans le **Tableau IV.2**. Pour l'échantillon implanté à BF, la première couche s'étend entre 0 à 136 ± 11 nm et la longueur de diffusion effective dans cette zone est de 58 nm. La seconde couche a une longueur de diffusion effective de 107 nm. Dans le cas de l'échantillon implanté à HF, la première couche s'étend entre 0 à 133 ± 6 nm et présente une longueur de diffusion effective de 20 nm. La seconde couche a une longueur de diffusion effective de 106 nm.

Echantillon	Surface		Couche 1 (L1)				Couche 2 (Bulk)		
	S	W	S	W	L_{eff}^+ (nm)	Width (nm)	S	W	L_{eff}^+ (nm)
W vierge	0.4041	0.0656					0.3674	0.0858	105 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) As-implanted	0.4011	0.0649	0.4036	0.0639	58	136 ± 11	0.3718	0.0816	107 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{15} cm^{-2} (HF) As-implanted	0.4022	0.0671	0.4097	0.0615	20	133 ± 6	0.3667	0.0861	106 ± 1

Tableau IV.2 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons de tungstène polycristallins implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} .

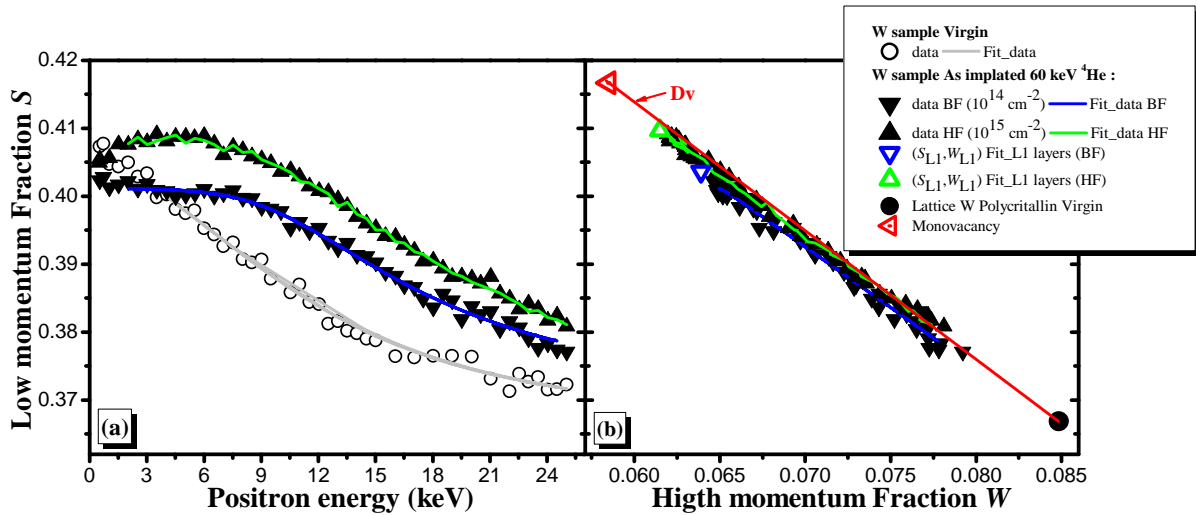


Figure IV.7 : fraction d'annihilation à faible moment S (a) en fonction de l'énergie des positons (b) en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W , mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} . Les données expérimentales sont ajustées à l'aide du logiciel VepFit.

Dans la première couche (L1) des échantillons implantés, les valeurs de S et W varient légèrement avec la fluence d'implantation, S augmente et W diminue lorsque la fluence augmente, ce qui est cohérent avec la diminution de la longueur de diffusion effective L_{eff}^+ . Les points (S_{L1}, W_{L1}) sont en-dessous de la droite D_v et cela est légèrement plus marqué pour l'échantillon implanté BF. Ces données suggèrent que, après implantation, les échantillons présentent une zone endommagée sur une profondeur d'environ 135 nm dans laquelle le taux de piégeage des positons augmente avec la fluence d'implantation. Cette configuration à deux couches homogènes ne reflète pas exactement les résultats des calculs SRIM qui situent la couche endommagée sur une profondeur d'environ 300 nm. Cette couche endommagée sur 300 nm prédit par SRIM peut cependant ne pas être homogène. En effet, nous pouvons constater que à partir de 140 nm de profondeur jusqu'à 300 nm, la concentration d'hélium devient élevée (**Figure IV.1** et **Figure IV.4**). Il se peut que lorsque le ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[\text{v}]_{\text{exp}}^{\text{est}}$ devient supérieur à un certain seuil (4.5 (at.)/dpa), les caractéristiques d'annihilation S et W des défauts détectés par les positons se rapprochent de ceux du réseau du tungstène.

Dans ce qui suit, nous mettrons l'accent sur les données mesurées dans la région d'intérêt, de la surface à R_p . Nous allons étudier les données obtenues pour les énergies de positons de 5 ± 0.5 keV et 15 ± 0.5 keV, notés respectivement $S_{5\text{keV}}$, $S_{15\text{keV}}$ correspondant respectivement à des profondeurs moyennes sondées de 20 nm et 130 nm et pour les différents ratios $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[\text{v}]_{\text{exp}}^{\text{est}}$: ce ratio est inférieur à 1 dans le cas de l'implantation BF et supérieur à 1 dans le cas de l'implantation HF (voir **section IV.1.1**).

Nous observons (voir **Tableau IV.3**) que la valeur de S mesurée à l'énergie de positons 5 keV ($S_{5\text{keV}}^{\text{BF}} = 0.4002 \pm 0.0002$ pour BF et $S_{5\text{keV}}^{\text{HF}} = 0.4087 \pm 0.0001$ pour HF) est supérieure à celle mesurée à l'énergie de positons de 15 keV ($S_{15\text{keV}}^{\text{BF}} = 0.390 \pm 0.001$ pour BF et $S_{15\text{keV}}^{\text{HF}} = 0.3952 \pm 0.0009$ pour HF) après implantation, contrairement à ce que l'on pouvait

attendre en considérant le profil d'endommagement prédit par SRIM (voir **Figure IV.1**). Cela suggère qu'à 15 keV les positons détectent une distribution (en termes de concentration et/ou de taille) de défauts lacunaires différente de celle à 5 keV.

Echantillon	Energie des positons			
	5 keV		15 keV	
	S	W	S	W
échantillon de W implanté He 60 keV 10^{14} cm ⁻² (BF) As-implanted	0.4002 ± 0.0002	0.0653 ± 0.0001	0.390 ± 0.001	0.0718 ± 0.0004
Echantillon de W implanté He 60 keV 10^{15} cm ⁻² (HF) As-implanted	0.4087 ± 0.0001	0.0622 ± 0.0001	0.3952 ± 0.0009	0.0694 ± 0.0004

Tableau IV.3 : Les valeurs de S et W mesurées pour l'énergie de positons 5 ± 0.5 keV et 15 ± 0.5 keV dans les échantillons implantés avec les ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm⁻² et 10^{15} cm⁻².

Les points (S,W) décrivent un segment de droite D1 pour BF et D2 pour HF toutes deux situées en-dessous de la droite de la monolacune D_v, particulièrement dans le cas de BF. Ces résultats suggèrent que la nature des défauts détectés est différente de la monolacune v et que le volume libre apparent est plus petit que celui de v. De nombreux résultats de calculs de temps de vie des positons comme ceux obtenus par Troev *et al* [74] démontrent que la présence de l'hélium dans les défauts lacunaires peut modifier les caractéristiques d'annihilation. Une étude théorique réalisée par Tang *et al* [126] dans le Fer montre que la présence d'hélium dans les lacunes change la distribution des moments des électrons qui s'annihilent avec les positons et entraîne la diminution des caractéristiques d'annihilation de S et W. Plus récemment, des calculs effectués par K. Heinola dans le tungstène, montrent que les caractéristiques d'annihilation des positons (S,W) pour les défauts de type nHe-v ont tendance à se positionner de plus en plus en-dessous du point (S_v,W_v) caractéristique de l'annihilation des positons dans la monolacune (v) et cela d'autant plus que le nombre n d'hélium augmente (voir **chapitre II, section II.5.4, page 80, Figure II.30**). Cela suggère que dans les échantillons implantés avec des ions ^4He 60 keV, les positons s'annihilent dans des défauts lacunaires contenant de l'hélium de type nHe-mv. En comparant la pente des points (S,W) pour les deux fluences d'implantation, on remarque que celle correspondant à HF est plus proche de D_v que celle mesurée pour BF. Cette différence peut s'expliquer par le fait que la densité de lacunes étant supérieure et le rapport $[\text{He}]_{\text{SRIM}}/[\text{V}]_{\text{exp}}^{\text{est}} > 1$ (voir **section IV.1.1**) dans le cas de HF, il est possible que le nombre de lacunes (m) et d'hélium (n) dans les complexes nHe-mv formés soient plus élevés pour HF que pour BF.

La **Figure IV.5** issue de travaux antérieurs [1], présente la fraction d'hélium relâchée après recuit pour des échantillons implantés avec des ions ^3He d'énergie 60 keV à différentes fluences, mesurée par NRA. Nous observons que la désorption commence à des températures légèrement supérieures à 1580 K. Cette température correspond à la température de

dissociation de défauts complexes He-v en v et He correspondant à l'énergie de dissociation de 4.57 eV [66]. Cela indique que, après implantation l'hélium est piégé dans des défauts lacunaires.

Ainsi les résultats PAS et NRA suggèrent que des défauts de type He-v peuvent être détectés après implantation. Pour BF, étant donné que le rapport $[He]_{SRIM}/[V]_{exp}^{est} < 1$ (voir **section IV.1.1**) on ne peut pas écarter l'hypothèse que des monolacunes v soient aussi présentes après implantation. Pour HF, la population de défauts lacunaires est plus diversifiée et en dehors des défauts lacunaires He-v et v, il est probable que des défauts lacunaires complexes de type nHe-mv (avec $m > 1$) soient formés comme nous l'avons indiqué au paragraphe précédent et que la concentration de monolacunes v vides soit plus limitée en proportion que pour BF.

Les résultats expérimentaux obtenus par PAS sont comparés avec des résultats obtenus par calculs OKMC appliqués à la modélisation de la microstructure du tungstène après implantation avec des ions 4He 60 keV à différentes fluences, réalisés par A. De Backer et C. Becquart, en utilisant le code de calcul LAKIMOCA. Les calculs OKMC mettent en évidence la présence de complexes nHe-mv après implantation. La **Figure IV.8** présente la concentration des clusters lacunaires (amas) purs de type mv et mixtes de type nHe-mv et des clusters d'interstitiels mixtes nHe-mI en fonction du nombre de lacunes (à gauche) et des atomes d'hélium (à droite), après implantation à 300 K pour différentes fluences.

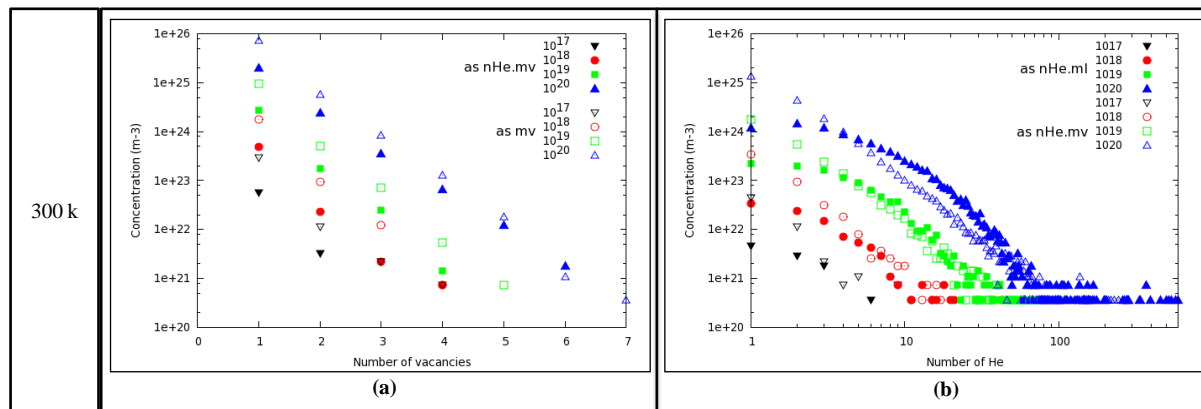


Figure IV.8 : Description de la microstructure à 300 K respectivement pour les lacunes et les atomes d'hélium (de gauche à droite) induites par les ions 4He d'une énergie de 60 keV à différentes fluences $10^{17}-10^{20} m^{-2}$ (ou $10^{13}-10^{16} cm^{-2}$) dans le tungstène. La concentration des clusters sont tracés en fonction du nombre de lacunes et d'atomes d'hélium dans les clusters, pour des clusters purs (mv) et mixtes (nHe-mv ou nHe-mI).

Nous observons sur la **Figure IV.8.(a)** et **Figure IV.8.(b)** que la concentration des défauts de type mv est maximale pour $m = 1$, elle avoisine $4 \times 10^{24} m^{-3}$ pour BF et $1 \times 10^{25} m^{-3}$ pour HF. Dans le cas des défauts de type nHe-mv, la concentration maximale est aussi observée pour $m = 1$ (environ $8 \times 10^{23} m^{-3}$ pour BF et $5 \times 10^{24} m^{-3}$ pour HF) et est aussi maximale pour un nombre de He, $n = 1$ (environ de $5 \times 10^{23} m^{-3}$ pour BF et $3 \times 10^{24} m^{-3}$ pour HF). De plus la concentration des défauts de type mv ($C(mv)$) et nHe-mv ($C(nHe-mv)$), augmente avec la fluence d'implantation. $C(mv)$ est supérieure à $C(nHe-mv)$ pour les petits

amas lacunaires dont le nombre de lacunes reste inférieur à 5. En outre, $C(mv)$ diminue rapidement quand le nombre de lacunes (m) augmente, avec un rapport $\frac{C(v)}{C(mv)}$ pouvant varier entre 9-16 quand m augmente de 1 pour $1 \leq m \leq 5$ (voir **Figure IV.8.(a)**), alors que $C(nHe-mv)$ diminue plus lentement quand le nombre de He (n) augmente, avec un rapport $\frac{C(He-mv)}{C(nHe-mv)}$ pouvant varier entre 1-2.5 quand n augmente de 1 pour $1 \leq m \leq 5$ (voir **Figure IV.8.(b)**). Cela indique que plus la taille des amas lacunaires (m) augmente, plus ils contiennent de l'hélium et que des amas lacunaires plus gros sont observés quand la fluence augmente. Ces données suggèrent que la concentration des défauts complexes de type $nHe-mv$ contenant plus d'une lacune et au moins 1 hélium est supérieure dans le cas de l'implantation HF par rapport à BF. Ces complexes existent dans l'échantillon implantés à BF mais leur concentration est plus faible, ils seront plus difficiles à détecter en PAS par rapport aux autres défauts lacunaires.

De plus, la **Figure IV.9**, présente la distribution des défauts complexes ($nHe-mv$) en fonction de la profondeur, réalisé par A. De Backer et C. Becquart à l'aide de la modélisation OKMC dans le cas de l'implantation 4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} dans le tungstène. Il faut noter que ces calculs ne tiennent pas compte de l'effet du trap mutation, c'est-à-dire l'émission d'interstitiel (I) à partir du complexe $nHe-mv$ quand le ratio He/v devient supérieur à un certain seuil. Nous pouvons constater que la concentration des défauts complexes de type $nHe-v$ augmente avec la fluence d'implantation. Entre outre, le nombre d'hélium n est d'autant plus élevé que la fluence d'implantation est grande ainsi que la profondeur. De plus, pour les deux fluences d'implantation (10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2}) la formation des défauts $nHe-v$ pressurisés devrait permettre l'émission d'interstitiels (I) et augmenter la proportion des complexes hélium-lacune contenant plus de lacunes, soit $nHe-mv$.

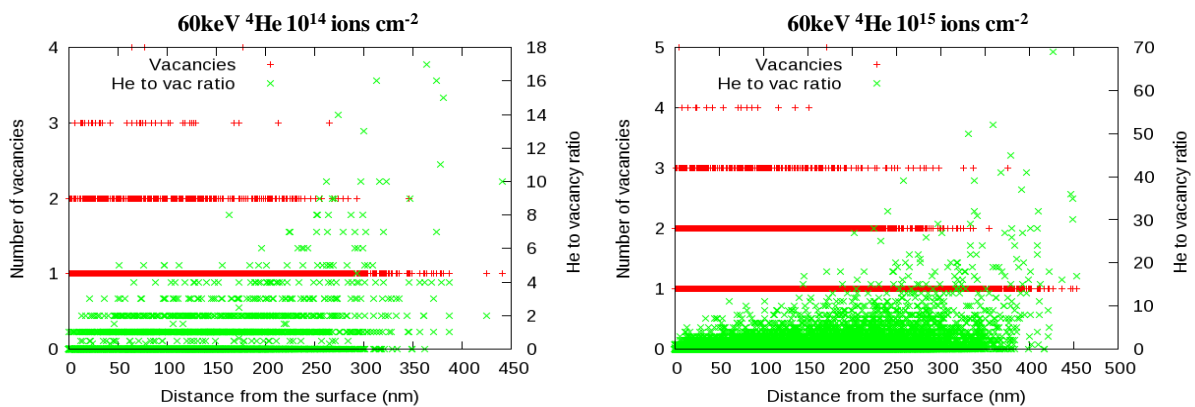


Figure IV.9 : Distribution des défauts complexes ($nHe-mv$) en fonction de la profondeur après implantation d'ions 4He 60 keV dans le tungstène réalisé à l'aide de la modélisation OKMC par A. De Backer et C. Becquart. Attention, ces calculs ne tiennent pas compte de l'effet du trap mutation.

Ces informations suivent la logique des interprétations données aux résultats obtenus par PAS. Nous pouvons conclure que la nature et la distribution des défauts présents dans les

échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60keV évoluent avec la fluence d'implantation. Nous proposons que les positons détectent des défauts lacunaires de type He-v + v de façon prépondérante dans l'échantillon implanté BF. Dans le cas de l'échantillon implanté HF, les positons détectent plutôt de façon prépondérante des défauts de type nHe-mv (avec $m > 1$) + He-v + v.

IV.1.3. Evolution en fonction de la température de recuit des défauts lacunaires en présence d'hélium

IV.1.3.1. Traitements thermiques après implantation

Après implantation, les échantillons ont été recuits étape par étape avec un pas de 100 K pendant 1 heure sous vide entre 423 K et 2173 K dans un four à bombardement électronique du CEMHTI. La rampe de montée en température est de 5.6 K/s. Les échantillons ont été caractérisés par Spectroscopie d'Annihilation de Positons avec l'accélérateur de positons lents du CEMHTI entre chaque étape de recuit afin de suivre l'évolution des défauts lacunaires en fonction de la température en présence d'hélium.

IV.1.3.2. Résultats et discussions

Toutes les courbes de $S(E)$, $W(E)$ et les points $S(W)$ mesurés dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) et 10^{15} cm^{-2} (HF) puis recuit entre 423-2173 K, sont données en **Annexe 4, A4-Figure. 1, page 221** et **A4-Figure. 2, page 222**, respectivement pour BF et HF.

IV.1.3.2.1. Résultats dans le cas de l'implantation à BF

La **Figure IV.10** présente les caractéristiques d'annihilations des positons $S(E)$ et $S(W)$ mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) puis recuit entre 423 K à 2173 K. Par souci de clarté de lecture nous n'avons représenté que quelques températures.

Les températures de recuits reportées ici, ont été choisies car des évolutions notables se produisent :

- ☐ **723 K** : température à laquelle le phénomène de migration de la monolacune entraînant leur agglomération pourrait être observé [1, 73].
- ☐ **1623 K** : température à laquelle le phénomène de dissociation des complexes He-v en He + v pourrait se produire [1, 66].
- ☐ **1823-2173 K** : températures auxquelles la recristallisation du tungstène pourrait s'effectuer [1].

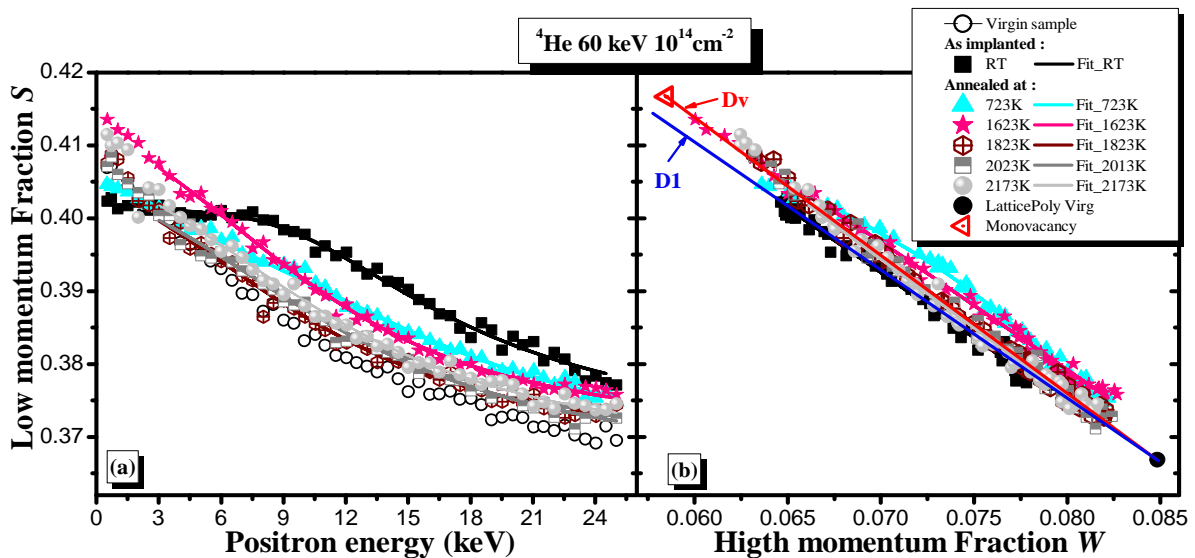


Figure IV.10 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W .

Pour l'échantillon de tungstène implanté à BF puis recuit à 723 K, 1623 K, 1823 K, 2023 K et 2173 K, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) évoluent avec la température de recuit et tendent vers celui de l'échantillon vierge quand la température de recuit augmente. En regardant de plus près les résultats pour la température de recuits de 723 K, on remarque que pour les énergies de positons comprises entre 3-25 keV, le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) est en-dessous (resp. au-dessus) de celui mesuré dans l'échantillon après implantation. Pour le recuit à 1623 K, on distingue clairement deux domaines d'énergie de positons : pour l'énergie de positons variant entre 0.5 keV et 10 keV, la courbe $S(E)$ (resp. $W(E)$) est au-dessus (resp. en-dessous) de celle de l'échantillon implanté puis recuit à 723 K, puis entre 10 keV et 24 keV, la courbe $S(E)$ (resp. $W(E)$) passe très légèrement en-dessous (resp. au-dessus). A plus haute température de recuits, pour les positons d'énergie comprise entre 3-25 keV, les valeurs de S sont plus faibles que celles obtenues pour le recuit à 1623 K. Cependant les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) des échantillons implantés puis recuit entre 1823 K et 2173 K restent très légèrement au-dessus (resp. en-dessous) de celui mesurés dans l'échantillon vierge.

Après le recuit à 723 K, les points (S,W) sont au-dessus de la droite D_V pour les énergies de positons comprises entre 3-25 keV, cela signifie que, entre RT et 723 K la distribution moyenne en taille ou le volume libre des défauts détectés par les positons a augmenté et est devenu supérieur à celui de la monolacune de tungstène. Pour le recuit à 1623 K, les points (S,W) sont alignés sur la droite D_V et sont décalés vers le haut par rapport à ceux mesurés pour le recuit à 723 K, spécialement pour les positons d'énergie entre 0.5-6 keV. Lorsque l'énergie des positons varie entre 6 et 12 keV les points (S,W) passent en-dessous de ceux mesurés pour le recuit à 723 K puis entre 12-25 keV ils sont quasi-superposés. A plus haute température de recuit (1823 K, 2023 K et 2173 K) les points (S,W) mesurés entre 0.5-25 keV sont quasi-superposés et s'alignent tous sur la droite D_V et se rapprochent des points (S,W) de l'échantillon vierge. Nous pouvons aussi noter qu'entre 0.5-2

keV les points (S, W) pour les recuits à partir de 1873 K sont légèrement décalés vers le bas par rapport à ceux mesurés pour le recuit à 1623 K. Ces différentes évolutions des caractéristiques d'annihilation S et W entre 723 K et 2173 K indiquent que la nature des défauts et leur distribution en profondeur changent au cours des recuits et se rapprochent de ceux de l'échantillon vierge à partir de la température de recuit de 1823 K et ne les atteignent pas strictement même jusqu'à 2173 K.

IV.1.3.2.2. Discussions des résultats dans le cas de l'implantation à BF

Après recuit de l'échantillon implanté BF à 723 K, nous avons vu précédemment que les points (S, W) évoluent au-dessus de la droite D_V entre 3-25 keV. En effet les monolacunes de tungstène sont mobiles à partir de 423 K [73, 134], elles peuvent s'agglomérer entre elles ou avec les défauts complexes de type He-v pour former de plus gros défauts.

Les données expérimentales S (E) et W (E) ont été modélisées à l'aide du logiciel VepFit [118], les résultats sont présentés dans le **Tableau IV.4**.

Echantillon	Surface		Layer 1 (L1)				Layer 2 (Bulk)		
	S	W	S	W	L_{eff}^+ (nm)	Width (nm)	S	W	L_{eff}^+ (nm)
W virgin	0.4041 ± 0.0003	0.0656 ± 0.0002					0.3674 ± 0.0003	0.0858 ± 0.0002	105 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) As-implanted	0.4011 ± 0.0004	0.0649 ± 0.0002	0.4036 ± 0.0004	0.0639 ± 0.0003	58 ± 1	136 ± 11	0.3718 ± 0.0004	0.0816 ± 0.0002	107 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) Annealed at 723 K	0.4039 ± 0.0004	0.0657 ± 0.0002	0.3925 ± 0.0005	0.0749 ± 0.0003	63 ± 1	150 ± 35	0.3689 ± 0.0004	0.0843 ± 0.0002	99 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) Annealed at 1623 K	0.409 ± 0.002	0.0613 ± 0.0007	0.394 ± 0.002	0.0729 ± 0.0008	25 ± 1	53 ± 27	0.3715 ± 0.0002	0.0843 ± 0.0002	98 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) Annealed at 1823 K	0.4019 ± 0.0003	0.0661 ± 0.0002					0.3693 ± 0.0002	0.0836 ± 0.0002	110 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) Annealed at 2023 K	0.4023 ± 0.0003	0.0660 ± 0.0002					0.3672 ± 0.0003	0.0845 ± 0.0002	114 ± 1
W implanté ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) Annealed at 2173 K	0.4039 ± 0.0003	0.0647 ± 0.0002					0.3687 ± 0.0003	0.0838 ± 0.0002	117 ± 1

Tableau IV.4 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) puis recuits à différentes températures.

Pour les échantillons recuits à 723 K et 1623 K, les résultats expérimentaux ont été fittés avec des modèles à deux couches comme pour l'échantillon « as-implanted ». La première couche est comprise entre 0-150 nm et 0-53 nm respectivement selon la température de recuit de 723 K et de 1623 K.

Dans le cas du recuit à 723 K, la première couche s'arrête à une profondeur proche du pic maximal du profil de concentration de l'hélium (160 nm) calculé par SRIM pour

l'échantillon implanté à BF. Il est intéressant de noter que la longueur de diffusion effective issue du fit est de 63 ± 1 nm pour cette première couche, ce qui montre que la densité de pièges est aussi importante en proche surface qu'avant recuit (L_{eff}^+ de la première couche de l'échantillon « as-implanted » est de 58 ± 1 nm). Pour la deuxième couche correspondant ici à la couche profonde de l'échantillon (Bulk), la longueur de diffusion effective est de 99 ± 1 nm, légèrement inférieure à celle d'un échantillon vierge (105 ± 1 nm). Cette diminution peut s'expliquer soit par une diffusion de défauts vers le volume (Bulk) ou soit par l'existence d'une troisième couche supplémentaire entre la première et la deuxième couche qui s'avère très difficile à fitter.

Pour le recuit à 1623 K, la longueur de diffusion effective dans la première couche est de 25 ± 1 nm et est nettement plus faible que celle obtenue après recuit à 723 K. Par contre dans la deuxième couche elle est comparable à celle obtenue pour le recuit à 723 K (98 ± 1 nm au lieu de 99 ± 1 nm). La diminution de la longueur de diffusion effective dans la couche proche surface (première couche) entre les recuits à 723 K et à 1623 K, montre que le taux de piégeage a augmenté entre les deux températures de recuit. De plus la largeur de cette couche endommagée détectée par les positons diminue entre le recuit à 723 K et 1623 K. Cela signifie que les défauts ont migré vers la surface au cours des recuits successifs et que leur piégeage est plus efficace, soit parce que leur concentration est plus élevée ou que leur taille a augmenté.

Pour les recuits à 1823 K, 2023 K et 2173 K un modèle à une seule couche homogène a permis de fitter les données expérimentales. Les longueurs de diffusion effectives obtenues sont proches de celles observées dans un échantillon vierge (106 nm), elles sont respectivement de 110 nm, 114 nm, 117 nm. De plus les valeurs ($S_{\text{surf}}, W_{\text{surf}}$) et ($S_{\text{Bulk}}, W_{\text{Bulk}}$) sont très proches de celles d'un échantillon vierge. Nous supposons que, soit les défauts présents dans les échantillons de tungstène implantés ^4He 60 keV 10^{14} cm^{-2} (BF) ont disparu (guérison de l'échantillon implantés) après les recuits à hautes températures supérieures à 1823 K, soit les défauts se sont agglomérés pour former de gros défauts complexes dont la concentration est inférieure à la limite de détection de la technique PAS ou la concentration de He dans ces défauts est importante.

IV.1.3.2.3. Résultats dans le cas de l'implantation à HF

Dans le cas de l'implantation HF (**Figure IV.11**), le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) après recuit à 723 K est quasi-identique à celui de l'échantillon implanté. Pour le recuit à 1623 K, le profil $S(E)$ (resp. $W(E)$) passe au-dessus (resp. en-dessous) de celui mesuré pour l'échantillon « as-implanted ». Par contre à 1823 K, les valeurs de $S(E)$ sont plus faibles entre 0.5-12 keV par rapport à l'échantillon implanté puis recuit à 1623 K, mais elles deviennent légèrement supérieures entre 12-25 keV. A plus haute température de recuits entre 2023-2173 K les valeurs de $S(E)$ deviennent à nouveau plus faibles que celles mesurées pour le recuit à 1623 K pour les énergies de positons comprises entre 3-25 keV, mais restent supérieures à celles obtenues pour le matériau vierge. Ces résultats montrent que la distribution des défauts a changé au cours des différents recuits, et à très haute température elle se rapproche de celle de l'échantillon vierge.

Les points (S, W) pour l'échantillon implanté puis recuit à 723 K sont pratiquement sur la droite D_V . A 1623 K on peut clairement observer que les points (S, W) passent largement au-dessus de D_V et à 1823 K ils se positionnent pratiquement au-dessus de D_3 entre 12-25 keV. Par contre lorsque la température devient supérieure à 1823 K, les valeurs de S deviennent plus faibles et les points (S, W) se rapprochent de D_V . Cela suggère que la taille des défauts a très légèrement augmenté dans un premier temps entre RT et 723 K : le volume libre détecté par les positons est comparable à celui de la monolacune de tungstène. Puis dans un second temps, la taille des défauts devient très supérieure à celle de la monolacune quand la température de recuit est fixée entre 1623 K et 1823 K. A plus haute température les points (S, W) viennent de nouveau se positionner sur la droite D_V . Cela suggère que, la taille ou le volume libre des défauts a diminué.

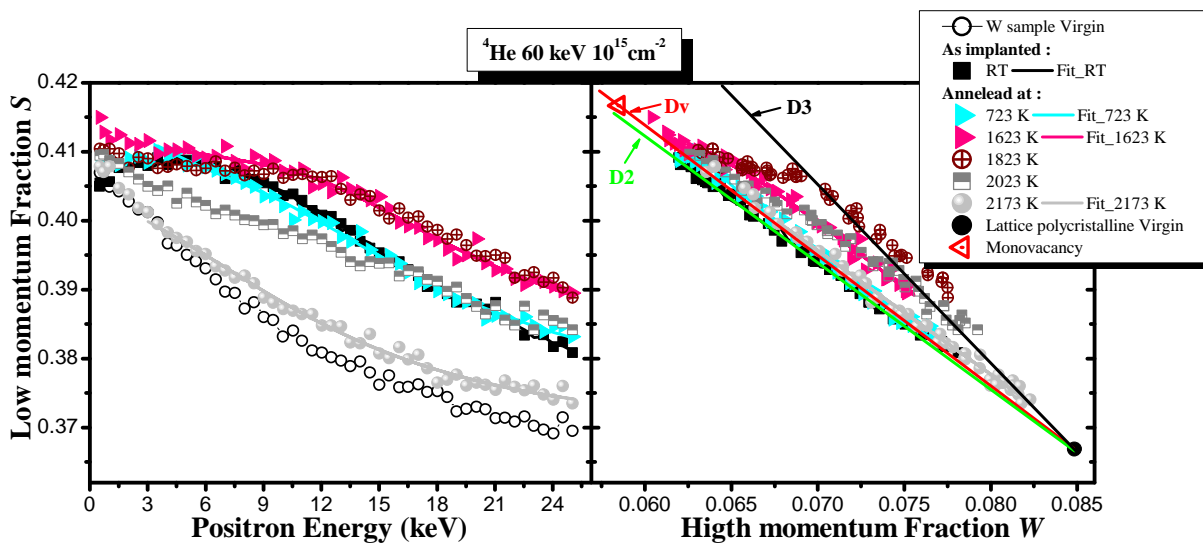


Figure IV.11 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{15} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W .

IV.1.3.2.4. Discussions des résultats dans le cas de l'implantation à HF

Les données expérimentales ont été modélisées avec le logiciel VEPFIT par un modèle à deux couches pour les échantillons recuits à 723 K et à 1623 K puis par un modèle à une seule couche homogène pour l'échantillon recuit à 2173 K (voir **Tableau IV.5**).

Pour le recuit à 723 K, les caractéristiques d'annihilation (S, W) à la surface, de la première couche ainsi que du volume (Bulk), sont légèrement différentes de celles de l'échantillon « as-implanted ». Sur la **Figure IV.12**, on peut clairement observer que le point ($S_{\text{surf}}, W_{\text{surf}}$) de l'échantillon recuit à 723 K reste pratiquement sur le même alignement que celui de l'échantillon « as-implanted » et est décalé vers le haut tandis que le point (S_{L1}, W_{L1}) de la première couche L1 se décale légèrement vers la droite D_V par rapport à celui de l'échantillon « as-implanted ». De plus, la valeur de S_{L1} (resp. W_{L1}) de l'échantillon recuit à 723 K est légèrement supérieure (resp. inférieure) à celle de l'échantillon « as-implanted ». Cela signifie que la concentration des défauts a tendance à diminuer tandis que la taille

moyenne des défauts augmente dans cette couche L1 après le recuit à 723 K. La longueur de diffusion effective dans la première couche de l'échantillon recuit à 723 K est légèrement plus élevée (37 ± 1 nm) que celle de l'échantillon « as-implanted » (20 ± 1 nm). Cette augmentation de la longueur de diffusion effective est en bon accord avec la diminution de la valeur de S .

Pour le recuit à 1623 K, le point ($S_{\text{surf}}, W_{\text{surf}}$) se positionne sur la droite D_V et est décalé vers le bas par rapport à l'échantillon recuit à 723 K (**Figure IV.12**). La première couche de l'échantillon recuit à 1623 K est comprise entre $0-192 \pm 25$ nm et est plus épaisse que celle de l'échantillon recuit à 723 K qui est de 131 ± 23 nm (**Tableau IV.5**). Dans cette couche la valeur de la longueur de diffusion effective passe à 47 ± 1 nm (au lieu de 37 ± 1 nm). Le point (S_{L1}, W_{L1}) de l'échantillon recuit à 1623 K est décalé vers la droite et vers le haut par rapport à celui de l'échantillon recuit à 723 K. Pour la deuxième couche la longueur de diffusion effective est de 98 ± 1 nm, plus faible que celle de l'échantillon recuit à 723 K (112 ± 2 nm). Le point ($S_{\text{Bulk}}, W_{\text{Bulk}}$) de l'échantillon recuit à 1623 K est décalé vers la droite et vers le haut comparé à celui de l'échantillon recuit à 723 K. Ces changements pourraient s'expliquer par la diffusion (migration) des défauts vers le volume (Bulk) ou l'existence d'une troisième couche dans le cas de l'échantillon recuit à 1623 K. De plus, pendant le recuit à 1623 K nous pouvons clairement observer que la taille et la concentration des défauts ont augmenté dans la première couche comparée à celles de l'échantillon recuit à 723 K. Cette augmentation de taille et de concentration des défauts lacunaires peut se justifier par le fait qu'à 1623 K la dissociation des complexes He-v en He + v est amorcée [1, 66], ainsi les v libérés peuvent migrer et s'agglomérer avec d'autres défauts complexes de type nHe-mv stables à haute température.

Dans le cas de l'échantillon recuit à 2173 K, le point ($S_{\text{surf}}, W_{\text{surf}}$) (resp. ($S_{\text{Bulk}}, W_{\text{Bulk}}$)) se positionne légèrement en-dessous (resp. au-dessus) de celui de l'échantillon vierge (**Figure IV.12**). La longueur de diffusion effective est de 96 nm et est légèrement inférieure à celle d'un échantillon vierge (**Tableau IV.5**). Nous pouvons alors dire que pour le recuit à 2173 K, une grande partie des défauts ont été éliminés dans l'échantillon implanté à HF.

Echantillon	Surface		Layer 1 (L1)				Layer 2 (Bulk)		
	S	W	S	W	L ⁺ _{eff} (nm)	Width (nm)	S	W	L ⁺ _{eff} (nm)
W virgin	0.4041 ± 0.0003	0.0656 ± 0.0002					0.3674 ± 0.0003	0.0858 ± 0.0002	105 ± 1
W implanté ⁴ He 60 keV 10 ¹⁵ cm ⁻² (HF) As implanted	0.4022 ± 0.0002	0.0671 ± 0.0006	0.4097 ± 0.0002	0.0615 ± 0.0008	20 ± 1	133 ± 6	0.3667 ± 0.0003	0.0861 ± 0.0002	106 ± 1
W implanté ⁴ He 60 keV 10 ¹⁵ cm ⁻² (HF) Annealed at 723 K	0.4146 ± 0.0006	0.0610 ± 0.0003	0.4033 ± 0.0004	0.0656 ± 0.0002	37 ± 1	131 ± 23	0.3737 ± 0.0004	0.0815 ± 0.0003	112 ± 2
W implanté ⁴ He 60 keV 10 ¹⁵ cm ⁻² (HF) Annealed at 1623 K	0.4118 ± 0.0005	0.0610 ± 0.0003	0.4069 ± 0.0004	0.0667 ± 0.0002	47 ± 1	192 ± 25	0.3795 ± 0.0005	0.0805 ± 0.0003	98 ± 1
W implanté ⁴ He 60 keV 10 ¹⁵ cm ⁻² (HF) Annealed at 2173 K	0.4024 ± 0.0003	0.0663 ± 0.0002					0.3699 ± 0.0003	0.0843 ± 0.0002	96 ± 1

Tableau IV.5 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons de tungstène implantés avec des ions ⁴He 60 keV à la fluence de 10¹⁵ cm⁻² (HF) puis recuits à différentes températures.

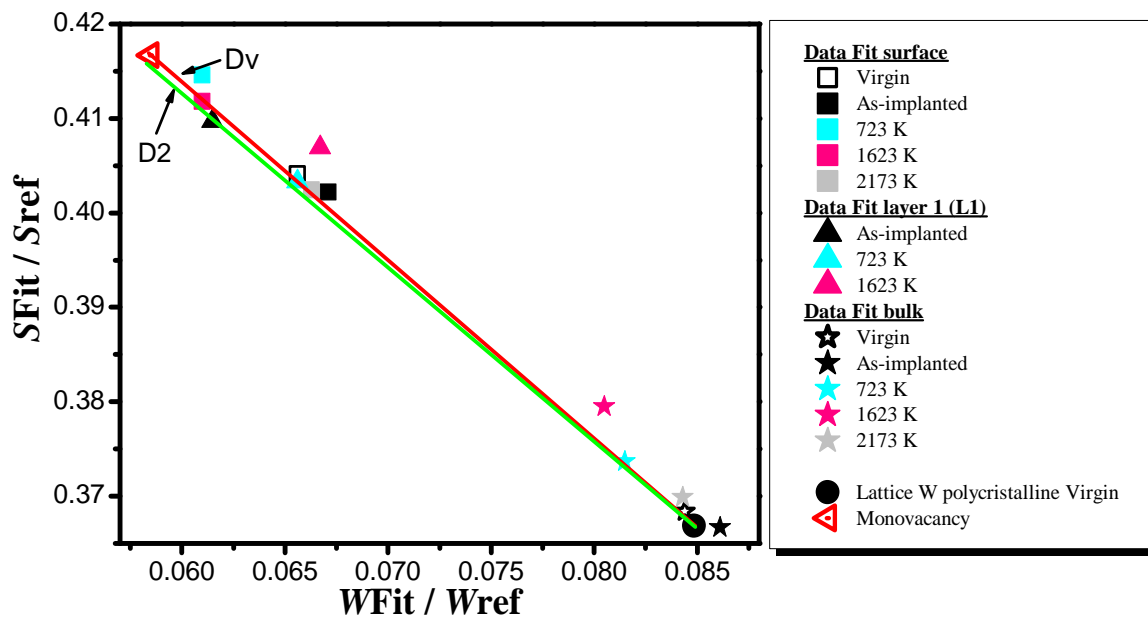


Figure IV.12 : Caractéristiques d'annihilations S en fonction W de différentes couches déterminées par modélisation à l'aide du logiciel VepFit réalisé sur l'échantillon de tungstène implanté ⁴He 60 keV à la fluence de 10¹⁵ cm⁻², puis recuits à différentes températures.

IV.1.3.3. Comparaison des stades de recuit des échantillons implantés BF et HF

Pour pouvoir décrire la tendance d'évolution sur l'ensemble des températures de recuits réalisés entre RT-2173 K sur les échantillons implantés ⁴He 60 keV avec une fluence de 10¹⁴ cm⁻² (BF) et 10¹⁵ cm⁻² (HF), nous avons représenté dans les **Figure IV.13** et **Figure IV.14** respectivement, les courbes S en fonction de la température de recuit et les points (S,W) correspondant. Les valeurs de S et W sont prises à 5 ± 0.5 keV et 15 ± 0.5 keV pour les deux

conditions d'implantation BF et HF. Notons que pour ces énergies 5 keV et 15 keV, le rapport entre la concentration d'hélium et l'endommagement (dpa) varie d'un facteur 3 (voir **section IV.1.1, Figure IV.4**). De plus sur la **Figure IV.13.a**, sont reportés les profils $S(T)$ mesurés à 5 keV et 15 keV, d'un échantillon de tungstène implanté en ions ^3He d'énergie 800 keV à une fluence de 10^{15} cm^{-2} , qui induit $2.5 \times 10^{-3} \text{ dpa}$ entre 0-800 nm soit la même dose d'endommagement que celle calculée pour 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et pour lequel la nature des défauts présents correspond à la monolacune de tungstène [1].

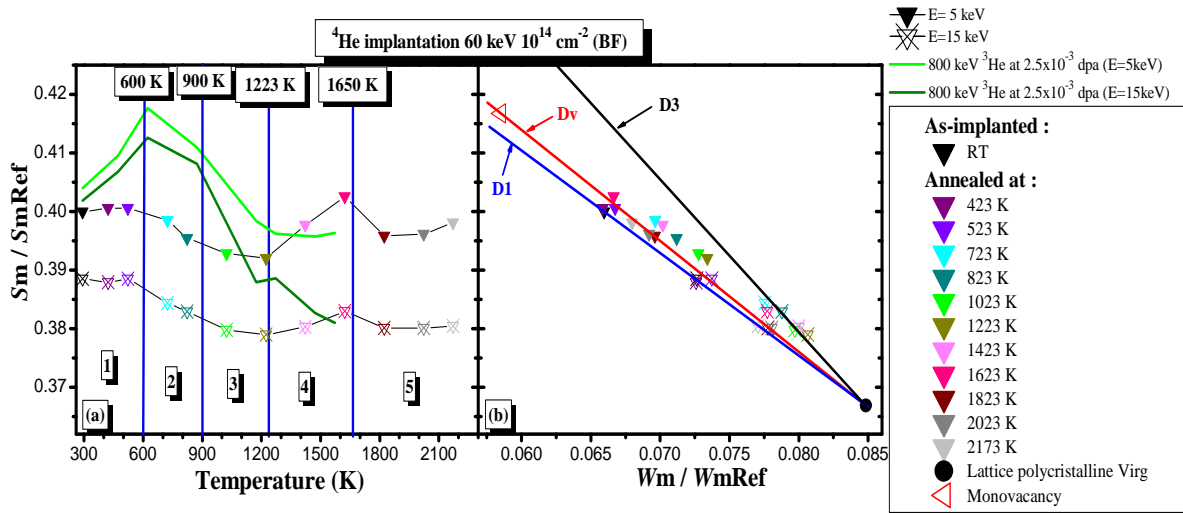


Figure IV.13 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implanté ^4He 60 keV fluence 10^{14} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de la température de recuit. (b) Les points (S,W) en fonction de la température de recuit.

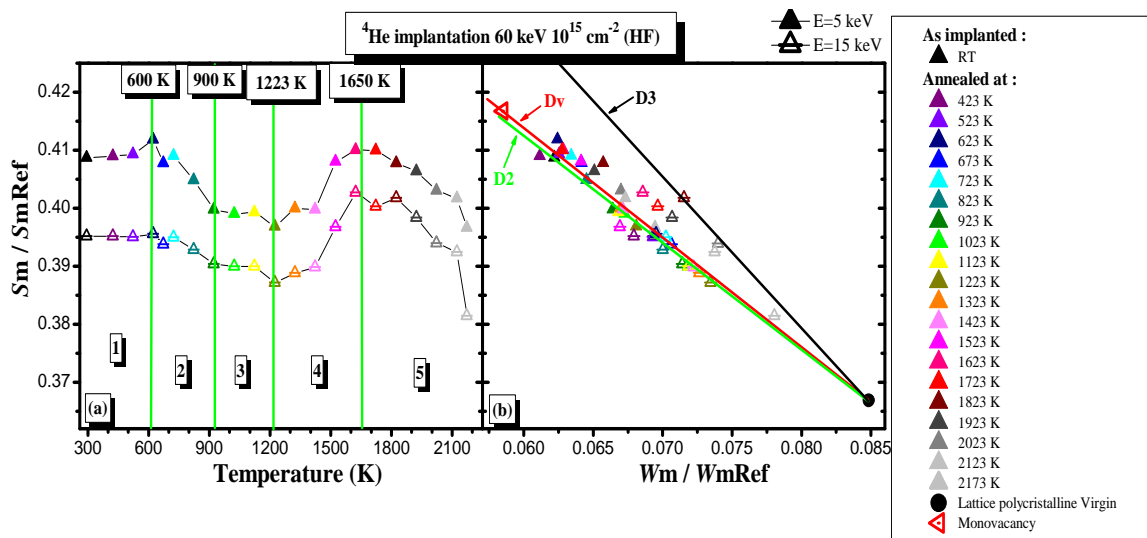


Figure IV.14 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implanté ^4He 60 keV fluence 10^{15} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de la température de recuit. (b) Les points (S,W) en fonction de la température de recuit.

Cinq étapes de recuit sont identifiables sur les courbes $S(T)$ pour les implantations BF et HF, dont quatre sont communes (voir **Figure IV.13.a** et **Figure IV.14.a**) :

- ❑ **Stade 1**, RT-600 K : S augmente légèrement. Cette augmentation est plus marquée à 5 keV qu'à 15 keV
- ❑ **Stade 2**, 600-900 K : S diminue
- ❑ **Stade 3**, 900-1223 K : S est quasi constant (aucun changement n'est observé)
- ❑ **Stade 4**, 1223-1650 K : les valeurs de S augmentent à nouveau. Cette augmentation est plus marquée à 5 keV qu'à 15 keV dans le cas de l'implantation à BF alors que pour HF c'est le contraire.
- ❑ **Stade 5**, 1650-2173 K : une diminution franche de S est observée pour l'implantation HF, alors que pour BF, une diminution est observée uniquement entre 1623-1823 K et entre 1823-2173 K S est quasi-constant.

Nous pouvons constater que les stades 1 et 2 sont présents sur les profils $S(T)$ mesurés dans le cas où l'échantillon ne contient pratiquement que des monolacunes avec une très faible concentration d'hélium (implantation ^3He 800 keV [1, 84], avec un ratio $[\text{He}](\text{at.}\%)/[\text{v}]_{\text{exp}}^{\text{est}}(\text{at.}\%)$ moyen environ égal à 0.15). Mais l'augmentation et la diminution de S est beaucoup moins prononcée pour les échantillons implantés ^4He 60 keV, spécialement à haute fluence (HF). La non présence de pic dans les courbes $S(T)$ des échantillons implantés ^4He 60 keV vient du fait que la concentration des monolacunes est beaucoup plus faible comparé à celle de l'échantillon implanté ^3He 800 keV et que le nombre de complexes $n\text{He-mv}$ est important. Le stade 4 n'est pas observé pour la monolacune quand la concentration d'hélium est très faible. En outre les profils $S(T)$ de la monolacune ne s'arrêtant qu'à la température de 1573 K, l'étape 5 ne peut pas être comparée ici.

Les points (S,W) dans le cas de l'implantation à BF, **Figure IV.13.b**, évoluent vers la droite avec une pente qui augmente et à 723 K ils sont au-dessus de la droite D_V pour ceux mesurés à 5 keV et pratiquement sur la droite D_3 pour ceux mesurés à 15 keV. De plus entre 723-1223 K, on remarque que les points (S,W) se dirigent vers le point Lattice (S_L, W_L) quand la température augmente en gardant pratiquement la même pente. Ces deux étapes d'évolutions ont été observées pour la monolacune dans le tungstène à des températures très similaires [73, 84, 106], elles ont été expliquées comme étant respectivement le résultat de la migration/agglomération des monolacunes en clusters de type mv et ensuite de l'élimination (recuit) des clusters de type mv. Entre 1223-1623 K, S augmente et W diminue quand la température augmente, pour se positionner pratiquement sur la droite D_V et au-dessus de D_V à 1623 K respectivement, pour l'énergie des positons de 5 keV et de 15 keV. Cela signifie que la distribution des défauts détectés change et leur volume libre diminue quand la température de recuit augmente entre 1223-1623 K. A 1823 K les points (S,W) mesurés à 5 keV et 15 keV se positionnent sur la droite D_V , ce qui suggère qu'à ce stade la taille apparente des défauts détectée par les positons est comparable à celle de la monolacune de tungstène. Leur concentration reste quasi-constante entre 1823 K et 2173 K particulièrement à 15 keV.

Ces changements de nature peuvent s'expliquer par plusieurs combinaisons de réaction possible. Nous proposons ainsi pour l'implantation à BF : qu'à RT après implantation les positons détectent des défauts de type He-v et une faible concentration i de v . Entre RT-723

K, les lacunes v migrent et s'agglomèrent entre elles ou avec les complexes He- v pour former des défauts de type amas lacunaires iv ou des défauts complexes He- $(i+1)v$ en plus de ceux déjà existant après implantation (comme l'indiquent les résultats de la simulation OKMC, **Figure IV.8**). Entre 723-1223 K, la concentration des défauts diminue par dissociation, nous proposons que les défauts lacunaires qui se dissocient sont plutôt des amas lacunaires iv , car les défauts complexes He- $(i+1)v$ sont stables à haute température [66]. Entre 1223-1623 K, les monolacunes v libérés lors de la dissociation des clusters iv , s'agglomèrent avec une petite partie des défauts complexes He- v pour former des complexes plus gros He- iv (avec $i > 1$). A partir de 1623 K, les complexes He- v peuvent se dissocier en He + v , comme l'indique les calculs [55, 86, 101] et les expériences [105, 107] de certains auteurs (la température de dissociation des complexes He- v varie entre 1500-1600 K) et comme le montre les résultats de désorptions de He (**Figure IV.5**), justifiant ainsi l'augmentation de S et la diminution de W obtenues par PAS. Enfin entre 1623 K et 2173 K, une dernière phase d'agglomération des monolacunes v (libéré par dissociation) + He + He- iv pour former des complexes de type $n\text{He}-m\text{v}$. Les complexes $n\text{He}-m\text{v}$ formés sont a priori la combinaison de plusieurs v et de plusieurs He, avec un volume libre plus grand (comparable ou plus grand à celle de la monolacune de tungstène) que He- v . Nous supposons de ce fait que le rapport m/n des complexes $n\text{He}-m\text{v}$ formés est supérieur à 1, donc stable à très haute température [66]. D'après les résultats de désorption de l'hélium (**Figure IV.5**) pour l'échantillon implanté avec des ions ^3He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} , nous pouvons observer environ 10% de désorption d'hélium à partir de la température de recuit à 1573 K. Entre 1573-2173 K, la désorption de l'hélium augmente et atteint environ 80%. Il reste encore environ 20% d'hélium piégés dans l'échantillon, probablement dans des pièges $n\text{He}-m\text{v}$ plus profonds, avec $m/n > 1$. Nous supposons d'après les résultats PAS qu'une faible concentration de v existe après l'implantation BF et puisse migrer et s'agglomérer avec He- v pour former des complexes $n\text{He}-m\text{v}$ ($m/n > 1$) plus stable à haute température.

Dans le cas de l'implantation à HF, **Figure IV.14.b**, les points (S,W) se décalent vers la droite entre RT-623 K et passent au-dessus de la droite D1 à 623 K, particulièrement pour les énergies de positons de 5 keV pour lequel le rapport $[\text{He}]/\text{dpa}$ est le plus faible comparé à 15 keV. Cette évolution a été observée dans le cas de l'implantation à BF et a été expliquée comme étant liée à la migration des monolacunes. Entre 623 K-1423 K, les points (S,W) se dirigent vers le point Lattice (S_L, W_L) . Cela signifie que la concentration des amas lacunaires formés iv diminue par dissociation. Entre 1423-1623 K, on remarque que les points (S,W) se décalent vers le haut. Il est fort probable qu'à ce stade, les lacunes v libérés par dissociation s'agglomèrent avec les complexes He- v pour former des défauts de type He- iv et de cet fait augmente la concentration des défauts complexes. Entre 1623-1823 K, les points (S,W) se décalent vers la droite D3, particulièrement pour les énergies de positons de 15 keV. Cela suggère que la taille ou le volume libre des défauts ont augmenté. En effet, la température de dissociation des complexes He- v étant de 1500-1600 K [105], les lacunes v libérées peuvent alors migrer et s'agglomérer pour former des clusters mv ou des complexes $n\text{He}-m\text{v}$ avec $m/n \gg 1$, dont la taille est maximale à 1823 K. Pour l'énergie des positons de 15 keV les points (S,W) sont sur la droite D3, ce qui signifie que l'agglomération est beaucoup plus forte à 15 keV qu'à 5 keV, cela est sûrement dû à la compétition entre l'agglomération et

l'élimination des défauts, notamment en proche surface celle-ci tend en faveur de l'élimination des défauts à la surface. En poursuivant les recuits, on remarque que la concentration des défauts diminue entre 1823 K et 2023 K. De plus entre 2023-2173 K, on constate une diminution de la taille (ou volume libre) et de la concentration des défauts détectés.

D'après la **Figure IV.5**, l'échantillon implanté en ${}^3\text{He}$ 60 keV 10^{15} cm^{-2} , la désorption maximale de l'hélium est inférieure à 20% pour la température de recuit la plus haute (2173 K). Il se peut d'une part que pendant la dissociation des complexes He-v, une partie des v et He libérés puissent former avec les défauts complexes nHe-mv restant, de nouveaux complexes xHe-yv avec $y/x \gg 1$ qui s'éliminent par la suite ou pour lesquels le volume libre diminue par introduction d'hélium et pour lesquels les caractéristiques d'annihilation des positons pourrait être proche de celles du Lattice du tungstène

Dans une étude précédente [1], les observations MET réalisées sur des échantillons de tungstène irradiés avec des ions ${}^3\text{He}$ 500 keV à 10^{16} cm^{-2} et recuit à 1773 K, révèlent la présence d'une distribution de bulles d'hélium dont le diamètre moyen peut atteindre jusqu'à 36 nm. Cependant, il est probable que dans le cas des implantations ${}^4\text{He}$ 60 keV, la présence d'une distribution de bulles d'hélium soit aussi présente pour les hautes températures de recuits dont la taille et la concentration des bulles diffèrent entre les deux fluences.

IV.1.4. Conclusions

Le comportement des défauts lacunaires dans le tungstène en présence de l'hélium a été étudié par Spectroscopie Annihilation des Positons en utilisant l'accélérateur de positons lents du CEMHTI. Deux échantillons de tungstène implantés en ${}^4\text{He}$ 60 keV, l'un avec une fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) et l'autre à 10^{15} cm^{-2} (HF) ont été investigués. La comparaison entre des données obtenues par PAS et ceux obtenues par la simulation OKMC, nous a permis de proposer que les positons détectent des défauts lacunaires de types He-v + v de façon prépondérante dans le cas de l'échantillon implanté BF et dans le cas de l'échantillon implanté HF, les positons détectent plutôt de façon prépondérante des défauts plus complexes de type nHe-mv (avec $m > 1$) + He-v + v.

De plus les résultats des recuits après implantation montrent des tendances d'évolutions différentes selon la fluence d'implantation.

Dans le cas de l'implantation à basse fluence (BF), une faible concentration de lacunes existent après irradiation, migrent et s'agglomèrent pour former des petits clusters mv entre RT-723 K. Entre 723-1623 K la concentration des clusters mv diminue par élimination et laisse place à la formation de complexe He-iv (avec $i > 1$) de volume libre plus grand que He-v, et à 1623 K la dissociation des complexes He-v va entraîner la désorption d'une grande partie de l'hélium (80% à 2173 K), le reste est sûrement piégé dans des pièges plus profonds nHe-mv (avec $m/n > 1$).

Pour la plus haute fluence (HF), on observe un stade de migration et d'agglomération débutant à partir de 1623 K (dû à la dissociation des complexes He-v) pour former des défauts complexes $x\text{He}-y\text{v}$ (avec $y/x \gg 1$) plus gros que He-v, dont la concentration et/ou la taille diminuent entre 1823 K et 2173 K. La diminution de la concentration et de la taille des défauts formés peut se justifier soit par leur élimination ou soit par une introduction plus grande d'hélium dans les complexes (plus de 80% d'hélium reste piégé à 2173 K).

Nous pouvons conclure que le rapport $[\text{He}] / [\text{v}]$, est un paramètre très important qui peut modifier les intervalles de températures d'apparition des différents phénomènes : migration, agglomération et élimination.

En perspective, Il serait intéressant de réaliser des observations à l'aide d'un Microscope Electronique à Transmission, dans le but d'obtenir des compléments d'informations sur les défauts existant à très haute température de recuits, très probablement des bulles d'hélium.

IV.2. Comportement des amas lacunaires en présence d'hélium

M. Gilbert et al [28] a calculé que dans DEMO, la dose d'endommagement (dpa) reçue par le tungstène devrait atteindre environ 4.5-14.5 dpa pour une année de fonctionnement et la concentration en hélium devrait être d'environ de 3 appm, cela donne un ratio He/dpa moyen d'environ 0.30 appm/dpa.

L'objectif de ce travail est d'étudier par Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS), l'interaction entre l'endommagement induit par l'irradiation aux ions lourds qui permettra de simuler l'irradiation aux neutrons et l'hélium dans le tungstène en fonction du ratio He/dpa et de la température d'irradiation. Des échantillons de tungstène EFDA et Goodfellow ont été irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV à différentes fluences et températures. Ces irradiations ont été effectuées sur la plateforme JANNuS en Juillet 2012. Les résultats préliminaires seront comparés à ceux des échantillons de tungstène qui ont été irradiés avec des ions W 20 MeV à la même fluence et à la même température.

IV.2.1. Conditions expérimentales d'irradiation

Le **Tableau IV.6**, résume les conditions d'irradiations simultanées avec des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV réalisées dans des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) à JANNuS (CEA Saclay) en juillet 2012.

Les échantillons de tungstène ont été irradiés en utilisant simultanément l'accélérateur Epiméthée pour l'irradiation avec les ions W 20 MeV et l'accélérateur Yvette pour l'irradiation avec les ions ^4He 850 keV. Le porte-échantillon utilisé a été conçu au laboratoire CEMHTI, il est fixé sur un support qui permet le refroidissement des échantillons à 91K et le chauffage des échantillons jusqu'à 1073 K. Le courant du faisceau produit par les accélérateurs a été fixé à une valeur légèrement supérieure à la valeur seuil basse de la machine, afin d'assurer sa stabilité pendant toute la durée de l'irradiation. Il était difficile de trouver un compromis entre le flux des ions W 20 MeV (correspondant en fait au taux de dpa/s) et le flux minimum des ions ^4He 850 keV délivré par l'accélérateur Yvette. Etant donné le courant minimum des deux accélérateurs, le ratio He/dpa induit s'est révélé trop élevé par rapport à celui attendu par les calculs de M. Gilbert. Ainsi, le courant du faisceau des ions hélium a été fixé à son minimum et l'irradiation avec les ions ^4He 850 keV a été effectuée sur un cycle par intermittence de 1/2 (voir **chapitre II, section II.6.1, page 83**).

Trois différentes températures d'irradiations ont été utilisées : la basse température de 128 K, permettant de réduire au maximum l'interaction des défauts lors de l'irradiation, ensuite à 673 K et à 873 K, pour permettre au moins la migration et l'agglomération des défauts lacunaires comme nous avons pu le voir au **chapitre III, section III.3.3.1.5, page 130**.

				Irradiations à JANNUS								
Echantillons				Temps (min)		Flux (cm ⁻² .s ⁻¹)		Fluence (cm ⁻²)		Température d'irradiation (K)	dpa à Rp (SRIM)	dpa* (SRIM)
Nombre	Nom	Abrégé	Fournisseur	W	⁴ He	W	⁴ He	W	⁴ He			
3	DF-W-A-C-A15	E15	EFDA	302	184	2.48 x 10 ¹¹	4.12 x 10 ¹⁰	4.49 x 10 ¹⁵	4.55 x 10 ¹⁴	128	25	12
	DF-W-A-C-A16	E16	EFDA									
	W-P-H-R04	GR04	Goodfellow									
3	DF-W-A-C-A17	E17	EFDA	388	160	1.87 x 10 ¹¹	4.87 x 10 ¹⁰	4.36 x 10 ¹⁵	4.68 x 10 ¹⁴	673	25	12
	DF-W-A-C-A18	E18	EFDA									
	W-P-H-R06	GR06	Goodfellow									
3	DF-W-A-C-A21	E21	EFDA	305	164	2.46 x 10 ¹¹	4.64 x 10 ¹⁰	4.50 x 10 ¹⁵	4.56 x 10 ¹⁴	873	25	12
	DF-W-A-C-A22	E22	EFDA									
	W-P-H-R08	GR08	Goodfellow									

Tableau IV.6 : Conditions d'irradiations simultanées avec des ions W 20 MeV et ⁴He 850 keV dans des échantillons de tungstène EFDA et Goodfellow, effectuées à JANNUS au CEA de Saclay. Le dpa marqué par une étoile (dpa*) correspond au dpa pris proche de la surface dans la région sondée par les positons (0-800 nm).

IV.2.2. Simulation SRIM

Le profil de déplacements d'atomes pour les ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et le profil des ions ⁴He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ont été calculés à l'aide du logiciel SRIM et sont reportés sur la **Figure IV.15**. Le niveau d'endommagement (dpa) au maximum (1300 nm) est de l'ordre de 25 dpa et la concentration en ⁴He est d'environ 200 appm à Rp (1300 nm). Sur la **Figure IV.16**, est tracée le ratio He (appm)/dpa obtenu pour les conditions de double faisceau : irradiations avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et avec des ions ⁴He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. Il est à noter que la dose d'endommagement (dpa) induite par les ions ⁴He est négligeable comparée à celle induite par les ions W 20 MeV. Comme nous sommes capables de sonder environ 800 nm sous la surface les échantillons de tungstène en utilisant l'accélérateur de positons lents du CEMHTI, il est possible d'étudier le ratio He/dpa à partir de la valeur de 0.03 appm He/dpa près de la surface jusqu'à 0.80 appm He/dpa à 800 nm. La valeur moyenne du ratio He/dpa dans la région comprise entre 0-800 nm est de 0.22 appm He/dpa. Cette valeur est proche de celle qui a été calculée par M. Gilbert. Ensuite par le procédé de décapage électrolytique nous pouvons retirer une épaisseur d'environ 800 nm afin d'étudier la région où le ratio He/dpa varie entre 0.80 appm He/dpa et 8 appm He/dpa au maximum à la profondeur de 1300 nm.

Il faut noter que le rapport He/dpa pour ces conditions d'irradiations est environ 5000 fois plus faible que celui atteint pour les implantations ⁴He 60 keV, traité dans la section précédente (**section IV.1 page 161**).

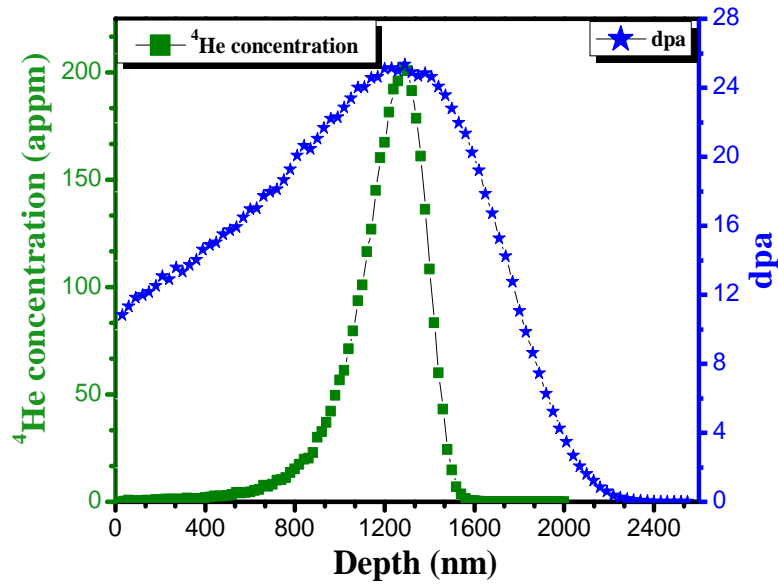


Figure IV.15 : Simulation SRIM du profil de déplacement par atome (dpa) généré avec des ions W 20 MeV à la fluence $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et le profil des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, dans le tungstène.

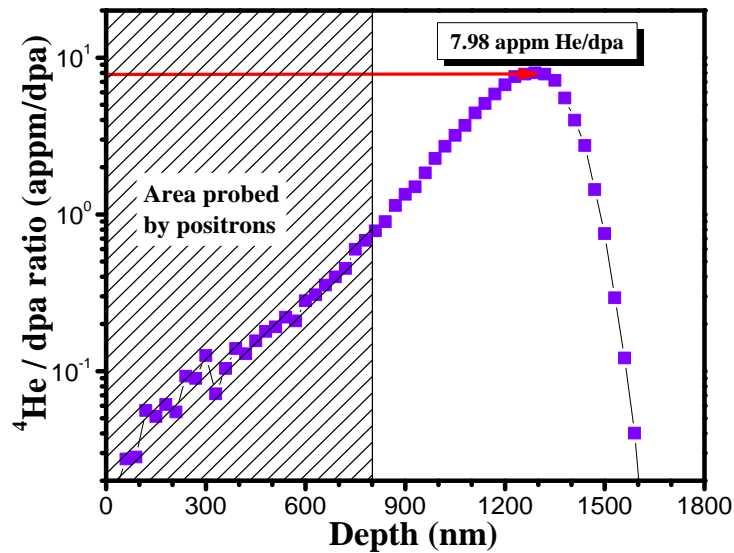


Figure IV.16 : Le ratio $^4\text{He}/\text{dpa}$ en fonction de la profondeur obtenue pour les deux conditions de faisceau : W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, selon les calculs SRIM.

IV.2.3. Défauts induits à 128 K

IV.2.3.1. Résultats

La **Figure IV.17** présente les caractéristiques d'annihilation des échantillons de tungstène Goodfellow et EFDA (préalablement polis et recuits à 1873 K pendant 1 heure sous vide) irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV à la fluence à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et avec des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à la température de 128 K.

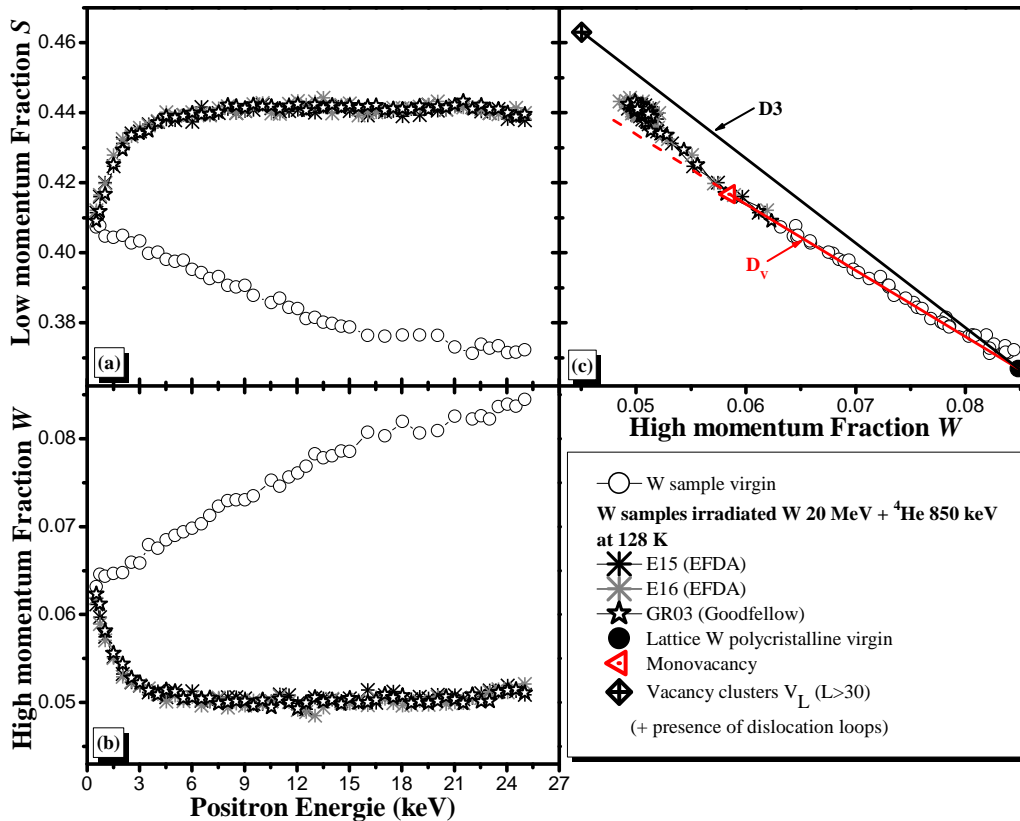


Figure IV.17 : Caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E. (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E. (c) Les points S en fonction de W.

Les profils $S(E)$ et $W(E)$, respectivement **Figure IV.17.a** et **Figure IV.17.b**, sont identiques pour les trois échantillons de tungstène (Goodfellow, EFDA) et présentent un plateau pour les énergies de positons entre 6-25 keV. De plus, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont au-dessus (resp. en-dessous) de ceux de l'échantillon vierge. Les points (S,W) , **Figure IV.17.c**, de tous les échantillons de tungstène irradiés se regroupent pratiquement au même endroit. Cela suggère que dans les trois échantillons irradiés les positons détectent des défauts lacunaires dont la concentration et/ou la taille paraissent similaires.

De plus, les points (S,W) sont placés au-dessus du point (S_v, W_v) , ils se positionnent au-dessus de la droite D_v caractéristique de la monovacune de tungstène et en dessous de la droite D3, pour les énergies de positons comprises entre 6-25 keV. Cela indique que la taille

des défauts lacunaires détectés dans les échantillons irradiés est supérieure à celle de la monolacune de tungstène (v).

IV.2.3.2. Discussions

Dans ce paragraphe, nous comparons les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV + ^4He 850 keV respectivement à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K et les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés uniquement avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ à 91 K (voir **Figure IV.18**).

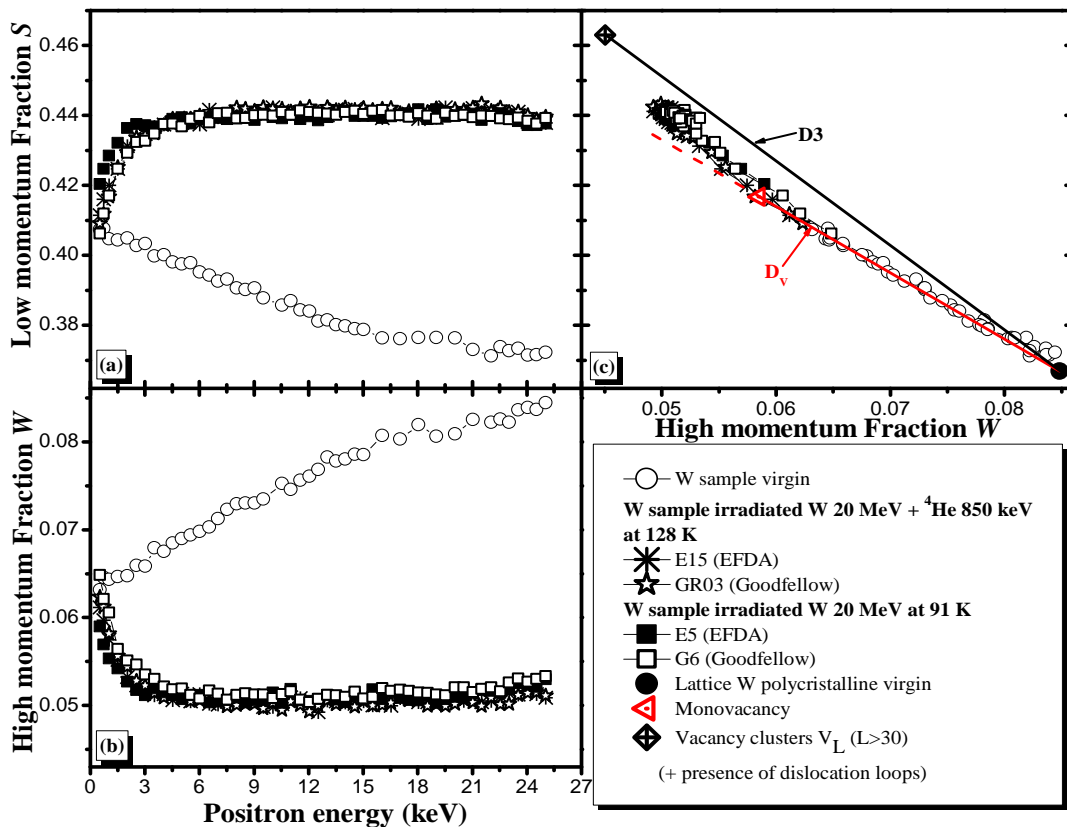


Figure IV.18 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément à 128 K avec des ions W 20 MeV la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à 91 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E. (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E. (c) Les points S en fonction de W.

Nous constatons que les profils $S(E)$ et $W(E)$ et les points (S,W) sont quasi-superposés. Cela signifie que la distribution en termes de concentration et/ou de taille des défauts lacunaires détectés dans la région sondée par les positons (entre 0-800 nm) sont semblables pour les deux conditions d'irradiations.

Comme nous l'avons vu au Chapitre III, pour des irradiations uniquement avec des ions W. Des petits amas lacunaires se sont formés pendant l'irradiation simultanée avec des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow). De plus,

nous n'observons pas de différences des caractéristiques d'annihilation de positons entre les échantillons EFDA et Goodfellow, de ce fait nous supposons que les échantillons EFDA et Goodfellow présentent la même distribution de défauts lacunaires (petits amas lacunaires) après l'irradiation simultanée. Nous pouvons dire que la différence de microstructure entre les échantillons EFDA et Goodfellow ne jouent aucun rôle dans la formation et la distribution des défauts lacunaires dans le tungstène, ou que les positons n'y sont pas sensibles.

En outre, le ratio He/dpa qui varie entre 0.03 et 0.80 appm He/dpa (avec une valeur moyenne de 0.22 appm He/dpa) dans la région sondée par les positons est probablement trop faible pour voir une réelle différence sur les caractéristiques d'annihilation mesurées pour les deux conditions d'irradiations ou la Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS) n'est pas assez sensible pour détecter de petits changements dans la distribution des défauts lacunaires en présence d'une faible concentration d'hélium. Comme nous avons pu le voir au Chapitre III le recuit des échantillons peut mettre en évidence des différences non détectables juste après irradiation.

IV.2.4. Evolution de la nature des défauts en fonction de la profondeur et du ratio He/dpa

Afin de pouvoir étudier l'influence de l'évolution du ratio He/dpa sur la nature des défauts lacunaires induits dans les échantillons de tungstène irradiés simultanément par des ions W 20 MeV + ^4He 850 keV, nous avons effectué un décapage électrolytique pour étudier la région profonde située environ entre 600-1400 nm où ce ratio He/dpa est plus élevé.

IV.2.4.1. Conditions expérimentales : décapage électrolytique et simulation SRIM

Pour réaliser cette expérience, nous avons effectué un décapage électrolytique sur l'échantillon de tungstène E15 (irradié simultanément à 128 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$). Les conditions de décapage utilisées sont celles décrites dans le **Chapitre II, section II.3.1, page 55**. Le temps de décapage était environ de 40 s. L'épaisseur décapée sur l'échantillon E15 est de 630 nm. La mesure de l'épaisseur décapée a été effectuée à l'aide du profilomètre du CRMD.

La **Figure IV.19**, présente la variation du ratio He/dpa en fonction de la profondeur obtenue à l'aide de SRIM, pour la condition d'irradiation simultanée avec les ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. Après le décapage électrolytique de l'échantillon sur 630 nm, le ratio He/dpa dans la nouvelle région sondée par les positons (630-1430 nm) varie de 0.3 appm He/dpa (630 nm) à 7.98 appm He/dpa (1300 nm) puis décroît à 4 appm He/dpa (1430 nm). La valeur moyenne du ratio He/dpa dans la région comprise entre 630-1430 nm est de 3.41 appm He/dpa.

Notons que dans cette région, la concentration d'hélium est en moyenne 10 fois plus importante que celle prévue dans les conditions dans le réacteur DEMO.

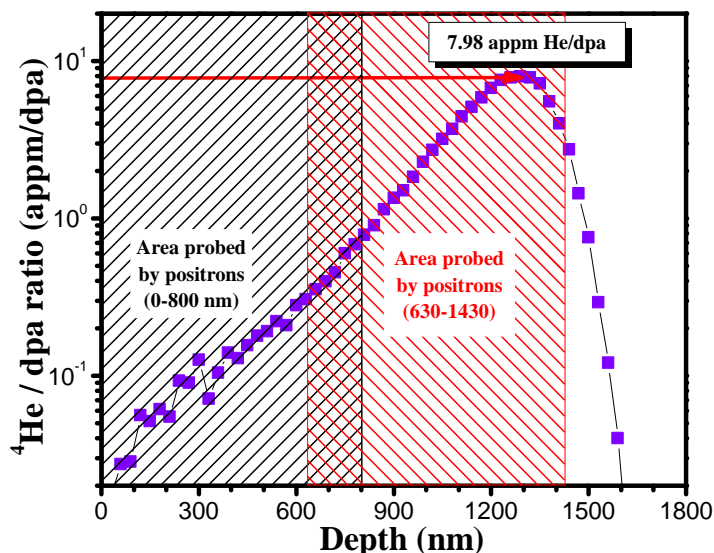


Figure IV.19 : Le ratio ${}^4\text{He}/\text{dpa}$ en fonction de la profondeur obtenue pour les deux conditions de faisceau : W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et ${}^4\text{He}$ 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. La région barrée en rouge est celle qui sera caractérisée par PAS dans l'échantillon décapé sur 630 nm d'épaisseur.

IV.2.4.2. Résultats et discussions

La Figure IV.20, montre les caractéristiques d'annihilation S et W , avant et après décapage électrolytique sur 630 nm d'un échantillon de tungstène EFDA irradié simultanément à 128 K avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (échantillon E15, voir les conditions d'irradiations dans le Tableau IV.6).

Les profils $S(E)$ (Figure IV.20.a) et $W(E)$ (Figure IV.20.b) après décapage présentent un plateau entre 3-25 keV. De plus, ils sont quasi-superposés à ceux de l'échantillon avant décapage entre 6-25 keV. Cela suggère que la concentration et /ou la taille des défauts lacunaires détectés dans l'échantillon E15 avant ou après décapage sont similaires. De plus, les points (S, W) de l'échantillon E15 avant et après décapage se regroupent pratiquement au même endroit pour les énergies de positons comprises entre 6-25 keV. Cela indique que la taille moyenne des défauts lacunaires détectés avant et après décapage semble être identique.

Cependant, pour les faibles énergies de positons (0.5-6 keV), nous remarquons que les valeurs de S (resp. W) mesurées près de la surface de l'échantillon irradié E15 après décapage sont plus élevées (resp. plus faibles) que celles de l'échantillon irradié E15 avant décapage. En effet le décapage change les caractéristiques d'annihilation de la surface, comme nous l'avons déjà observé au Chapitre III, section III.2.3.2.2, page 115.

Les données expérimentales de l'échantillon E15 avant et après décapage ont été modélisées à l'aide du logiciel VepFit avec une structure à une seule couche homogène et les résultats des valeurs de S et W calculées, la longueur de diffusion effective (L_{eff}^+), sont résumées dans le Tableau IV.7.

La longueur de diffusion effective est de 2.19 ± 1 nm pour l'échantillon irradié et non décapé et est de 2.07 ± 1 nm après décapage. De plus, les valeurs calculées de S_{Bulk} (resp. W_{Bulk}) de l'échantillon irradié puis décapé ou non sont très proches (voir **Tableau IV.7**). Nous pouvons dire qu'il n'y a pas de différence notable de concentration et/ou de taille des défauts lacunaires détectés dans l'échantillon E15 avant ou après décapage puisque leur longueur de diffusion effective est très proche. D'une manière plus explicite, l'augmentation du ratio He/dpa (en moyenne 10 fois plus élevé) n'a pas d'effets notables sur les caractéristiques d'annihilation de positons S et W .

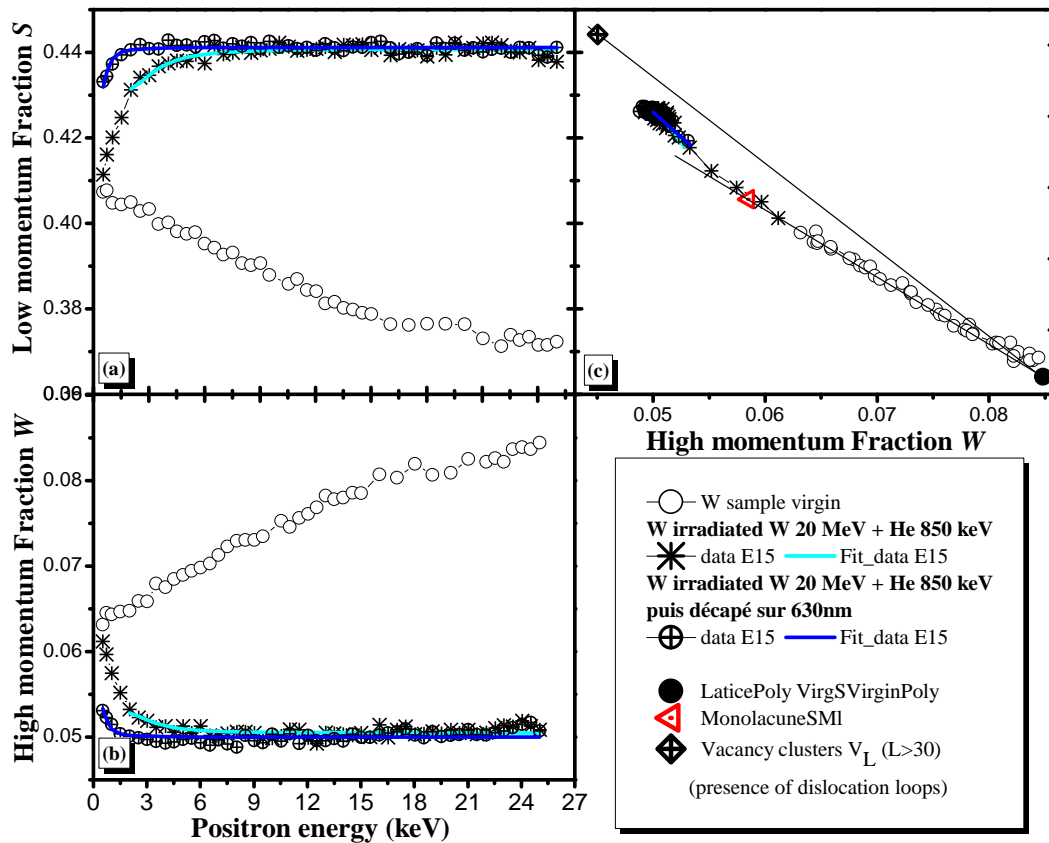


Figure IV.20 : Caractéristiques d'annihilation de positons avant et après décapage sur 630 nm d'épaisseurs d'un échantillon de tungstène EFDA irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W .

Echantillon	Surface		Couche 1 (Bulk)		
	S_{surf}	W_{surf}	S_{bulk}	W_{bulk}	L_{eff}^+ (nm)
W irradié W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (avant décapage)	0.417 ± 0.002	0.0563 ± 0.0006	0.4407 ± 0.0002	0.05049 ± 0.00006	2.19 ± 1.00
W irradié W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (Après décapage sur 630 nm)	0.433 ± 0.002	0.0531 ± 0.0009	0.4412 ± 0.0001	0.04999 ± 0.00005	2.07 ± 1.00

Tableau IV.7 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation avant et après décapage sur 630 nm d'un échantillon de tungstène E15 irradié simultanément par des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.

IV.2.5. Influence de la température de recuit sur l'évolution des défauts lacunaires en présence ou non d'hélium

Dans cette section, nous nous sommes intéressés à l'étude de l'influence de la température de recuit sur l'évolution des défauts lacunaires induits en présence d'hélium dans un échantillon de tungstène EFDA (E15) où le ratio He/dpa est le plus élevé (région profonde). La région profonde de l'échantillon E15 a été précédemment caractérisée par PAS (voir **section IV.2.4.1, page 189** et **IV.2.4.2, page 190**). Les résultats PAS des recuits de l'échantillon E15 seront comparés à ceux d'un échantillon de tungstène Goodfellow (GR03) irradié uniquement avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis décapé sur 800 nm. Les conditions expérimentales et les résultats PAS de l'échantillon GR03 après décapage ont déjà été détaillés au **Chapitre III, section III.2.3.1, page 112** et **section III.2.3.2.2, page 115**.

IV.2.5.1. Résultats et discussions

La **Figure IV.21**, présente les profils $S(E)$ et la courbe $S(W)$ mesurés à différentes températures de recuits (723 K, 1523 K et 1623 K) pour un échantillon de tungstène EFDA (E15) irradié simultanément avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K puis décapés sur 630 nm et un échantillon de tungstène Goodfellow (GR03) irradié uniquement avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ à 91 K puis décapé sur 800 nm.

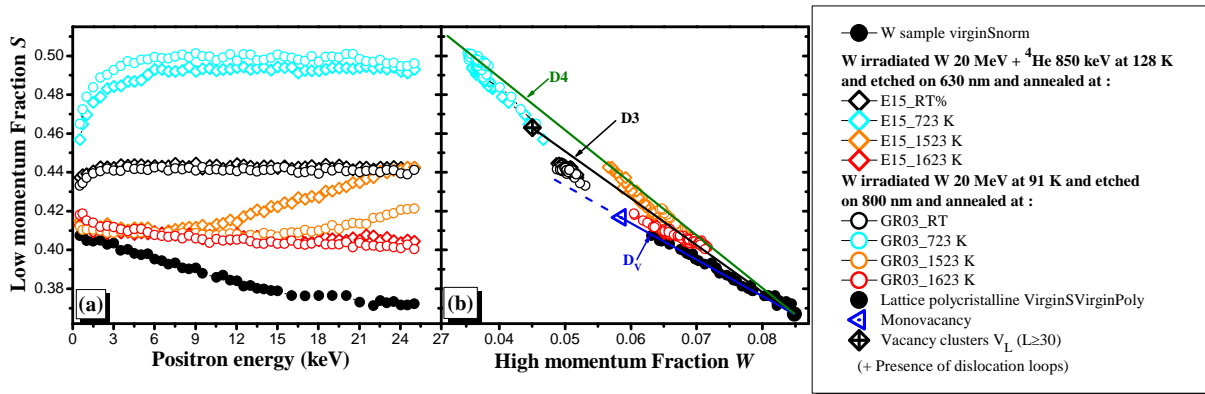


Figure IV.21 : Caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans un échantillon de tungstène EFDA irradiés à 128 K simultanément avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, puis décappé sur 630 nm et recuit à différentes températures et dans un échantillon de tungstène Goodfellow irradiés à 91 K avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis décappé sur 800 nm et recuit à différentes températures. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E. (b) Les points S en fonction de W.

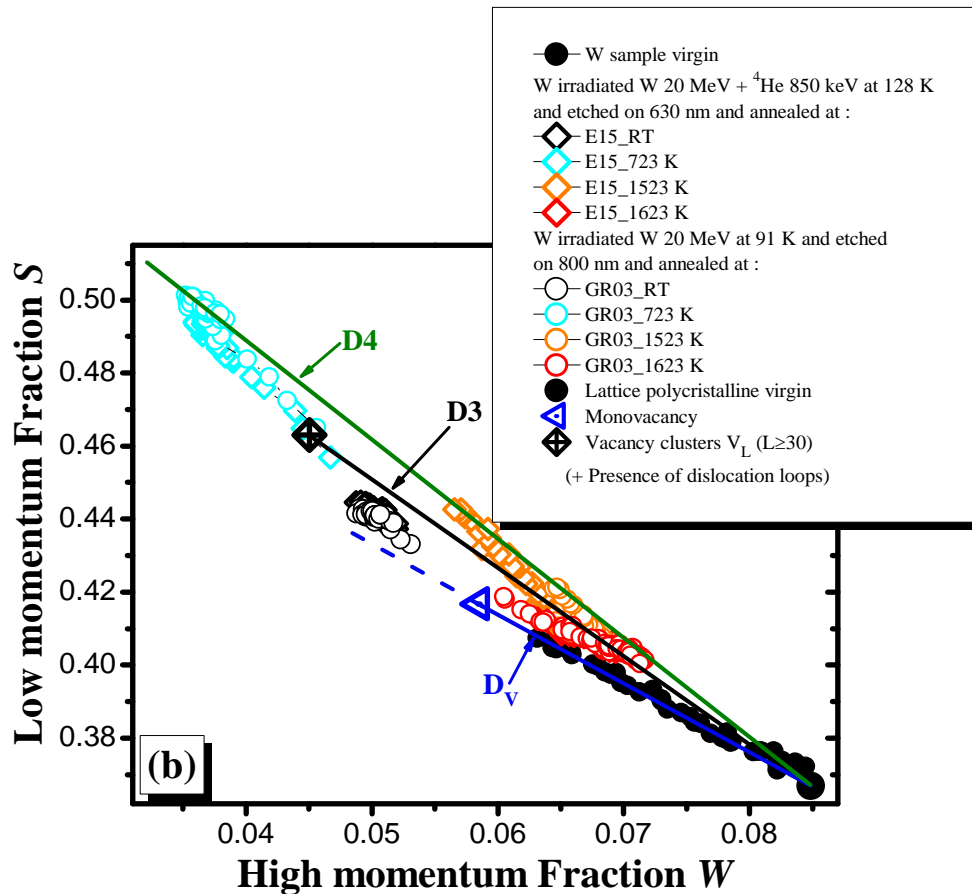


Figure IV.22 : Agrandissement de la Figure IV.21.b.

Après décappage, les profils $S(E)$ présentent pratiquement un plateau entre 3 keV et 25 keV et sont quasi-superposés pour les deux échantillons (E15 et GR03). Les points $S(W)$ se regroupent pratiquement au même endroit. Cela suggère que la concentration et la taille des

défauts lacunaires détectés par les positons dans les deux échantillons en présence ou non d'hélium paraissent équivalentes.

Après le recuit à 723 K, les profils $S(E)$ présentent aussi un plateau entre 3 keV et 25 keV, et passent au-dessus de ceux obtenus avant recuit pour les deux échantillons (E15 et GR03). De plus, nous pouvons observer que le profil $S(E)$ de l'échantillon E15 est légèrement inférieur à celui de l'échantillon GR03, indiquant que la concentration et/ou la taille des défauts dans l'échantillon E15 est légèrement plus faible que celle de l'échantillon GR03. Les points $S(W)$ se décalent vers le haut et vers la droite D4, et se positionnent très légèrement en-dessous de D4 pour l'échantillon E15 et sur D4 pour l'échantillon GR03. Cela signifie que la taille moyenne des défauts lacunaires a augmenté après le recuit à 723 K dans les deux échantillons et à tendance à être légèrement plus petite dans le cas de l'échantillon E15 comparée à celle mesurée dans l'échantillon GR03. Cette différence pourrait être liée à la présence d'une concentration d'hélium qui peut être piégé et s'agglomérer avec les défauts lacunaires pour former des défauts complexes de type $n\text{He-mv}$, comme cela a été démontré par calcul OKMC [55, 59]. Ainsi le volume libre moyen des défauts détectés dans l'échantillon E15 pourrait être plus faible que celui mesuré dans l'échantillon GR03 qui ne contient pas d'hélium.

En poursuivant le recuit à une température plus élevée (1523 K), nous observons que l'allure des courbes $S(E)$ change et ne présente plus de plateau (tendance croissante) comme nous l'avons déjà observé au **Chapitre III**. Les courbes $S(E)$ passent en-dessous de celles des échantillons irradiés non recuits pour se rapprocher de celle de l'échantillon de tungstène vierge après recuit à 1623 K. Notons que les valeurs de S mesurées dans l'échantillon E15 sont plus élevées que celles mesurées dans l'échantillon GR03 entre 9-25 keV.

Pour les échantillons E15 et GR03 recuit à 1523 K, la position des points (S,W) dépend de l'énergie des positons. Les points se situent sur la droite D3 pour des faibles énergies de positons correspondant à des profondeurs sondées faibles et se déplacent vers la droite D4 quand l'énergie des positons augmente. Cela indique que la distribution des défauts lacunaires varie en fonction de la profondeur comme nous l'avons déjà observé au **Chapitre III**. La concentration et/ou la taille des défauts lacunaires est plus faible près de la surface à cause de la perte par diffusion des monolacunes vers la surface quand les amas lacunaires se dissocient. De plus même si l'allure des profils $S(E)$ mesurés dans les deux échantillons E15 et GR03 est similaire, les valeurs atteintes à 25 keV sont très différentes. $S(25\text{keV})$ est plus élevée dans l'échantillon irradié double faisceau W + He (E15) que dans celui irradié simple faisceau W (GR03). D'après la position des points (S,W) l'échantillon E15 contient une concentration plus importante d'amas lacunaires comparé à l'échantillon GR03.

Deux paramètres changent dans la mesure des échantillons E15 et GR03 :

- La présence de l'hélium
- L'épaisseur décapée, 630 nm pour E15 et 800 nm pour GR03

Or cette différence d'épaisseur correspond à des valeurs de dpa (calculées avant recuit) à la surface (après décapage) légèrement différentes et à des profils en fonction de la profondeur décalés de 170 nm (voir **Figure IV.23**).

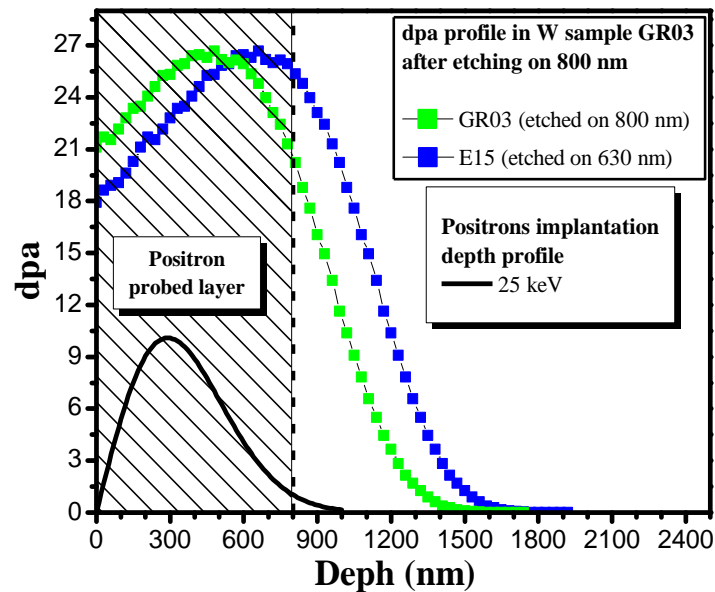


Figure IV.23 : Les profils de dpa (obtenus par SRIM) dans l'échantillon de tungstène E15 irradié en double faisceau (W 20 MeV +He 850 KeV) après décapage sur 630 nm et celui de l'échantillon GR03 irradié en simple faisceau (W 20 MeV) après décapage sur 800 nm. Le profil d'implantation des positrons d'une énergie de 25 keV est aussi tracé.

Donc pour une même énergie, on pourrait s'attendre à ce que les positons sondent une région avec une concentration de défauts plus importante dans l'échantillon GR03. En particulier ces différences devraient être plus grande près de la surface là où les valeurs de dpa se distinguent le plus. Les valeurs de S sont très proches dans cette région alors que les différences observées entre 10 et 25 keV suggèrent que la concentration des amas lacunaires est nettement supérieure pour l'échantillon E15 irradié en double faisceau.

Nous pouvons en conclure que la différence observée pour ces échantillons E15 et GR03 après décapage et recuit à pourrait être liée à la présence de l'hélium. Elle apparait essentiellement à partir d'une énergie de 9 keV soit dans la région où le ratio He/dpa devient supérieur à 1 appm He/dpa.

Pour le recuit à 1623 K, les profils $S(E)$ obtenus pour les échantillons E15 et GR03 sont pratiquement superposés jusqu'à 15 keV. Au delà de 15 keV, les valeurs de S sont supérieures pour l'échantillon E15. Pour les deux échantillons les points (S,W) évoluent en fonction de l'énergie et se décalent vers la droite D3 quand l'énergie augmente. Pour l'échantillon E15, les points (S,W) restent sur la droite D3 quand l'énergie dépasse 15 keV, alors pour l'échantillon GR03 ils dépassent cette droite et tendent vers les valeurs (S_L, W_L) . Cela suggère que la taille des amas lacunaires est plus grande dans GR03 que dans E15. De plus la taille des amas obtenus après recuit à 1623 K est plus faible pour E15 et GR03 par rapport à ceux détectés après recuit à 1523 K. Cette différence de distribution en taille pourrait peut être s'expliquer par la présence de l'hélium dans ces amas lacunaires réduisant

leur volume libre apparent pour les positons. La concentration plus élevée dans l'échantillon contenant de l'hélium pourrait être dû à la grande stabilité des complexes nHe-mv par rapport aux amas lacunaire mv.

IV.2.5.2. Conclusions

Dans cette section, l'étude du comportement en température des défauts lacunaires induits dans la zone des cascades par irradiation avec des ions W 20 MeV en présence ou non d'hélium dont le ratio He/dpa varie entre 0.3-7.98 appm He/dpa, montre que l'hélium joue un rôle dans la migration, l'agglomération et l'élimination des défauts lacunaires. La taille et la concentration des amas lacunaires formés au cours de la phase de migration/agglomération des défauts à tendance à être plus faible quand l'hélium est présent dans l'échantillon. L'élimination à haute température des amas lacunaires formés jusqu'à 1523 K est relativement plus difficile pour l'échantillon contenant l'hélium. Mais après le recuit à 1623 K, l'effet de la présence de l'hélium dans les défauts restant ne permet pas de conclure sur leur taille / concentration.

Il serait intéressant de continuer les recuits à des températures plus élevées et ensuite faire des mesures PAS entre chaque recuit. Cela nous permettrait de comparer l'évolution de la distribution des défauts présente dans les deux échantillons E15 (irradié W 20 MeV + ^4He 850 keV) et GR03 (irradiés W 20 MeV) après recuit à très haute température (1723-2173 K). De plus des observations MET sont indispensables pour vérifier la taille et la densité des amas lacunaires après recuits.

IV.2.6. Evolution des défauts lacunaires en présence d'hélium en fonction de la température d'irradiation

La **Figure IV.24**, compare les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à la température de 128 K, 673 K et 873 K, simultanément avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ${}^4\text{He}$ 850 keV $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (voir **Tableau IV.6**).

Les profils $S(E)$ (**Figure IV.24.a**) et $W(E)$ (**Figure IV.24.b**) sont quasi-superposés, dans le cas des échantillons (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément avec des ions W + ${}^4\text{He}$ à la température de 673 K et respectivement à 873 K. Cela signifie que la concentration et/ou la taille des défauts lacunaires détectés par les positons dans les deux lots de trois échantillons sont très similaires. De plus, les profils $S(E)$ (resp. $W(E)$) sont au-dessus (resp. en-dessous) de ceux des échantillons irradiés simultanément par des ions W + ${}^4\text{He}$ à 128 K. Cela suggère que la concentration et/ou la taille des défauts lacunaires détectés par les positons dans les échantillons irradiés à 673 K et 873 K sont plus grandes que celles détectés dans les échantillons irradiés à 128 K.

En outre, les points (S,W) (**Figure IV.24.c**) des échantillons irradiés simultanément par des W + He à 673 K et 873 K sont au-dessus et se décalent vers la droite comparés à ceux mesurés dans les échantillons irradiés à basse température (128 K). De plus, les points (S,W) des échantillons irradiés à 673 K et 873 K, sont au-dessus de la droite D3, ce qui signifie que la distribution moyenne en terme de taille des défauts lacunaires détectés dans les échantillons irradiés à 673 K et 873 K est plus grande que celle qui a été identifiée au point $(v_L + A)$, étant un mélange de défauts lacunaires de type v_L (avec $L \geq 30$) en présence de boucle de dislocation [1]. Nous pouvons dire que la taille moyenne des amas lacunaires tend vers une valeur plus grande lorsque les irradiations ont été effectuées à 673 K et 873 K comparé à celles réalisées à plus basse température (128 K). Cela peut être expliqué par le phénomène de migration des défauts lacunaires qui peut se produire à une température plus basse que 673 K, tel que démontré dans le **chapitre III, section III.3**. Ce phénomène de migration peut engendrer l'agglomération des défauts lacunaires entre eux, pour former de plus gros défauts.

Dans le cas des échantillons irradiés simultanément par des ions W + ${}^4\text{He}$ à la température de 873 K, nous observons que les points (S,W) sont décalés vers la droite par rapport aux irradiations à 673 K, et se trouvent pratiquement sur la droite D4. Cela signifie que la taille moyenne des défauts lacunaires détectés par les positons dans les échantillons irradiés à 873 K est légèrement plus grande que ceux détectés dans les échantillons irradiés à 673 K, par contre la concentration des défauts lacunaires est légèrement plus faible dans le cas des échantillons irradiés à 873 K comparée à celle des échantillons irradiés à 673 K.

En outre, nous pouvons constater que la taille moyenne des amas lacunaires détectés par les positons dans les échantillons irradiés simultanément par des ions W 20 MeV + ${}^4\text{He}$ 850 keV à la température de 673 K et 873 K sont différentes de celles détectée dans les échantillons irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuits à la température de 623 K et 823 K, comme cela a déjà été observé au Chapitre III quand les échantillons ne contiennent pas d'hélium. Il serait utile de poursuivre ce travail en mesurant

les caractéristiques d'annihilation des positons dans les échantillons irradiés double faisceau W + He en température après décapage pour investiguer la région où le rapport He/dpa est plus grand.

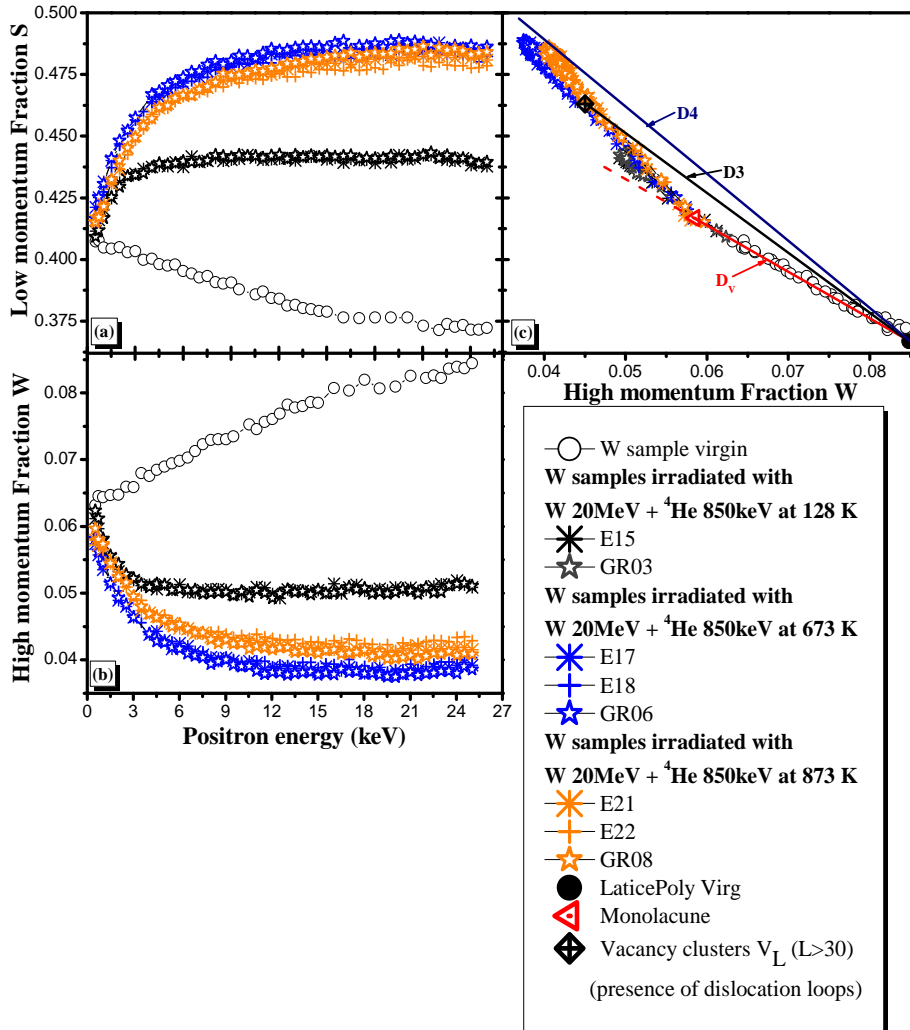


Figure IV.24 : Caractéristiques d'annihilation de positons des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à la température 128 K, 673 K et 873 K, simultanément avec W 20 MeV + ⁴He 850 keV. Pour chaque température d'irradiation, la fluence des ions W 20 MeV et ⁴He 850 keV sont approximativement de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, respectivement. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E. (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E. (c) Les points S en fonction de W.

IV.2.7. Conclusions du chapitre IV

Dans cette partie, nous avons voulu étudier l'interaction entre les défauts lacunaires en présence d'hélium. Nous avons observé que la faible concentration d'hélium en présence de petits amas lacunaires (0.03-0.80 appm He/dpa) n'a pas d'influence visible sur la concentration et la taille des défauts lacunaires détectés par PAS. De plus, même dans la région où le ratio He/dpa est en moyenne 10 fois plus élevé (0.3-7.98 appm He/dpa) les caractéristiques d'annihilation *S* et *W* restent pratiquement inchangées.

Nous avons pu constater que des différences apparaissent lorsque les échantillons sont recuits. L'effet de la présence d'hélium conduit à la formation d'amas lacunaires plus gros et avec une plus grande concentration à 1523 K. Une fraction de l'hélium reste piégé dans ces amas jusqu'à 1623 K.

Ensuite, pour les rapports He/dpa très faibles induits par implantation simultanée d'ions de W 20 MeV et de ^4He 850 keV, lorsque les échantillons sont irradiés à 673 K et à 873 K, des amas lacunaires de grande taille sont détectés par PAS. Cette agglomération est probablement due à la migration de la monolacune de tungstène (≥ 473 K) et/ou de petits amas lacunaires qui sont créés dans des cascades de collision induits par les ions incidents (W 20 MeV et ^4He 850 keV).

Cette étude pourrait se poursuivre par la réalisation d'autres irradiations simultanées avec des ions W et ^4He à JANNuS, qui seraient effectuées à plus hautes températures pour être au plus proche possible des conditions de température que subit le divertor d'ITER. Il serait intéressant d'étudier la région à partir de 800 nm de profondeur afin de sonder la distribution des défauts lacunaires présente pour un ratio He/dpa plus élevé. Pour réaliser ces expériences, il faudra mesurer les caractéristiques d'annihilation dans les échantillons irradiés après décapage électrolytique sur les 800 premiers nanomètres. Enfin, des expériences MET à différentes profondeurs dans la zone irradiée viendront compléter les études de PAS.

V. Conclusions générale et perspectives

Ce travail de thèse a été mené dans le but de réaliser des investigations expérimentales pour extraire des données fondamentales sur les propriétés des défauts lacunaires et de l'hélium dans le tungstène.

Pour étudier les défauts lacunaires induits par irradiation en présence ou non d'hélium dans le tungstène, nous avons principalement utilisé la Spectroscopie d'Annihilation des Positons par Elargissement Doppler (DB-PAS) mise en œuvre grâce à l'accélérateur de positons lents du CEMHTI. Nous avons également utilisé la Microscopie Electronique à Transmission (MET) pour obtenir des informations complémentaires (données quantitatives) telles que la densité et la taille des défauts étendus.

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à la caractérisation des différents lots d'échantillons de tungstène à notre disposition : EFDA et Goodfellow. Après le traitement thermique à 1873 K pendant une heure sous vide, nous avons constaté que la majeure partie des défauts natifs liés à la fabrication ont été éliminés. De plus, il n'y a pas de différence notable entre les deux lots d'échantillons après le traitement thermique. Ainsi, vis-à-vis de la technique PAS, les deux lots d'échantillons recuits à haute température peuvent être considérés comme vierges et ont permis de réaliser des caractérisations cohérentes des défauts engendrés par irradiation/implantation.

Dans le chapitre 3, l'étude s'est portée sur l'identification de la nature des défauts lacunaires induits par les ions lourds (W 20 MeV, Fe 10 MeV) dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow). Les ions W (ou Fe) incidents ont été choisis pour simuler l'endommagement induit par les atomes de recul qui pourraient être générés au cours des irradiations neutroniques dans les réacteurs à fusion. Une large gamme de conditions d'irradiations a été appliquée, à savoir la nature des ions incidents, l'énergie des ions incidents, la fluence et la température d'irradiation/d'implantation.

Nous avons pu constater par PAS, en comparant les irradiations réalisées à dose égale avec des ions W 20 MeV et ^3He 800 keV, que la nature des défauts lacunaires dépend non seulement de la dose mais aussi de l'énergie des PKA générés par l'ion incident. La formation de petits amas lacunaires est observée dans les échantillons de tungstène irradiés avec les ions W 20 MeV, lorsque l'énergie des PKA est importante, et même à faible dpa. De plus, ces irradiations aux ions lourds montrent clairement la formation de petits amas lacunaires dès 0.1 dpa et jusqu'à 12 dpa. La saturation des signaux positons est atteinte à partir de 0.56 dpa. Cette saturation correspond à une distribution de défauts qui peut être différente comme les recuits peuvent le mettre en évidence.

Le suivi du comportement des défauts lacunaires en fonction de la température de recuit met en évidence différents stades d'évolution. Le stade d'agglomération des défauts lacunaires s'effectue entre 473-823 K dans le cas des irradiations W 20 MeV et entre 423-543 K dans le cas de l'irradiation Fe 10 MeV. Il est essentiellement lié à la migration des monolacunes dans le cas des irradiations Fe 10 MeV et des petits amas dans le cas des

irradiations W 20 MeV. De plus, dans ces derniers la taille moyenne des amas lacunaires formés est supérieure à celle atteinte par l'agglomération des monolacunes seules. A 723 K dans le cas de l'échantillon irradié Fe 10 MeV et à 1223 K dans le cas de l'échantillon irradié W 20 MeV, la concentration et la taille des gros amas lacunaires diminuent par dissociation. A 1923 K, les caractéristiques d'annihilation S et W sont proches de celles d'un échantillon vierge mais sans les atteindre. Des observations MET montrent la présence d'une densité non négligeable de cavités, dans l'échantillon irradié Fe 10 MeV et recuit à 1773 K.

L'analyse de la microstructure depuis la surface jusqu'à Rp a mis en évidence les effets liés à la proximité de la surface, en particulier la perte des monolacunes devenues mobiles par diffusion ou dissociation.

Les recuits révèlent la présence de défauts qui dépendent des conditions d'irradiation initiales. Il s'agit de monolacunes, d'amas lacunaires de type boucles lacunaires et d'amas 3D. Ils dépendent de la dose et de l'énergie des PKA, même si les caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons irradiés entre 0.56 dpa et 12 dpa sont semblables. Il y a formation de plus en plus importante de gros défauts lacunaires quand la dose et/ou l'énergie des PKA augmente.

Il a été également observé que lorsque la température d'irradiation est élevée, le phénomène de migration et d'agglomération et d'élimination des défauts lacunaires est déclenché, si cette température d'irradiation devient supérieure au seuil de ces processus. La concentration et la taille des défauts lacunaires sont plus élevées après un recuit pour la même que celle de l'irradiation en température. Cela est sûrement dû à la perte des monolacunes pendant l'irradiation quand la température est suffisante pour que ces défauts migrent vers la surface.

Le quatrième chapitre, porte sur l'étude par PAS, de la nature et du comportement des défauts lacunaires en présence d'hélium dans le tungstène.

Les implantations avec les ions ^4He 60 keV induisent dans le tungstène une distribution de défauts complexes de type $n\text{He}-m\text{v}$ dont la taille moyenne est inférieure à celle de la monolacune de tungstène, ainsi qu'une faible concentration de monolacunes v . Cette distribution varie en fonction de la fluence d'implantation, et elle tend vers une augmentation de la fraction des défauts complexes ($n\text{He}-m\text{v}$) quand la fluence augmente et correspond à une majorité de complexes He- v pour la faible fluence. De plus l'étude de l'évolution de la nature et de la distribution des défauts en fonction de la température de recuit révèle des différences selon le ratio $[\text{He}]/[v]$. Il s'avère que lorsque $[\text{He}]/[v]$ est proche de 1, le premier stade de recuit des défauts lacunaires (aux environs de 450K) est à peine visible en positons car il est masqué par la présence de l'hélium dans les défauts lacunaires. Pour un ratio $[\text{He}]/[v]$ supérieur à 1, un stade d'agglomération des défauts est clairement observé à partir de 1623 K. Dans le cas où ce ratio est inférieur à 1 l'agglomération est beaucoup moins efficace. Nous pouvons dire que le ratio $[\text{He}] / [v]$, est un paramètre très important qui peut modifier les intervalles de températures d'apparition des différents phénomènes : migration, agglomération et élimination.

Enfin nous avons étudié l'interaction des amas lacunaires avec l'hélium pour des rapports de He/dpa proches de ceux attendus dans le réacteur (DEMO) par irradiation / transmutation. Pour une gamme du rapport He/dpa allant de 0.03 à 8 appm/dpa, la signature positon après irradiation est similaire à celle mesurée dans des échantillons seulement endommagé dans des conditions équivalentes mais sans introduire de l'hélium. Par contre, pour les échantillons irradiés et décapés d'environ 700 nm et donc l'investigation de rapports variant de 0.3 à 8 appm He/dpa, les recuits révèlent des différences de distribution en taille et en concentration des défauts lacunaires. D'une part, la présence d'hélium dans les amas lacunaires modifie les caractéristiques d'annihilation des positons. D'autre part, la présence d'hélium et la formation de complexes nHe-mv favorisent la stabilisation des amas lacunaires.

En perspectives

Dans ce travail nous avons vu que la Spectroscopie d'Elargissement Doppler est une technique très puissante capable de sonder des défauts lacunaires de très petite taille bien inférieure au nm en fonction de la profondeur près de la surface. Cependant cette technique donne une information globale sur la nature de ces défauts et il peut être difficile de distinguer des défauts qui présentent des signatures équivalentes comme c'est le cas des monolacunes et probablement des boucles lacunaires par exemple. La mesure du temps de vie des positons pourrait aider à lever certaines de ces incertitudes. Elle pourrait en particulier permettre de quantifier la fraction des défauts présents. Nous avons pu constater tout au long de ce travail que les observations MET donnent des informations complémentaires très intéressantes (taille, densité, nature) sur les défauts de taille nanométrique. Elle présente cependant la difficulté liée à la préparation des lames minces de qualité en particulier dans le tungstène.

Tout au long de chaque chapitre nous avons précisé les expériences pertinentes qui seraient intéressantes d'entreprendre pour compléter ce travail.

En ce qui concerne les études reportées au **Chapitre III**, il serait important de faire des mesures de temps de vie des positons afin de déterminer la taille et la fraction des amas lacunaires induits dans les échantillons de tungstène par irradiations aux ions lourds à fort dose (dpa). De plus de nouvelles conditions d'irradiation avec des ions lourds à des fluences moyennes nous permettraient de pouvoir déterminer la dose à partir de laquelle la saturation de piégeage des positons est atteinte. Par ailleurs, il serait capital de compléter ces caractérisations avec des analyses MET pour déterminer la population des autres défauts tels que les boucles lacunaires ou interstitielles et la densité des cavités générées. Des expériences de MET in situ sous irradiation permettraient d'étudier l'endommagement au fur et à mesure de l'accumulation de dose. De plus, il serait aussi intéressant de calculer les valeurs des énergies de migration et de dissociation des amas lacunaires et de modéliser ces expériences avec des codes tels que la dynamique des clusters.

Dans le **Chapitre IV**, dans le cas des implantations He 60 keV, il serait également intéressant de réaliser des observations à l'aide d'un Microscope Electronique à

Transmission, dans le but d'obtenir des compléments d'informations sur les défauts existants à haute température de recuit. De plus ce travail expérimental devrait être complété par des simulations OKMC sur la base de la paramétrisation déjà engagée en collaboration avec C. Becquart.

Enfin, cette étude pourrait se poursuivre par la réalisation à JANNuS d'irradiations simultanées par des ions W et ^4He , effectuées à des températures plus élevées pour se rapprocher des conditions du divertor d'ITER. Il faudrait tout particulièrement étudier par PAS la région à partir de 800 nm de profondeur afin de sonder la distribution des défauts lacunaires présents pour un ratio He/dpa plus élevé. Pour réaliser ces expériences, il faudrait mesurer les caractéristiques d'annihilation dans les échantillons irradiés après décapage électrolytique sur les 800 premiers nanomètres. Enfin, il est indispensable de compléter ces caractérisations PAS par des expériences de MET pour des conditions d'intérêt identifiées au cours de ces études PAS. Elles devraient permettre de vérifier la présence de défauts étendus et de quantifier leur densité à différentes profondeurs dans la zone irradiée dans différentes conditions et en fonction de la température de recuit.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] P.E. Lhuillier, Etude du comportement de l'hélium et des défauts lacunaires dans le tungstène, in, Université d'Orléans, Orléans, 2010, pp. 99-132.
- [2] J. Dietz, T. The Iter Joint Central, The Iter fusion experiment, *Vacuum*, 47 (1996) 911-918.
- [3] K. Tokimatsu, J.i. Fujino, S. Konishi, Y. Ogawa, K. Yamaji, Role of nuclear fusion in future energy systems and the environment under future uncertainties, *Energy Policy*, 31 (2003) 775-797.
- [4] R. Toschi, Nuclear fusion, an energy source, *Fusion Engineering and Design*, 36 (1997) 1-8.
- [5] K. Fiore, Nuclear energy and sustainability: Understanding ITER, *Energy Policy*, 34 (2006) 3334-3341.
- [6] M. Zucchetti, A. Ciampichetti, Fusion reactor radioactive materials and national waste management regulations, *Journal of Nuclear Materials*, 329–333, Part B (2004) 1653-1658.
- [7] J.M.-t.V. S. Atzeni, *The Physics of Inertial Fusion*, Oxford University Press, (Oxford (2004)).
- [8] M.L. André, The French Megajoule Laser Project (LMJ), *Fusion Engineering and Design*, 44 (1999) 43-49.
- [9] N. Fleurot, C. Cavailler, J.L. Bourgade, The Laser Mégajoule (LMJ) Project dedicated to inertial confinement fusion: Development and construction status, *Fusion Engineering and Design*, 74 (2005) 147-154.
- [10] U. von Möllendorff, Ignition facility reaction chamber concepts, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 415 (1998) 200-203.
- [11] E.I. Moses, Advances in inertial confinement fusion at the National Ignition Facility (NIF), *Fusion Engineering and Design*, 85 (2010) 983-986.
- [12] A.G.R. Thomas, M. Tzoufras, A.P.L. Robinson, R.J. Kingham, C.P. Ridgers, M. Sherlock, A.R. Bell, A review of Vlasov–Fokker–Planck numerical modeling of inertial confinement fusion plasma, *Journal of Computational Physics*, 231 (2012) 1051-1079.
- [13] A. Weller, Diagnostics for magnetic confinement fusion research, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 623 (2010) 801-805.
- [14] D.v. Houtte, G. Martin, A. Bécoulet, J. Bucalossi, G. Giruzzi, G.T. Hoang, L. Th. B. Saoutic, T. the Tore Supra, Recent fully non-inductive operation results in Tore Supra with 6 min, 1 GJ plasma discharges, *Nuclear Fusion*, 44 (2004) L11.

- [15] M. Keilhacker, Fusion physics progress on JET, *Fusion Engineering and Design*, 46 (1999) 273-290.
- [16] G. Janeschitz, Plasma-wall interaction issues in ITER, *Journal of Nuclear Materials*, 290-293 (2001) 1-11.
- [17] E. Magnani, F. Gabriel, L.V. Boccaccini, A. Li-Puma, DEMO relevance of the test blanket modules in ITER—Application to the European test blanket modules, *Fusion Engineering and Design*, 85 (2010) 1271-1278.
- [18] K. Kim, H.C. Kim, S. Oh, Y.S. Lee, J.H. Yeom, K. Im, G.-S. Lee, G. Neilson, C. Kessel, T. Brown, P. Titus, A preliminary conceptual design study for Korean fusion DEMO reactor, *Fusion Engineering and Design*, 88 (2013) 488-491.
- [19] P.H. Rebut, ITER: the first experimental fusion reactor, *Fusion Engineering and Design*, 30 (1995) 85-118.
- [20] L. Horton, The JET programme in support of ITER, *Fusion Engineering and Design*, 87 (2012) 625-629.
- [21] M. Merola, D. Loesser, A. Martin, P. Chappuis, R. Mitteau, V. Komarov, R.A. Pitts, S. Gicquel, V. Barabash, L. Giancarli, J. Palmer, M. Nakahira, A. Loarte, D. Campbell, R. Eaton, A. Kukushkin, M. Sugihara, F. Zhang, C.S. Kim, R. Raffray, L. Ferrand, D. Yao, S. Sadakov, A. Furmanek, V. Rozov, T. Hirai, F. Escourbiac, T. Jokinen, B. Calcagno, S. Mori, ITER plasma-facing components, *Fusion Engineering and Design*, 85 (2010) 2312-2322.
- [22] R.A. Pitts, A. Kukushkin, A. Loarte, A. Martin, M. Merola, C.E. Kessel, V. Komarov, M. Shimada, Status and physics basis of the ITER divertor, *Physica Scripta*, 2009 (2009) 014001.
- [23] A.S. Kukushkin, H.D. Pacher, V. Kotov, D. Reiter, D.P. Coster, G.W. Pacher, Effect of the dome on divertor performance in ITER, *Journal of Nuclear Materials*, 363-365 (2007) 308-313.
- [24] R. Tivey, T. Ando, A. Antipenkov, V. Barabash, S. Chiochio, G. Federici, C. Ibbott, R. Jakeman, G. Janeschitz, R. Raffray, M. Akiba, I. Mazul, H. Pacher, M. Ulrickson, G. Vieider, ITER divertor, design issues and research and development, *Fusion Engineering and Design*, 46 (1999) 207-220.
- [25] T. Hirai, F. Escourbiac, S. Carpentier-Chouchana, A. Fedosov, L. Ferrand, T. Jokinen, V. Komarov, A. Kukushkin, M. Merola, R. Mitteau, R.A. Pitts, W. Shu, M. Sugihara, B. Riccardi, S. Suzuki, R. Villari, ITER tungsten divertor design development and qualification program, *Fusion Engineering and Design*, 88 (2013) 1798-1801.
- [26] R. Causey, K. Wilson, T. Venhaus, W. R. Wampler, Tritium retention in tungsten exposed to intense fluxes of 100 eV tritons, *Journal of Nuclear Materials*, 266-269 (1999) 467-471.
- [27] D. Maisonnier, I. Cook, S. Pierre, B. Lorenzo, B. Edgar, B. Karin, D.P. Luigi, F. Robin, G. Luciano, H. Stephan, N. Claudio, N. Prachai, P. Aldo, T. Neill, W. David, The European power plant conceptual study, *Fusion Engineering and Design*, 75-79 (2005) 1173-1179.

- [28] M.R. Gilbert, S.L. Dudarev, D. Nguyen-Manh, S. Zheng, L.W. Packer, J.C. Sublet, Neutron-induced dpa, transmutations, gas production, and helium embrittlement of fusion materials, *Journal of Nuclear Materials*, 442 (2013) S755-S760.
- [29] A. Grosman, J. Bucalossi, L. Doceul, F. Escourbiac, M. Lipa, M. Merola, M. Missirlian, R.A. Pitts, F. Samaille, E. Tsitrone, The WEST programme: Minimizing technology and operational risks of a full actively cooled tungsten divertor on ITER, *Fusion Engineering and Design*, 88 (2013) 497-500.
- [30] T. Hirai, F. Escourbiac, S. Carpentier-Chouchana, A. Fedosov, L. Ferrand, T. Jokinen, V. Komarov, A. Kukushkin, M. Merola, R. Mitteau, R.A. Pitts, W. Shu, M. Sugihara, B. Riccardi, S. Suzuki, R. Villari, ITER tungsten divertor design development and qualification program, *Fusion Engineering and Design*.
- [31] S.W.H.W.C.T. Yih, *Tungsten : sources, metallurgy, properties, and applications*, Plenum Press, New York, 1979.
- [32] K.C.W.C. Li, *Tungsten, its history, geology, ore-dressing, metallurgy, chemistry, analysis, applications, and economics*, Reinhold Pub. Corp., New York, 1955.
- [33] P. Henri, *Propriétés du tungstène et de ses alliages*, Techniques de l'ingénieur Métaux et alliages, matériaux magnétiques et multimatériaux, base documentaire : TIB357DUO (1985).
- [34] C. Cagran, G. Pottlacher, M. Rink, W. Bauer, Spectral Emissivities and Emissivity X-Points of Pure Molybdenum and Tungsten, *International Journal of Thermophysics*, 26 (2005) 1001-1015.
- [35] R. Behrisch, V. Khripunov, R.T. Santoro, J.M. Yesil, Transmutation of plasma facing materials by the neutron flux in a DT fusion reactor, *Journal of Nuclear Materials*, 258–263, Part 1 (1998) 686-693.
- [36] P. Batistoni, U. Fischer, K. Ochiai, L. Petrizzi, K. Seidel, M. Youssef, Neutronics and nuclear data issues in ITER and their validation, *Fusion Engineering and Design*, 83 (2008) 834-841.
- [37] V. Khripunov, Oxides for D–T neutron yield measurements by activation techniques on fusion devices, *Fusion Engineering and Design*, 88 (2013) 1187-1191.
- [38] G. Kalinin, W. Gauster, R. Matera, A.A.F. Tavassoli, A. Rowcliffe, S. Fabritsiev, H. Kawamura, Structural materials for ITER in-vessel component design, *Journal of Nuclear Materials*, 233–237, Part 1 (1996) 9-16.
- [39] J.M. Steichen, Tensile properties of neutron irradiated TZM and tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 60 (1976) 13-19.
- [40] V. Barabash, G. Federici, M. Rödiger, L.L. Snead, C.H. Wu, Neutron irradiation effects on plasma facing materials, *Journal of Nuclear Materials*, 283–287, Part 1 (2000) 138-146.
- [41] V. Barabash, G. Federici, J. Linke, C.H. Wu, Material/plasma surface interaction issues following neutron damage, *Journal of Nuclear Materials*, 313–316 (2003) 42-51.

- [42] I.V. Gorynin, V.A. Ignatov, V.V. Rybin, S.A. Fabritsiev, V.A. Kazakov, V.P. Chakin, V.A. Tsykanov, V.R. Barabash, Y.G. Prokofyev, Effects of neutron irradiation on properties of refractory metals, *Journal of Nuclear Materials*, 191–194, Part A (1992) 421-425.
- [43] M.R. Gilbert, J.-C. Sublet, Neutron-induced transmutation effects in W and W-alloys in a fusion environment, *Nuclear Fusion*, 51 (2011) 043005.
- [44] G. Janeschitz, L. Boccaccini, W.H. Fietz, W. Goldacker, T. Ihli, R. Meyder, A. Moeslang, P. Norajitra, Development of fusion technology for DEMO in Forschungszentrum Karlsruhe, *Fusion Engineering and Design*, 81 (2006) 2661-2671.
- [45] M.W. Guinan, J.H. Kinney, Molecular dynamic calculations of energetic displacement cascades, *Journal of Nuclear Materials*, 104 (1981) 1319-1323.
- [46] Q. Xu, T. Yoshiie, H. Huang, Molecular dynamics simulation of vacancy diffusion in tungsten induced by irradiation, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*, B, 206 (2003) 123-126.
- [47] C.E. Klabunde, R.R. Coltman Jr, Fission neutron damage rates and efficiencies in several metals, *Journal of Nuclear Materials*, 108–109 (1982) 183-193.
- [48] Y. Iwamoto, K. Niita, T. Sawai, R.M. Ronningen, T. Baumann, Improvement of radiation damage calculation in PHITS and tests for copper and tungsten irradiated with protons and heavy-ions over a wide energy range, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 274 (2012) 57-64.
- [49] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, Defect production efficiency in metals under neutron irradiation, *Journal of Nuclear Materials*, 328 (2004) 197-214.
- [50] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. Debacker, Microstructure evolution of irradiated tungsten: Crystal effects in He and H implantation as modelled in the Binary Collision Approximation, *Journal of Nuclear Materials*, 403 (2010) 89-100.
- [51] J. Ziegler, J. Biersack, U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Pergamon, New York, 1985.
- [52] M.J. Attardo, J.M. Galligan, J.G.Y. Chow, Interstitial Removal in Stage-III Recovery of Neutron-Irradiated W, *Physical Review Letters*, 19 (1967) 73.
- [53] S. Okuda, H. Mizubayashi, Free Migration of Interstitials in Tungsten, *Physical Review Letters*, 34 (1975) 815-817.
- [54] D. Nguyen-Manh, A.P. Horsfield, S.L. Dudarev, Self-interstitial atom defects in bcc transition metals: Group-specific trends, *Physical Review B*, 73 (2006) 020101.
- [55] C.S. Becquart, C. Domain, Ab-initio calculations about intrinsic point defects and He in W, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 255 (2007) 23-26.
- [56] S.D. Kenny, A.P. Horsfield, H. Fujitani, Transferable atomic-type orbital basis sets for solids, *Physical Review B*, 62 (2000) 4899-4905.

- [57] L. Ventelon, F. Willaime, C.-C. Fu, M. Heran, I. Ginoux, Ab-initio investigation of radiation defects in tungsten: Structure of self-interstitials and specificity of di-vacancies compared to other bcc transition metals, *Journal of Nuclear Materials*, 425 (2012) 16-21.
- [58] M.S. José, A. Emilio, D.G. Julian, G. Alberto, J. Javier, O. Pablo, S.-P. Daniel, The SIESTA method for ab-initio order- N materials simulation, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 14 (2002) 2745.
- [59] C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. DeBacker, M. Hou, Microstructural evolution of irradiated tungsten: Ab-initio parameterisation of an OKMC model, *Journal of Nuclear Materials*, 403 (2010) 75-88.
- [60] K. Maier, M. Peo, B. Saile, H. Schaefer, A. Seeger, High-temperature positron annihilation and vacancy formation in refractory metals, *Philosophical Magazine A*, 40 (1979) 701-728.
- [61] F. Dausinger, H. Schultz, Long-Range Migration of Self-Interstitial Atoms in Tungsten, *Physical Review Letters*, 35 (1975) 1773-1775.
- [62] P.M. Derlet, D. Nguyen-Manh, S.L. Dudarev, Multiscale modeling of crowdion and vacancy defects in body-centered-cubic transition metals, *Physical Review B*, 76 (2007) 054107.
- [63] H. Tanimoto, H. Mizubayashi, H. Nishimura, S. Okuda, A study of self-interstitial atom in W by means of low-temperature irradiations, *Journal De Physique Iv*, 6 (1996) 285-288.
- [64] R.W. Balluffi, Vacancy defect mobilities and binding energies obtained from annealing studies, *Journal of Nuclear Materials*, 69-70 (1978) 240-263.
- [65] J.N. Mundy, S.T. Ockers, L.C. Smedskjaer, Vacancy migration enthalpy in tungsten at high temperatures, *Philosophical Magazine A*, 56 (1987) 851-860.
- [66] C.S. Becquart, C. Domain, An object Kinetic Monte Carlo Simulation of the dynamics of helium and point defects in tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 385 (2009) 223-227.
- [67] R.A. Johnson, Point-defect calculations for tungsten, *Physical Review B*, 27 (1983) 2014-2018.
- [68] W. Hu, X. Shu, B. Zhang, Point-defect properties in body-centered cubic transition metals with analytic EAM interatomic potentials, *Computational Materials Science*, 23 (2002) 175-189.
- [69] K.C. Mundim, L.A.C. Malbouisson, S. Dorfman, D. Fuks, J. Van Humbeeck, V. Liubich, Diffusion properties of tungsten from atomistic simulations with ab-initio potentials, *Journal of Molecular Structure: THEOCHEM*, 539 (2001) 191-197.
- [70] G. Amarendra, R. Rajaraman, S. Rajagopalan, R. Suzuki, T. Ohdaira, Influence of defect-impurity complexes on slow positron yield of a tungsten moderator: Positron annihilation, Auger, and SIMS study, *Physical Review B*, 69 (2004) 094105.
- [71] Y.J. Xu, Z.Q. Wang, J.Z. Zhu, T. Minamisono, K. Matsuta, Y.N. Zheng, D.M. Zhou, G.J. Xu, E.P. Du, Y.L. Fu, M. Fukuda, M. Mihara, S.Y. Zhu, Radiation effects in stainless steel

and tungsten for use in the ads spallation neutron source system, *Mod. Phys. Lett. B*, 17 (2003) 147-151.

[72] A. Balogh, I. Dezsi, Further Positrons Lifetimes of Some Elements, *Physics Status Solidii*, 81 (1977) K81.

[73] P.E. Lhuillier, M.F. Barthe, P. Desgardin, W. Egger, P. Sperr, Positron annihilation studies on the nature and thermal behaviour of irradiation induced defects in tungsten, *physica status solidi (c)*, 6 (2009) 2329-2332.

[74] T. Troev, E. Popov, P. Staikov, N. Nankov, T. Yoshiie, Positron simulations of defects in tungsten containing hydrogen and helium, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 267 (2009) 535-541.

[75] P. Staikov, N. Djourellov, Simulations of $\langle 1\ 0\ 0 \rangle$ edge and $1/2 \langle 1\ 1\ 1 \rangle$ screw dislocations in α -iron and tungsten and positron lifetime calculations, *Physica B: Condensed Matter*, 413 (2013) 59-63.

[76] T.E.M. Staab, R. Krause-Rehberg, B. Vetter, B. Kieback, G. Lange, P. Klimanek, The influence of microstructure on the sintering process in crystalline metal powders investigated by positron lifetime spectroscopy: II. Tungsten powders with different powder-particle sizes, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 11 (1999) 1787.

[77] S. Zhu, Y. Xu, Z. Wang, Y. Zheng, D. Zhou, E. Du, D. Yuan, M. Fukuda, M. Mihara, K. Matsuta, T. Minamisono, Positron annihilation lifetime spectroscopy on heavy ion irradiated stainless steels and tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 343 (2005) 330-332.

[78] P. Nambissan, P. Sen, Positron annihilation study of the annealing behaviour of alpha induced defects in tungsten, *Radiation Effects and Defects in Solids*, 124 (1992) 215-221.

[79] R. Ziegler, H. Schaefer, Vacancy Formation in Molybdenum and Tungsten Investigated by Positron Lifetime Measurements, in, 1986, pp. 145-148.

[80] V.S. Subrahmanyam, P.M.G. Nambissan, P. Sen, Helium bubbles in tungsten studied by positron annihilation, *Solid State Communications*, 89 (1994) 523-527.

[81] G. Rozing, A. Weeber, P. Mijnders, A. van Veen, J. de Vries, H. Schut, 2 D-ACAR measurements in tungsten with voids decorated with deuterium, in: 9th International Conference on Positron Annihilation (IPCA-9), 1991, pp. 1205-1208.

[82] J. de Vries, Positron Lifetime Technique with Application in Material Science, Ph.D Thesis, (1987).

[83] D.O. Welch, K.G. Lynn, Systematic variation of the mean positron lifetime and Gaussian fraction in annealed metals and semiconductors, *Physica Status Solidi (b)*, 77 (1976) 277-286.

[84] A. Debelle, M.F. Barthe, T. Sauvage, First temperature stage evolution of irradiation-induced defects in tungsten studied by positron annihilation spectroscopy, *Journal of Nuclear Materials*, 376 (2008) 216-221.

- [85] A. Debelle, M. Barthe, T. Sauvage, R. Belamhawal, A. Chelgoum, P. Desgardin, H. Labrim, Helium behaviour and vacancy defect distribution in helium implanted tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 362 (2007) 181-188.
- [86] M.S. Abd El Keriem, D.P. Van Der Werf, F. Pleiter, Helium-vacancy interaction in tungsten, in: *Physical Review B*, 1993, pp. 14771.
- [87] P. NAMBISSAN, P. SEN, Positron annihilation studies on alpha irradiated tungsten, *Solid state communications*, 71 (1989) 1165-1167.
- [88] P.M.G. Nambissan, P. Sen, Positron annihilation study of the annealing behaviour of alpha induced defects in tungsten, *Radiation Effects and Defects in Solids*, 124 (1992) 215-221.
- [89] F. Maury, M. Biget, P. Vajda, A. Lucasson, P. Lucasson, Frenkel pair creation and stage I recovery in W crystals irradiated near threshold, *Radiation Effects and Defects in Solids*, 38 (1978) 53-65.
- [90] R.M. Scanlan, D.L. Styris, D.N. Seidman, An in situ field ion microscope study of irradiated tungsten, *Philosophical Magazine*, 23 (1971) 1439-1457.
- [91] R.M. Scanlan, D.L. Styris, D.N. Seidman, An in-situ field ion microscope study of irradiated tungsten, *Philosophical Magazine*, 23 (1971) 1459-1478.
- [92] W.H. Zhou, Y.G. Li, L.F. Huang, Z. Zeng, X. Ju, Dynamical behaviors of self-interstitial atoms in tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 437 (2013) 438-444.
- [93] A. Wagner, D.N. Seidman, Range Profiles of 300- and 475-eV $^4\text{He}^+$ Ions and the Diffusivity of ^4He in Tungsten, *Physical Review Letters*, 42 (1979) 515-518.
- [94] J. Amano, D.N. Seidman, Diffusivity of ^3He atoms in perfect tungsten crystals, *Journal of Applied Physics*, 56 (1984) 983-992.
- [95] M.J. Baldwin, R.P. Doerner, Helium induced nanoscopic morphology on tungsten under fusion relevant plasma conditions, *Nuclear Fusion*, 48 (2008) 035001.
- [96] S. Kajita, N. Yoshida, R. Yoshihara, N. Ohno, M. Yamagiwa, TEM observation of the growth process of helium nanobubbles on tungsten: Nanostructure formation mechanism, *Journal of Nuclear Materials*, 418 (2011) 152-158.
- [97] S.J. Zenobia, L.M. Garrison, G.L. Kulcinski, The response of polycrystalline tungsten to 30 keV helium ion implantation at normal incidence and high temperatures, *Journal of Nuclear Materials*, 425 (2012) 83-92.
- [98] K.O.E. Henriksson, K. Nordlund, J. Keinonen, D. Sundholm, M. Patzschke, Simulations of the initial stages of blistering in helium implanted tungsten, *Physica Scripta*, T108 (2004) 95.
- [99] C.S. Becquart, C. Domain, Migration energy of He in W revisited by Ab-initio calculations, *Physical Review Letters*, 97 (2006) 196402-196401 / 196402-196404.

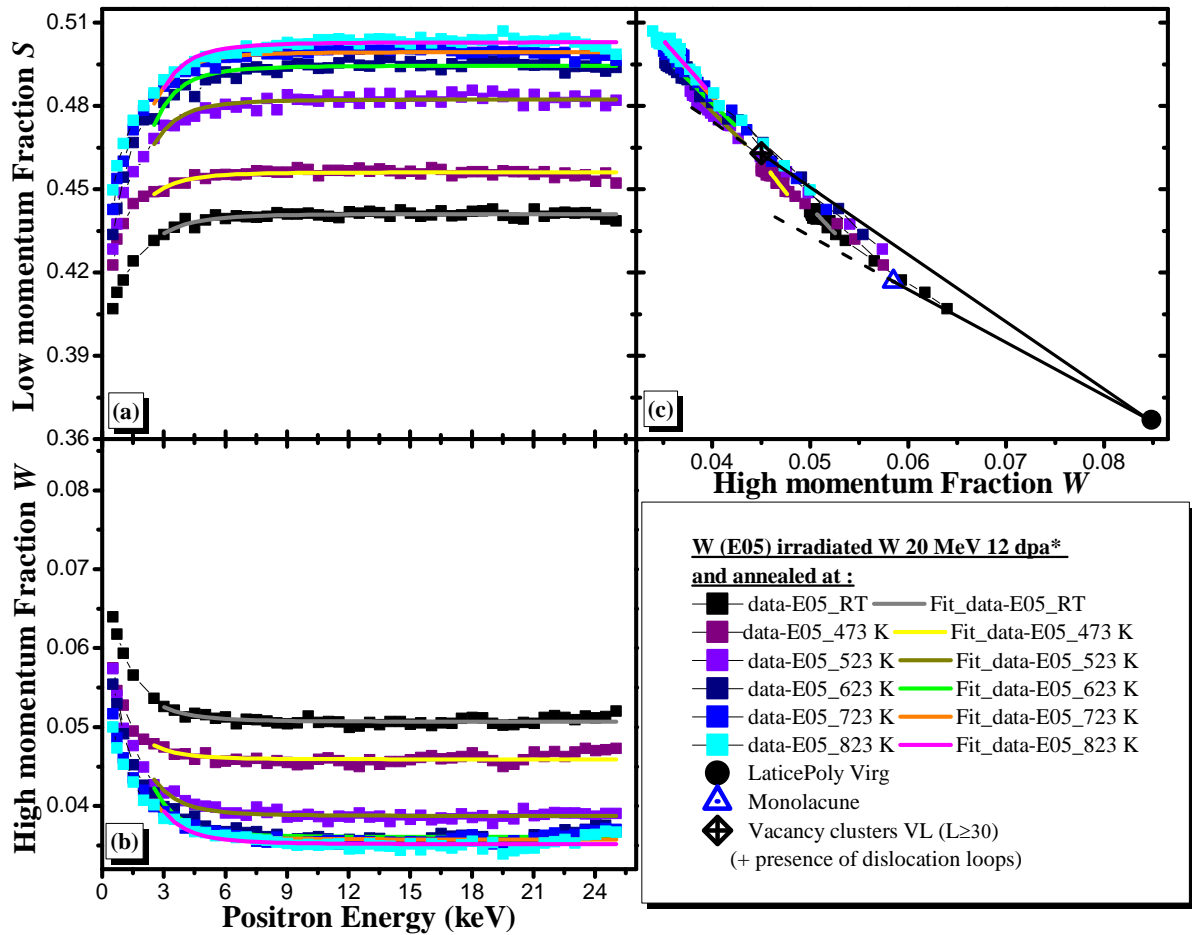
- [100] A.S. Soltan, R. Vassen, P. Jung, Migration and immobilization of hydrogen and helium in gold and tungsten at low temperatures, *Journal of Applied Physics*, 70 (1991) 793-797.
- [101] J. Wang, Y. Zhou, M. Li, Q. Hou, Atomistic simulations of helium behavior in tungsten crystals, *Journal of Nuclear Materials*, 427 (2012) 290-296.
- [102] W.D. Wilson, C.L. Bisson, M.I. Baskes, Self-trapping of helium in metals, *Physical Review B*, 24 (1981) 5616.
- [103] K.O.E. Henriksson, K. Nordlund, A. Krashennnikov, J. Keinonen, Difference in formation of hydrogen and helium clusters in tungsten, *Applied Physics Letters*, 87 (2005) 163113.
- [104] H. Iwakiri, K. Yasunaga, K. Morishita, N. Yoshida, Microstructure evolution in tungsten during low-energy helium ion irradiation, *Journal of Nuclear Materials*, 283–287, Part 2 (2000) 1134-1138.
- [105] P.E. Lhuillier, A. Debelle, T. Belhabib, A.L. Thomann, P. Desgardin, T. Sauvage, M.F. Barthe, P. Brault, Y. Tessier, Helium desorption in (3)He implanted tungsten at low energy, *Journal of Nuclear Materials*, 417 (2011) 504-507.
- [106] A. De Backer, P.E. Lhuillier, C.S. Becquart, M.F. Barthe, Modelling of the implantation and the annealing stages of 800 keV 3He implanted tungsten: Formation of nanovoids in the near surface region, *Journal of Nuclear Materials*, 429 (2012) 78-91.
- [107] E.V. Kornelsen, A.A. Van Gorkum, A study of bubble nucleation in tungsten using thermal desorption spectrometry: Clusters of 2 to 100 helium atoms, *Journal of Nuclear Materials*, 92 (1980) 79-88.
- [108] C. Björkas, K. Nordlund, S. Dudarev, Modelling radiation effects using the ab-initio based tungsten and vanadium potentials, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 267 (2009) 3204-3208.
- [109] J. Fikar, R. Schäublin, Molecular dynamics simulation of radiation damage in bcc tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 386–388 (2009) 97-101.
- [110] M. Fukuda, T. Tanno, S. Nogami, A. Hasegawa, Effects of Re Content and Fabrication Process on Microstructural Changes and Hardening in Neutron Irradiated Tungsten, *MATERIALS TRANSACTIONS*, 53 (2012) 2145-2150.
- [111] T. Tanno, M. Fukuda, S. Nogami, A. Hasegawa, Microstructure Development in Neutron Irradiated Tungsten Alloys, *MATERIALS TRANSACTIONS*, 52 (2011) 1447-1451.
- [112] X. Yi, M.L. Jenkins, M. Briceno, S.G. Roberts, Z. Zhou, M.A. Kirk, In situ study of self-ion irradiation damage in W and W–5Re at 500 °C, *Philosophical Magazine*, 93 (2012) 1715-1738.
- [113] V.F. Häussermann, Eine elektronenmikroskopische analyse von versetzungsringen in wolfram nach bestrahlung mit 60 keV-goldionen, *Philosophical Magazine*, 25 (1972) 561-581.

- [114] V.F. Häussermann, Elektronenmikroskopische Untersuchung der Strahlenschädigung durch hochenergetische Goldionen in den kubisch-raumzentrierten Metallen Molybden und Wolfram, *Philosophical Magazine*, 25 (1972) 583-598.
- [115] V.N. Bykov, G.A. Birzhevoi, M.I. Zakharova, V.A. Solov'ev, Nature and thermal stability of radiation defects in single-crystal tungsten, *At Energy*, 33 (1972) 930-935.
- [116] C. Anderson, The positive electron, *Physical Review*, 43 (1933) 491-494.
- [117] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, A.H. Wapstra, The Nubase evaluation of nuclear and decay properties, *Nuclear Physics A*, 729 (2003) 3-128.
- [118] W. Brandt, R. Paulin, Positron implantation-profile effects in solids, *Physical Review B*, 15 (1977) 2511-2518.
- [119] R. Paulin, *Implantation of Fast Positrons in Solids*, Varenna, 1983.
- [120] S. Valkealhti, R.M. Nieminen, *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, 35 (1984) 51.
- [121] E. Soininen, J. Mäkinen, D. Beyer, P. Hautojärvi, High-temperature positron diffusion in Si, GaAs, and Ge, *Physical Review B*, 46 (1992) 13104-13118.
- [122] M.F. Barthe, C. Corbel, G. Blondiaux, Caractérisation de défauts lacunaires par annihilation de positons, *Techniques de l'ingénieur Méthodes nucléaires d'analyse*, base documentaire : TIB389DUO (2003).
- [123] L. Sodickson, W. Bowman, J. Stephenson, R. Weinstein, Single-Quantum Annihilation of Positrons, *Physical Review*, 124 (1961) 1851-1861.
- [124] M. Hakala, M. Puska, R. Nieminen, Momentum distributions of electron-positron pairs annihilating at vacancy clusters in Si, *Physical Review B*, 57 (1998) 7621-7627.
- [125] V. SUBRAHMANYAM, P. NAMBISSAN, P. SEN, Helium bubbles in tungsten studied by positron annihilation, *Solid state communications*, 89 (1994) 523-527.
- [126] Z.T. T. Tang, M. Eldrup, Y. Nagai, P. Jung, M. Hasegawa, B.N. Singh, *Personnal communication*, (2010).
- [127] A. van Veen, H. Schut, M. Clement, J.M.M. de Nijs, A. Kruseman, M.R. Ijpma, VEPFIT applied to depth profiling problems, *Applied Surface Science*, 85 (1995) 216-224.
- [128] Y. Serruys, P. Trocellier, S. Miro, E. Bordas, M.O. Ruault, O. Kaïtasov, S. Henry, O. Leseigneur, T. Bonnaille, S. Pellegrino, S. Vaubailon, D. Uriot, JANNUS: A multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of the atomistic modelling, *Journal of Nuclear Materials*, 386-388 (2009) 967-970.
- [129] R. Paulin, R. Ripon, W. Brandt, Diffusion constant and surface states of positrons in metals, *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, 4 (1974) 343-347.
- [130] J. Marian, T.L. Hoang, Modeling fast neutron irradiation damage accumulation in tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 429 (2012) 293-297.

- [131] E.B.a.S. Bouffard, *Solid State Phenomena*, 7 (1993) 30-31.
- [132] L. Van Brutzel, J.M. Delaye, D. Ghaleb, M. Rarivomanantsoa, Molecular dynamics studies of displacement cascades in the uranium dioxide matrix, *Philosophical Magazine*, 83 (2003) 4083-4101.
- [133] S.S. N. Igata, K. Shibata, A. Kohyama, , Abstracts of 25th International Field Emission Symposium, Tokyo 113 Japon.
- [134] A.L. Suvorov, D.E. Dolin, Field ion microscopy study of the interactions between self interstitials and impurities in metals, *Applied Surface Science*, 94–95 (1996) 384-390.
- [135] D. Pramanik, D.N. Seidman, Atomic resolution observations of nonlinear depleted zones in tungsten irradiated with metallic diatomic molecular ions, *Journal of Applied Physics*, 54 (1983) 6352-6367.
- [136] M. Fukuda, A. Hasegawa, S. Nogami, K. Yabuuchi, Microstructure development of dispersion-strengthened tungsten due to neutron irradiation, *Journal of Nuclear Materials*, Article in Press (2013).
- [137] V.N. Chernikov, A.P. Zakharov, Helium behaviour in tungsten under high-temperature irradiation from glow discharge, *Journal of Nuclear Materials*, 165 (1989) 89-100.
- [138] D. Nishijima, M.Y. Ye, N. Ohno, S. Takamura, Incident ion energy dependence of bubble formation on tungsten surface with low energy and high flux helium plasma irradiation, *Journal of Nuclear Materials*, 313–316 (2003) 97-101.
- [139] P.E. Lhuillier, T. Belhabib, P. Desgardin, B. Courtois, T. Sauvage, M.F. Barthe, A.L. Thomann, P. Brault, Y. Tessier, Trapping and release of helium in tungsten, *Journal of Nuclear Materials*, 416 (2011) 13-17.

ANNEXES

Annexes 1

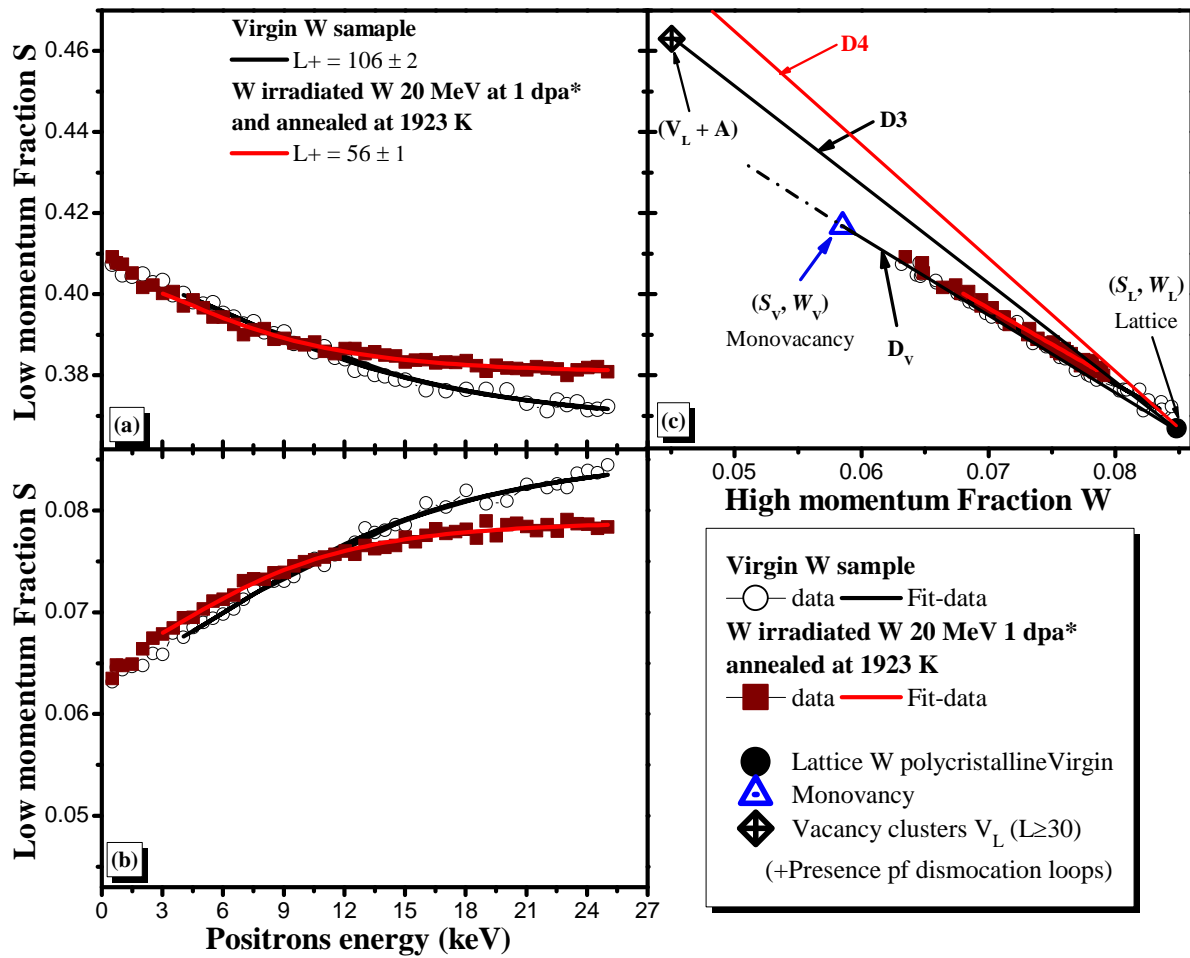


A1-Figure. 1 : Les caractéristiques d'annihilation mesurées dans l'échantillon de tungstène EDFA (E05) irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*, puis recuit à différentes températures (RT-823 K). (a) Les profils S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Les profils W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points (S,W) dépendant de la température de recuit.

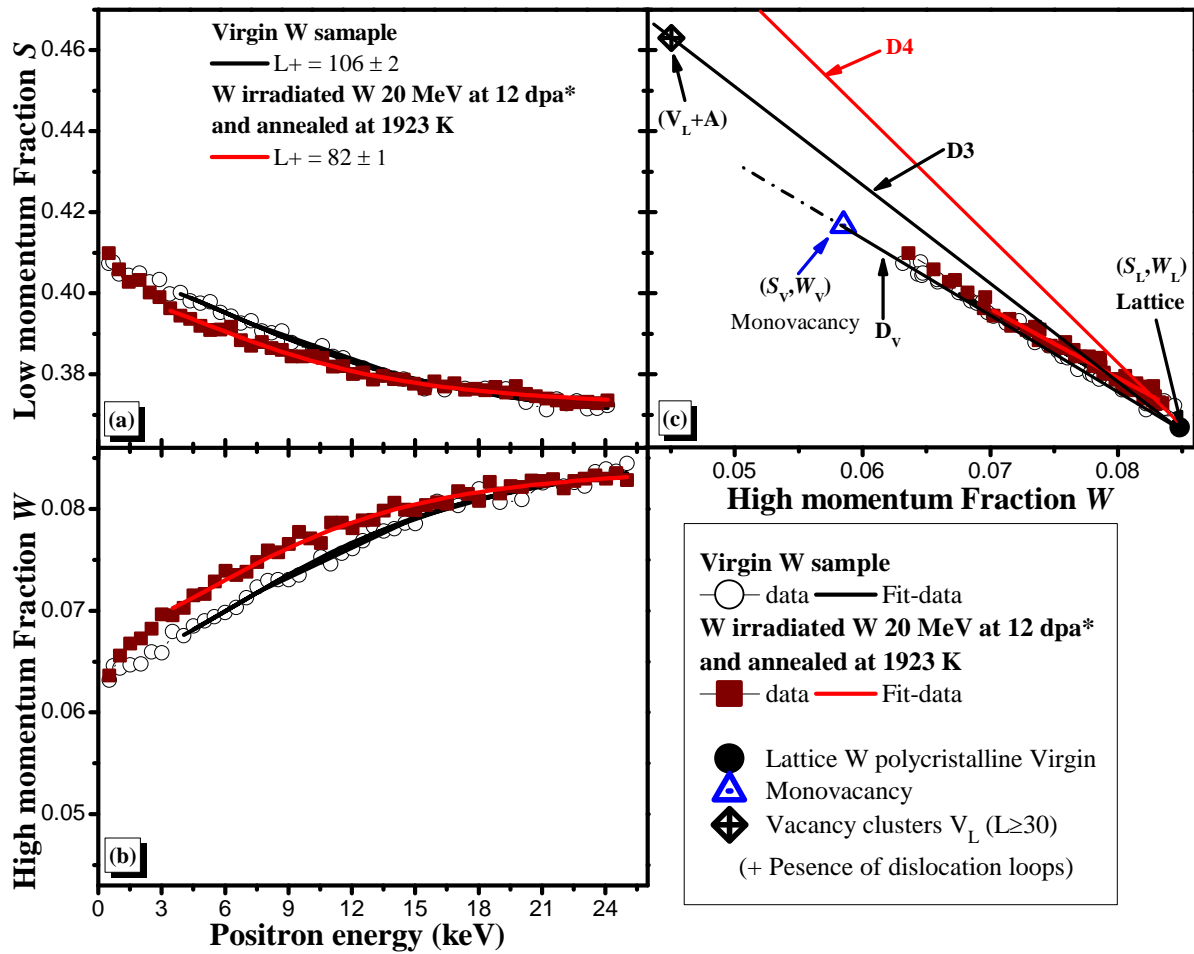
Echantillon	Condition d'irradiation	Température de recuit (K)	Surface		"Bulk" (800 nm sous la surface)		L_{eff}^+ (nm)
			$S_{surface}$	$W_{surface}$	S_{bulk}	W_{bulk}	
EFDA (E05)	W 20 MeV à 1 dpa*	RT	0.425 ± 0.001	0.0530 ± 0.0005	0.4370 ± 0.0002	0.05124 ± 0.00006	
		473	0.425 ± 0.002	0.053 ± 0.001	0.4561 ± 0.0002	0.04591 ± 0.00005	4.5 ± 0.2
		523	0.384 ± 0.004	0.067 ± 0.002	0.4824 ± 0.0002	0.03875 ± 0.00005	3.3 ± 0.2
		623	0.397 ± 0.003	0.066 ± 0.001	0.4944 ± 0.0002	0.03608 ± 0.00005	3.4 ± 0.2
		723	0.380 ± 0.003	0.068 ± 0.001	0.5014 ± 0.0002	0.03548 ± 0.00005	2.8 ± 0.2
		823	0.380 ± 0.003	0.067 ± 0.002	0.5026062 ± 0.0002	0.03526 ± 0.00005	2.9 ± 0.2

A1-Tableau. 1 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation mesurées sur l'échantillon EFDA (E05) irradié W 20 MeV à 1 dpa* puis recuits à différentes températures (RT-823 K).

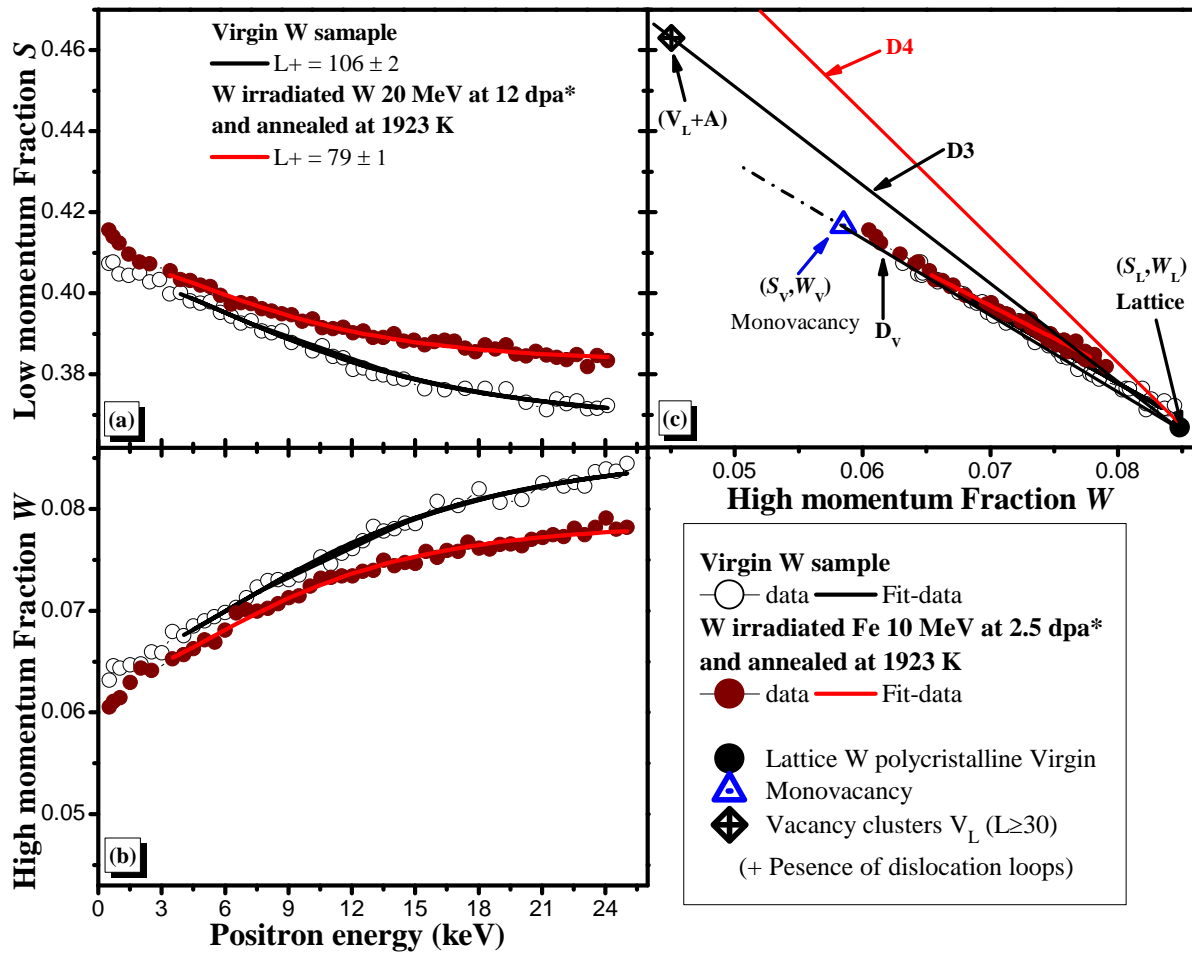
Annexe 2 (1/3)



A2-Figure 1 : Caractéristiques d'annihilation expérimentales et modélisées (VepFit) d'un échantillon de tungstène vierge et d'un échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 1 dpa*). (a) S en fonction de l'énergie des positons E . (b) S en fonction de l'énergie des positons E . (c) S en fonction de W .

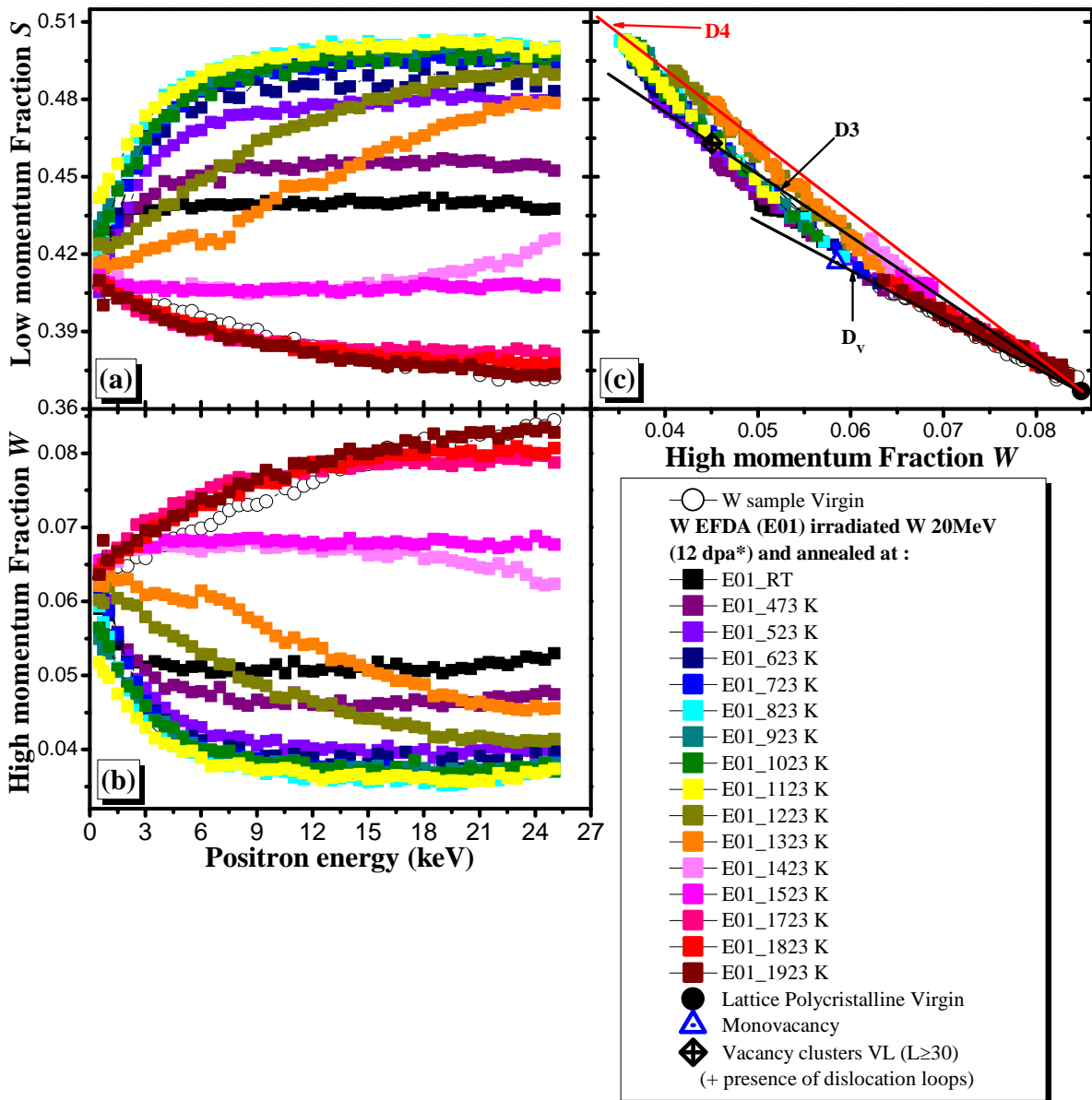
Annexe 2 (2/3)

A2-Figure 2 : Caractéristiques d'annihilation expérimentales et modélisées (VepFit) d'un échantillon de tungstène vierge et d'un échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 12 dpa*). (a) S en fonction de l'énergie des positons E . (b) S en fonction de l'énergie des positons E . (c) S en fonction de W .

Annexe 2 (3/3)

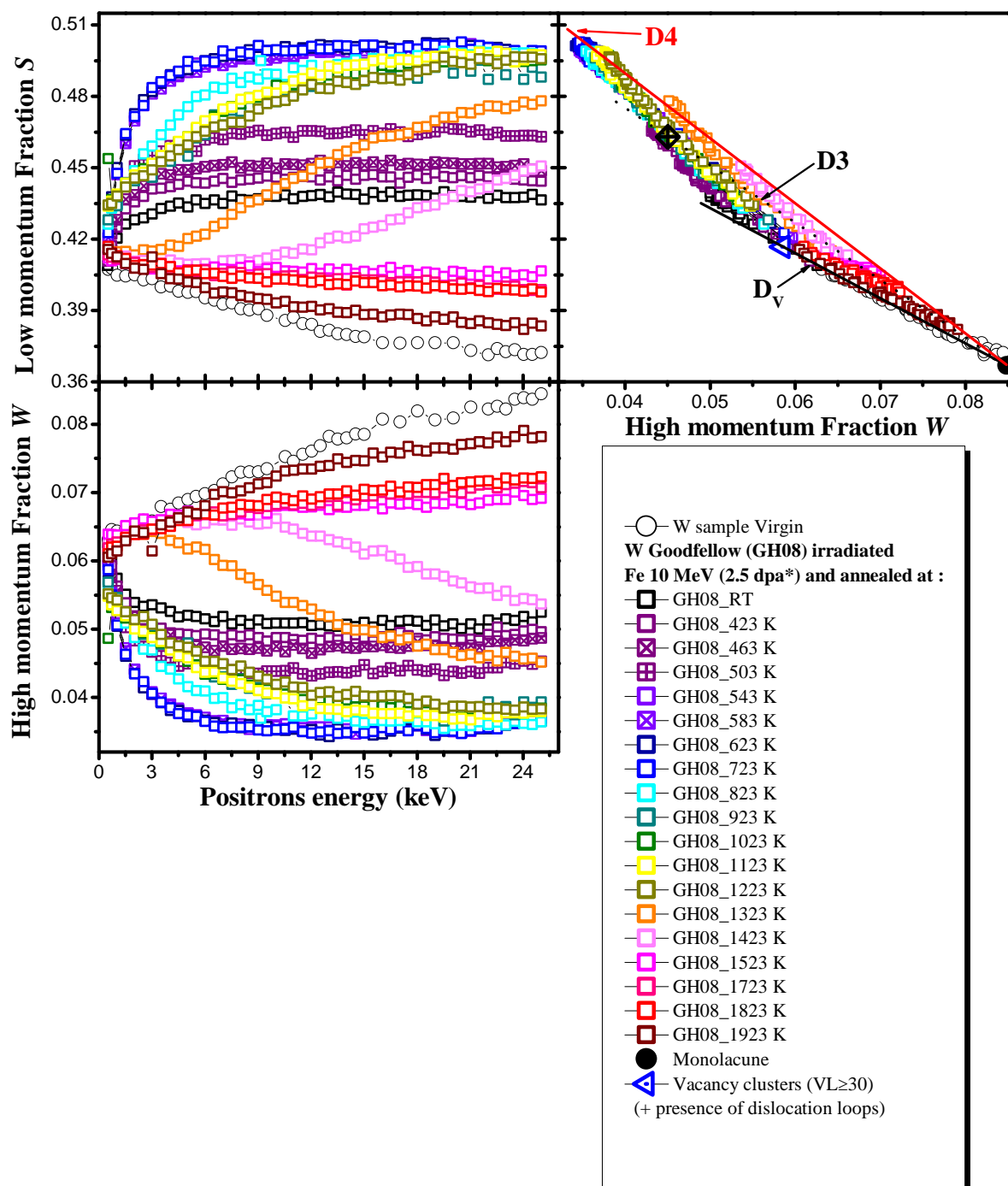
A2-Figure 3 : Caractéristiques d'annihilation expérimentales et modélisées (VepFit) d'un échantillon de tungstène vierge et d'un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 2.5 dpa*). (a) S en fonction de l'énergie des positons E . (b) S en fonction de l'énergie des positons E . (c) S en fonction de W .

Annexe 3 (1/2)

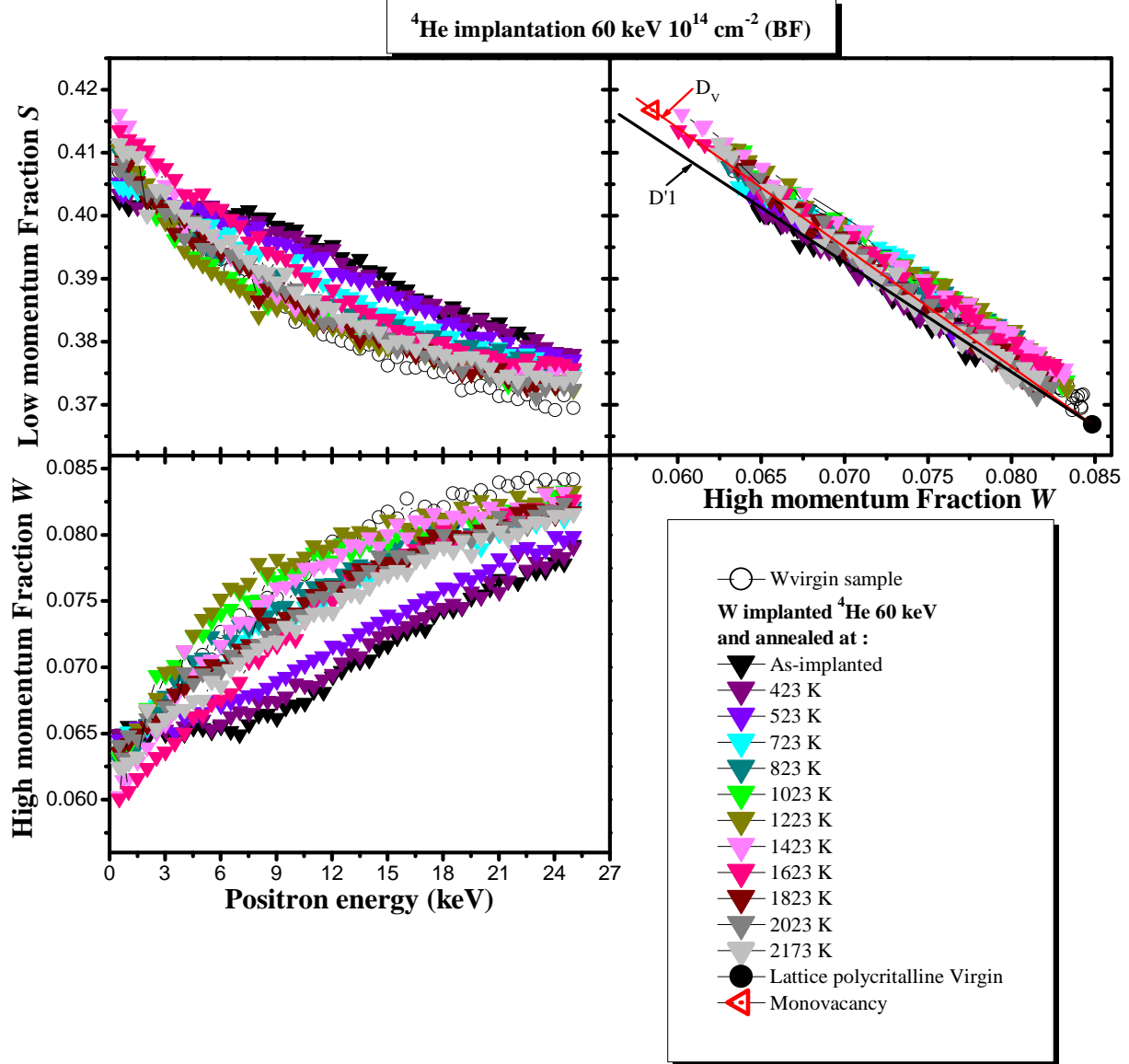


A3-Figure. 1 : Evolution des caractéristiques d'annihilation en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 12 dpa*). (a) les profils S en fonction de l'énergie des positons E. (b) les profils W en fonction de l'énergie des positons E. (c) les points S (W) dépendant de la température de recuit.

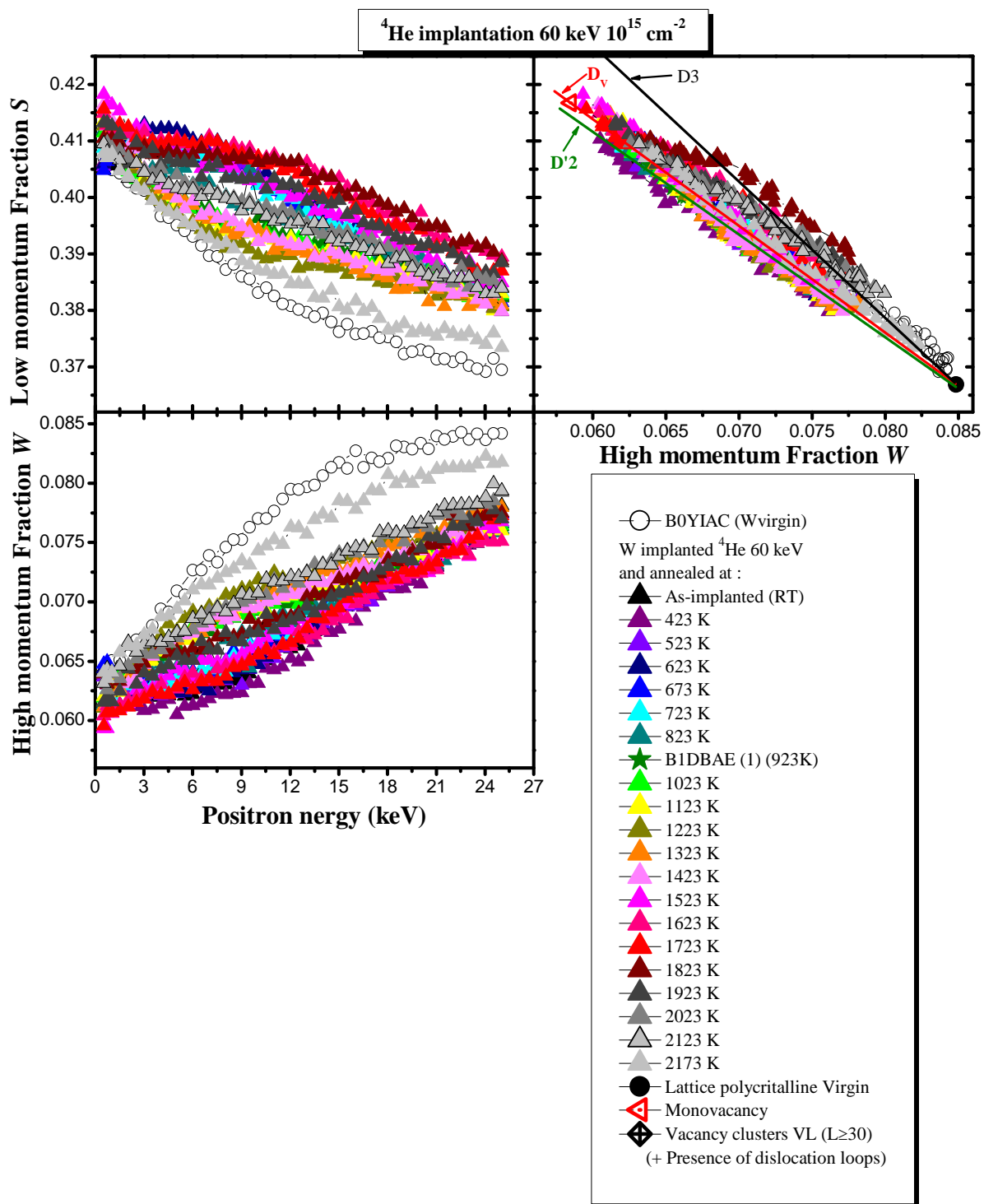
Annexe 3 (2/2)



A3-Figure. 2 : Evolution des caractéristiques d'annihilation en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 2.5 dpa*). (a) les profils S en fonction de l'énergie des positons E. (b) les profils W en fonction de l'énergie des positons E. (c) les points S (W) dépendant de la température de recuit.

Annexe 4 (1/2)

A4-Figure. 1 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (423-2173 K) mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W .

Annexe 4 (2/2)

A4-Figure. 2 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (423-2173 K) mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{15} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W .

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Schéma de la réaction de fusion entre un atome de deutérium et un atome de tritium.	15
Figure I.2 : Schéma d'un tokamak (http://superconductors.free.fr/tokamaks.php).....	17
Figure I.3 : Schéma du réacteur ITER (source site d'ITER : http://www.iter.org/fr/mach). ..	18
Figure I.4 : a) Schéma de la section interne de la chambre à vide d'ITER (le Blanket en béryllium, le divertor en tungstène) [20]. b) Design d'un élément du divertor d'ITER [30]. c) Schéma des lignes de force du champ magnétique dans le tokamak d'ITER, les cercles rouges représentent les particules qui sortent du plasma.	21
Figure I.5 : Structure de la maille cristalline du tungstène (cubique centrée).....	22
Figure I.6 : Spectre en énergie de flux neutronique sur les matériaux face au plasma d'ITER [37].....	23
Figure I.7 : Les produits de réaction, pour un tungstène pur, après une année de fonctionnement à pleine puissance (FPY) du réacteur. Au début, la composition isotopique naturelle est prise, voir sur le côté gauche [35].	24
Figure I.8 : Transmutation du tungstène pendant une campagne d'irradiation neutronique dans ITER pendant 14 années de fonctionnement du réacteur, obtenue par simulation [43].....	24
Figure I.9 : Les pertes d'énergie par interaction nucléaire et électronique dans le tungstène en fonction de la profondeur pour un ion lourd de W 20 MeV, calculées avec SRIM.	26
Figure I.10 : Les pertes d'énergie par interaction nucléaire et électronique dans le tungstène en fonction de la profondeur pour un ion lourd de ^4He 20 MeV, calculées avec SRIM.	26
Figure I.11 : Illustration schématique d'une cascade de collision. La ligne noire épaisse représente la position de la surface et les lignes plus minces les trajectoires de la particule incidente et des atomes de la cible déplacés qui collisionnent les autres atomes de la cible. Les lignes rouges, oranges, bleues, vertes et jaunes illustrent respectivement les KAs (Know-on Atoms) primaires, secondaires, tertiaires, quaternaires et quinquénaires.	27
Figure I.12 : Simulation SRIM de la trajectoire des ions de recul dans le cas d'une irradiation avec un ion W 150 keV dans le tungstène. Les zones colorées en orange et vert représentent des cascades de collisions générées par les premiers atomes de reculs (PKA).....	28
Figure I.13 : Les types de défauts ponctuels simples dans le tungstène. (A) lacune. (B) Auto-interstitiel (SIA). (C) Atome étranger en interstitiel. (D) Atome étranger en substitution.....	29

Figure I.14 : Les valeurs des énergies de liaison pour la bilacune dans le tungstène à différentes distances obtenues par simulation utilisant les potentiels non-empiriques [69].	32
Figure I.15 : Énergie de liaison (eV) d'une lacune à un amas lacunaires selon la réaction $(m+1)v + v \rightarrow mv$ [59].	32
Figure I.16 : Énergie de liaison (eV) d'un interstitiel (SIA) à un amas d'interstitiels, récemment calculées par C. Becquart.	33
Figure I.17 : Corrélation entre le temps de vie des positons et le nombre de lacunes dans un amas lacunaire dans le tungstène [74].	34
Figure I.18 : Schéma des étapes d'évolution de la monolacune dans le tungstène [1].	36
Figure I.19 : Énergies de dissociation d'un atome d'hélium ou d'une lacune sur un complexe de type $n\text{He}-mv$ en fonction du ratio n/m [59].	40
Figure I.20 : Clichés MET de bulles d'hélium (a) de forme ellipsoïde situées sur un joint de grain (intergranulaires), (b) de forme sphérique à l'intérieure d'un grain (intragranulaires), observées dans un échantillon de tungstène implanté à 200 K avec des ions ^3He 500 keV à 10^{16} cm^{-2} , puis recuit à 1773 K pendant 1h sous Ar & H_2 .	40
Figure I.21 : La comparaison entre la concentration de monolacunes dans le tungstène mesurée expérimentalement par PAS et celles calculées avec SRIM, Marlowe et le modèle OKMC (LAKIMOCA en utilisant Marlowe) [106].	41
Figure I.22 : (a) Le nombre de paires de Frenkel après une cascade de collision dans le tungstène (W), le Fer (Fe) et le vanadium (v), en fonction de l'énergie de recul. La petite figure insérée en haut à gauche montre l'efficacité de la cascade (NRT) en fonction de l'énergie de recul. (b) Le nombre de paires de Frenkel en fonction du temps au cours d'une cascade de collision de 10 keV dans W, Fe et v [108].	42
Figure I.23 : (a) La fraction de lacunes agglomérées après une cascade de collision en fonction de l'énergie de recul dans W, Fe et v. (b) La fraction de lacunes agglomérées dans W, Fe et v en fonction du temps pendant une cascade de collisions de 10 keV [108].	43
Figure I.24 : (a) La fraction d'interstitiels agglomérés après une cascade de collision en fonction de l'énergie de recul dans W, Fe et v. (b) La fraction d'interstitiels agglomérés dans W, Fe et v en fonction du temps pendant une cascade de collisions de 20 keV [108].	43
Figure I.25 : Observations par MET de la microstructure de W irradiés avec des neutrons rapides ($E_n > 0.1 \text{ MeV}$) à différentes doses et températures. (a) 0.17 dpa à 673 K. (b) 0.96 dpa à 811 K. (c) 0.40 dpa à 1013 K. (d) 1.54 dpa à 1023 K. Les voids (cavités ou bulles) sur les images (a) et (d) sont noirs, car celles-ci ont été prises dans la condition de « sur-focalisation » [111].	44

Figure I.26 : Observations par MET de la microstructure de W-5%Re (a), (b) et W-10%Re (c), (d), irradiés avec des neutrons rapides ($E_n > 0.1$ MeV) à 0.96 dpa à 811 K (a), (c) et à 1.54 dpa à 1023 K (b), (d). les zone encerclées correspondent à des précipités en forme de plaques [111].....	45
Figure I.27 : Evolution de la densité en nombre des défauts dans W et W-5%Re, pendant et après irradiation avec des ions W d'énergie de 150 keV en fonction de la fluence (dose) [112].....	46
Figure II.1 : Concentration maximale des impuretés contenues dans les échantillons de tungstène polycristallin fournis par Goodfellow. (a) Concentration massique (ppm.wt). (b) Concentration atomique (at. ppm).....	51
Figure II.2 : Processus de fabrication des échantillons de tungstène EFDA par la méthode double forgeage.	52
Figure II.3 : a) Microstructure du bloc de tungstène EFDA avant recuit. b) Après recuit à 1873 K pendant 1 heure.....	52
Figure II.4 : Illustration de la face et de la région du bloc qui ont été utilisées pour réaliser la découpe des échantillons de tungstène du lot EFDA.	52
Figure II.5 : Evolution de la température et de la pression pendant un recuit à 1873 K durant 1 heure sous vide.	53
Figure II.6 : Schéma général d'un bain de décapage électrolytique.	54
Figure II.7 : Bain de décapage électrolytique monté au laboratoire.	55
Figure II.8 : Image d'un échantillon de tungstène EFDA décapé par le procédé de décapage électrolytique sur une partie, obtenue avec le profilomètre du laboratoire CRMD.	56
Figure II.9 : Schémas de l'interaction entre le faisceau d'électrons incident et la lame mince (matière).....	57
Figure II.10 : Cliché de diffraction d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$	57
Figure II.11 : Schéma montrant l'orientation relative de la découpe d'une lame mince dans un échantillon de tungstène par FIB.	58
Figure II.12 : Schématisation de la coupe longitudinale d'une lame mince découpée dans un échantillon de W irradié. La courbe en bleu et en noir représentent respectivement la distribution de l'endommagement (dpa) et celle des ions incidents W 20MeV avec une fluence de $9.98 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, en fonction de la profondeur dans le matériau.	59
Figure II.13 : Images au Microscope Electronique à Balayage de la fabrication de la lame mince (a) Vue verticale de la lame mince. (b) Vue de dessus de la lame mince. (c) Vue de dessus agrandie au niveau du bord de la lame mince.	59

Figure II.14 : Images (a) sous-focalisée et (b) sur-focalisée obtenues en MET à partir d'une lame mince issue d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide. Les cavités sont entourées en rouges.	60
Figure II.15 : Illustration du dépouillement à l'aide du logiciel Digital Micrograph des cavités présentes dans une image sous-focalisée d'une lame mince issue d'un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide.	60
Figure II.16 : Schéma du processus de désintégration du sodium 22 (^{22}Na).	64
Figure II.17 : Profil de pénétration des positons rapides dans le tungstène.	65
Figure II.18 : Profil de pénétration des positons lents dans le tungstène.	66
Figure II.19 : Schéma de l'annihilation de la paire e^+e^- dans un repère lié au laboratoire. ...	69
Figure II.20 : Représentation schématique du principe de fonctionnement de l'accélérateur de positons lents couplé au spectromètre d'élargissement Doppler du CEMHTI.	70
Figure II.21 : Spectre d'élargissement Doppler brut d'un échantillon de tungstène Goodfellow vierge pour des énergies de positons de 15 keV.	72
Figure II.22 : Spectre Doppler après soustraction du brut de fond. La courbe verte correspond au spectre d'un échantillon de tungstène vierge et la courbe orange à celui d'un échantillon de tungstène irradié. La fraction d'annihilation S (resp. W) augmente (resp. diminue) dans le cas de l'échantillon irradié comparé à celui de l'échantillon vierge.	73
Figure II.23 : Représentation schématique du modèle à un piège profond d'annihilation des positons dans la matière cristalline.	74
Figure II.24 : Variation théorique des paramètres d'annihilation des positons S et W normalisés en fonction de la concentration des défauts v dans le tungstène.	76
Figure II.25 : Evolution théorique des fractions d'annihilation des positons S et W en fonction de la taille des défauts lacunaires dans le silicium [124].	77
Figure II.26 : Evolution théorique des caractéristiques d'annihilation S et W des défauts lacunaires contenant de différents nombres d'atome d'hélium, données calculées pour le Fer par Tang et al [126].	78
Figure II.27 : Illustration de la structure en couches homogènes modélisée par le logiciel VEPFIT.	79
Figure II.28 : Evolution expérimentale des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la taille des défauts lacunaires dans le tungstène polycristallin. Toutes les valeurs de S et W ont été prises dans l'étude précédente [1].	80
Figure II.29 : Variation des caractéristiques d'annihilation S et W des défauts complexes $n\text{He}-v$ en fonction du nombre n d'atomes d'hélium calculées pour le tungstène par K. Heinola. Les caractéristiques d'annihilation (S, W) du point Lattice et de la	

monolacune dans le tungstène obtenues expérimentalement [1] sont reportées.	82
Figure II.30 : Evolution de la durée de vie des positons dans des défauts complexes nHe-v en fonction du nombre n d'atomes d'hélium, calculée pour le tungstène par K. Heinola.....	82
Figure II.31 : Schémas d'ensemble de l'installation du dispositif JANNuS (à gauche) et vue de face de la chambre à vide du dispositif JANNuS (à droite), installé au CEA de Saclay [128].	84
Figure II.32 : Design du porte-échantillon utilisé pour nos implantations sur le dispositif JANNuS du CEA-Saclay.....	84
Figure II.33 : Schéma de la méthode d'irradiation simultanée avec des ions W 20 MeV + ^4He 850 keV dans le tungstène réalisé sur la plateforme JANNuS.....	86
Figure III.1 : Les caractéristiques d'annihilations S et W mesurées dans un échantillon W EFDA tel que reçu, puis poli, et dans un échantillon W Goodfellow poli, en utilisant DB-PAS. Les points (S_L, W_L) du Lattice du tungstène polycristallin vierge (S_V, W_V) et de la monolacune (S_V, W_V) sont issus de l'étude précédente [1].....	90
Figure III.2 : Les caractéristiques d'annihilation des échantillons EFDA et Goodfellow polis puis recuits à 1873 K/1h/v, comparés à ceux avant recuit, mesurée par la DB-PAS.....	92
Figure III.3 : Simulation SRIM des profils de déplacement atomique et d'ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à différentes fluences dans le tungstène.	95
Figure III.4 : Caractéristiques d'Annihilation des positons dans des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa*) et $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa*). (a) S en fonction de l'énergie des positons E . (b) W en fonction de l'énergie des positons E	96
Figure III.5 : Caractéristiques d'Annihilation de positons S en fonction de W , dans les échantillons de W irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa*), $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa*).	97
Figure III.6 : Caractéristiques annihilation de positons des échantillons de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa*), $3.70 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (0.1 dpa*) et des ions ^3He 800 keV à $1.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ (0.025 dpa*), $5.00 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ (0.13 dpa*).....	98
Figure III.7 : Simulation SRIM des profils des déplacements atomiques des irradiations d'ions W 20 MeV et des ions ^3He 800 keV à différentes fluence dans le tungstène.....	99
Figure III.8 : Distribution en énergie des PKA calculée avec le logiciel SRIM pour les irradiations avec des ions W 20 MeV et ^3He 800 keV dans le tungstène.....	100

Figure III.9 : Distribution des PKA, $P(E,T)$, en fonction du nombre d'atomes de W déplacés par cascade, obtenus à l'aide du logiciel SRIM.....	101
Figure III.10 : Simulation SRIM des profils des déplacements atomiques et d'ions des irradiations avec les ions W 20 MeV et Fe 10 MeV dans le tungstène.....	104
Figure III.11 : Distribution en énergie des PKA calculées avec les données obtenus par le logiciel SRIM pour les irradiations avec des ions Fe 10 MeV dans le tungstène.	104
Figure III.12 : Distribution des PKA, $P(E,T)$, en fonction du nombre d'atomes de W déplacés par cascade, obtenus à l'aide du logiciel SRIM.....	105
Figure III.13 : Caractéristiques annihilation de positons S et W en fonction de l'énergie des positons E , dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).	106
Figure III.14 : Caractéristiques annihilation de positons S en fonction de W , dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).	107
Figure III.15 : Caractéristiques annihilation de positons S en fonction de W prises aux énergies de positons comprises entre 6-25 keV, dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).	107
Figure III.16 : Les points S en fonction de W fittés pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences de $2.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (0.56 dpa* à 12.00 dpa*).	108
Figure III.17 : Images obtenues par microscopie ionique de champ [134]. a) image correspondant à l'alliage W 1,5% ThO ₂ qui a été irradié par des ions Ni ⁺ avec une énergie de 35 keV à une fluence de $5.00 \times 10^{14} \text{ ions/cm}^2$ (correspond à 1.3 dpa à $R_p = 6 \text{ nm}$). b) image correspondant à l'alliage W-5% Re qui a été irradié par des ions La ⁺ avec une énergie de 35 keV à la fluence de $1.00 \times 10^{16} \text{ ions/cm}^2$ (correspond à 43 dpa à $R_p = 4 \text{ nm}$).	109
Figure III.18 : Simulation SRIM du profil des déplacements d'atomes et celui des ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$	113
Figure III.19 : Simulation SRIM du profil des déplacements d'atomes et celui des ions W en fonction de la profondeur, dans le cas d'une irradiation avec des ions W 20 MeV à fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$	113
Figure III.20 : Caractéristiques annihilation de positons avant et après décapage électrolytique (sur 800 nm) de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $1.00 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W	114

- Figure III.21 : Caractéristiques d'annihilation de positons avant et après décapage électrolytique (sur 800 nm) de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W 115
- Figure III.22 : Comparaison des spectres théoriques calculés à partir des données expérimentales mesurées avant et après décapage électrolytique de l'échantillon de tungstène irradiés avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de E . (b) Le profil W en fonction de E . (c) Les points S en fonction de W 117
- Figure III.23 : Evolution des caractéristiques d'annihilation en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ (correspondant à 1 dpa*). a), c), e) et g) les profils S en fonction de l'énergie des positons E . b), d), f) et h) les points S (W) dépendant de la température de recuit. 121
- Figure III.24 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 24 keV. 123
- Figure III.25 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 9 keV et à 24 keV. 124
- Figure III.26 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 3 keV, 9 keV et à 24 keV. 125
- Figure III.27 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur l'échantillons de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* et 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie des positons à 3 keV, 9 keV et à 24 keV. 130
- Figure III.28 : Agrandissement de la Figure III.27.b. 131
- Figure III.29 : Simulation SRIM de la trajectoire des ions de recul dans le cas d'une irradiation avec un ion W 20 MeV dans le tungstène. Les zones encerclées en

blanc représentent des cascades de collisions générées par les premiers atomes de reculs (PKA)	133
Figure III.30 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température de recuit. Les valeurs de S et W sont prises pour l'énergie de positons à 3 keV, 9 keV et 24 keV.	134
Figure III.31 : Agrandissement de la Figure III.30.b.	134
Figure III.32 : Comparaison des évolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit (RT-1923 K) mesurées sur un échantillon de tungstène irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa* et un échantillon de tungstène irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*. (a) le profil S en fonction de la température de recuit. (b) les points S en fonction de W dépendant de la température. Les valeurs de S et W sont relevées pour l'énergie des positons de 3 keV, 9 keV et 24 keV. La courbe noire sur la figure (a) représente les valeurs de S prise à l'énergie des positons de 24 keV en fonction de la température de recuit (RT-1773 K) pour un échantillon de tungstène irradié ^3He 800 keV à la fluence de 10^{16} cm^{-2} (correspondant à 0.025 dpa*)	138
Figure III.33 : Agrandissement de la Figure III.32.b.	139
Figure III.34 : Clichés obtenus par MET réalisés sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1h sous vide. a) En condition de sous-focalisation échelle 0.1 μm . b) En condition de sous-focalisation échelle 50 nm. c) En condition de sur-focalisation échelle 50 nm.	144
Figure III.35 : Image d'une cavité facettée (encadrée en jaune) obtenue par MET en condition de sous-focalisation réalisées dans un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1h sous vide.	144
Figure III.36 : Image reconstruite à partir d'un ensemble de clichés MET obtenus sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à la température de 1773 K pendant 1 heure sous vide.	145
Figure III.37 : dépouillement de l'image reconstruite à partir de clichés MET effectuées sur un échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide... ..	146
Figure III.38 : Diamètre moyen des cavités observées dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.	148

- Figure III.39 : Nombre de cavités (en%) en fonction de taille des cavités observées dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide..... 148
- Figure III.40 : Profil de la densité des cavités en fonction de la profondeur mesurés dans l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide..... 149
- Figure III.41 : Clichés MET obtenus sur un échantillon de tungstène irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 150
- Figure III.42 : Clichés MET de la zone irradiée, obtenus dans l'échantillon irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. (a) Echelle à 0.2 μm . (b) Echelle à 0.1 μm . (c) Echelle à 50 nm d) échelle à 20 nm. 150
- Figure III.43 : Clichés MET de la zone non irradiée, obtenus dans l'échantillon irradié à 91 K avec des ions W 20 MeV $3.70 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. (e) Echelle à 50 nm. (f) Echelle à 20 nm. 151
- Figure III.44 : Evolution de taille moyenne (échelle de gauche) et de la densité en nombre (échelle de droite) des cavités [136]. 152
- Figure III.45 : Les caractéristiques d'annihilation de positons *S* et *W* en fonction de l'énergie des positons *E*, dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à la température de 873 K avec des ions W 20 MeV à 12.00 dpa*. (a) Le profil *S* en fonction de l'énergie des positons *E*. (b) Le profil *W* en fonction de l'énergie des positons *E*. (c) Les points *S* en fonction de *W*..... 154
- Figure III.46 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation de positons *S* et *W* en fonction de l'énergie des positons *E*, entre les échantillons de tungstène EFDA irradiés à 873 K avec des ions W 20 MeV à 12.00 dpa* et les échantillons de tungstène EFDA irradiés avec des ions W 20 MeV à 12 dpa* puis recuits à 823 K. (a) Le profil *S* en fonction de l'énergie des positons *E*. (b) Le profil *W* en fonction de l'énergie des positons *E*. (c) Les points *S* en fonction de *W* correspondants. . 155
- Figure IV.1 : Simulation SRIM du profil de déplacement par atome (dpa) et du profil des ions ^4He d'une énergie de 60 keV avec une fluence de 10^{14} cm^{-2} dans le tungstène. De plus, les profils d'implantations des positons entre 5-25 keV dans le tungstène y sont représentés. 162
- Figure IV.2 : Ratio $[\text{He}]_{\text{SRIM}}(\text{at.}\%) \text{vexpest}(\text{at.}\%)$ en fonction de la profondeur, pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} 163
- Figure IV.3 : Distribution d'hélium en profondeur mesurée expérimentalement sur un échantillon de tungstène Goodfellow poli et non recuit, implanté avec des ^3He 500 keV à la fluence de 10^{16} cm^{-2} par NRA (Analyse par Réaction Nucléaire), comparée à celle calculée par SRIM [1]. 164

- Figure IV.4 : Profils des positons et du ratio $[^4\text{He}] \text{ at.\%} / \text{dpa}$ en fonction de la profondeur, obtenus à l'aide du logiciel SRIM pour les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} 165
- Figure IV.5 : Fraction d'hélium libéré après recuit pour des implantations d'ions ^3He d'une énergie de 60 keV à différentes fluences dans des échantillons de tungstène [1]. 166
- Figure IV.6 : Caractéristiques d'annihilation de positons S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) et 10^{15} cm^{-2} (HF). (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Les points S en fonction de W 167
- Figure IV.7 : fraction d'annihilation à faible moment S (a) en fonction de l'énergie des positons (b) en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W , mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2} . Les données expérimentales sont fittées à l'aide du logiciel VepFit. 168
- Figure IV.8 : Description de la microstructure à 300 K respectivement pour les lacunes et les atomes d'hélium (de gauche à droite) induites par les ions ^4He d'une énergie de 60 keV à différentes fluences 10^{17} - 10^{20} m^{-2} (ou 10^{13} - 10^{16} cm^{-2}) dans le tungstène. La concentration des clusters sont tracés en fonction du nombre de lacunes et d'atomes d'hélium dans les clusters, pour des clusters purs (mv) et mixtes (nHe-mv ou nHe-mI). 170
- Figure IV.9 : Distribution des défauts complexes (nHe-mv) en fonction de la profondeur après implantation d'ions ^4He 60 keV dans le tungstène réalisé à l'aide de la modélisation OKMC par A. De Backer et C. Becquart. Attention, ces calculs ne tiennent pas compte de l'effet du trap mutation. 171
- Figure IV.10 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W 173
- Figure IV.11 : Evolutions des caractéristiques d'annihilation S et W en fonction de la température de recuit mesurées dans les échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{15} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de l'énergie de positons E . (b) La courbe S en fonction de W 176
- Figure IV.12 : Caractéristiques d'annihilations S en fonction W de différentes couches déterminées par modélisation à l'aide du logiciel VepFit réalisé sur l'échantillon de tungstène implanté ^4He 60 keV à la fluence de 10^{15} cm^{-2} , puis recuits à différentes températures. 178
- Figure IV.13 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implanté ^4He 60 keV fluence 10^{14} cm^{-2} . (a) La courbe

- S en fonction de la température de recuit. (b) Les points (S,W) en fonction de la température de recuit. 179
- Figure IV.14 : Evolution des caractéristiques d'annihilation S et W mesurées dans les échantillons de tungstène implanté ^4He 60 keV fluence 10^{15} cm^{-2} . (a) La courbe S en fonction de la température de recuit. (b) Les points (S,W) en fonction de la température de recuit. 179
- Figure IV.15 : Simulation SRIM du profil de déplacement par atome (dpa) généré avec des ions W 20 MeV à la fluence $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et le profil des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, dans le tungstène. 186
- Figure IV.16 : Le ratio $^4\text{He}/\text{dpa}$ en fonction de la profondeur obtenue pour les deux conditions de faisceau : W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, selon les calculs SRIM..... 186
- Figure IV.17 : Caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W 187
- Figure IV.18 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés simultanément à 128 K avec des ions W 20 MeV la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ et les échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à 91 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W 188
- Figure IV.19 : Le ratio $^4\text{He}/\text{dpa}$ en fonction de la profondeur obtenue pour les deux conditions de faisceau : W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. La région barrée en rouge est celle qui sera caractérisée par PAS dans l'échantillon décapé sur 630 nm d'épaisseur. 190
- Figure IV.20 : Caractéristiques d'annihilation de positons avant et après décapage sur 630 nm d'épaisseurs d'un échantillon de tungstène EFDA irradiés simultanément avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à la fluence de $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ à 128 K. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W 191
- Figure IV.21 : Caractéristiques d'annihilation de positons mesurées dans un échantillon de tungstène EFDA irradiés à 128 K simultanément avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + des ions ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, puis décapé sur 630 nm et recuit à différentes températures et dans un échantillon de tungstène Goodfellow irradiés à 91 K avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis décapé sur 800 nm et recuit à différentes températures. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Les points S en fonction de W 193

-
- Figure IV.22 : Agrandissement de la Figure IV.21.b..... 193
- Figure IV.23 : Les profils de dpa (obtenus par SRIM) dans l'échantillon de tungstène E15 irradié en double faisceau (W 20 MeV +He 850 KeV) après décapage sur 630 nm et celui de l'échantillon GR03 irradié en simple faisceau (W 20 MeV) après décapage sur 800 nm. Le profil d'implantation des positons d'une énergie de 25 keV est aussi tracé. 195
- Figure IV.24 : Caractéristiques d'annihilation de positons des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés à la température 128 K, 673 K et 873 K, simultanément avec W 20 MeV + ^4He 850 keV. Pour chaque température d'irradiation, la fluence des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV sont approximativement de $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ et $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, respectivement. (a) Le profil S en fonction de l'énergie des positons E . (b) Le profil W en fonction de l'énergie des positons E . (c) Les points S en fonction de W 198

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1 : Principales caractéristiques du tokamak ITER comparées à ceux déjà en service (Tore supra, JET).....	19
Tableau I.2 : Propriétés physiques du tungstène.	22
Tableau I.3 : Energie de liaison de quelques impuretés liées avec la monolacune et l'auto-interstitiel dans le tungstène, calculé par C. Becquart et <i>al</i> [59, 66].	31
Tableau I.4 : Valeurs expérimentales et théoriques du temps de vie des positons de différents types de défauts lacunaires dans le tungstène.....	34
Tableau I.5 : Les énergies de liaison (eV) d'un atome d'hélium, à un cluster d'hélium, pour des atomes d'hélium en configurations interstitiels [66].....	38
Tableau I.6 : Les énergies de liaison d'un atome d'hélium liés avec des impuretés et auto-interstitiels (SIA) [59, 66].....	38
Tableau I.7 : Energie de liaison et température de dissociation des complexes nHe-v, avec n le nombre d'atome d'hélium. (a Ref [86], b Ref [55], c Ref [101], d Ref [106], e Ref [107], f Ref [105])......	39
Tableau I.8 : Evolution de la concentration de la monolacune (v), des amas lacunaires pur (mv) et des défauts mixtes (nHe-v, nHe-mv et nHe-mI) en fonction de la fluence d'irradiation avec des ions ^3He 800 keV dans le tungstène, calculé par A. De Backer et <i>al</i> [106].....	42
Tableau I.9 : La taille et la densité en nombre des défauts induits par irradiation neutronique dans des échantillons de W et W-Re [110].....	44
Tableau I.10 : Récapitulatif des données expérimentales et théoriques des propriétés des défauts et de l'hélium dans le tungstène, issues de la littérature.	48
Tableau II.1 : Liste des impuretés majoritaires contenues dans les échantillons de tungstène polycristallin fournis par Goodfellow.....	51
Tableau II.2 : Données issues du dépouillement des rectangles définis dans de Figure II.15 : lame mince issue d'un échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ puis recuit à 1773 K pendant 1 h sous vide.	61
Tableau II.3 : Valeurs théoriques des caractéristiques d'annihilation S et W du réseau, de la monolacune v et des défauts complexes de type nHe-v calculées dans le tungstène par K. Heinola comparées aux valeurs expérimentales obtenues par P.E. Lhuillier [1]......	81
Tableau II.4 : Récapitulatif de toutes les conditions d'irradiations aux ions lourds et/ou légers réalisées à JANNuS.	85

Tableau II.5 : Résumé des conditions utilisées pour les implantations avec les ions He 60 keV dans des échantillons de tungstène Goodfellow réalisées au laboratoire Pprime de Poitiers.	86
Tableau III.1 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons W EFDA et Goodfellow.....	92
Tableau III.2 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène avec des ions W 20 MeV à différentes fluences. (dpa* correspond au dpa dans la région sondée par les positons c'est-à-dire entre 0-800 nm).	94
Tableau III.3 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène avec des ions W 20 MeV et Fe 10 MeV à différentes fluences. Les valeurs de dpa marquées par une étoile (dpa*) dans le tableau sont présent proche de la surface dans la zone sondée par les positons (0-800 nm).	103
Tableau III.4 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons de tungstène (EFDA, Goodfellow) irradiés avec des W 20 MeV à 0.56 dpa*, 1 dpa*, 12 dpa* et un échantillon de tungstène Goodfellow irradié Fe 10 MeV à 2.5 dpa*.	108
Tableau III.5 : Conditions d'irradiations et épaisseur décapée sur les échantillons de tungstène irradiés W 20 MeV à différentes fluences.....	112
Tableau III.6 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation S , W et la longueur de diffusion effective L_{eff}^+ avant et après décapage électrolytique de l'échantillon Goodfellow irradié avec des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$	116
Tableau III.7 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 1 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.	129
Tableau III.8 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène EFDA irradié avec des ions W 20 MeV à 12 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.	132
Tableau III.9 : Valeurs calculées par VepFit des caractéristiques d'annihilation de l'échantillon de tungstène Goodfellow irradié avec des ions Fe 10 MeV à 2.5 dpa*, puis recuit à 1923 K pendant 1 heure sous vide.	137
Tableau III.10 : Fraction de lacunes dans les amas lacunaires (mv) induits par irradiation avec différents monomères ou dimères dans le tungstène, observée par FIM [135].	140
Tableau III.11 : Diamètre moyen et densité en nombre de la population de cavités dans la région d'intérêt de l'échantillon de tungstène irradié à 201 K avec des ions Fe 10 MeV à la fluence de $6.09 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, puis recuit à 1773 K pendant 1 heure sous vide.	147
Tableau III.12 : Conditions d'irradiations des échantillons de tungstène irradiés à la température de 873 K avec des ions W 20 MeV à la fluence de $4.48 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.	

Les valeurs de dpa marquées par une étoile (dpa*) dans le tableau sont présent proche de la surface dans la zone sondée par positrons (0-800 nm).	153
Tableau IV.1 : Les valeurs des dpa et le rapport en fonction de la fluence pour les implantations réalisées dans des échantillons de tungstène avec des ions ^4He d'une énergie de 60 keV.	163
Tableau IV.2 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation des échantillons de tungstène polycristallins implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2}	167
Tableau IV.3 : Les valeurs de S et W mesurées pour l'énergie de positons $5 \pm 0.5 \text{ keV}$ et $15 \pm$ 0.5 keV dans les échantillons implantés avec les ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} et 10^{15} cm^{-2}	169
Tableau IV.4 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{14} cm^{-2} (BF) puis recuits à différentes températures.	174
Tableau IV.5 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation S et W des échantillons de tungstène implantés avec des ions ^4He 60 keV à la fluence de 10^{15} cm^{-2} (HF) puis recuits à différentes températures.	178
Tableau IV.6 : Conditions d'irradiations simultanées avec des ions W 20 MeV et ^4He 850 keV dans des échantillons de tungstène EFDA et Goodfellow, effectuées à JANNuS au CEA de Saclay. Le dpa marqué par une étoile (dpa*) correspond au dpa pris proche de la surface dans la région sondée par les positons (0-800 nm).	185
Tableau IV.7 : Modélisation par le logiciel VepFit des caractéristiques d'annihilation avant et après décapage sur 630 nm d'un échantillons de tungstène E15 irradié simultanément par des ions W 20 MeV à $4.49 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ + ^4He 850 keV à $4.55 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$	192

Moussa SIDIBE

Etude du comportement du tungstène sous irradiation : Application aux réacteurs de fusion

La fusion thermonucléaire est envisagée comme nouvelle source énergétique pratiquement inépuisable. Le projet ITER « International Thermonuclear Experimental Reactor » doit démontrer la faisabilité scientifique et la maîtrise de la fusion thermonucléaire. Le tungstène (W) a été choisi pour recouvrir le « divertor », un composant essentiel du réacteur ITER. Il sera soumis à des conditions extrêmes de fonctionnement : au bombardement neutronique, à d'intenses flux de chaleur et de particules (hélium, hydrogène). Ces conditions induiront dans le W des défauts et introduiront de l'hélium et de l'hydrogène, qui pourront conduire à des modifications de sa microstructure et de ses propriétés physiques, chimiques et mécaniques. L'objectif de ce travail est d'étudier, à l'échelle atomique, l'évolution de la microstructure du tungstène sous irradiation. Afin de simuler les atomes de recul générés par les irradiations aux neutrons, des échantillons de W ont été irradiés avec des ions lourds et/ou implantés avec de l'hélium. La nature des défauts a été étudiée à l'aide de la Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS).

Les résultats montrent que les irradiations aux ions lourds conduisent à la formation de monolacunes et de clusters lacunaires dont la taille et la concentration augmente avec la fluence. Des irradiations ou des recuits effectués à une température supérieure à 450 K conduisent à l'agglomération des défauts lacunaires essentiellement par migration des monolacunes. Pour des recuits à très hautes températures (1773 K), les observations MET montrent la présence de cavités nanométriques (~10 nm). Les implantations avec les ions ^4He 60 keV induisent dans le W une distribution de défauts complexes de type nHe-mv, ainsi qu'une faible concentration de monolacunes v. Une majorité de complexes He-v est formée pour la faible fluence et la fraction des défauts complexes (nHe-mv) augmente quand la fluence augmente. La nature et la distribution des défauts évolue en fonction de la température de recuit et dépend du ratio $[\text{He}]/[\text{v}]$. Le premier stade de recuit des défauts lacunaires (~ 450 K) est masqué par la présence de l'hélium dans les défauts lacunaires. Pour un ratio $[\text{He}]/[\text{v}]$ supérieur à 1, un stade d'agglomération des défauts est clairement observé à partir de 1623 K. Pour des conditions d'introduction de défauts et d'hélium proches de celles attendus dans les réacteurs de fusion (He/dpa allant de 0.03 à 8 appm He/dpa), la signature positon après irradiation est similaire à celle mesurée dans des échantillons seulement endommagés dans des conditions équivalentes mais sans introduire de l'hélium. Pour des rapports He/dpa allant de 0.3 à 8 appm He/dpa, les recuits révèlent des différences de distribution en taille et en concentration des défauts lacunaires. La présence d'hélium dans les amas lacunaires modifie les caractéristiques d'annihilation des positons et favorise la stabilisation des amas lacunaires.

Mots-clés : tungstène, irradiation/implantation, défauts lacunaires, hélium, Spectroscopie d'Annihilation de Positons (PAS).

Study of the behavior of tungsten under irradiation : Application to fusion reactors

Thermonuclear fusion is envisaged as a new energy source practically inexhaustible. The project ITER "International Thermonuclear Experimental Reactor" must demonstrate the scientific feasibility and the control of thermonuclear fusion. Tungsten (W) has been chosen to cover the "divertor", a critical component of the ITER reactor. It will be subjected to extreme operating conditions : to the neutron bombardment, to intense fluxes of heat and particles (helium, hydrogen). These conditions will induce defects in the W and will introduce helium and hydrogen which may lead to changes in microstructure and physical, chemical and mechanical properties. The aim of this work is to study, at the atomic scale, the evolution of tungsten microstructure under irradiation. In order to simulate the recoil atoms generated by the neutron irradiation, W samples were irradiated with heavy ions and/or implanted with helium ions. The nature of the defects has been studied by using Positron Annihilation Spectroscopy (PAS).

The results show that irradiations with heavy ions lead to the formation of monovacancies and vacancy clusters whose size and concentration increase with the fluence. Irradiations or annealing carried out at a temperature above 450 K lead to agglomeration of vacancy defects essentially by monovacancies migration. For annealing at high temperatures (1773 K), the TEM observations indicate the presence of nanometric cavities (~ 10 nm). The implantations with 60 keV ^4He ions induce in the W a distribution of complex defects like nHe-mv, as well as a low concentration of monovacancies v. A majority of complex He-v is formed for the low fluence and the fraction of complex defects (nHe-mv) increases as the fluence increases. The nature and distribution of defects evolve with annealing temperature and depend on the ratio $[\text{H}]/[\text{v}]$. The first stage annealing of vacancy defects (~ 450 K) is masked by the presence of helium in the vacancy defects. For a ratio $[\text{He}]/[\text{v}]$ greater than 1, an agglomeration stage of defects is clearly observed from 1623 K. For conditions of introduction of defects and helium close to those expected in fusion reactors (He/dpa from 0.03-8 appm He/dpa), positron signature after irradiation is similar to that measured in samples damaged in equivalent conditions without introducing helium. For ratio He/dpa from 0.3 to 8 appm He/dpa, the annealing reveal differences in size distribution and concentration of vacancy defects. The presence of helium in the vacancy clusters changes the annihilation characteristics of positron and favors to stabilize the vacancy clusters.

Keywords : tungsten, irradiation/implantation, vacancy defects, helium, Positron Annihilation Spectroscopy (PAS).



**CEMHTI : Conditions Extrêmes et Matériaux :
Haute Température et Irradiation
3A Rue de la Férollerie 45071 Orléans, France**

