



HAL
open science

Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose

Nesrine Gharbi

► **To cite this version:**

Nesrine Gharbi. Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose. Matériaux. Université de La Rochelle, 2015. Français. NNT : 2015LAROS026 . tel-01661451

HAL Id: tel-01661451

<https://theses.hal.science/tel-01661451v1>

Submitted on 12 Dec 2017

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 DE LA ROCHELLE

ÉCOLE DOCTORALE

*Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et Aéronautique
SI-MMEA*

Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour l'Environnement (LaSIE)

THÈSE

présentée par :

Nesrine GHARBI

Soutenance prévue le 20 novembre 2015
pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université de La Rochelle

Discipline : Génie des matériaux

**Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des
alliages de zirconium à forte dose**

JURY :

Philippe PAREIGE
Frédéric MOMPIOU
Philippe PILVIN
Malcolm GRIFFITHS
Ludovic THUINET
Xavier FEAUGAS
Fabien ONIMUS
Thomas JOURDAN
Jean-Paul MARDON

Professeur, Université de Rouen, Rapporteur
Chargé de recherche, Université Toulouse III - Paul Sabatier, Rapporteur
Professeur, Université de Bretagne-Sud, Examineur
Expert scientifique CNL-Canada, Examineur
Maître de conférences, Université de Lille 1, Examineur
Professeur, Université de La Rochelle, Directeur de thèse
Ingénieur-chercheur CEA, Encadrant CEA
Ingénieur-chercheur CEA, Co-encadrant CEA
Expert scientifique AREVA, Invité

Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose

Résumé :

Le grandissement sous flux des tubes d'assemblages REP en alliages de zirconium est dû au fluage axial et au phénomène de croissance libre qui est associé à l'apparition des boucles <c> à forte dose d'irradiation.

Ce travail de thèse vise à étudier le couplage entre ces deux phénomènes à travers l'analyse par Microscopie Electronique en Transmission de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles <c>. Des campagnes d'irradiation aux ions Zr^+ (600 keV) ont été menées sur deux alliages de zirconium recristallisés: Zircaloy-4 et M5[®]. Grâce à un dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions, différents niveaux de contrainte de traction ou de compression ont été appliqués. Les examens microscopiques ont montré que, conformément au mécanisme SIPA, la densité des boucles <c> diminue dans les grains d'axe <c> proche de la direction de traction ou éloigné de la direction de compression. Toutefois, l'analyse d'un grand nombre de grains a révélé une dispersion grain à grain. Cette dispersion, qui trouverait son origine dans les hétérogénéités intergranulaires, amoindrit l'amplitude de l'effet de la contrainte.

Parallèlement à cette étude expérimentale, un modèle basé sur la méthode de dynamique d'amas a permis de décrire l'évolution de la microstructure sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4 et de rendre compte de l'effet de la contrainte. A l'échelle macroscopique, un modèle physique a été développé en vue de prédire le comportement en croissance et en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium.

Mots clés : alliages de zirconium, croissance, boucles <c>, contrainte, dynamique d'amas, modèle macroscopique

Contribution to the understanding of zirconium alloy deformation under irradiation at high doses

Summary :

The growth of zirconium alloy tubes of PWR fuel assemblies is the result of two phenomena: axial irradiation creep and stress "free" growth which is correlated to the formation of c-loops at high irradiation doses.

This PhD work aims at investigating the coupling between these two phenomena through a fine Transmission Electron Microscopy analysis of the effect of a macroscopic applied stress on the c-loop microstructure. 600 keV Zr^+ ion irradiations were performed at 300°C on two recrystallized zirconium alloys: Zircaloy-4 and M5[®]. Thanks to a device specifically designed, different tensile or compressive stress levels were applied under ion irradiation. The microstructural observations have shown that the c-loop density reduces in grains oriented with the c-axis close to the direction of the applied tensile stress or far from the direction of the applied compressive stress, which is in good agreement with the SIPA mechanism. Nevertheless, the examination of a large number of grains has revealed dispersion from grain to grain. This dispersion, which could be explained by the intergranular heterogeneities, reduces the magnitude of the stress effect on c-loop microstructure.

In parallel to this experimental study, a cluster dynamics model has been able to describe the evolution under irradiation of zirconium and Zircaloy-4 microstructure and to assess the effect of stress on c-loop microstructure. On the macroscopic scale, a physical model was also developed to predict the irradiation growth and creep behaviour of zirconium alloy tubes.

Keywords : zirconium alloys, growth, c-loops, stress, cluster dynamics, macroscopic model



Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour
l'Environnement - LaSIE

Pôle Sciences et Technologie Avenue Michel Crépeau

17042 LA ROCHELLE CEDEX



Remerciements

Le présent mémoire est le fruit de trois années de travail menées au sein du Laboratoire d'Analyse Microstructurale des Matériaux (LA2M) du Service de Recherches Métallurgiques Appliquées (SRMA) du CEA Saclay (DEN/DANS/DMN) en étroite collaboration avec le Service de Recherches de Métallurgie Physique (SRMP).

Cette étude, engagée dans le cadre du Projet Alliages de Zirconium (PAZ-SP7) en partenariat avec AREVA-NP, est l'aboutissement d'un travail d'équipe unissant plusieurs personnes à qui je souhaite exprimer toute ma gratitude.

Je tiens tout d'abord à adresser mes plus sincères remerciements à mes deux encadrants CEA, Fabien Onimus et Thomas Jourdan, qui m'ont accompagnée tout au long de ce parcours. Merci à chacun d'eux de m'avoir accordé leur confiance et donné la possibilité de mener mes travaux de recherche dans les meilleures conditions possibles. Leurs précieux enseignements, leurs conseils avisés mais aussi leur disponibilité, leur enthousiasme au quotidien, leur implication sans faille, leurs encouragements et leur soutien m'ont permis de toujours avancer. Au cours de nos nombreuses discussions, ils ont grandement contribué à l'avancée de nos réflexions et à la résolution des interrogations les plus techniques grâce à leurs connaissances, leurs compétences scientifiques, leur expérience et leur dynamisme. Travailler avec eux m'a beaucoup apporté tant sur le plan scientifique qu'humain.

J'exprime toute ma reconnaissance à mon directeur de thèse, Xavier Feaugas, pour sa confiance, son apport scientifique et son regard critique. Ses remarques constructives et ses suggestions ont contribué à l'amélioration de la qualité des travaux réalisés.

Je remercie AREVA-NP pour avoir supporté financièrement mes travaux de recherche, et plus particulièrement Jean Paul Mardon et Florent Bourlier qui ont suivi avec un vif intérêt l'avancement de mon étude.

Je tiens à remercier Philippe Pilvin pour avoir accepté de présider le jury de soutenance, Frédéric Mompiau et Philippe Pareige qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Mes remerciements vont également aux autres membres du jury, Ludovic Thuinet et Malcolm Griffiths pour avoir accepté de consacrer une partie de leur temps à l'évaluation de ce travail.

Au cours de ce travail de thèse, j'ai eu le plaisir d'échanger avec de nombreuses personnes. Merci à Didier Gilbon pour ses remarques scientifiques pertinentes et son regard critique et constructif, Emmanuel Clouet et Céline Varvenne pour les discussions très intéressantes sur les calculs atomistiques, Yannick Robert pour l'aide qu'il m'a apportée au début de la thèse pour la modélisation avec le code de calcul en éléments finis *CAST3M*. Je remercie Thierry Vandanberghe pour son aide concernant la préparation des lames minces et la réalisation des expériences d'irradiation aux électrons dans le microscope électronique à très haute tension du SRMA, Jean-Luc Flament pour la réalisation des essais de traction à haute température et Gill Faccioli pour l'usinage des échantillons. Je souhaiterais également remercier Cyril Bachelet et Sandrine Picard, de l'équipe du CSNSM Orsay, pour leur accueil et leur aide lors des expériences d'irradiation aux ions.

A ces remerciements, je souhaite joindre ma reconnaissance à Jean-Luc Béchade pour m'avoir accueillie dans son laboratoire mais également pour ses conseils et son remarquable soutien. Plus généralement, je remercie l'ensemble des personnes que j'ai côtoyées au CEA, tous mes collègues du LA2M qui ont rendu ces trois années agréables.

Je ne peux terminer ces remerciements sans citer mes chers parents qui ont toujours cru en moi tout au long de mes études et qui m'ont encouragé dans tout ce que j'entreprends malgré la distance qui nous sépare. Je les remercie de m'avoir appris la persévérance, la rigueur et d'avoir ancré en moi la volonté de réussir et d'exceller dans tous mes projets. C'est grâce à eux que je suis là aujourd'hui. Je

tiens à remercier également ma sœur et mon frère ainsi que mes proches pour leur soutien inébranlable et leurs encouragements. Enfin, je dédie ce mémoire à mes chers parents, mon frère, ma sœur et son mari, mon petit neveu et à toute ma famille ...

Table des matières

Introduction	1
Chapitre 1 : Etude bibliographique	7
I.1 Généralités sur le zirconium et ses alliages	8
I.1.1 Propriétés cristallographiques du zirconium en phase α	8
I.1.2 Les alliages de zirconium	10
I.1.3 Modes de déformation plastique des alliages de zirconium non irradiés	17
I.1.4 Conclusions	22
I.2 Effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium	23
I.2.1 Origine de l'endommagement des alliages de zirconium sous irradiation	23
I.2.2 Evolution de la population de défauts ponctuels	26
I.2.3 Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$	30
I.2.4 Les boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$	38
I.2.5 Autres effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium	50
I.2.6 Conclusions	51
I.3 Déformation macroscopique des alliages de zirconium sous irradiation: constats expérimentaux et mécanismes	54
I.3.1 Comportement en croissance sous irradiation	54
I.3.2 Comportement en fluage d'irradiation	61
I.3.3 Conclusions	67
I.4 Références bibliographiques du chapitre 1	68
Chapitre 2 : Matériaux et techniques expérimentales	80
II.1 Matériaux de l'étude	81
II.1.1 Choix du produit Tube Reduced Extrusion (TRES)	81
II.1.2 Caractérisation du matériau non irradié	83
II.2 Irradiations expérimentales aux ions Zr^+	88
II.3 Méthode d'analyse en Microscopie Electronique en Transmission	91
II.3.1 Imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$	91
II.3.2 Mesure d'épaisseur des grains par spectroscopie de perte en énergie des électrons (EELS) ...	93
II.3.3 Quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$	96
II.3.4 Analyse de l'orientation cristallographique des grains par rapport au repère macroscopique ...	96
II.4 Conclusions du chapitre 2	102
II.5 Références bibliographiques du chapitre 2	103

Chapitre 3 : Etude expérimentale de l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante <c>	104
III.1 Effet de la température sur les boucles à composante < c > : état de l'art	105
III.2 Protocole expérimental	107
III.2.1 Choix des conditions d'irradiation	107
III.2.2 Qualification en température du porte-objet	109
III.3 Résultats microstructuraux : microstructure des boucles à composante < c > à 300°C	111
III.4 Résumé public : effet de la température sur les boucles à composante < c >	116
III.5 Références bibliographiques du chapitre 3	118
Chapitre 4 : Etude expérimentale de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante <c>	120
IV.1 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante < c > : motivation de l'étude et état de l'art	121
IV.1.1 Motivation de l'étude	121
IV.1.2 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles de dislocation : état de l'art expérimental	122
IV.2 Mise en contrainte sous flux d'ions : protocole expérimental	125
IV.2.1 Géométrie et préparation des échantillons	125
IV.2.2 Dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions	127
IV.2.3 Contrôle du niveau de contrainte appliquée	131
IV.3 Résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante < c >	136
IV.3.1 Caractérisation de la microstructure des boucles à composante < c > dans les échantillons « témoins », irradiés sans contrainte lors de l'expérience I	136
IV.3.2 Résultats de l'historique de chargement de type I : effet de la contrainte sur la dose seuil de nucléation des boucles à composante < c >	138
IV.3.3 Résultats de l'historique de chargement de type II : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante < c >	140
IV.4 Discussion des résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante < c >	147
IV.4.1 Discussion de l'effet de la contrainte au regard des mécanismes SIPN et SIPA	147
IV.4.2 Réflexion sur l'origine de la dispersion observée	150
IV.4.3 Confrontation avec une autre étude expérimentale	157
IV.5 Conclusions sur l'effet de la contrainte sur les boucles à composante < c >	158
IV.6 Références bibliographiques du chapitre 4	159

Chapitre 5 : Modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4	163
V.1 Présentation du modèle de dynamique d'amas	164
V.1.1 Hypothèses et équations du modèle.....	164
V.1.2 Paramètres physiques régissant l'évolution des défauts ponctuels	167
V.2 Identification des paramètres et validation du modèle sur les irradiations aux électrons .	178
V.2.1 Démarche adoptée.....	178
V.2.2 Identification et validation du modèle sur la base des expériences d'irradiation aux électrons	180
V.3 Application du modèle aux irradiations aux ions	196
V.3.1 Modélisation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions sans contrainte	196
V.3.2 Modélisation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$	201
V.4 Application du modèle à la prédiction de la croissance sous irradiation du zirconium.....	210
V.4.1 Calcul de la déformation de croissance sous irradiation dans le modèle de dynamique d'amas	210
V.4.2 Simulation de la croissance sous irradiation et confrontation aux données expérimentales de la littérature	212
V.5 Conclusions sur la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4	220
V.6 Références bibliographiques du chapitre 5.....	222
Chapitre 6 : Modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium	226
VI.1 Présentation de l'environnement du logiciel SiDoLo	228
VI.2 Base bibliographique de données expérimentales	228
VI.2.1 Comportement en croissance sous irradiation des tubes en alliages de zirconium	228
VI.2.2 Comportement en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium	230
VI.3 Hypothèses et lois de comportement introduites dans le modèle SiDoLo	232
VI.3.1 Hypothèses	232
VI.3.2 Lois de comportement en croissance des tubes de zirconium	232
VI.3.3 Lois de comportement en fluage sous irradiation des tubes de zirconium	237
VI.4 Identification des paramètres du modèle et modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium	241
VI.4.1 Identification des paramètres de comportement en croissance libre	241
VI.4.2 Identification des paramètres de comportement en fluage sous irradiation	244
VI.5 Modélisation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance	252
VI.5.1 Introduction de l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le modèle ..	253

VI.5.2 Simulation du mécanisme SIPA dans le modèle	254
VI.5.3 Simulation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance	256
VI.6 Conclusions de la modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium	257
VI.7 Références bibliographiques du chapitre 6.....	259
Conclusions et perspectives	262
Annexe C : Compléments du chapitre 4	269
C.1 Calcul de la contrainte maximale dans la zone irradiée des languettes	270
C.1.1 Chargement en flexion quatre points.....	270
C.1.2 Chargement en flambage	272
C.2 Calcul de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes.....	273
C.3 Mesure de la déflexion résiduelle des languettes au microscope numérique 3D	275
Annexe D : Coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires	276
D.1 Irradiation au Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT).....	277
D.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le Zircaloy-4 TREX irradié aux électrons de 1 MeV	278
D.2.1 Imagerie des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ en MET	278
D.2.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$	278
D.2.3 Coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires.....	282
D.3 Références bibliographique de l'annexe D.....	286

Introduction

Contexte industriel

L'industrie nucléaire est progressivement devenue la principale source de production d'électricité en France. Aujourd'hui, avec 58 réacteurs nucléaires en fonctionnement répartis sur 19 centrales nucléaires et une puissance installée de 63,4 GWatt, le parc nucléaire français assure 78% de la production d'électricité. Une des particularités de ce parc électronucléaire est sa standardisation. Tous les réacteurs actuellement en fonctionnement sont des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) qui appartiennent à la même filière technologique, appelée « réacteurs de deuxième génération ». Le 59^{ème} réacteur nucléaire français est en cours de construction à Flamanville. Ce réacteur de type EPR (European Pressurized Reactor) est un réacteur à eau pressurisée de troisième génération. Il est développé dans le but de fournir une puissance électrique de 1630 MWe. Ce réacteur dispose de quatre systèmes redondants de sûreté et devrait être capable de fonctionner avec un cœur comportant uniquement du combustible MOX (oxyde mixte d'uranium et de plutonium).

Les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) sont constitués de trois circuits : le circuit primaire, le circuit secondaire et le circuit tertiaire (Figure Intro.1). Le circuit primaire comporte la cuve (Figure Intro.2 (a)) dans laquelle est placé le cœur du réacteur, lieu de la réaction nucléaire en chaîne. L'énergie produite par la réaction de fission nucléaire chauffe l'eau du circuit primaire. En exerçant une forte pression de 155 bar, le pressuriseur permet de maintenir l'eau du circuit primaire sous sa forme liquide. Cette eau circule entre la cuve du réacteur et le générateur de vapeur qui assure le transfert de la chaleur de l'eau du circuit primaire à l'eau du circuit secondaire. Celle-ci est soumise à une pression plus faible (70 bar). Au contact des tubes internes du générateur de vapeur, l'eau du circuit secondaire se vaporise. La vapeur entraîne un turbo-alternateur produisant ainsi de l'électricité. A la sortie du turbo-alternateur, la vapeur est transformée en eau dans un condenseur refroidi par l'eau de mer ou de fleuve ou par l'air humide des tours de refroidissement.

Un cœur de REP est constitué d'assemblages de combustible nucléaire (Figure Intro.2 (b) et Figure Intro.2 (c)), 157 pour les réacteurs de puissance de 900 MWe et 193 pour ceux de 1300 MWe. Un assemblage de géométrie 17x17 comporte 264 crayons de combustible (Figure Intro.3 (a) et Figure Intro.3 (b)) arrangés en réseau à maille carrée dans une structure comprenant un embout supérieur, un embout inférieur, des grilles de maintien et/ou de mélange du caloporteur et 24 tubes guides (Figure Intro.3 (c)). Les crayons de combustible sont des tubes dans lesquels sont empilées des pastilles cylindriques de dioxyde d'uranium (UO_2) ou de MOX. Les tubes guides servent à accueillir les grappes de contrôle formées de crayons absorbants de neutrons qui permettent de contrôler la réaction en chaîne et de réguler la puissance du réacteur. Le tube central est réservé à l'instrumentation du réacteur. Les grilles de maintien sont soudées sur les tubes guides et assurent à l'aide des ressorts l'espacement et le maintien mécanique des crayons de combustible. En raison de l'épuisement du combustible, les assemblages sont renouvelés régulièrement avec une périodicité variant entre un an et 18 mois et à raison d'un quart ou d'un tiers du cœur. Un assemblage de combustible séjourne en moyenne 3 à 4 ans dans la cuve. Cette durée de séjour du combustible dans le cœur du réacteur a tendance à être prolongée par les exploitants qui cherchent à augmenter le taux de combustion au-delà de 60 GWj/tU (gégawatts jours par tonne d'uranium) dans le but d'améliorer les performances du réacteur, de réduire le volume des déchets radioactifs générés lors du rechargement du cœur tout en réduisant les coûts de production et en augmentant la compétitivité du parc nucléaire. Or, l'évolution vers des taux de combustion plus élevés rend l'environnement plus agressif pour les assemblages de combustible nucléaire. Face aux exigences de sûreté, il est primordial de garantir que la gaine, première barrière de confinement des produits radioactifs, mais également les éléments de structure de l'assemblage, notamment les tubes guides, conservent leur intégrité mécanique sous irradiation tout au long de leur période de séjour en réacteur. Le matériau

utilisé pour le gainage des crayons de combustible nucléaire et pour les éléments de structure de l'assemblage doit donc obéir à un cahier des charges bien précis.

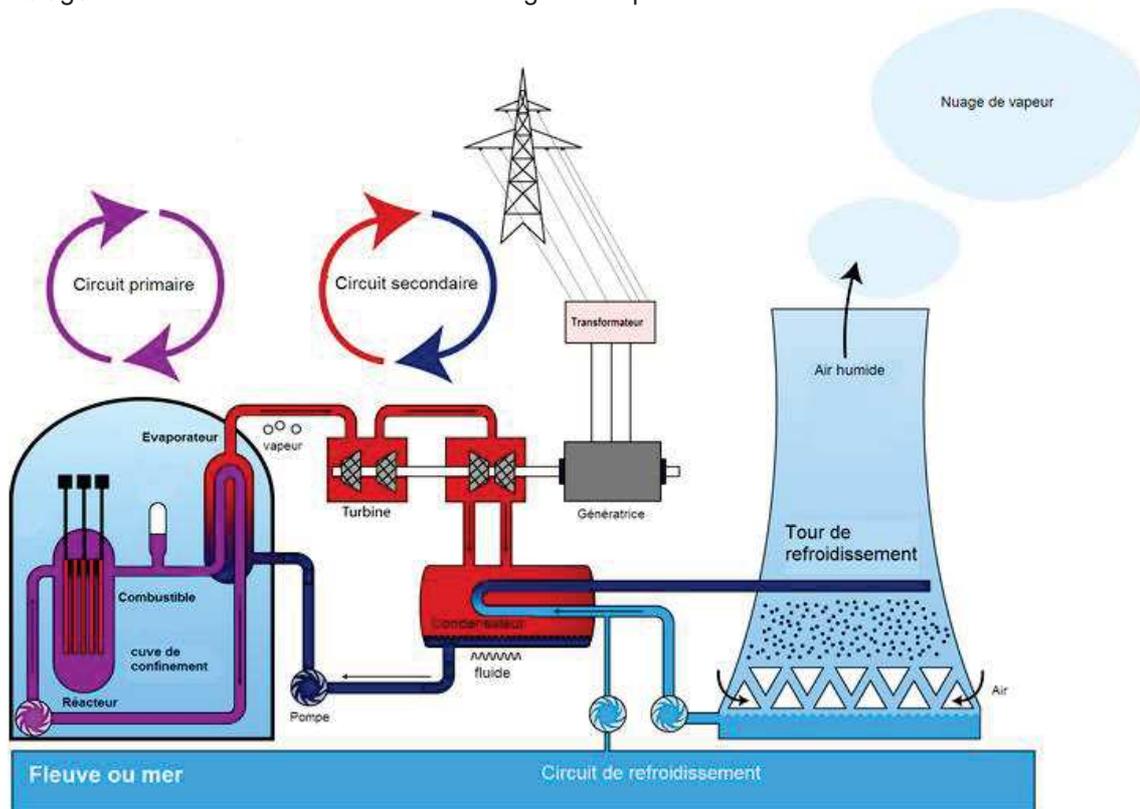


Figure Intro.1: Fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP).

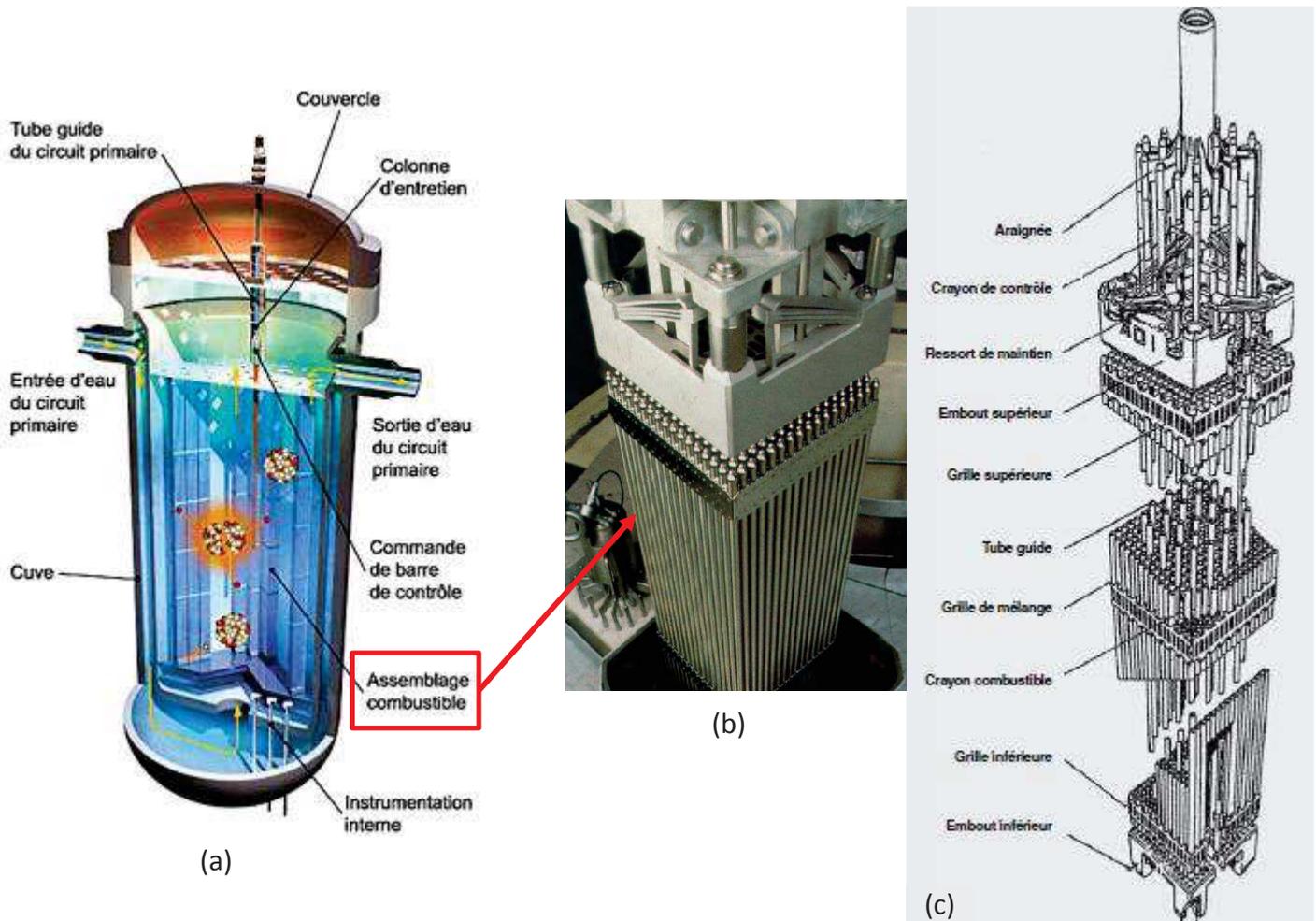


Figure Intro.2 – (a) Cuve d'un REP, (b) et (c) assemblage de combustible REP.

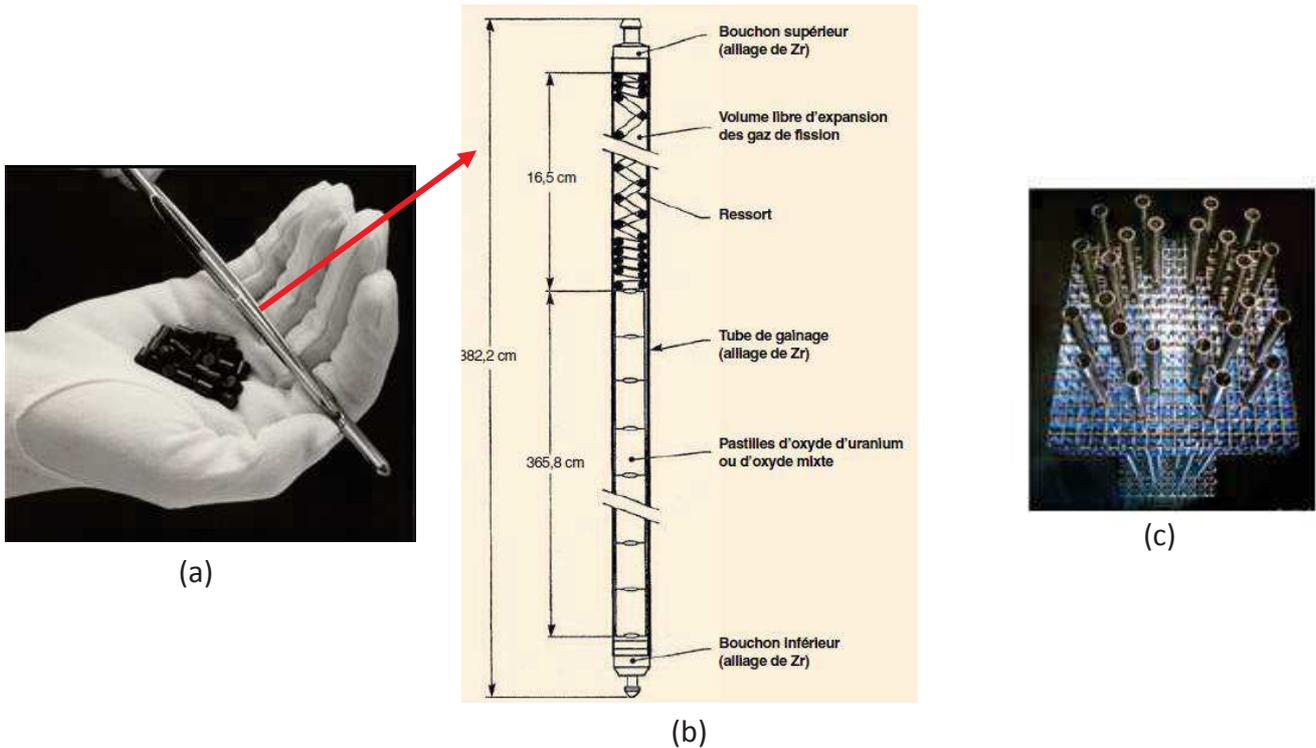


Figure Intro.3 – (a) Crayon de combustible nucléaire et pastilles, (b) crayon de combustible et (c) tubes guides et grilles.

Plusieurs facteurs ont abouti au choix des alliages de zirconium en tant que matériau de gainage et de structure pour les assemblages de combustible nucléaire du REP :

- Transparence aux neutrons thermiques : le zirconium présente une très faible section efficace de capture des neutrons thermiques ($0,185 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$). L'absorption des neutrons thermiques est limitée ce qui permet d'entretenir la réaction nucléaire en chaîne dans le cœur du réacteur ;
- Bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température (280 à 350°C) ;
- Bonnes propriétés mécaniques à chaud ;
- Stabilité des propriétés mécaniques sous irradiation.

Les alliages de zirconium se présentent comme des matériaux nucléaires stratégiques sur lesquels portent des études de R&D approfondies qui concernent notamment la compréhension et la prédiction de leur comportement mécanique sous irradiation fondée sur la description de l'évolution de leurs caractéristiques microstructurales. Ces études s'appuient sur l'analyse du retour d'expérience industriel mais aussi sur des expérimentations analytiques conduites dans des réacteurs expérimentaux ou dans des accélérateurs de particules chargées (ions, électrons, protons) ainsi que sur des modélisations à différentes échelles.

Problématique et démarche de l'étude

En fonctionnement nominal, les assemblages de combustible nucléaire sont soumis à diverses sollicitations neutroniques et thermomécaniques. Parmi ces sollicitations, nous citons par exemple le flux neutronique qui « endommage » le matériau, les efforts thermohydrauliques exercés par l'eau du circuit primaire sur l'assemblage, l'effort de compression appliqué par les ressorts de maintien, ... Ces sollicitations peuvent entraîner des variations dimensionnelles de l'assemblage. Plus particulièrement, en fin de vie, les assemblages s'allongent suivant la direction axiale : on parle alors de grandissement d'assemblage (Figure Intro.4). Ce phénomène apparaît comme un facteur limitant la durée de vie des

assemblages car il peut amener à un risque de déformation axiale ou latérale excessive. Il est donc important d'évaluer les déformations associées à ce phénomène de grandissement en vue de les prendre en compte dans les phases de dimensionnement et de conception de l'assemblage.

Fuel Assembly Growth, %

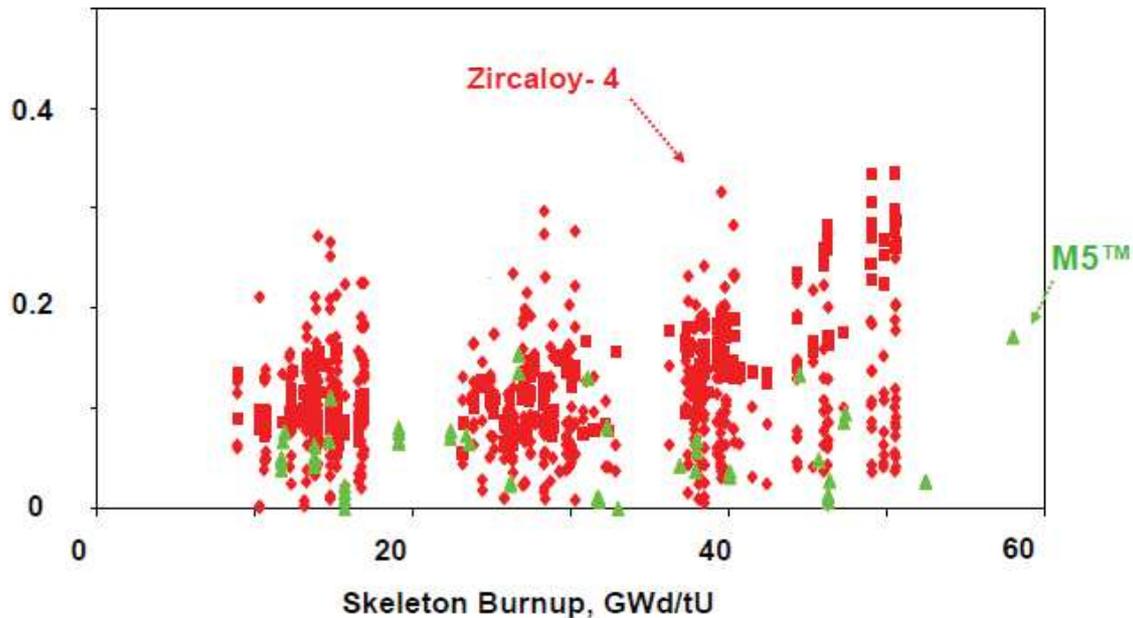


Figure Intro.4: Evolution du grandissement d'assemblages de Zircaloy-4 et de M5[®] [1].

La déformation liée au grandissement de l'assemblage est due principalement au fluage d'irradiation axial et au phénomène de croissance libre qui a lieu sous flux en l'absence de toute contrainte. Pour les alliages de zirconium recristallisés, la croissance sous irradiation reste modérée jusqu'à une accélération à forte dose d'irradiation. Cette accélération de croissance est corrélée à l'apparition d'un type spécifique de défaut d'irradiation : les boucles à composante $\langle c \rangle$. Une connaissance approfondie de l'évolution microstructurale et des mécanismes microscopiques régissant la formation et la croissance de ces défauts responsables de l'accélération de croissance est nécessaire pour pouvoir prédire le grandissement sous flux des tubes des assemblages de combustible. C'est ainsi que ce travail de thèse vise à caractériser et à modéliser la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ et le comportement en croissance libre et en fluage sous irradiation de deux alliages de zirconium recristallisés : le Zircaloy-4 et le M5[®].

Jusqu'à présent, les modèles de prédiction du comportement sous flux des alliages de zirconium adoptent, généralement, une approche pour laquelle les deux composantes de déformation induites par le fluage et la croissance sous irradiation sont décorréées. Les deux vitesses de déformation sont considérées comme additives. Il est cependant légitime de se demander dans quelle mesure cette approche est pertinente, compte tenu du fait que ces deux phénomènes de croissance libre et de fluage d'irradiation sont régis par des mécanismes microscopiques faisant intervenir la diffusion et l'élimination des défauts ponctuels, créés sous irradiation, sur les puits de la microstructure (dislocations, boucles de dislocation, joints de grains, etc.). Comme le phénomène d'accélération de croissance est associé à la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ et que le fluage d'irradiation a lieu sous l'action combinée de la contrainte et du flux, l'étude d'un éventuel couplage entre ces deux phénomènes est équivalente, d'un point de vue microscopique, à une analyse de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sous irradiation sur la microstructure de ces boucles de dislocation. Ainsi, dans l'objectif de répondre à cette question, des campagnes d'irradiation aux ions Zr^+ ont été menées pour simuler l'irradiation neutronique. L'approche expérimentale se base sur une étude statistique en Microscopie Electronique en Transmission (MET) de l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ sous l'effet d'une contrainte externe. Par ailleurs, dans la mesure où la

littérature recense peu de données expérimentales illustrant l'effet de la température sur l'évolution microstructurale des boucles à composante $\langle c \rangle$, un complément d'étude expérimentale, réalisée par irradiation aux ions Zr^+ , a porté sur l'influence de ce paramètre sur la microstructure de ces défauts d'irradiation.

En s'appuyant sur les résultats de ces analyses expérimentales et des données bibliographiques, une démarche de modélisation multi-échelle a été mise en œuvre. A l'échelle microscopique, cette démarche consiste à modéliser la microstructure sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4 à travers un modèle basé sur la méthode de dynamique d'amas. Plus particulièrement, le mécanisme expliquant l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été introduit dans ce modèle de dynamique d'amas pour apporter des éléments de comparaison avec les résultats obtenus à l'issue des irradiations aux ions. Un des objectifs de cette modélisation est également de déduire le comportement en croissance du monocristal de zirconium et du zirconium polycristallin et de confronter les résultats des simulations aux données expérimentales de la littérature. A l'échelle macroscopique, une démarche de modélisation analytique simplifiée fondée sur une description phénoménologique du comportement en croissance et en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium a été développée. En prenant en compte la loi d'évolution microstructurale des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la contrainte qui a été déterminée à l'issue des campagnes d'irradiation aux ions Zr^+ , il est possible d'examiner l'effet de la contrainte sur la déformation axiale des tubes en alliages de zirconium et de rendre compte ainsi de l'amplitude du couplage entre le fluage d'irradiation axial et le phénomène d'accélération de croissance.

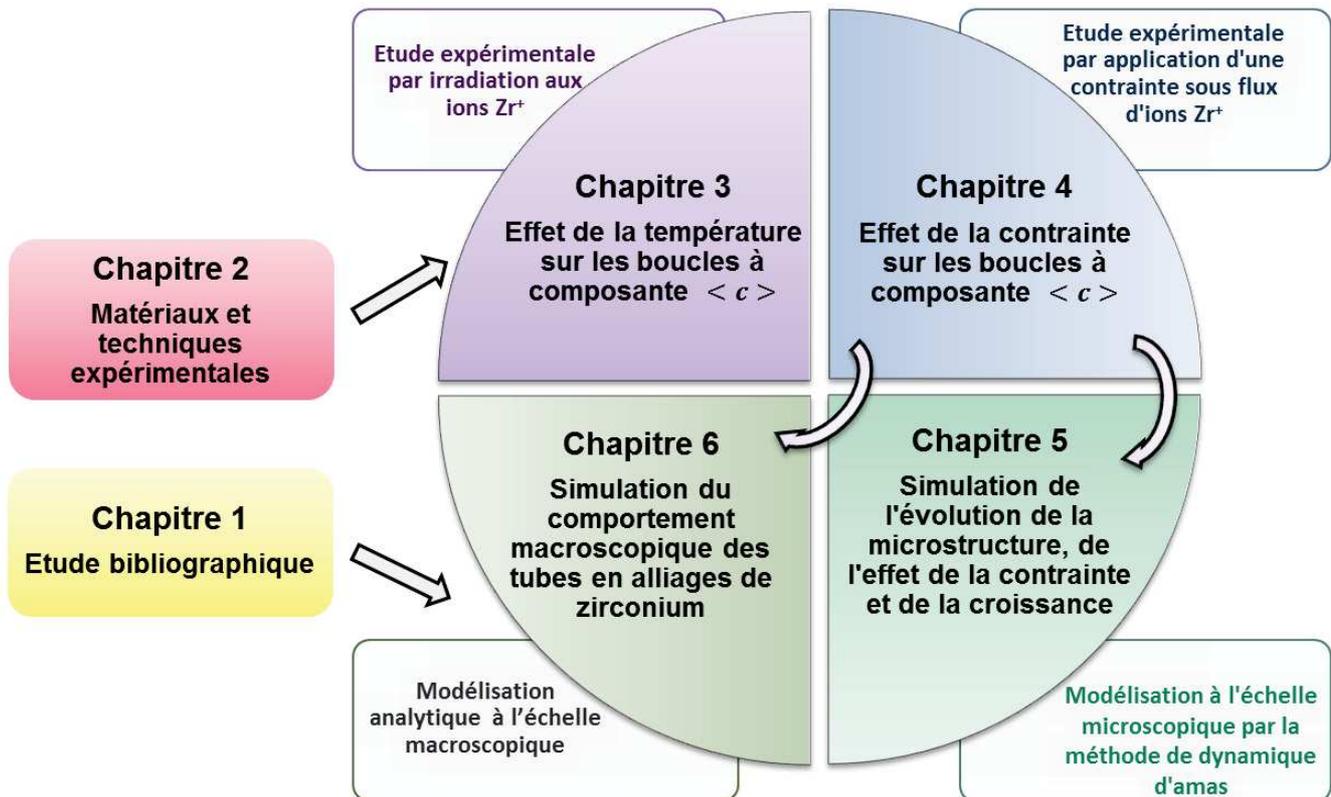
Ces travaux de recherche ont été entrepris dans le cadre d'un partenariat bi-partite entre le CEA et AREVA-NP. Les thématiques de recherche abordées dans ce travail de thèse se répartissent entre les deux volets du projet : le premier volet porte sur une approche analytique au moyen d'expériences d'irradiation aux particules chargées et le deuxième sur la modélisation physique de la déformation sous flux.

Plan du mémoire

Ce mémoire présente chacune des parties de la démarche mise en place lors de ce travail de thèse avec une organisation en six chapitres. Certains points sont détaillés ou complétés dans les annexes.

Le premier chapitre est consacré à une analyse bibliographique portant sur l'évolution microstructurale du zirconium et de ses alliages sous irradiation et leur comportement macroscopique sous flux. Le deuxième chapitre introduit les matériaux de l'étude, les techniques expérimentales et la méthode mise en place pour l'analyse des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET. Les chapitres trois et quatre portent sur deux études expérimentales conduites par irradiations aux ions zirconium dans le but d'examiner, respectivement, l'effet de la température et d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Le cinquième chapitre s'intéresse à la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de l'évolution sous irradiation de la microstructure du zirconium et du Zircaloy-4 ainsi qu'à l'effet de la contrainte et au comportement en croissance libre. Enfin, le dernier chapitre du mémoire est dédié à la modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des tubes en alliages de zirconium.

Ce travail de thèse s'inscrivant dans le cadre d'un partenariat entre le CEA et AREVA-NP, nous sommes tenus par des clauses de confidentialité. C'est la raison pour laquelle une partie du chapitre trois et du chapitre six ne figureront pas dans le corps du mémoire mais apparaîtront comme des annexes confidentielles. Néanmoins, nous dressons dans le mémoire un résumé public du chapitre trois. Ce résumé porte uniquement sur les résultats de l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4.



Références bibliographiques de l'introduction

- [1] J.-P. Mardon, P. B. Hoffmann, and G. L. Garner, "High burnup behavior and licensing of alloy M5TM," Présentation orale, 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Kyoto.

I. Chapitre 1

Etude bibliographique

L'objectif de ce chapitre est de fournir une synthèse bibliographique concernant l'évolution microstructurale du zirconium et de ses alliages sous irradiation et les mécanismes à l'origine de leur comportement macroscopique sous flux. Un intérêt particulier est porté aux deux défauts microstructuraux, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et les boucles à composante $\langle c \rangle$ et deux phénomènes responsables de la déformation sous irradiation de ces matériaux, à savoir la croissance libre et le fluage d'irradiation.

Cette revue apporte des éléments bibliographiques nécessaires pour la lecture et la compréhension des chapitres suivants.

Sommaire

I.1 Généralités sur le zirconium et ses alliages	8
I.1.1 Propriétés cristallographiques du zirconium en phase α	8
I.1.2 Les alliages de zirconium	10
I.1.3 Modes de déformation plastique des alliages de zirconium non irradiés.....	17
I.1.4 Conclusions	22
I.2 Effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium	23
I.2.1 Origine de l'endommagement des alliages de zirconium sous irradiation	23
I.2.2 Evolution de la population de défauts ponctuels	26
I.2.3 Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$	30
I.2.4 Les boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$	38
I.2.5 Autres effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium	50
I.2.6 Conclusions	51
I.3 Déformation macroscopique des alliages de zirconium sous irradiation: constats expérimentaux et mécanismes	54
I.3.1 Comportement en croissance sous irradiation	54
I.3.2 Comportement en fluage d'irradiation	61
I.3.3 Conclusions	67
I.4 Références bibliographiques du chapitre 1	68

I.1 Généralités sur le zirconium et ses alliages

I.1.1 Propriétés cristallographiques du zirconium en phase α

Le zirconium est un métal de transition qui présente à l'état solide deux phases allotropiques suivant le domaine de température considéré. A basse température ($T < T_{\alpha/\beta} = 863^\circ\text{C}$), sa structure cristallographique est hexagonale compacte correspondant à la phase α . Au-delà de cette température, le matériau subit une transformation allotropique conduisant à une phase appelée phase β de structure cubique centrée et stable jusqu'à la température de fusion ($T_f = 1854^\circ\text{C}$).

Dans la mesure où ce travail de thèse porte sur l'étude du matériau à des températures inférieures à la température de transformation allotropique α - β , $T_{\alpha/\beta}$, seule la phase α est considérée.

Dans le modèle des sphères dures, la structure hexagonale compacte (HCP) résulte d'un empilement de plans denses d'atomes parallèlement au plan de base selon la séquence ABAB... (Figure I.1.1). Suivant ce modèle, la structure HCP idéale présente un rapport $c/a = \sqrt{8/3} \cong 1,633$, c étant la hauteur du prisme hexagonal et a le côté de l'hexagone. A pression atmosphérique et à température ambiante, ce rapport vaut 1,593 pour le zirconium en phase α avec $a = 0,323$ nm et $c = 0,515$ nm.

La structure HCP peut être représentée soit par un prisme droit à base hexagonale (maille triple en Figure I.1.2 (a)) soit par un prisme droit à base losange (maille élémentaire en Figure I.1.2 (b)). La maille élémentaire de cette structure contient deux atomes A et B de coordonnées $(0,0,0)$ et $(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{2})$, respectivement.

La notation à quatre indices (h, k, i, l) de Miller-Bravais est généralement adoptée pour les matériaux hexagonaux. Cette notation permet de conserver la symétrie de rotation autour de l'axe $\langle c \rangle$ d'un angle de 60° dans le plan de base qui correspond à une symétrie d'ordre 6 et d'associer les familles de plans et de directions équivalentes par une simple permutation des trois premiers indices. En considérant cette notation, le plan de base hexagonal est défini par trois vecteurs \vec{a}_1, \vec{a}_2 et \vec{a}_3 formant un angle de 120° entre eux et obéissant à la relation $\vec{a}_1 + \vec{a}_2 + \vec{a}_3 = 0$ (Figure I.1.2 (c)). Les trois premiers indices h, k, i sont liés respectivement aux vecteurs \vec{a}_1, \vec{a}_2 et \vec{a}_3 et vérifient la même relation, à savoir $h + k + i = 0$. Les principaux plans et directions cristallographiques de la maille hexagonale compacte du zirconium en phase α sont donnés en notation à quatre indices de Miller-Bravais dans la Figure I.1.3.

La structure HCP induit une anisotropie des propriétés physiques du monocristal de zirconium. Des grandeurs caractéristiques comme le module de Young, le module de cisaillement et le coefficient de dilatation thermique varient suivant l'angle entre l'axe $\langle c \rangle$ et la direction cristallographique considérée (Tableau I.1.1).

En utilisant la technique de propagation d'ondes ultrasoniques, Fisher et Renken [1] ont déterminé les constantes élastiques de monocristaux de zirconium pour des températures allant de 4 à 1133 K. Northwood [2] en a déduit la variation des modules élastiques du monocristal Zr- α avec la température et l'orientation cristallographique. A température ambiante, le module de Young est maximum ($E_{[0001]} = 125$ GPa) suivant la direction $\langle c \rangle$, est égal à 97 GPa pour la direction $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ et passe par un minimum de 89 GPa à 52° par rapport à l'axe $\langle c \rangle$. Comme indiqué dans le Tableau I.1.1, l'anisotropie du module de cisaillement est moins forte.

La détermination des coefficients de dilatation thermique suivant les axes $\langle a \rangle$ (coefficient α_a) et les axes $\langle c \rangle$ (coefficient α_c) de la maille élémentaire du zirconium montre une anisotropie avec un rapport $\frac{\alpha_c}{\alpha_a}$ de 1,5 à température ambiante (Tableau I.1.1). Ce rapport d'anisotropie de dilatation thermique augmente avec la température et est de l'ordre de 1,9 à 300°C [3]. Cette anisotropie peut être la source de contraintes internes importantes au sein du matériau lors d'un chargement thermique.

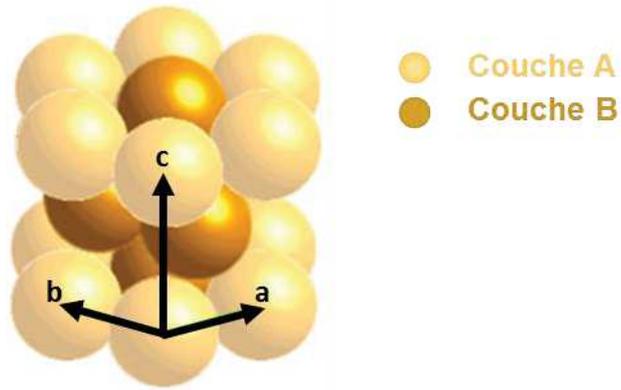


Figure I.1.1: Empilement de la structure hexagonale compacte.

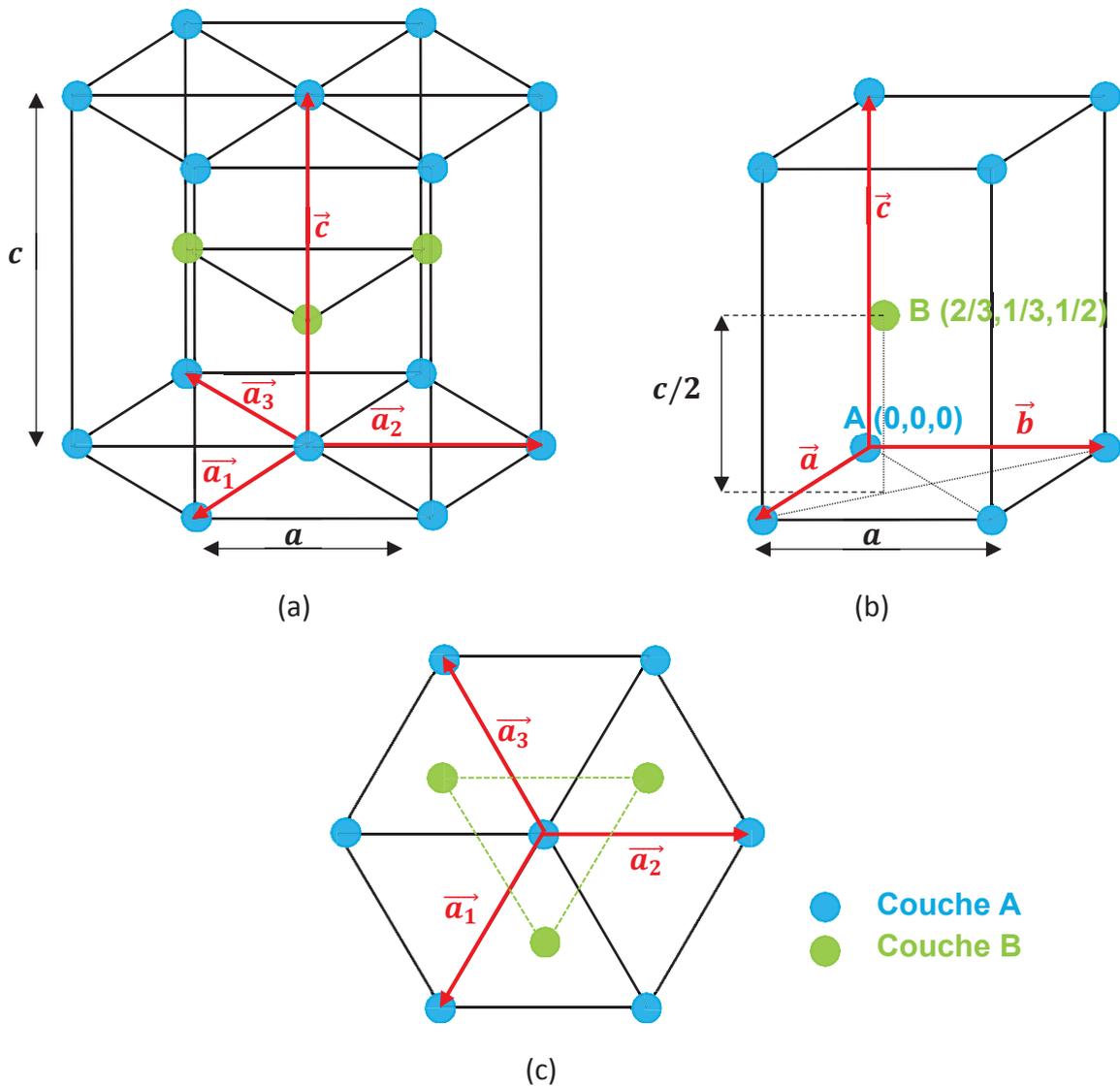


Figure I.1.2 – (a) Maille triple de la structure hexagonale compacte, (b) maille élémentaire de la structure hexagonale compacte et (c) représentation des trois vecteurs \vec{a}_1 , \vec{a}_2 et \vec{a}_3 dans le plan de base.

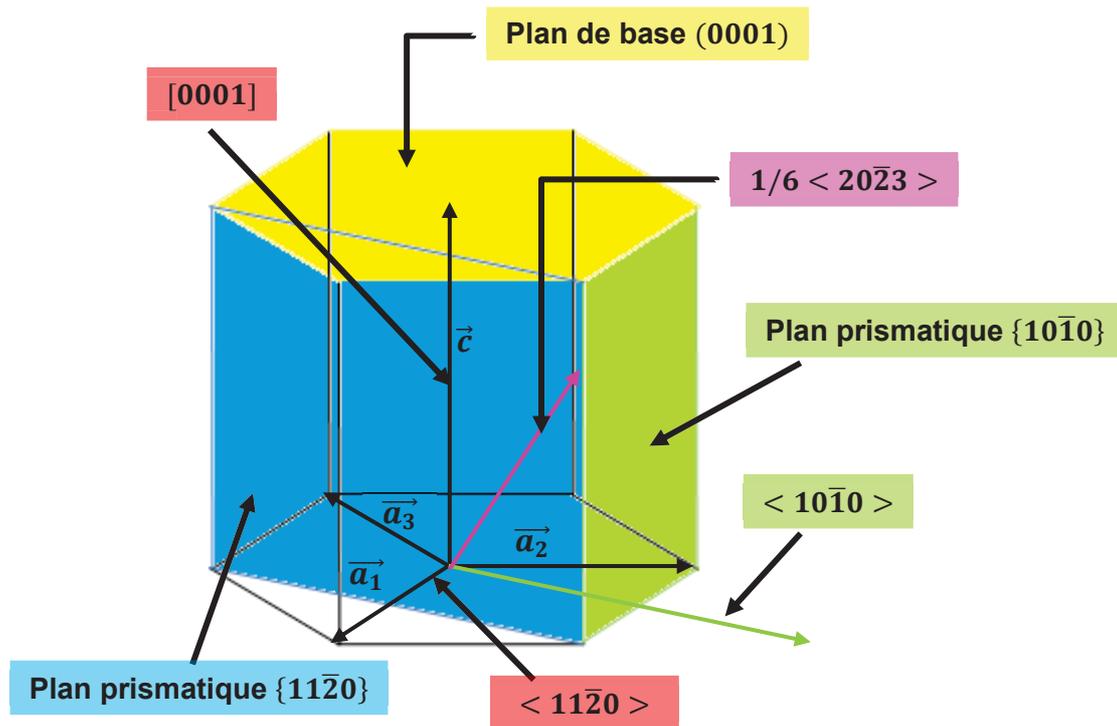


Figure I.1.3: Plans et directions cristallographiques suivant la notation à quatre indices de Miller-Bravais.

Tableau I.1.1: Anisotropie des propriétés thermoélastiques du monocristal Zr- α à température ambiante.

	Unité	Direction [0001]	Direction [10 $\bar{1}$ 0]	Référence
Paramètre de maille	nm	$c = 0,515$	$a = 0,323$	[3]
Module de Young	GPa	125	97	[1], [2]
Module de cisaillement	GPa	32	34	[1], [2]
Coefficient de dilatation thermique	K ⁻¹	$4,9 \times 10^{-6}$	$7,4 \times 10^{-6}$	[3]

I.1.2 Les alliages de zirconium

Plusieurs alliages de zirconium ont été développés dans le but d'améliorer leurs propriétés thermomécaniques ainsi que leur résistance à la corrosion et leur tenue à l'irradiation neutronique. Deux grandes classes de ces alliages interviennent dans la fabrication des composants des assemblages de combustible nucléaire : les « Zircaloy » présentant comme principal élément d'addition l'étain et les alliages au niobium. Historiquement, les alliages « Zircaloy » furent les premiers à être utilisés dans les réacteurs à eau bouillante (Zircaloy-2) et à eau pressurisée (Zircaloy-4). Les alliages de type Zr-Nb ont été développés à l'origine pour les tubes de force des réacteurs CANDU (Zr-2,5%Nb) et les tubes de gainage de la filière russe VVER (E110). Au début des années 80's, de nouveaux alliages appartenant à cette famille ont été élaborés pour répondre aux exigences des exploitants des REP, en particulier en ce qui concerne l'augmentation du taux de combustion et le prolongement de la durée d'utilisation du combustible. Des alliages, comme le M5[®] développé par AREVA-NP et CEZUS, ont montré des performances élevées par rapport au Zircaloy-4, en termes de tenue à l'oxydation et à l'hydruration. La Figure I.1.4 montre les limites du Zircaloy-4 vis-à-vis de la résistance à la corrosion, la croissance de la couche d'oxyde présentant une accélération pour des taux de combustion supérieures à 35 GWj/tU [4]. Au-delà d'une épaisseur limite d'une centaine de micromètres, la couche d'oxyde peut « desquamer » créant un point froid à la surface de la gaine. Celle-ci se trouve fragilisée par la précipitation d'hydrures. La baisse

concomitante de la tenue mécanique de la gaine, première barrière de confinement du combustible et des produits de fission, pour des taux élevés de combustion justifie le développement du nouvel alliage, le M5[®], qui présente une cinétique de corrosion constante avec le taux de combustion (Figure I.1.4).

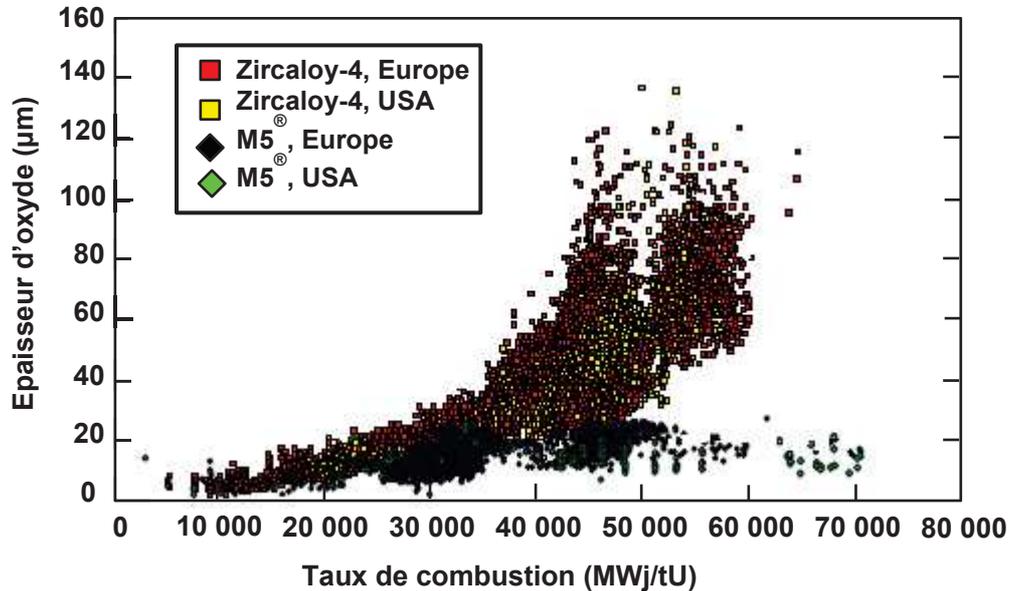


Figure I.1.4: Evolution de la couche d'oxyde dans le Zircaloy-4 et le M5[®] avec le taux de combustion [4].

Dans ce travail de thèse, l'étude porte sur deux alliages de zirconium : le Zircaloy-4, l'alliage le plus couramment utilisé jusqu'à ce jour pour les gaines de crayons de combustible et le nouvel alliage M5[®], actuellement généralisé comme matériau pour la gaine et les éléments de structure des assemblages combustibles des REP du parc français.

I.1.2.1 Composition chimique et précipités du Zircaloy-4 et du M5[®]

I.1.2.1.1 Composition chimique du Zircaloy-4 et du M5[®]

La composition chimique des deux alliages de zirconium étudiés, le Zircaloy-4 et le M5[®] est rappelée dans le Tableau I.1.2.

Tableau I.1.2: Composition chimique du Zircaloy-4 et du M5[®] (% massique).

	Sn	Fe	Cr	S	Nb	O	Zr
Zircaloy-4	1,32	0,215	0,108	-	-	0,125	Bal.
M5[®]	< 0,003	0,037	0,0049	0,0018	0,99	0,135	Bal.

L'amélioration de la tenue à la corrosion aqueuse des alliages appartenant à la famille Zr-Nb, comme le M5[®], est corrélée à la baisse de la teneur en étain, avec en contrepartie, une perte de la tenue mécanique à haute température. Cette perte est compensée par l'ajout de l'oxygène qui leur confère un durcissement structural de type solution solide. Le soufre contribue également à l'amélioration des propriétés mécaniques de ces alliages, où environ 10 ppm suffisent à diviser par trois la vitesse de fluage thermique à 400°C [5], [6]. Le niobium et les métaux de transition, comme le fer et le chrome, apportent une amélioration de la résistance à la corrosion.

1.1.2.1.2 Eléments en solution solide dans le Zircaloy-4 et le M5®

L'étain est un élément alphasène qui présente une grande solubilité dans le domaine α du zirconium (jusqu'à 7,3% en masse à 982°C) [7]. Pour les teneurs des alliages étudiés (Tableau I.1.2), il est entièrement dissous dans la phase Zr- α et forme avec la matrice une solution solide substitutionnelle. L'ajout de l'étain contribue au durcissement de la matrice et améliore les propriétés mécaniques de l'alliage mais dégrade par contre sa résistance à la corrosion. La teneur en étain est donc définie de manière à trouver un compromis entre ces deux effets : un effet durcissant sur l'alliage et un effet détériorant sur sa tenue en corrosion.

Egalement très soluble dans la phase α du zirconium, l'oxygène se trouve en solution solide, occupant une position interstitielle. Il augmente la résistance mécanique de l'alliage sans nuire à sa tenue en corrosion. Élément alphasène, il stabilise, tout comme l'étain, la phase α du zirconium.

Le soufre est présent à très faible teneur dans l'alliage M5® (Tableau I.1.2). Cet élément d'addition se trouve en solution solide jusqu'à une teneur de 20 ppm massiques [5]. Dans le M5®, il se trouve à la fois en solution solide et sous forme ségréguée. Des calculs *ab-initio* [6], [8] ont montré que les atomes de soufre ségrégent au cœur des dislocations vis $\langle a \rangle$, modifiant leur structure et leurs propriétés (étalement du cœur, mobilité, ..). Cette interaction entre les atomes interstitiels du soufre et les dislocations serait à l'origine de l'amélioration des propriétés en fluage de l'alliage.

L'oxydation et l'hydruration de la face externe des gaines par l'eau du circuit primaire conduisent à une prise d'hydrogène dans la matrice métallique. La solubilité de l'hydrogène dans les alliages de zirconium croît avec la température selon une loi d'Arrhenius [9]. Alors qu'elle est quasi-nulle dans le Zircaloy-4 à température ambiante, la solubilité de l'hydrogène avoisine les 100 ppm massiques à 320°C [9]. Au-delà de la limite de solubilité, l'hydrogène précipite sous forme de plaquettes d'hydrures.

L'analyse d'échantillons de ZrH_{0,05} par diffusion inélastique des neutrons a montré, que lorsque l'hydrogène se trouve en solution solide dans la matrice Zr- α , il occupe les sites tétraédriques [10]. Les calculs *ab-initio* confirment ce résultat expérimental [11], [12]. De plus, les récents calculs de Christensen *et al.* [13] précisent que les atomes interstitiels d'hydrogène se placent principalement dans les sites tétraédriques de la maille hexagonale compacte du zirconium mais qu'une fraction non négligeable se positionne dans les sites octaédriques.

La présence de l'hydrogène, aussi bien en insertion que sous forme d'hydrures, provoque une distorsion du réseau hexagonal et génère une dilatation volumique de l'ordre de 11% pour une concentration d'hydrogène de 10000 ppm massiques [13].

1.1.2.1.3 Etat de précipitation du Zircaloy-4 et du M5®

Le fer et le chrome sont deux éléments bêtagènes de solubilité très faible dans la phase Zr- α . Pour le Zircaloy-4, la limite de solubilité du chrome est de 66 ppm massiques à 805°C [14] et de 200 ppm massiques à 860°C [15], la solubilité du fer n'excédant pas les 54 ppm massiques à 805°C [14] et les 120 ppm massiques à 820°C [15]. Par conséquent, ces deux éléments d'addition précipitent sous forme de phases intermétalliques, appelées phases de Laves, de type Zr(Fe,Cr)₂ pour le Zircaloy-4 (Figure I.1.5 (a)). Ces phases présentent deux structures cristallographiques, la structure C14 hexagonale ($a = 0,511$ nm et $c = 0,828$ nm) et la structure C15 cubique à faces centrées ($a = 0,721$ nm) [16], [17]. Une règle empirique a été proposée par Kanematsu *et al.* [18] et vérifiée par Shaltiel *et al.* [19] pour déterminer la forme cristallographique de ces composés. Selon cette règle, les phases Zr(Fe_xCr_{1-x})₂ sont cubiques pour $x \leq 0,1$, hexagonales pour $0,15 \leq x \leq 0,8$ et de nouveau cubiques pour $x \geq 0,9$ [18], [19]. Le rapport de concentration Fe/Cr dans le Zircaloy-4 est d'environ 2 (Tableau I.1.2). x étant égal à $\frac{2}{3}$, les phases de Laves Zr(Fe_xCr_{1-x})₂ sont majoritairement de structure hexagonale. Ces précipités intermétalliques, répartis uniformément dans la matrice, garantissent à l'alliage une bonne résistance à la corrosion.

Le niobium présente une faible solubilité en phase α du zirconium, d'environ 0,6% en masse à 600°C [20]. Pour le M5[®], cet élément d'addition est présent en solution solide de substitution mais aussi sous forme de précipités β -Nb (Figure I.1.5 (b)) riches à 85% en masse en niobium [21] et de structure cubique centrée. Ces particules, de diamètre moyen d'environ 35 nm [21] sont réparties de façon homogène dans la matrice de zirconium. Des phases de Laves de type $Zr(Fe,Nb)_2$ de structure hexagonale compacte peuvent aussi se former mais sont plus rarement rencontrées que les précipités β -Nb [22].

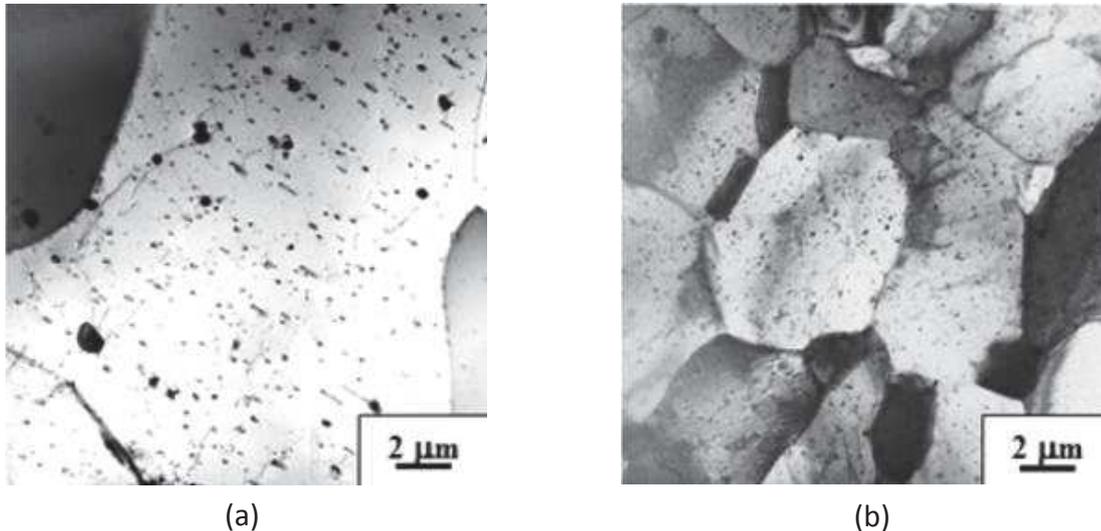


Figure I.1.5: Phases secondaires dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] – (a) phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ dans le Zircaloy-4 recristallisé et (b) précipités β -Nb dans le M5[®] [21].

I.1.2.2 Elaboration des tubes en alliages de zirconium : états métallurgiques, texture cristallographique et anisotropie élastique

Le minerai le plus utilisé pour la fabrication du zirconium est le zircon, un silicate double de zirconium et de hafnium de formule $ZrSiO_4(HfSiO_4)$. Le zircon contient environ 2,5% de hafnium dont la section efficace de capture des neutrons est environ 1000 fois plus élevée que celle du zirconium. Pour une application dans l'industrie nucléaire, une étape de purification par attaque à l'acide chlorhydrique est nécessaire afin de séparer le zirconium du hafnium. Le minerai est ensuite transformé en des éponges de zirconium compactées avec la matière recyclée et les éléments d'addition. Par la suite, des lingots sont élaborés par fusions multiples dans un four à arc à électrode consommable fonctionnant sous vide. Ces lingots sont forgés puis trempés. S'ensuit alors une extrusion à chaud puis plusieurs passes de laminage à froid à pas de pèlerin, entrecoupées par des recuits intermédiaires permettant de contrôler la distribution des précipités et de restaurer les contraintes internes introduites lors des phases d'élaboration du tube. Après la dernière passe de laminage, les tubes, dont la géométrie obtenue correspond à celle du produit final, subissent un traitement thermique final qui détermine leur état métallurgique.

Une illustration des différentes étapes d'élaboration des tubes en alliages de zirconium est donnée dans la Figure I.1.6. Deux types de traitement thermique final sont considérés, le traitement de détente et le traitement de recristallisation partielle ou totale conduisant, respectivement, à un état détendu ou à un état recristallisé du produit final. Ces deux états métallurgiques seront détaillés ultérieurement dans la partie I.1.2.2.1 de ce chapitre.

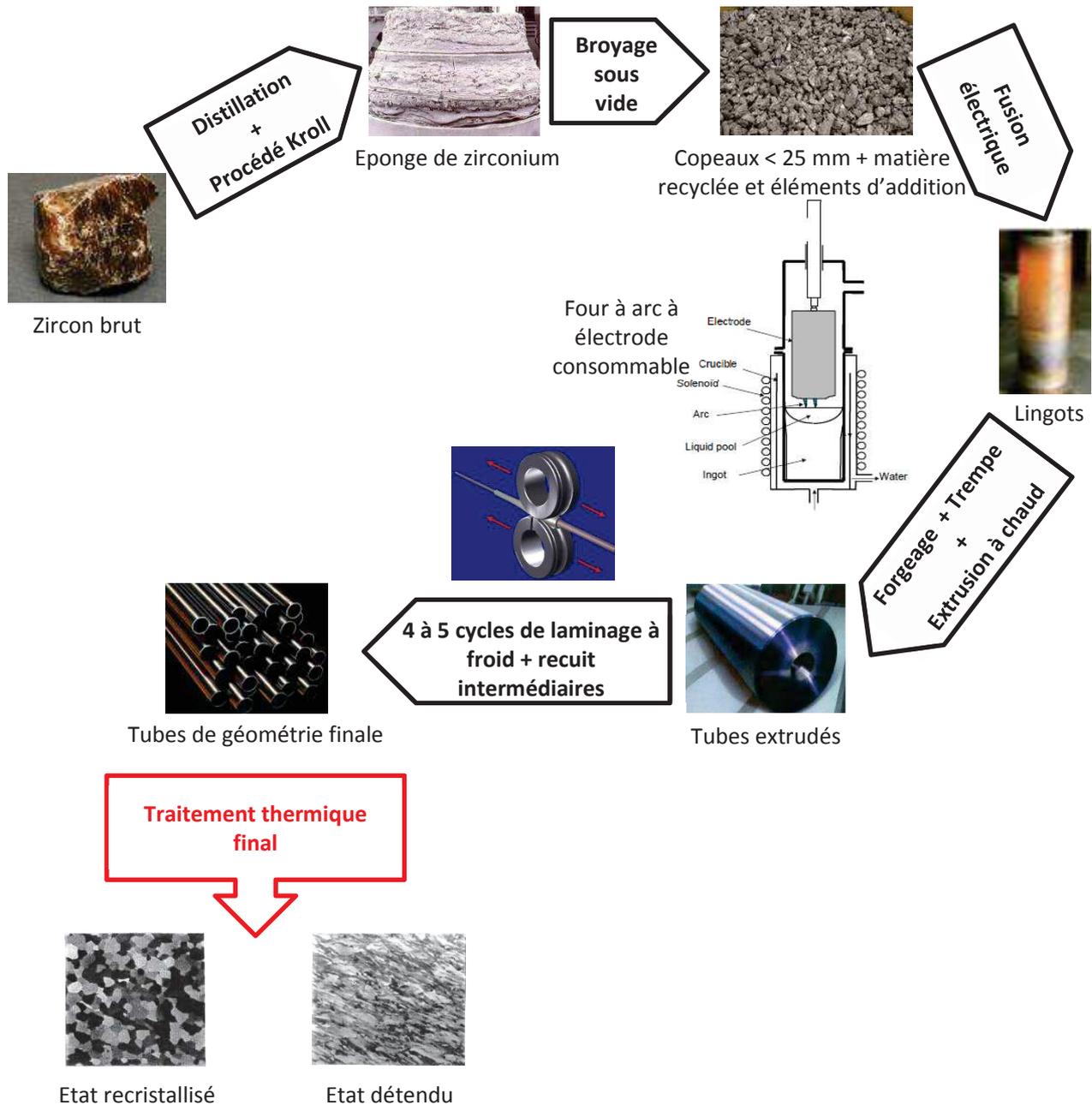


Figure I.1.6: Illustration des étapes d'élaboration des tubes (gainés et tubes guides) en alliages de zirconium.

I.1.2.2.1 Etats métallurgiques

Les alliages de zirconium, utilisés dans l'industrie du nucléaire, se présentent principalement sous deux états métallurgiques :

- **Etat détendu** : obtenu par un recuit à une température comprise entre 450 et 500°C pendant quelques heures, typiquement à 475°C pendant deux heures, dans le but de relaxer les contraintes internes. Cependant, ce traitement ne restaure que partiellement l'écroissage du matériau dont la microstructure est caractérisée par une densité très élevée de dislocations $\langle a \rangle$ et $\langle c + a \rangle$ et des grains allongés suivant la direction de laminage. Les grains ont une taille moyenne d'environ 10 à 20 μm suivant la direction axiale du tube et 2 à 5 μm suivant les

deux autres axes (Figure I.1.6). Cet état est utilisé pour les gaines en Zircaloy-4 de l'assemblage combustible des REP;

- **Etat recristallisé** : obtenu par un traitement de recristallisation qui consiste à porter le matériau à une température plus élevée, de 550 à 650°C, typiquement à 580°C pour le M5[®] et à 620°C pour le Zircaloy-4 pendant deux heures. La microstructure du produit final se caractérise par des grains équiaxes de taille typique de 5 µm (Figure I.1.6) et une faible densité de dislocations. Cet état recristallisé est utilisé pour les tubes guides en Zircaloy-4 et en M5[®] et pour les gaines en M5[®] des REP.

I.1.2.2 Texture cristallographique et anisotropie élastique

A la suite des procédés de mise en forme des tubes et du fait de l'anisotropie de la maille hexagonale compacte du zirconium, les gaines et les tubes guides affichent une texture cristallographique marquée.

A l'état détendu, les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ sont majoritairement inclinés de ± 30 à 40° par rapport à la direction radiale du tube, dans le plan radial-transverse (DR-DT), les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ étant préférentiellement orientées suivant la direction de laminage (DA) correspondant à la direction axiale du tube (Figure I.1.7 (a), Figure I.1.8 (a) et Figure I.1.8 (b)). Les alliages recristallisés présentent une texture identique avec une large proportion des grains distribués dans les plans radiaux (DR-DT) du tube, leurs axes $\langle c \rangle$ faisant un angle de $\pm 30^\circ$ par rapport à la direction radiale. Toutefois, par rapport à l'état détendu, les axes cristallographiques $\langle a \rangle$ ont tourné d'environ 30° , les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ s'alignant avec la direction de laminage (DA) (Figure I.1.7 (b), Figure I.1.8 (c) et Figure I.1.8 (d)).

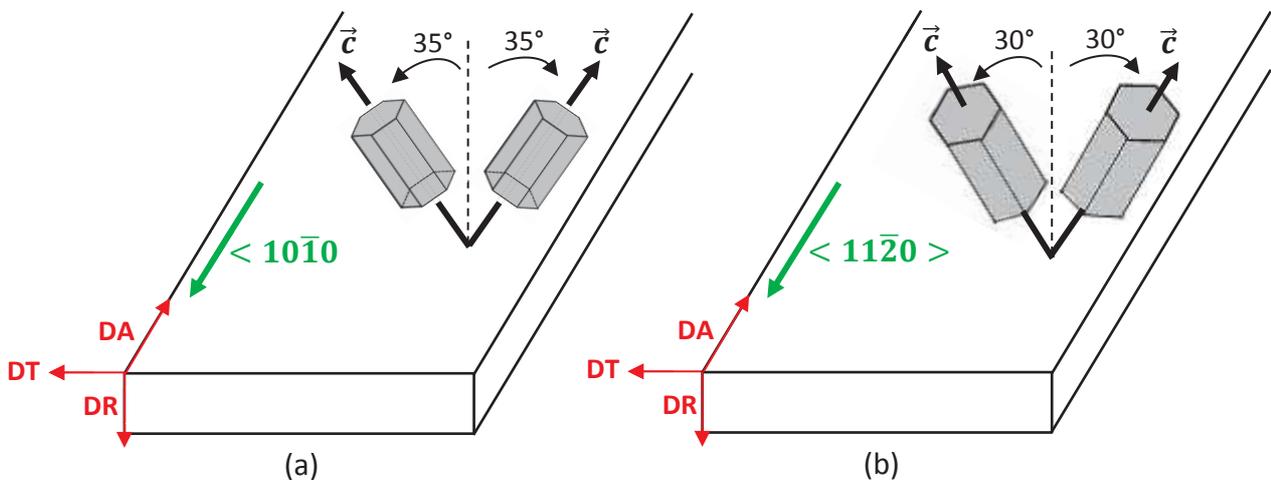


Figure I.1.7: Illustration de l'orientation du cristal de zirconium dans une plaque – (a) à l'état détendu et (b) à l'état recristallisé.

En plus des figures de pôle, la texture cristallographique de ces alliages peut être caractérisée de manière plus globale par les facteurs de Kearns f_{DR} , f_{DT} et f_{DA} définis comme la fraction équivalente des grains dont les axes $\langle c \rangle$ sont alignés suivant les trois directions radiale (DR), transverse (DT) et axiale (DA), respectivement. En raison de la texture radiale des tubes en alliages de zirconium, le facteur f_{DR} est beaucoup plus élevé que f_{DT} et f_{DA} avec $f_{DT} > f_{DA}$.

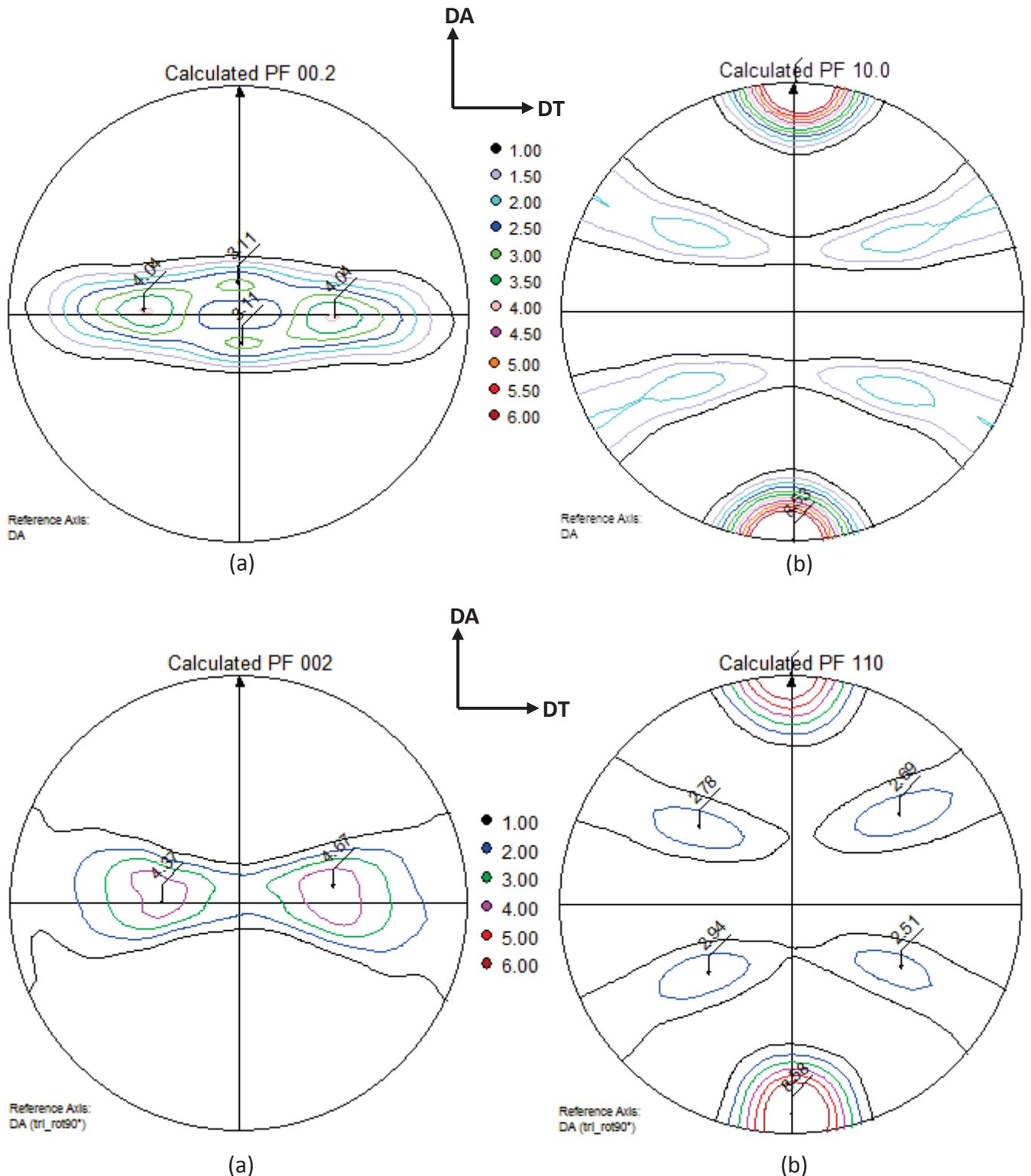


Figure I.1.8: Figures de pôles du Zircaloy-4 – (a) pôle (0002) pour le Zy-4 détendu, (b) pôle $\{10\bar{1}0\}$ pour le Zy-4 détendu, (c) pôle (0002) pour le Zy-4 recristallisé et (d) pôle $\{11\bar{2}0\}$ pour le Zy-4 recristallisé.

La texture cristallographique est une donnée essentielle qui affecte les propriétés thermoélastiques du polycristal et caractérise l'anisotropie de son comportement mécanique et thermique. Pan *et al.* [23] ont examiné son effet sur le module d'élasticité de plaques en Zircaloy-4 détendu et recristallisé. A température ambiante, l'écart entre les modules d'élasticité suivant la direction transverse et axiale est de l'ordre de 1% pour le Zircaloy-4 détendu avec $E_{DT} = 97,51$ GPa et $E_{DA} = 96,32$ GPa. Cet écart

n'est que de 0,3% pour le Zircaloy-4 recristallisé. Cela justifie le fait que l'élasticité macroscopique des alliages de zirconium est généralement considérée comme isotrope à température ambiante. En revanche, le comportement en plasticité de ces matériaux est fortement anisotrope en raison de leur faible symétrie cristalline et de leur texture cristallographique prononcée.

I.1.3 Modes de déformation plastique des alliages de zirconium non irradiés

Les modes de déformation plastique dépendent principalement de la structure cristalline du matériau, des cisssions résolues critiques dans les plans et les directions considérées ainsi que du niveau de la déformation, de la vitesse de sollicitation, de la température et des éléments d'addition. La déformation plastique des métaux de structure hexagonale compacte est régie par le glissement des dislocations et par le maclage. Dans les alliages de zirconium, le maclage n'a été observé qu'à basse température et pour des déformations plastiques relativement élevées [24]–[27]. A température ambiante, ce mode de déformation permet à des monocristaux de zirconium sollicités en traction ou en compression d'accommoder la déformation suivant leur axe cristallographique $\langle c \rangle$ [24], [28]. L'apparition de ce mode de déformation, dans ce cas particulier, peut être expliquée par le nombre limité de systèmes de glissement des dislocations dans la maille hexagonale compacte du zirconium, ces systèmes permettant majoritairement d'accommoder la déformation suivant la direction $\langle a \rangle$. La suite de cette synthèse bibliographique ne portera que sur l'analyse du mode de glissement des dislocations, mode actif pour les gammes de déformation et de température de fonctionnement en réacteur.

I.1.3.1 Dislocations et systèmes de glissement

La notion de dislocation est indispensable à la compréhension des mécanismes microscopiques responsables de la plasticité des métaux. Les différents types de dislocations rencontrées dans les structures hexagonales compactes sont donnés dans le Tableau I.1.3. Les vecteurs de Burgers de ces défauts linéaires sont représentés à l'aide d'un double tétraèdre (Figure I.1.9), dérivé du tétraèdre de Thompson utilisé dans les structures cubiques à faces centrées. Nous recensons 6 dislocations de type $\langle a \rangle$ (AB), 2 dislocations de type $\langle c \rangle$ (TS), 12 dislocations pyramidales de type $\langle c + a \rangle$ (SA/TB), 6 dislocations de type partielle de Shockley ($A\sigma$), 4 dislocations de type $\langle c/2 \rangle$ (σS) et 12 dislocations de type $1/6 \langle \bar{2}203 \rangle$ (AS).

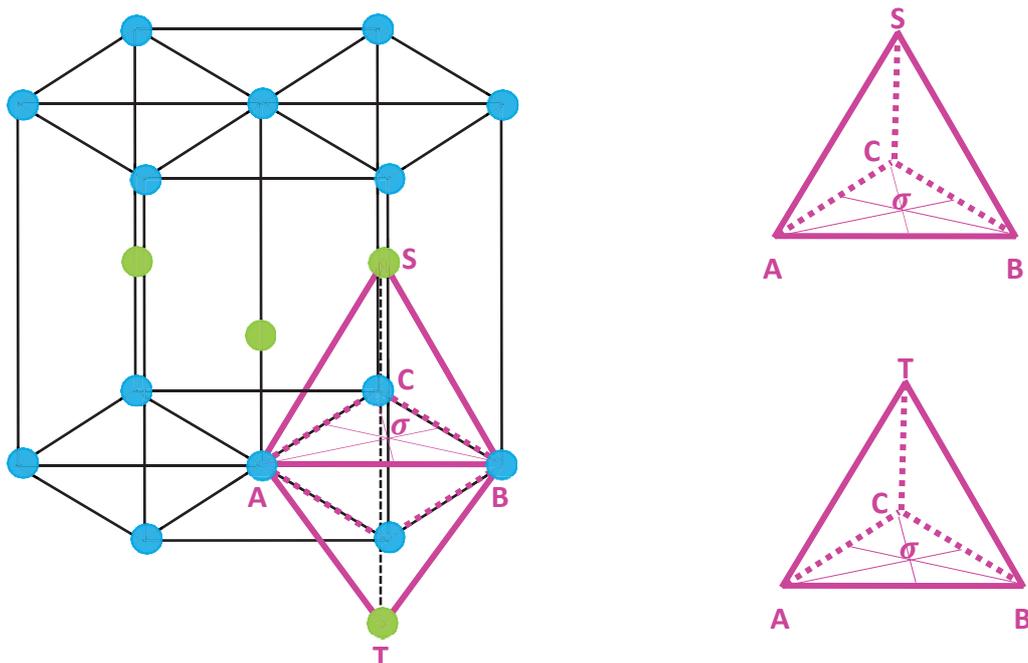


Figure I.1.9: Représentation du double tétraèdre dans la maille hexagonale compacte.

Tableau I.1.3: Types des dislocations dans les structures hexagonales compactes.

Type	AB	TS	SA/TB	Aσ	σS	AS
\vec{b}	$\frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	[0001]	$\frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$	$\frac{1}{3} \langle \bar{1}100 \rangle$	$\frac{1}{2} [0001]$	$\frac{1}{6} \langle \bar{2}203 \rangle$
$\ \vec{b}\ $	a	c	$\sqrt{c^2 + a^2}$	$\frac{a}{\sqrt{3}}$	$\frac{c}{2}$	$\sqrt{\frac{c^2}{4} + \frac{a^2}{3}}$

Le mouvement d'une dislocation a lieu dans le plan contenant son vecteur de Burgers et sa ligne, le système de glissement étant formé par la combinaison de ce plan de glissement et le vecteur de Burgers. De façon générale, le glissement des dislocations dans les métaux hexagonaux se fait suivant quatre plans (basal B , prismatique P , pyramidal de première espèce π_1 et pyramidale de seconde espèce π_2) et selon deux directions ($\langle a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $\langle c + a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$) [24], conduisant ainsi à cinq familles de systèmes de glissement possibles (Tableau I.1.4).

La facilité relative des modes de glissement a fait l'objet de plusieurs approches théoriques. Nous citons le critère de Peierls-Nabarro, selon lequel les directions et les plans de glissement dans les métaux correspondent aux directions et aux plans denses. Le rapport c/a du zirconium étant inférieur à $\sqrt{3}$, les plans denses sont les plans prismatiques. Par conséquent, le système de glissement principal est le système prismatique de type $\langle a \rangle$. Dans le but de lever les exceptions de certains matériaux au critère géométrique de Peierls-Nabarro, Legrand [29] a suggéré une autre approche qui prend en considération la structure électronique du matériau. En utilisant un modèle de liaisons fortes, Legrand [29], [30] met en évidence une structure non planaire du cœur des dislocations vis $\langle a \rangle$ qui présente un étalement principal dans le plan prismatique et des étalements secondaires dans le plan basal. Pour la détermination du plan de glissement principal, un critère se basant sur la comparaison des énergies de faute d'empilement corrigées par les coefficients élastiques dans le plan de base et dans le plan prismatique a été proposé par Legrand [29], [31]. Ce critère a été vérifié pour tous les métaux hexagonaux et plus particulièrement pour le zirconium, pour lequel le glissement prismatique, de plus faible énergie de faute d'empilement, est le plus facile à activer.

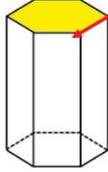
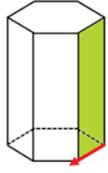
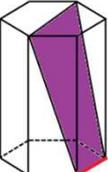
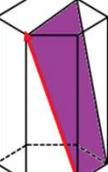
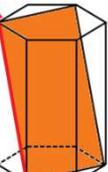
Les observations en Microscopie Electronique en Transmission (MET) confirment que le glissement prismatique $P \langle a \rangle$ est le système de glissement principal du zirconium [27] et de ses alliages [25], ceci pour toutes les directions de sollicitation et pour une large gamme de températures. D'autres systèmes de glissement, dits secondaires, permettent aussi d'accommoder la déformation plastique de ces matériaux mais sont plus difficiles à activer que le glissement prismatique. Des études sur des monocristaux de titane [32] ont mis en évidence un mode de glissement dans les plans pyramidaux de première espèce, associé à la déviation du glissement prismatique des dislocations vis $\langle a \rangle$. Cependant, ce glissement $\pi_1 \langle a \rangle$ n'intervient pas seulement lors du glissement dévié mais a été également observé comme glissement simple dans le Ti- α [33] et dans les alliages de zirconium [8], [25] en particulier pour des températures supérieures à 200°C. L'activation du système de glissement basal $B \langle a \rangle$ a été notée dans quelques cas particuliers, pour des monocristaux de zirconium en traction à une température au-dessus de 580°C [26] et pour le Zircaloy-4 à une température de 350°C et à partir d'une déformation plastique de 1% suivant la direction circonférentielle [25]. Ce système de glissement semble ne pouvoir s'activer que pour des orientations de sollicitation favorables, pour des niveaux de déformation plastique importants et pour une température élevée [8], [25]. Par ailleurs, les seuls systèmes de glissement permettant une accommodation de la déformation suivant l'axe $\langle c \rangle$ sont les systèmes pyramidaux $\pi_1 \langle c + a \rangle$ et $\pi_2 \langle c + a \rangle$. Ces systèmes sont très rarement observés dans le cas des faibles déformations plastiques [8], [24], [25].

Rautenberg *et al.* [34]–[36] ont étudié, via des expérimentations entreprises en MET *ex-situ* [34], [35] et *in-situ* [36] sur le M5[®], la facilité d'activation des systèmes de glissement en fonction de la direction de sollicitation à une température de 400°C et pour des niveaux de déformation compris entre 1 et 3%

[34], [35]. Un chargement suivant une direction proche de la direction axiale des tubes active principalement le glissement prismatique $P \langle a \rangle$. En revanche, pour une orientation de sollicitation entre 60 et 90° par rapport à la direction axiale, la facilité d'activation des systèmes de glissement secondaires est augmentée [34]–[36] avec notamment une forte activité du glissement dévié pyramidal $\pi_1 \langle a \rangle$. Le glissement $\pi_1 \langle a \rangle$, dont l'activation est favorisée par la température, apparaît comme le glissement secondaire majoritaire. Les glissements pyramidaux $\pi_1 \langle c + a \rangle$, $\pi_2 \langle c + a \rangle$ et le glissement basal sont moins actifs [34], [35].

Récemment, des simulations en *ab-initio* et en potentiels empiriques [37] ont permis de calculer les barrières énergétiques qu'une dislocation vis $\langle a \rangle$ initialement étalée dans un plan prismatique doit franchir pour glisser dans un plan pyramidal ou dans un plan basal. De manière assez surprenante, les deux systèmes de glissement, pyramidal $\pi_1 \langle a \rangle$ et basal $B \langle a \rangle$, présentent la même barrière énergétique et le même mécanisme faisant intervenir une configuration intermédiaire métastable pour laquelle la dislocation s'étale dans le plan pyramidal π_1 [37].

Tableau I.1.4: Systèmes de glissement dans les métaux hexagonaux.

Famille de plan de glissement	Direction de glissement	Représentation du système de glissement
Basal $B \{0001\}$	$\langle a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	
Prismatique $P \{10\bar{1}0\}$	$\langle a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	
Pyramidal $\pi_1 \{10\bar{1}1\}$	$\langle a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$	
Pyramidal $\pi_1 \{10\bar{1}1\}$	$\langle c + a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$	
Pyramidal $\pi_2 \{10\bar{1}2\}$	$\langle c + a \rangle = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$	

Un classement des différents systèmes de glissement peut être obtenu par le critère de facilité d'activation de Schmid. Selon ce critère, le glissement d'un système donné n'est possible que si la cission appliquée est supérieure à la cission critique, notée τ_c . La mesure expérimentale de cette grandeur requiert des essais mécaniques sur des monocristaux. Afin d'accéder à la valeur précise de la cission critique d'activation d'un système de glissement secondaire, il faudrait pouvoir l'activer en orientant le cristal suivant des directions inhibant le système de glissement principal. Cette approche peut s'avérer délicate. Dans la littérature, peu de valeurs de cissions critiques sont disponibles. Néanmoins, il est possible d'établir un classement qualitatif relatif à la facilité d'activation des systèmes de glissement dans le zirconium et ses alliages [38] :

$$\tau_c(P < a >) < \tau_c(\pi_1 < a >) < \tau_c(B < a >) < \tau_c(\pi_1 < c + a >) \ll \tau_c(\pi_2 < c + a >)$$

Plusieurs auteurs [25], [27], [39] ont montré une forte sensibilité à la température de la cission critique du système prismatique, $\tau_c(P < a >)$, en particulier dans le domaine des basses températures ($\leq 250^\circ\text{C}$). Une diminution de la cission critique τ_c avec l'augmentation de la température a été constatée et est expliquée par une plus grande mobilité des dislocations à température élevée. L'augmentation de la température facilite également l'activation des systèmes de glissement secondaires, le classement précédemment établi restant néanmoins inchangé [25]. En plus de sa sensibilité à la température, la cission critique augmente en présence d'éléments en insertion dans le réseau cristallin du zirconium, et en particulier en présence de l'oxygène [39], [40] qui joue un rôle d'obstacle au mouvement des dislocations par un mécanisme d'ancrage.

L'irradiation a pour effet de rapprocher les cissions critiques des différents systèmes de glissement [41]–[43] et de modifier l'ordre établi pour les alliages de zirconium non irradiés. En effet, le glissement basal, très peu actif dans les matériaux non irradiés, est favorisé par rapport au glissement prismatique dans les matériaux irradiés [42]–[44]. Toutefois, l'activation préférentielle du glissement basal n'a été observée que pour un chargement en traction suivant le sens transverse et en pressurisation interne. Du fait de la forte texture du matériau, seuls les glissements prismatiques et pyramidaux sont observés pour des essais de traction axiale. L'augmentation sous irradiation de la cission critique des plans de glissement prismatiques peut être expliquée par la présence des boucles de dislocation dans les plans prismatiques [41].

1.1.3.2 Anisotropie du comportement mécanique des alliages de zirconium

La nature de la structure cristalline des alliages de zirconium, leur texture cristallographique marquée et le nombre limité de modes de déformation plastique sont à l'origine de l'anisotropie de leur comportement viscoplastique [25], [45]. Leurs propriétés physiques en plasticité, comme la contrainte d'écoulement, dépend de la direction de sollicitation. Du fait de la texture des tubes en alliages de zirconium (§ 1.1.2.2.2), la limite d'élasticité est légèrement plus importante suivant la direction transverse (circonférentielle) du tube que suivant la direction axiale [25], [46]. La surface de charge s'écarte de celle d'un matériau isotrope (critère de Von Mises) et peut être représentée par le critère d'écoulement plastique de Hill vérifié pour les géométries tubulaires de symétrie orthotrope (Figure 1.1.10).

D'après les Figure 1.1.10 (a) et les Figure 1.1.10 (b), l'anisotropie de comportement suivant les deux directions circonférentielle et axiale semble diminuer avec la température [25], [46].

Seule la dépendance à la direction de sollicitation qui est à l'origine de l'anisotropie du comportement plastique des alliages de zirconium a été évoquée dans cette partie. Toutefois, il est important de mentionner que la contrainte d'écoulement évolue avec des paramètres autres que la température, comme la déformation plastique, la vitesse de sollicitation, l'état métallurgique et la composition chimique du matériau ainsi que l'irradiation.

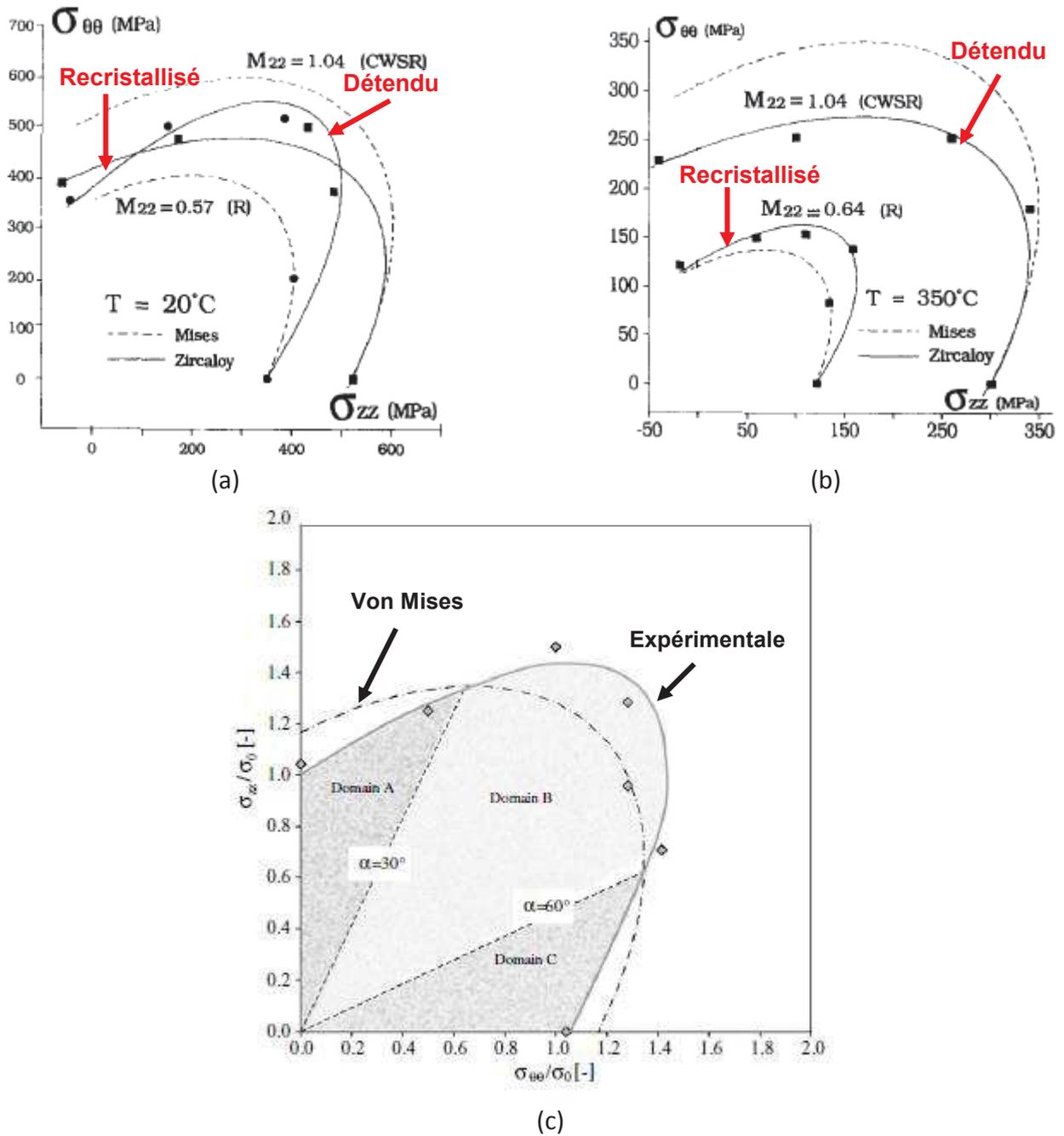


Figure I.1.10: Surfaces de charge isotropes (Von Mises) et anisotropes du Zircaloy-4 et du M5[®] – (a) Zircaloy-4 détendu et recristallisé, 20°C, déformation plastique de 0,02% et vitesse de déformation de $6,6 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ [46], (b) Zircaloy-4 détendu et recristallisé, 350°C, déformation plastique de 0,02% et vitesse de déformation de $6,6 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ [46] et (c) M5[®], 400°C, déformation plastique entre 1 et 3% et vitesse de déformation de $3,3 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ [35].

Des essais de traction uniaxiaux réalisés sur des tubes de Zircaloy-4 détendu ont également montré une anisotropie de comportement mécanique de cet alliage [45] (Figure I.1.11 (a)) qui peut être évaluée par les coefficients de Lankford R et P définis comme suit :

$$R = \left(\frac{\Delta \varepsilon_{DT}}{\Delta \varepsilon_{DR}} \right)_{\varepsilon_{DA}} \quad P = \left(\frac{\Delta \varepsilon_{DA}}{\Delta \varepsilon_{DR}} \right)_{\varepsilon_{DT}} \quad \text{Eq. I.1.1}$$

Avec ε_{DA} la déformation axiale, ε_{DT} la déformation circonférentielle et ε_{DR} la déformation radiale.

Ces coefficients valent 1 dans le cas d'un comportement isotrope. Pour le Zircaloy-4 détendu, Murty *et al.* [45] ont trouvé des valeurs de 1,5 pour R et de 2,9 pour P à température ambiante (Figure I.1.11 (b)).

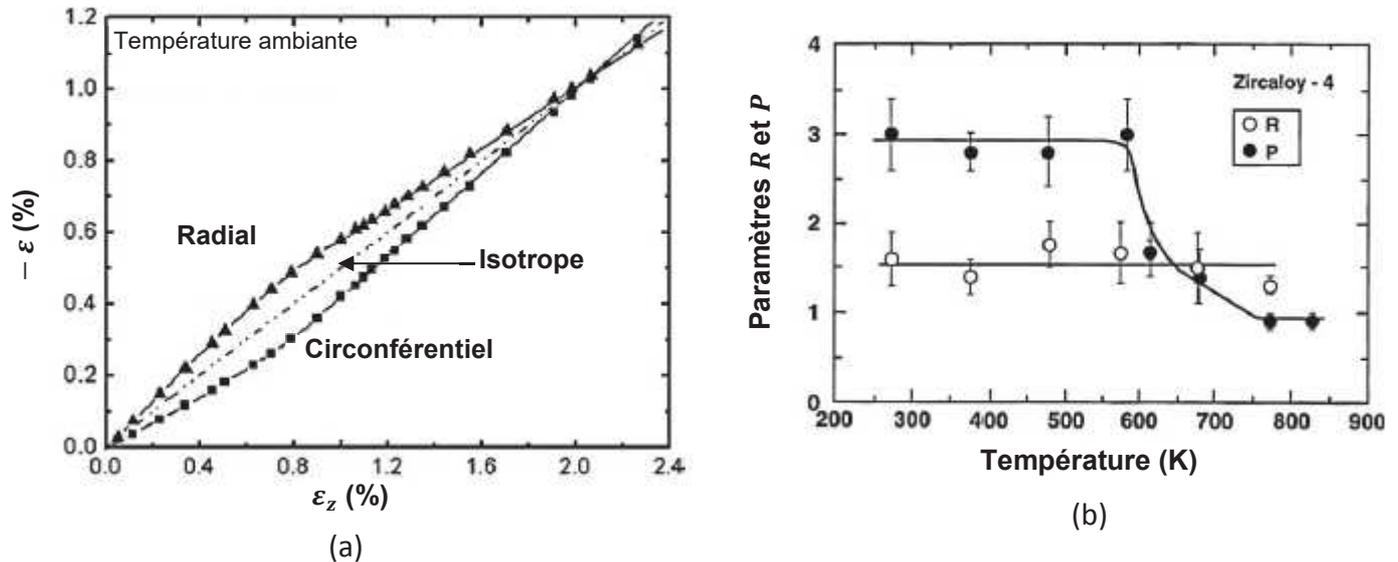


Figure I.1.11 – (a) Déformation radiale et circonférentielle en fonction de la déformation axiale pour un essai de traction uniaxé sur un tube de Zircaloy-4 détendu [45] et (b) évolution des coefficients d'anisotropie avec la température [45].

Ces tubes de Zircaloy-4 détendu présentent une texture radiale, les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ des grains s'orientant majoritairement dans le plan (DT-DR) (§ I.1.2.2.2). Les systèmes de glissement pour accommoder une déformation suivant la direction radiale, direction « dure » du matériau, sont difficilement activés par rapport au système de glissement prismatique. Ce dernier correspond au système de glissement principal pour l'accommodation d'une déformation suivant la direction axiale (§ I.1.3.1). Par conséquent, l'anisotropie du rapport de déformation plastique $\Delta\varepsilon_{DA}$ par $\Delta\varepsilon_{DR}$, quantifiée par le coefficient P , est élevée. D'après la Figure I.1.11 (b), ce rapport P est constant avec la température puis diminue à partir de 600 K pour devenir inférieur à R . Cette évolution peut être corrélée à une augmentation de la facilité d'activation des systèmes de glissement secondaires avec la température (§ I.1.3.1). La direction radiale, direction d'orientation préférentielle des axes cristallographiques $\langle c \rangle$, devenant moins « dure ».

I.1.4 Conclusions

Cette première partie d'analyse bibliographique a permis tout d'abord de rappeler les propriétés cristallographiques du zirconium en phase α ainsi que les principales caractéristiques des deux alliages étudiés : le Zircaloy-4 et le M5[®]. Une description non exhaustive a porté sur les modes de déformation plastique de ces matériaux non irradiés.

De cette étude, on peut noter certains points importants :

- Le comportement élastique du monocristal de zirconium est anisotrope. Cette anisotropie dépend de la température ;
- Le comportement en dilatation thermique du monocristal de zirconium est anisotrope avec un rapport d'anisotropie de 1,5 à température ambiante. Cette anisotropie augmente avec la température et peut induire des contraintes internes lors d'un chargement thermique ;
- L'élasticité macroscopique des alliages de zirconium peut être considérée comme isotrope pour des sollicitations dans le plan axial-transverse (DA-DT) d'un produit de type tube ou

tôle minces;

- Les alliages de zirconium se déforment principalement par le glissement des dislocations. En raison de la faible symétrie de la maille hexagonale compacte, le nombre de systèmes de déformation activés est limité. Le glissement prismatique $P < a >$ constitue le système de glissement principal du zirconium et de ses alliages non irradiés. L'activation des systèmes secondaires est possible pour des orientations de sollicitation favorables, pour des niveaux de déformation plastique importants et pour une température élevée ;
- La structure de la maille hexagonale compacte du zirconium, la texture cristallographique marquée des tubes en alliages de zirconium et le nombre limité de systèmes de déformation plastique entraînent une anisotropie de leur comportement plastique.

I.2 Effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium

I.2.1 Origine de l'endommagement des alliages de zirconium sous irradiation

En fonctionnement nominal en REP, les gaines et les tubes guides sont soumis à un bombardement neutronique qui entraîne des changements microstructuraux et une modification du comportement mécanique. Pour mieux appréhender les mécanismes microscopiques responsables de ces transformations, il apparaît nécessaire de comprendre l'origine du dommage d'irradiation. Ainsi, dans cette partie, nous nous intéresserons à la première étape d'endommagement du matériau sous irradiation qui correspond à la création de défauts sous irradiation aux neutrons, mais aussi sous irradiation aux particules chargées (électrons et ions lourds).

I.2.1.1 Irradiations aux neutrons

Les neutrons rapides, émis lors de la réaction de fission, interagissent avec le matériau constituant les gaines et les tubes guides. Ces interactions s'opèrent via des collisions élastiques ou inélastiques ou des réactions nucléaires. En raison de la faible section efficace de capture des neutrons thermiques par les alliages de zirconium, la formation de nouvelles espèces chimiques par interaction nucléaire inélastique est généralement très faible et les interactions consistent essentiellement en collisions élastiques entre les neutrons et les atomes.

Considérons un neutron rapide d'énergie E_n qui entre en collision élastique avec un atome cible du matériau irradié et lui transmet au cours de sa traversée une énergie cinétique moyenne \bar{E}_t . Par la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique du système, cette énergie transmise s'écrit comme suit, où m_n est la masse du neutron incident et m_{Zr} la masse de l'atome cible de zirconium :

$$\bar{E}_t = \frac{2 m_n m_{Zr} E_n}{(m_n + m_{Zr})^2} \quad \text{Eq. I.2.1}$$

Si l'énergie transmise lors de ces collisions élastiques est supérieure à une énergie seuil de déplacement, E_d , l'atome cible est éjecté de son site cristallin créant une paire de lacune-auto-interstitiel (SIA : Self-Interstitial Atom) appelée paire de Frenkel (Figure I.2.1 (a)).

Pour une irradiation aux neutrons de 1 MeV, l'énergie transmise vaut 22 keV et est beaucoup plus élevée que l'énergie seuil de déplacement d'un atome de zirconium de son site cristallin, égale à 40 eV selon la norme NRT (Norm Reference Test Standard E521-96, Annual Book of ASTM Standards, Philadelphia, PA, USA) [47].

Avant d'occuper une position interstitielle dans le réseau cristallin, l'atome primaire éjecté, appelé PKA (Primary Knock-on Atom), peut déplacer à son tour un atome si son énergie cinétique, communiquée par le neutron, est suffisante. Dans ce cas, il continue sa traversée dans le matériau en créant une cascade de collisions avec les atomes voisins jusqu'à épuiser toute son énergie (Figure I.2.1 (b)). Se crée alors une cascade de déplacements formée de zones riches en lacunes (cœur de la cascade) et

de zones périphériques riches en auto-interstitiels. Le comportement structural et énergétique des cascades de déplacements est largement étudié en modélisation par la Dynamique Moléculaire [48], [49].

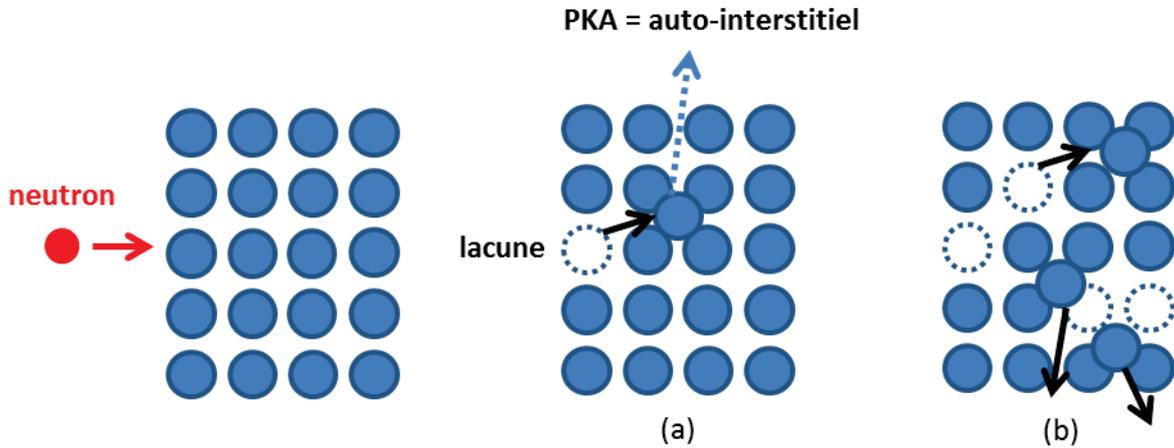


Figure I.2.1: Effets de l'irradiation – (a) création d'une paire de Frenkel (lacune-auto-interstitiel) et (b) création d'une cascade de déplacements.

L'endommagement du matériau sous l'effet de l'irradiation est quantifié par le taux de production de défauts ponctuels G défini comme le nombre de déplacement par atome (dpa) par unité de temps :

$$G = G_{PKA} \frac{n_d}{N_{at}} \quad \text{Eq. I.2.2}$$

avec G_{PKA} le taux de création de PKA par unité de volume, n_d le nombre d'atomes déplacés dans une cascade et N_{at} le nombre d'atomes cibles par unité de volume.

Le taux de création de PKA G_{PKA} qui traduit le nombre de cascades initiées dans le matériau dépend de la section efficace d'interaction élastique σ_{elast} , du nombre d'atomes cibles par unité de volume N_{at} et du flux ϕ . Pour une énergie donnée des particules incidentes, G_{PKA} s'écrit :

$$G_{PKA} = \phi N_{at} \sigma_{elast} \quad \text{Eq. I.2.3}$$

A partir des équations Eq. I.2.2 et Eq. I.2.3, nous déduisons l'expression suivante du taux de création de défauts ponctuels G :

$$G = \phi \sigma_{elast} n_d \quad \text{Eq. I.2.4}$$

Le nombre d'atomes déplacés dans la cascade peut être déterminé par la théorie de Norgett, Robinson et Torrens (NRT) [50] :

$$n_d = \kappa \frac{\bar{E}_t}{2 E_d} \quad \text{Eq. I.2.5}$$

Le coefficient κ présente l'efficacité de déplacement et est approximativement égal à 0,8 [50].

Nous proposons d'évaluer, à l'aide d'un calcul analytique simple, le dommage d'irradiation neutronique dans des gaines du REP. D'après les équations Eq. I.2.1 et Eq. I.2.5, un neutron d'énergie de 1 MeV induit une cascade dans laquelle 220 atomes ont été déplacés. La section efficace d'interaction élastique du zirconium (^{90}Zr) avec des neutrons de 1 MeV est de 6 barn [51], [52]. La masse volumique du zirconium valant 6,5 g/cm³ à 20°C, le nombre d'atomes par unité de

volume N_{at} est de $4,34 \times 10^{28}$ atomes/m³. En considérant un flux typique de neutrons de 1 MeV égal à 5×10^{17} n/m²/s, nous obtenons un taux de création de PKA de $1,3 \times 10^{19}$ m⁻³ s⁻¹ (Eq. I.2.3). Le taux de création de défauts ponctuels dans la gaine du REP est donc égal à $6,6 \times 10^{-8}$ dpa/s (Eq. I.2.2). En un an d'irradiation en REP, chaque atome est déplacé deux fois.

Par ailleurs, un dommage d'irradiation de 1 dpa correspond à une fluence neutronique de $7,58 \times 10^{24}$ n/m². Cette correspondance entre la fluence neutronique et le nombre de dpa est proche de la valeur de Shishov [53] qui est de $6,9 \times 10^{24}$ n/m² pour des neutrons d'énergie $E > 1$ MeV. La quantification du dommage d'irradiation en dpa permet aussi de comparer les expériences d'irradiation réalisées dans des accélérateurs et des réacteurs expérimentaux à celles conduites dans les réacteurs de puissance. Une correspondance fluence/dpa est donnée pour les réacteurs expérimentaux (Materials Testing Reactors, MTR) où 1 dpa correspond à une fluence neutronique de 4×10^{24} n/m² ($E > 1$ MeV) [53].

I.2.1.2 Irradiations aux particules chargées : électrons et ions lourds

I.2.1.2.1 Irradiations aux électrons

Le calcul de l'énergie cinétique moyenne transmise par les électrons incidents aux atomes cibles du matériau irradié s'appuie sur l'approche relativiste traduite comme suit où E_e est l'énergie des électrons incidents, m_e leur masse et c la vitesse de la lumière :

$$\bar{E}_t = \frac{E_e(E_e + 2m_e c^2)}{m_{Zr} c^2} \quad \text{Eq. I.2.6}$$

Compte tenu de leur faible masse, les électrons transmettent aux atomes de zirconium, via les collisions élastiques, une énergie cinétique très faible. Si nous considérons le cas d'une irradiation aux électrons de très haute énergie ($E_e = 1$ MeV), l'énergie moyenne transmise aux atomes cibles n'est que de 25 eV. Les électrons ne peuvent donc créer que des paires de Frenkel lors des chocs balistiques avec les atomes cibles, l'énergie transférée aux PKA étant trop faible pour induire des cascades de déplacements. De là vient l'intérêt des irradiations aux électrons qui permettent d'étudier l'influence des déplacements d'atomes sur la microstructure du matériau irradié sans avoir les effets des cascades.

I.2.1.2.2 Irradiations aux ions

Le type d'interaction, élastique ou/et inélastique, des atomes cibles avec les ions incidents dépend de l'énergie et de la masse de ces derniers.

Des ions de forte énergie provoquent une excitation du nuage électronique et des ionisations. Au fur et à mesure que ces ions pénètrent dans la matière, leur énergie cinétique baisse et ils entrent en collision élastique avec les atomes cibles de la matière, créant ainsi des cascades de déplacements. Ces cascades sont d'autant plus importantes que les ions sont lourds, l'énergie transférée aux PKA étant plus élevée.

Des ions de faible énergie interagissent avec les atomes cibles du zirconium via des chocs élastiques. Leur interaction avec la matière est donc similaire à celle ayant lieu avec les neutrons. Néanmoins, il faut noter que les ions sont rapidement arrêtés dans la matière, créant ainsi un dommage sur une épaisseur de quelques centaines de nanomètres à quelques dizaines de micromètres. Cette épaisseur de dommage d'irradiation dépend de la nature et de l'énergie de ces ions incidents. L'irradiation aux neutrons crée, quant à elle, un dommage dans le volume du matériau.

Le calcul du dommage d'irradiation et de la profondeur de pénétration des ions dans la matière peut être obtenu par le logiciel *SRIM*. Ce logiciel, développé par Ziegler et Biersack [54], [55], est communément utilisé par la communauté des implantations ioniques.

Les irradiations aux particules chargées sont souvent utilisées pour simuler l’irradiation neutronique. Elles présentent un certain nombre d’avantages, notamment la possibilité d’atteindre en quelques heures ou jours des doses équivalentes à plusieurs années d’irradiation en REP. Cependant, il est fondamental de bien vérifier la bonne représentativité du dommage créé lors de ces irradiations. Le Tableau I.2.1 donne un ordre de grandeur des temps d’irradiation pour atteindre une dose de 7 dpa avec des neutrons d’énergie de 1 MeV, des électrons de 1 MeV et des ions Zr⁺ de 600 keV. Les flux et les taux de création de dommage, donnés pour les irradiations aux électrons et aux ions Zr⁺, proviennent des expériences réalisées dans le cadre de ce travail de thèse.

Tableau I.2.1: Comparaison de l'endommagement aux neutrons et aux particules chargées (électrons et ions).

	Neutrons (1 MeV)	Electrons (1 MeV)	Ions Zr ⁺ (600 keV)
Flux (particule.m⁻².s⁻¹)	5×10 ¹⁷	8,43×10 ²³	7×10 ¹⁴
Taux de création de dommage (dpa/s)	6,6×10 ⁻⁸	2,53×10 ⁻³	4,5×10 ⁻⁴
Temps d’irradiation pour atteindre 7 dpa	3 années et 160 jours	46 minutes	4 heures
Dommage primaire	Cascades de déplacements massives	Paires de Frenkel	Cascades de déplacements
Epaisseur d’endommagement	Volume	Surface	Surface (300 nm)

I.2.2 Evolution de la population de défauts ponctuels

Le temps caractéristique d’évolution d’une cascade de déplacements est de quelques picosecondes (Figure I.2.2). La première phase de création de la cascade produit un très grand nombre de défauts ponctuels. Le matériau se trouve alors dans un état hors équilibre thermodynamique défini par une sursaturation de lacunes et d’auto-interstitiels. S’ensuit une phase d’effondrement de la cascade qui correspond à une relaxation très rapide pendant laquelle les auto-interstitiels et les lacunes s’annihilent par recombinaison. Le nombre de défauts ponctuels résiduels, restants après l’effondrement de la cascade, dépend de son énergie et de la température [48], [49], [56]. Ce nombre traduit l’efficacité de production des paires de Frenkel et constitue un paramètre important pour la description des évolutions microstructurales du matériau sous irradiation. Les calculs en Dynamique Moléculaire [48], [49], [56] donnent un nombre de paires de Frenkel (N_F) inférieur à celui déduit par le modèle NRT [50] (n_d dans l’équation Eq. I.2.5). Le rapport N_F/n_d évolue avec l’énergie de la cascade de déplacements et la température. Pour le zirconium pur, une cascade d’énergie de 20 keV et une température de 100 K, ce rapport est de l’ordre de 30% [48], [49].

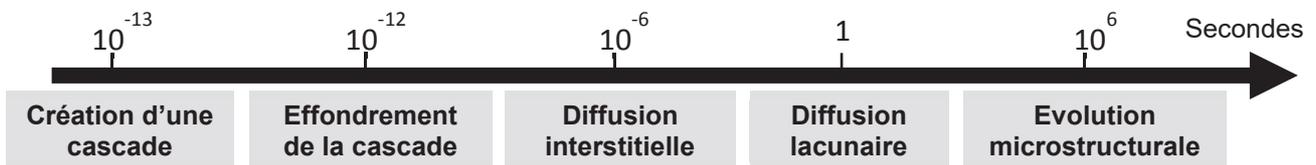


Figure I.2.2: Temps caractéristiques d’évolution de la cascade de déplacements, des mécanismes de diffusion et de l’évolution de la microstructure.

A des échelles de temps plus longues, les lacunes et les auto-interstitiels se réorganisent et peuvent s’éliminer sur les différents puits de la microstructure (dislocations, joints de grains et surfaces libres) ou bien s’agglomérer pour former des défauts bi et tridimensionnels (boucles de dislocation et cavités). Les phénomènes « post-cascade » font intervenir des mécanismes de diffusion des défauts ponctuels qu’il convient de comprendre pour parvenir à prédire l’évolution microstructurale des

alliages de zirconium sous irradiation. Plusieurs travaux de modélisation à l'échelle atomique ont porté sur la stabilité et la diffusion des défauts ponctuels.

I.2.2.1 Propriétés des auto-interstitiels

Les calculs en potentiels empiriques et *ab-initio* portant sur la structure, la stabilité et la mobilité des auto-interstitiels sont classiquement basés sur les huit configurations proposées par Johnson et Beeler pour les métaux hexagonaux compacts [57] (Figure I.2.3 (a)) : Octaédrique (O), Split dumbbell suivant $\langle c \rangle$ (S), Crowdion hors du plan basal (C), Tétraédrique (T), Basal-Octaédrique (BO), Split dumbbell dans le plan basal (BS), Crowdion dans le plan basal (BC) et Basal-Tétraédrique (BT).

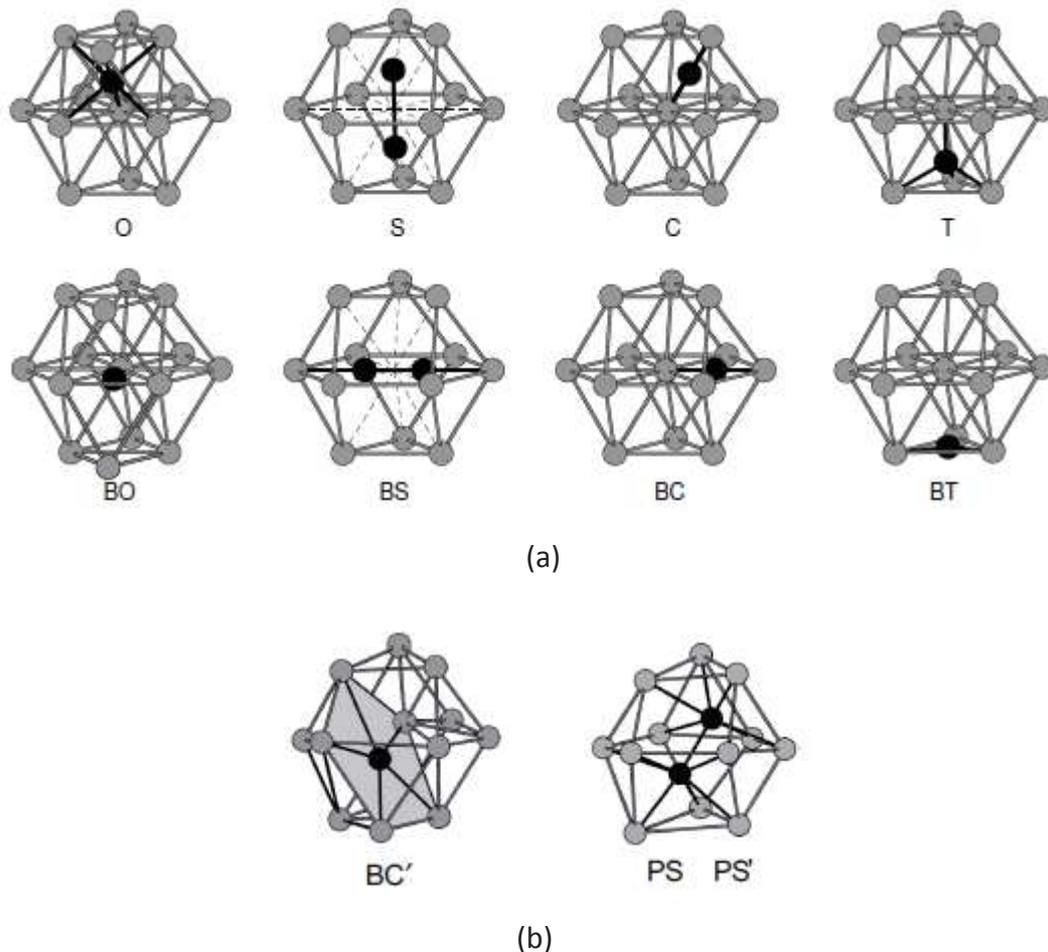


Figure I.2.3 – (a) Les 8 configurations classiques des auto-interstitiels dans la maille hexagonale compacte [47] et (b) les trois nouvelles configurations des auto-interstitiels dans la maille hexagonale compacte du zirconium [60].

Pour le zirconium, la configuration BO a été identifiée comme étant la configuration la plus stable pour les auto-interstitiels [58]–[61]. Cependant, il est important de noter que la stabilité relative des différentes configurations auto-interstitielles dépend fortement du potentiel interatomique utilisé ou bien de l'approximation de la fonctionnelle de densité adoptée en *ab-initio* et de la géométrie et la taille de la supercellule [58], [60], [62] (Tableau I.2.2). Ainsi d'autres configurations peuvent être fréquemment rencontrées comme la (O), ou la (BS) [59] et la (S) [58], [62]. Des calculs récents, en *ab-initio*, utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), ont identifié de nouvelles configurations qui peuvent correspondre à des minimums locaux d'énergie ou à des points de cols [60], [61]. Plus particulièrement, la configuration (BC') présente une énergie de formation légèrement plus élevée (0,02 eV) que celle de la configuration la plus stable (BO). Cette nouvelle configuration

(BC') est de faible symétrie et est obtenue à partir de (BC) [60], [61]. Deux autres nouvelles configurations d'auto-interstitiels métastables de basse énergie, (PS) et (PS'), ont été mises en évidence dans le zirconium [60], [61] (Figure I.2.3 (b)). En résumé, un ordre basé sur la stabilité des configurations auto-interstitielles peut être proposé [61] (Tableau I.2.2) :

$$(BO) < (BC') < (BS) < (O) < (S) < (PS') < (PS)$$

Les configurations jouent un rôle important dans la migration des auto-interstitiels. Connaissant leur stabilité relative, l'étude de la mobilité des SIAs consiste à regarder les différents chemins qui permettent de passer d'une configuration à une autre et à calculer leur barrière de migration. Plusieurs mécanismes de saut peuvent donc intervenir dans la mobilité des auto-interstitiels. Toutefois, de nombreux auteurs s'accordent sur le fait que le chemin de migration basale s'effectue principalement via la position interstitielle la plus stable (BO) en passant par une configuration intermédiaire (BS), la migration non basale ayant lieu suivant (BO) et (O) [59], [61], [63], [64].

Tableau I.2.2: Energies de formation et de migration des auto-interstitiels dans le zirconium calculées en *ab-initio* et en Dynamique Moléculaire.

Méthode	Energie de formation (eV)							Energie de migration (eV)		Référence
	BO	O	BS	S	BC'	PS	PS'	$\perp < c >$	$\parallel < c >$	
Finnis-Sinclair MB interatomic potential	-	-	-	-	-	-	-	0,06	0,15	[65]
Finnis-Sinclair MB interatomic potential	3,97	4,13	3,77	-	-	-	-	0,24	0,16	[66]
<i>Ab-initio</i> LDA	2,78	2,79	2,9	2,8	-	-	-	0,12	0,15	[58]
<i>Ab-initio</i> GGA	3,14	3,04	3,39	3,28	-	-	-			[58]
<i>Ab-initio</i> GGA + KMC	2,77	2,92	2,9	3,02	2,82	3,06	2,98	0,254	0,269	[64]
<i>Ab-initio</i> GGA	2,96	2,99	-	3,16	-	-	-	-	-	[12]
<i>Ab-initio</i> + elastic correction	2,77	2,96	2,94	2,97	2,93	3,07	3,03	0,25	0,29	[61]

MB: Many-Body, LDA: Local Density Approximation, GGA: Generalized Gradient Approximation, KMC: Kinetic Monte Carlo.

En utilisant des potentiels empiriques, plusieurs auteurs [12], [63], [65]–[67] ont rapporté une anisotropie de diffusion des auto-interstitiels qui migrent plus facilement dans le plan basal que suivant la direction cristallographique $< c >$. Cette anisotropie de diffusion diminue avec la température [12], [64]. Toutefois, il existe dans la littérature des travaux qui font appel à la méthode de calcul *ab-initio* et qui mettent en évidence une plus faible anisotropie de diffusion des SIAs [59], [61], [64] que celle prévue par les calculs en potentiels empiriques. A titre d'exemple, Vérité [59] trouve un faible écart de 0,06 eV entre la barrière de migration de l'auto-interstitiel suivant l'axe $< c >$ et celle parallèle au plan basal. Cet écart n'est que de 0,015 eV selon Samolyuk *et al.* [64].

A ce jour, il semble difficile d'avoir une réponse claire sur la diffusion des auto-interstitiels dans la maille HCP du zirconium du fait du grand nombre de configurations possibles (Figure I.2.3) et des limites de chacune des deux méthodes de calcul atomistique. En effet, les potentiels empiriques emploient une approche simplifiée pour la description électronique du matériau. Les résultats sont donc moins précis que ceux issus des calculs *ab-initio* qui ont le mérite de partir des principes fondamentaux sans utiliser des paramètres empiriques. En revanche, les calculs *ab-initio* se font à température nulle (état de base) et ne prennent pas en compte l'entropie et l'effet de la température.

Néanmoins, malgré la contradiction de certains résultats issus de la modélisation à l'échelle atomique et le manque de preuves expérimentales, il est généralement « admis » que les auto-interstitiels

diffusent plus rapidement dans le plan basal que suivant la direction $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale compacte du zirconium.

I.2.2.2 Propriétés des lacunes

Des mesures expérimentales de l'auto-diffusion [68], [69] ont révélé que l'énergie d'activation de la diffusion lacunaire dans le zirconium est plus faible que ce que prédisent les lois classiques de diffusion à température élevée pour les métaux de structure hexagonale compacte. Cette migration facile des lacunes serait due à leur interaction avec des atomes interstitiels des espèces chimiques présents dans la matrice Zr- α [68], [69]. Ces atomes, comme le fer ou le chrome, sont appelés diffuseurs « ultra-rapides » et peuvent s'associer à la lacune [70], [71]. Se forme ainsi un couple atome interstitiel ultra-rapide/lacune qui va diffuser rapidement dans le matériau [70], [72], [73]. Il a été montré que le coefficient d'autodiffusion augmente avec la teneur en fer dans le zirconium [70]. L'interaction du fer avec la lacune a été également étudiée via des calculs à l'échelle atomique [71], [74]. La présence du fer semble modifier la stabilité thermodynamique et le mécanisme de diffusion de la lacune.

Les énergies de formation et de migration, calculées par simulations atomistiques en potentiels empiriques [63], [65], [66], sont compatibles avec les énergies d'activation obtenues expérimentalement [69], [70] (Tableau I.2.3). Une diffusion quasi-isotrope de la lacune a été mise en évidence expérimentalement [69], [70], [75] et via des calculs en potentiels empiriques [63], [65], [66]. Il existe donc une Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) entre les auto-interstitiels qui migrent préférentiellement dans le plan basal (§ I.2.2.1) et les lacunes dont la mobilité est faiblement anisotrope.

Tableau I.2.3: Energies de formation et de migration des lacunes dans le zirconium calculées expérimentalement, en *ab-initio* et en Dynamique Moléculaire.

Méthode	Energie de formation (eV)	Energie de migration (eV)		Energie d'activation (eV)	Référence
		$\perp \langle c \rangle$	$\parallel \langle c \rangle$		
Auto-diffusion	-	-		1,2-3,5	[68]
Finnis-Sinclair MB interatomic potential	1,79	0,93		2,72*	[65]
Finnis-Sinclair MB interatomic potential	1,78	0,84	0,88	2,64*	[66]
<i>Ab-initio</i> GGA	2,17	0,51	0,67	2,76*	[76]
<i>Ab-initio</i> LDA	2,29	0,23	0,43	2,62*	[76]
<i>Ab-initio</i> GGA	2,07	0,54	0,65	2,66*	[77]
<i>Ab-initio</i> GGA + KMC	-	0,54	0,63	-	[64]
<i>Ab-initio</i> GGA + KMC	2	0,72	0,76	2,74*	[12]

MB: Many-Body, LDA: Local Density Approximation, GGA: Generalized Gradient Approximation, KMC: Kinetic Monte Carlo.

* énergie d'activation évaluée comme la somme de l'énergie de formation et de la moyenne des énergies de migration.

Les simulations en *ab-initio* prédisent, quant à elles, une anisotropie de diffusion de la lacune qui migre plus facilement dans le plan basal que suivant la direction $\langle c \rangle$ [59], [64], [76], [77] (Tableau I.2.3). L'écart entre la barrière de migration non basale et basale est assez important, de l'ordre de 0,1 eV [59], [64], [76], [77]. Cette anisotropie de diffusion de la lacune peut être expliquée par une différence de chemin de migration, rectiligne et symétrique pour le saut hors du plan basal et courbé et asymétrique pour le saut basal [65].

En guise de remarque, nous tenons à préciser que ces résultats récents issus des simulations *ab-initio* mettent en défaut la théorie basée sur la Différence d'Anisotropie de Diffusion entre les auto-interstitiels et les lacunes. En effet, une diffusion quasi-isotrope des auto-interstitiels (§ 1.2.2.1) et une migration préférentielle des lacunes dans le plan basal sont à l'opposé de la DAD. Néanmoins, selon Samolyuk *et al.* [64], cette contradiction peut être résolue par la considération de la mobilité 1D des petits amas de SIAs [65]. Une diffusion plus rapide de ces petits amas interstitiels dans le plan basal que suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ peut induire un effet similaire à la DAD. L'anisotropie de la mobilité 1D des amas interstitiels est d'ailleurs prise en compte dans le modèle de croissance sous irradiation proposé par Barashev *et al.* [78].

Tout comme pour les auto-interstitiels (§ 1.2.2.1), le caractère isotrope ou anisotrope de la diffusion des lacunes n'est pas clair jusqu'à présent. En effet, si les résultats des calculs en potentiels empiriques prédisent une diffusion isotrope des lacunes et anisotrope des auto-interstitiels, les calculs *ab-initio* remettent en cause cette DAD. Toutefois, il est important de bien noter que l'anisotropie de diffusion des lacunes diminue avec l'augmentation de la température [12], [64], [79]. L'anisotropie de la diffusion lacunaire mise en évidence par les calculs *ab-initio* à 0 K [59], [64], [76], [77] serait donc plus faible à une température plus élevée. Par ailleurs, les calculs thermodynamiques de l'enthalpie et l'entropie de migration montrent une faible anisotropie de diffusion de la lacune comparée à celle de l'auto-interstitiel [12], [79], la DAD restant significative jusqu'à des températures inférieures à 700 K. Nous verrons par la suite que la DAD joue un rôle important dans la prédiction du comportement en croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium.

1.2.3 Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$

A l'issue de l'effondrement de la cascade de déplacements, les défauts ponctuels survivants et les petits amas interstitiels et lacunaires s'agglomèrent pour former des défauts planaires, les boucles de dislocation. Ces boucles constituent les principaux défauts d'irradiation rencontrés dans le zirconium et ses alliages. Elles sont de deux types : les boucles $\langle a \rangle$ qui apparaissent dès les premiers stades de l'irradiation et les boucles à composante $\langle c \rangle$ qui ne sont observées qu'à forte dose d'irradiation.

Nous proposons dans cette partie une revue bibliographique des observations en Microscopie Electronique en Transmission attestant la formation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sous irradiation aux neutrons et aux particules chargées et mettant en évidence leurs caractéristiques microstructurales (vecteur de Burgers, plan d'habitat, nature, géométrie, taille et densité). Nous nous intéresserons également à l'influence des conditions d'irradiation et des éléments d'alliage sur l'évolution de leur nucléation et leur croissance.

1.2.3.1 Observation et caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ induites par l'irradiation

La communauté scientifique a été pendant longtemps en désaccord à propos des caractéristiques des boucles de dislocation induites par l'irradiation du zirconium et de ses alliages. C'est finalement en 1979 que plusieurs laboratoires procédèrent à une analyse commune des défauts d'irradiation dans le zirconium pur et le Zircaloy-2. L'étude fut conduite sur les mêmes échantillons dans le but de comparer les observations réalisées par les différents laboratoires. Ce « Round-Robin » a permis de lever l'indétermination sur la nature des défauts d'irradiation et d'établir un consensus sur leurs caractéristiques.

Les observations réalisées dans le cadre du « Round-Robin » ont porté sur deux matériaux, le zirconium pur « crystal bar » et le Zircaloy-2, irradiés jusqu'à une fluence neutronique de 1×10^{25} n/m² et pour des températures allant de 250 à 400°C [80]. Les résultats obtenus par les différents laboratoires sont en parfait accord, les défauts d'irradiation présents dans cette gamme de température et de dose d'irradiation sont exclusivement des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ de vecteur de Burgers de type $\langle a \rangle$ ($\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$). Aucune boucle à composante $\langle c \rangle$ n'a été observée.

Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$, ayant comme vecteur de Burgers un vecteur du réseau cristallin, sont donc parfaites. Trois familles peuvent être distinguées selon que le vecteur de Burgers est suivant \vec{a}_1, \vec{a}_2 ou \vec{a}_3 (Figure I.1.2 (a) et Figure I.1.2 (c)). Northwood *et al.* ont [81] montré que les trois types de vecteurs de Burgers sont uniformément répartis au sein de la population des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ présentes dans des échantillons de zirconium pur irradiés à une température de 250°C et à une fluence neutronique de $1,8 \times 10^{24}$ n/m².

Jostons, Kelly et Blake [82] ont montré que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ne sont pas rigoureusement situées dans les plans prismatiques de la maille hexagonale compacte mais se répartissent entre les plans $\{10\bar{1}0\}$ et $\{11\bar{2}0\}$. La distribution des normales aux plans d'habitat de ces boucles dans le triangle standard [83] (Figure I.2.4 (a)) permet de visualiser la dispersion de ces plans autour des plans prismatiques et principalement autour des plans prismatiques de première espèce $\{10\bar{1}0\}$. Ce résultat a été confirmé par le « Round Robin ». Les normales aux plans d'habitat des boucles $\langle a \rangle$ étudiées font un angle allant de 15 à 30° par rapport à la direction $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ [80] (Figure I.2.4 (b)). Le vecteur de Burgers de type $\langle a \rangle$ ($\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$) n'étant pas parfaitement perpendiculaire au plan d'habitat de ces boucles, celles-ci ne sont pas purement coins. Une cartographie de la distribution en « ailes de papillon » des normales au plan d'habitat des trois familles de boucles $\langle a \rangle$ a été proposée par Kelly et Blake [83] (Figure I.2.4 (c)). Cette cartographie peut servir à déterminer le vecteur de Burgers d'une boucle dont on connaît son plan d'habitat. Cette méthode de détermination du vecteur de Burgers a été mise en application, dans le cadre de ce travail de thèse, en vue d'une caractérisation des boucles $\langle a \rangle$ dans du Zircaloy-4 irradié aux électrons de 1 MeV à 580°C (§ Annexe D.2.2.1).

Le caractère interstitiel ou lacunaire des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ a fait l'objet de plusieurs controverses. Carpenter et Watters [84] ont caractérisé 200 boucles observées dans une même lame mince de zirconium pur irradiée aux électrons à une température de 450°C. Ces boucles ont été identifiées comme étant toutes de nature interstitielle. Cependant, les travaux de plusieurs autres auteurs ont mis en évidence l'existence de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires induites par des irradiations aux neutrons [80], [82], [83] ou aux électrons [85]. La proportion des boucles interstitielles et lacunaires varie avec la température mais les deux types de boucles coexistent [80], [82]. A 400°C, la proportion des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires est d'environ 70% [80], [82], elle serait de 46% à 300°C [86] et de 44% à 250°C [81]. La mobilité de la lacune étant réduite à basse température, la formation des boucles interstitielles serait légèrement favorisée.

La méthode d'analyse du contraste interne/externe d'une boucle de dislocation (§ Annexe D.2.2.2) est généralement plus facile à mettre en place pour déterminer la nature de boucles de tailles moyennes. A plus faibles températures, les boucles sont de petites tailles (diamètre inférieur à 10 nm) ce qui rend l'analyse de leur nature délicate. Dans la partie I.2.3.2.4, nous verrons que les surfaces libres et les joints de grains modifient également la proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires.

La présence simultanée des deux types, interstitiel et lacunaire, de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est relativement atypique. Compte tenu de l'interaction élastique préférentielle d'une dislocation avec un auto-interstitiel (§ I.3.1.2.1) [87], le flux des SIAs vers les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est plus élevé que celui des lacunes. De ce fait, les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires ne peuvent théoriquement grandir et les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ seraient exclusivement de nature interstitielle. Woo [88] a suggéré que la DAD (§ I.2.2.1 et § I.2.2.2) est en mesure d'expliquer l'existence des boucles lacunaires dans le zirconium. En effet, la DAD introduit un biais supplémentaire qui peut vaincre le biais dû à la Différence d'Interaction Élastique (EID) (§ I.3.1.2.1). Les dislocations ne sont plus alors nécessairement biaisées pour les auto-interstitiels. Avec le biais d'anisotropie de diffusion, le piégeage préférentiel des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure dépend de leur orientation cristallographique et de leur environnement. Ainsi, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ reçoivent un flux net d'interstitiels ou de lacunes suivant leur voisinage à des puits biaisés par la DAD.

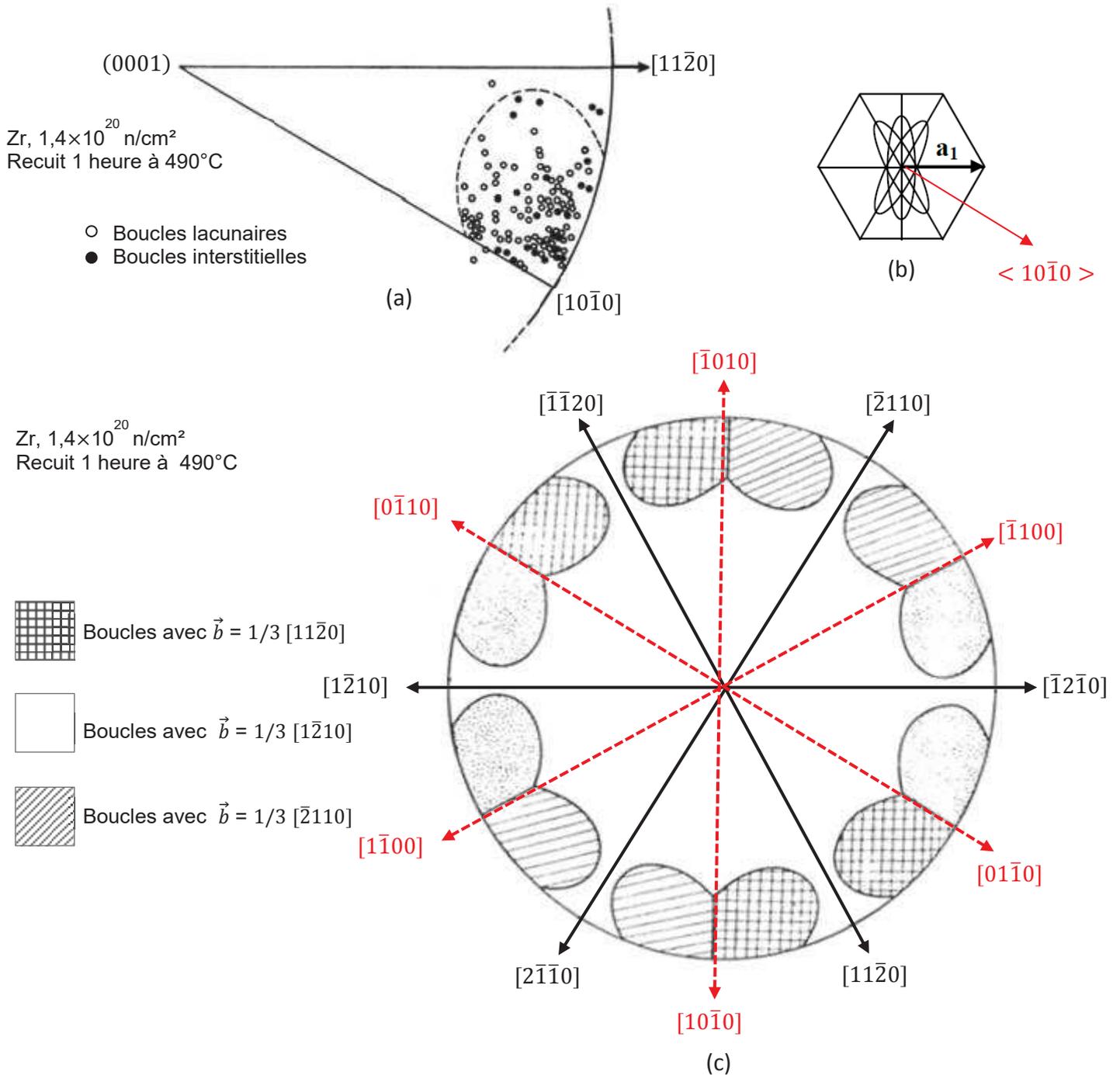


Figure I.2.4 – (a) Distribution des normales aux plans d’habitat des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ [83], (b) plans d’habitat de la famille de boucles de vecteur de Burgers \vec{a}_1 et (c) distribution en « ailes de papillon » des normales aux plans d’habitat des trois familles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ [83].

Concernant la forme géométrique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, celle-ci dépend de leur type interstitiel ou lacunaire et de leur taille. Jostsons *et al.* [82] ont étudié la variation du rapport b/a (a étant le grand axe de la boucle et b son petit axe) avec la taille des boucles dans du zirconium pur irradié à 395°C avec une fluence neutronique de $6,4 \times 10^{24}$ n/m². Si les boucles interstitielles sont toujours circulaires indépendamment de leur taille, les boucles lacunaires ont tendance à être plus elliptiques pour les plus grandes tailles [82]. Leur rapport d’ellipticité est de 0,8 pour des boucles d’une taille de 20 nm et de 0,6 pour des boucles de taille supérieure à 100 nm, valeur pour laquelle une stabilisation est atteinte (Figure I.2.5).

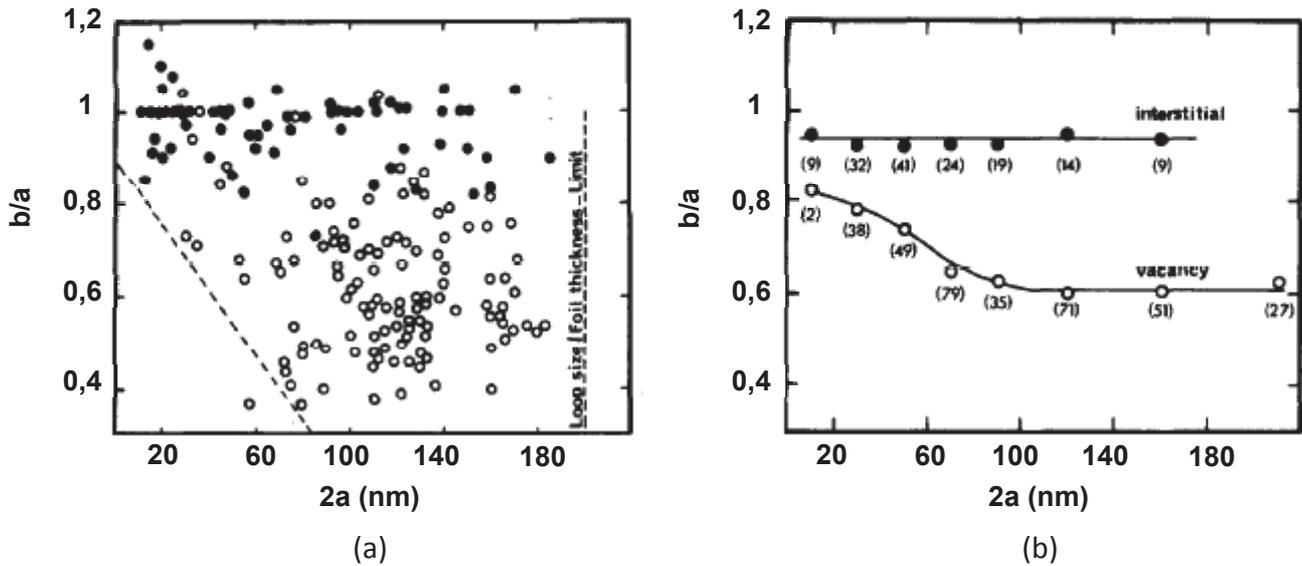


Figure I.2.5: Variation de l'ellipticité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec la taille des boucles et leur nature (les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles sont représentées par des cercles pleins et les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires par des cercles vides) [82].

Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ apparaissent à faible dose, à partir d'une fluence neutronique de 3 à 4×10^{23} n/m² dans le zirconium et le Zircaloy-2, sous la forme de « black dots » d'une taille moyenne de 2 à 10 nm [89]. Ces défauts d'irradiation sont difficiles à observer et à analyser en MET à cause de leur grande densité et leur petite taille. Néanmoins, des études ont permis de montrer l'influence des conditions d'irradiation et des paramètres du matériau sur l'évolution de leur microstructure.

I.2.3.2 Paramètres influençant la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$

I.2.3.2.1 Température d'irradiation

Lors du « Round-Robin », les auteurs ont rapporté un effet de la température sur la densité et la taille des boucles $\langle a \rangle$ [80]. Les résultats des analyses d'échantillons de Zircaloy-2 et de zirconium pur ont montré que plus la température d'irradiation est élevée, plus les boucles sont grandes et leur densité est faible. A 350°C , les boucles $\langle a \rangle$ observées dans du Zircaloy-2 irradié à une fluence neutronique de 1×10^{25} n/m² ont une taille de 8 à 10 nm et une densité moyenne de 2×10^{22} m⁻³. A 400°C , leur taille moyenne passe à 20 nm et leur densité moyenne est de $9,5 \times 10^{21}$ m⁻³ [80]. Cet effet de la température a été noté par plusieurs auteurs [90]–[94] (Figure I.2.6). Hellio *et al.* [92] ont mis en évidence le même effet de la température sur la cinétique de croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans des lames minces de zirconium pur et de Zircaloy-4 irradiées aux électrons de 1 MeV pour des températures d'irradiation allant de 400 à 600°C . De façon générale, il a été noté que la température favorise la croissance des boucles $\langle a \rangle$ au détriment de leur germination. Cet effet peut s'expliquer par la diminution de la sursaturation en défauts ponctuels avec l'augmentation de la température, ce qui induit une diminution du taux de nucléation. L'élévation de la température conduit aussi à une augmentation de la mobilité et donc du libre parcours moyen des défauts ponctuels. Ces défauts vont alors s'annihiler sur les boucles déjà formées, favorisant ainsi leur croissance. A 500°C les boucles de dislocation observées dans des échantillons de zirconium pur « crystal bar », de Zircaloy-2 et de Zr-2,5%Nb irradiés jusqu'à une fluence neutronique de $1,3 \times 10^{25}$ n/m², ressemblent à de grands bras de dislocations enchevêtrés et à 700°C aucun défaut n'a été observé [94]. A très haute température, la diminution de la sursaturation en défauts ponctuels conduit à un taux de nucléation des boucles nul. Un recuit réalisé à une température supérieure à la température d'irradiation peut également faire disparaître les boucles de dislocation et restaurer la microstructure.

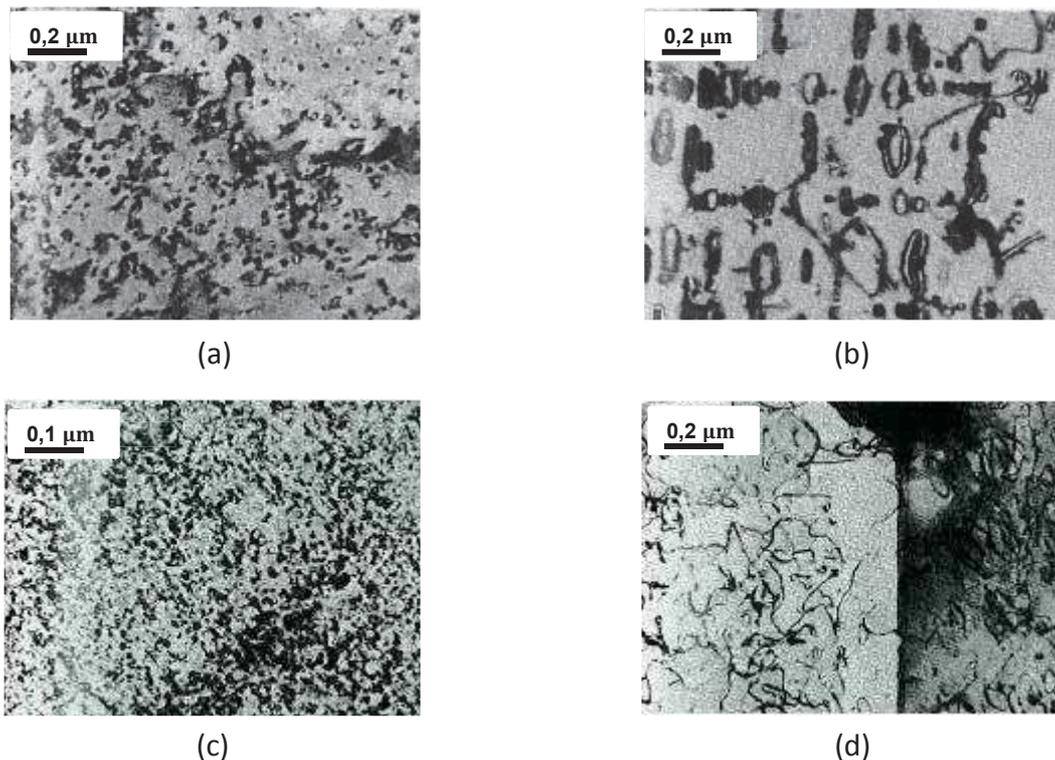


Figure 1.2.6: Evolution de la population de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec la température dans le zirconium pur cristallin bar recristallisé (a) et (b) et dans le Zircaloy-2 recristallisé (c) et (d) [94] – (a) 300°C, $1,3 \times 10^{25}$ n/m², (b) 400°C, $1,2 \times 10^{25}$ n/m², (c) 300°C, $1,3 \times 10^{25}$ n/m² et (d) 400°C, $1,2 \times 10^{25}$ n/m².

Par ailleurs, comme mentionné précédemment (§ 1.2.3.1), la proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires évolue avec la température d'irradiation. Les boucles sont majoritairement lacunaires pour des irradiations aux neutrons à 400°C [80], [82], [94]. A 350°C, les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires sont en quasi égale proportion [90]. Peu de données sont disponibles à plus faible température en raison de la difficulté d'analyse du caractère interstitiel/lacunaire de la boucle (§ 1.2.3.1). Néanmoins, Northwood et al. [81] soulignent que pour une température inférieure à 300°C les boucles sont interstitielles.

1.2.3.2.2 Fluence d'irradiation

A température constante, la densité et la taille des boucles $\langle a \rangle$ évoluent avec la fluence d'irradiation. Les observations de Carpenter *et al.* [87] et Northwood [89] ont révélé l'existence d'une fluence seuil en dessous de laquelle les boucles de dislocation sont trop petites (diamètre inférieur à 2 nm) pour être visibles en MET. Cette fluence seuil est de l'ordre de 2 [89] à 3×10^{23} n/m² [87] pour le Zircaloy-2 irradié aux neutrons à 300°C et de 8×10^{23} n/m² pour le Zr-2,5%Nb. Au-delà de cette fluence seuil, la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ augmente rapidement jusqu'à atteindre une valeur de saturation égale à 3×10^{22} m⁻³ pour une fluence neutronique de saturation de 4×10^{24} n/m² dans le Zircaloy-2 irradié à 300°C (Figure 1.2.7 (a)). Puis, la densité des boucles diminue légèrement. En revanche, leur taille continue à augmenter avec la dose sans qu'aucune saturation ne soit observée jusqu'à une fluence neutronique de 1×10^{26} n/m² [87] (Figure 1.2.7 (b)). Ces fluences seuil de visibilité et de saturation des boucles $\langle a \rangle$ dépendent de la température d'irradiation ainsi que de la composition chimique du matériau irradié.

Lors des irradiations aux électrons, l'évolution de la densité et de la taille des boucles $\langle a \rangle$ avec la fluence est similaire à celle observée au cours des irradiations aux neutrons. La saturation en densité de boucles est atteinte rapidement, après quelques minutes d'irradiation [91], [92].

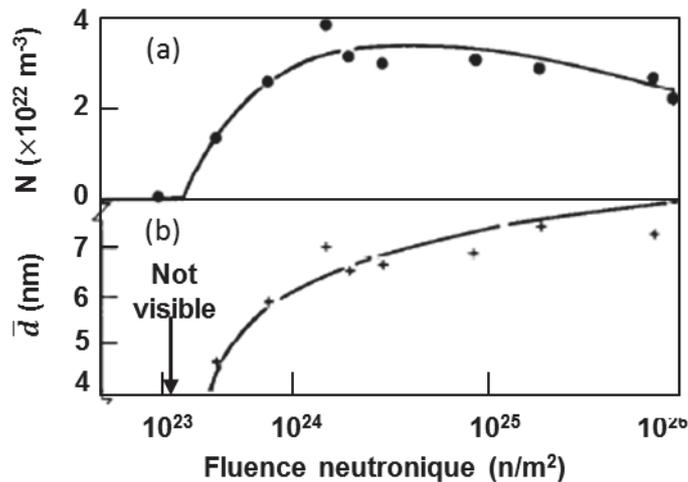


Figure I.2.7: Evolution de la population de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec la fluence neutronique dans le Zircaloy-2 irradié à 300°C – (a) densité volumique et (b) diamètre moyen [87].

I.2.3.2.3 Eléments d'alliage

Un effet des éléments d'alliage sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ a été suspecté suite aux observations menées dans le cadre du « Round-Robin ». Les échantillons de zirconium pur « crystal bar » irradiés à 400°C à une fluence neutronique de $1 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ présentent des boucles $\langle a \rangle$ de taille moyenne de 54 nm et d'une densité de $8,5 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$ [80]. Les boucles, observées dans le Zircaloy-2 irradié dans les mêmes conditions, sont dix fois plus nombreuses et presque trois fois moins grandes (§ I.2.3.2.1) [80]. Ainsi, il semble que la présence des éléments d'alliage influence la microstructure de ces boucles.

L'étude de l'effet des éléments d'alliage sur la microstructure des défauts d'irradiation est relativement difficile. Pour bien mener cette analyse, il faudrait élaborer des alliages modèles en faisant varier la teneur d'un seul élément d'addition. Des travaux réalisés sur des alliages industriels ont permis, néanmoins, de déterminer quelques tendances. Dans cette partie consacrée à l'étude de l'effet des éléments d'addition sur la germination et la croissance des boucles $\langle a \rangle$, trois éléments chimiques principaux, l'étain, le niobium et l'oxygène, seront examinés. De manière succincte, nous évoquerons aussi l'effet de la prise d'hydrogène sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

L'addition d'étain aurait pour effet d'augmenter la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ [80], [89], [91], [92]. L'ajout de niobium en solution solide augmenterait également la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ [89], [91], [92]. Cette augmentation de la densité est accompagnée d'une diminution de la taille des boucles. L'effet de ces deux éléments d'addition sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ peut être expliqué en considérant leur interaction avec les auto-interstitiels. De rayons légèrement plus petits que le rayon de l'atome de zirconium, l'étain et le niobium forment une solution solide substitutionnelle avec la matrice Zr- α (§ I.1.2.1.2 et I.1.2.1.3). Des calculs atomistiques ont montré une faible interaction de ces deux éléments d'alliage avec les lacunes [71]. En revanche, les atomes de niobium agissent comme des pièges pour les SIAs [71]. Christensen *et al.* [71] montrent un effet de l'étain sur la diffusion des auto-interstitiels, ceci malgré une énergie de liaison négative entre les atomes d'étain et les SIAs.

Les atomes de niobium en solution solide dans la matrice de zirconium attirent fortement les auto-interstitiels qui se trouvent piégés et ralentis. Epinglés par les atomes de niobium même à température élevée, la mobilité des auto-interstitiels est réduite. Pour une teneur de niobium de 0,5% atomique, la diffusion des SIAs est même supprimée [71]. Cependant, comme la limite de solubilité du niobium dans la phase Zr- α est faible [20] (§ I.1.2.1.3), on s'attend à ce que ce phénomène soit limité. Les résultats des simulations atomistiques montrent un effet similaire de l'étain sur la diffusion des

auto-interstitiels [71] mais dans une moindre mesure que celui observé pour les atomes de niobium. Les auteurs [71] expliquent cet effet comme suit : les SIAs, légèrement repoussés par les atomes d'étain, tendent à les éviter et voient leur mobilité diminuée. A température élevée (> 700 K), les auto-interstitiels réussissent à vaincre la répulsion de l'étain et leur diffusion se rapproche de celle dans le zirconium pur.

En conclusion, les atomes de niobium et d'étain diminuent la diffusion des auto-interstitiels favorisant ainsi la germination des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ au détriment de leur croissance. De plus, en piégeant les auto-interstitiels, les atomes de niobium peuvent être considérés comme des sites préférentiels pour l'agglomération des SIAs.

Hellio *et al.* [91], [92] ont examiné l'effet de l'oxygène sur la cinétique de croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Les échantillons de zirconium enrichis en oxygène à une teneur de 1760 ppm et irradiés aux électrons ou aux ions présentent une densité plus élevée de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles de taille plus petite que celles observées dans le zirconium pur. Il a été conclu que l'oxygène limite considérablement la croissance de ces boucles. Des calculs en *ab-initio* ont porté sur l'interaction des défauts ponctuels avec les atomes d'oxygène [11], [71]. Le calcul de l'énergie de liaison oxygène-lacune montre que l'oxygène est faiblement lié à la lacune. Une répulsion entre l'oxygène et l'auto-interstitiel a été également notée. Ces résultats ne permettent donc pas d'expliquer l'impact de l'oxygène sur l'évolution de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

A notre connaissance, il existe dans la littérature peu de résultats expérimentaux attestant de l'effet de l'hydrogène sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Des observations *in-situ* conduites lors des implantations en hydrogène d'échantillons de Zircaloy-4 pré-irradiés aux ions Ni^{3+} de 4 MeV à des faibles doses (de 0,01 à 0,05 dpa) suggèrent que l'hydrogène implanté se piégerait sur les défauts d'irradiation pour précipiter en hydrures [95]. Toutefois, mis à part un éventuel piégeage des atomes d'hydrogène sur les premières boucles de dislocation $\langle a \rangle$, ces travaux [95] n'ont pas permis de mettre en évidence un potentiel effet de l'hydrogène en solution ou des hydrures précipités sur la germination et la croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

Par ailleurs, des études numériques se sont penchées sur la question d'interaction de l'hydrogène avec les défauts ponctuels et les boucles de dislocation [11]–[13], [96]–[98]. Les calculs atomistiques [11], [13], [98] montrent que l'hydrogène en insertion dans la matrice Zr- α est lié aux défauts ponctuels, ce qui laisse penser qu'il peut y avoir un effet de cette interaction sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. En effet, les résultats révèlent une forte attraction entre l'hydrogène en solution solide et les lacunes avec une énergie de liaison de l'ordre de 0,24 [98] à 0,3 eV [13]. En revanche, l'attraction entre les auto-interstitiels et les atomes d'hydrogène est moins nette, le calcul de l'énergie de liaison dépendant des différentes configurations des SIAs [11], [13].

La valeur d'énergie de liaison hydrogène-lacune issue des calculs atomistiques [13], [98] est proche de la valeur expérimentale de $0,28 \pm 0,06$ eV obtenue par Lewis [99]. De ces résultats, il ressort que les atomes d'hydrogène peuvent être piégés par les lacunes [12], [13]. Selon Christensen *et al.* [13], une lacune peut piéger jusqu'à 9 atomes d'hydrogène. Ce piégeage pourrait expliquer le constat expérimental d'une augmentation de la limite de solubilité de l'hydrogène sous irradiation [100]. Il peut aussi induire une diminution de la mobilité des lacunes ou être à l'origine d'une germination hétérogène des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, les atomes d'hydrogène jouant le rôle de sites de nucléation. Concernant l'effet de l'hydrogène sur la croissance des boucles de dislocation, Christensen *et al.* [12], [13] montrent que les boucles basales lacunaires à composante $\langle c \rangle$ sont des puits d'absorption d'hydrogène plus efficaces que les boucles interstitielles. Les atomes d'hydrogène ségrègent à l'intérieur des boucles lacunaires alors qu'ils restent en périphérie des boucles interstitielles. L'effet de l'hydrogène sur la croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles serait donc limité [12], [13].

Par ailleurs, une surconcentration d'hydrogène dans les boucles lacunaires peut conduire à la précipitation d'un micro-hydrure. Des hydrures précipités peuvent créer un champ de contrainte local qui attirent les défauts ponctuels et favorisent la nucléation des boucles de dislocation.

I.2.3.2.4 Surfaces libres et joints de grains

Les surfaces libres et les joints de grains constituent des puits d'élimination des défauts ponctuels. Compte tenu de la DAD (§ I.2.2.1 et I.2.2.2), ces puits microstructuraux ne sont pas neutres et sont biaisés en faveur des auto-interstitiels ou des lacunes en fonction de leur orientation cristallographique. La nature des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, se trouvant à proximité de ces puits, peut donc varier [101].

Deux types de joints de grains peuvent être définis, les joints dits prismatiques (parallèles aux plans prismatiques) et les joints basaux (parallèles aux plans de base). La force de ces puits dépend de leur orientation cristallographique [101], [102]. Comme les auto-interstitiels diffusent plus facilement dans le plan basal que suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$ (§ I.2.2.1), les joints prismatiques sont des puits biaisés en faveur des SIA et inversement les joints basaux ont tendance à absorber plus de lacunes. Ainsi, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ qui se trouvent au voisinage d'un joint de grain prismatique absorbent plus de lacunes. Au contraire, à proximité d'un joint de grain basal, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ tendent à absorber les auto-interstitiels.

Des zones dénudées en boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ont été observées à proximité des joints de grains dans le zirconium et ses alliages irradiés aux neutrons à 427°C [103]. Conformément aux prédictions du modèle de Woo [101] basé sur l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels [88], [102], des zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles sont reportées près des joints de grains perpendiculaires à $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (joints de grains prismatiques) [103] (Figure I.2.8). Loin de ces joints de grains, les deux types, interstitiel et lacunaire, de boucles $\langle a \rangle$ coexistent (Figure I.2.8). En revanche, des zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ lacunaires n'ont pas été observées au voisinage des joints de grains basaux. Pour cette orientation de joints de grains, la zone dénudée en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles est plus restreinte (Figure I.2.8). Il semble donc que la largeur des zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles à proximité des joints de grains dépend de leur orientation cristallographique. La force des joints de grains basaux vis-à-vis des SIAs étant plus faible que celle des joints de grains prismatiques, la zone dénudée en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles est moins large (Figure I.2.8). Celle-ci n'est que d'environ 0,2 μm , alors que l'effet d'un joint de grain prismatique sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est ressenti jusqu'à une distance de 0,6 μm [103]. Griffiths *et al.* [103] soulignent que le volume affecté dépend également de la présence des éléments chimiques qui modifient la diffusion des défauts ponctuels vers les puits de la microstructure.

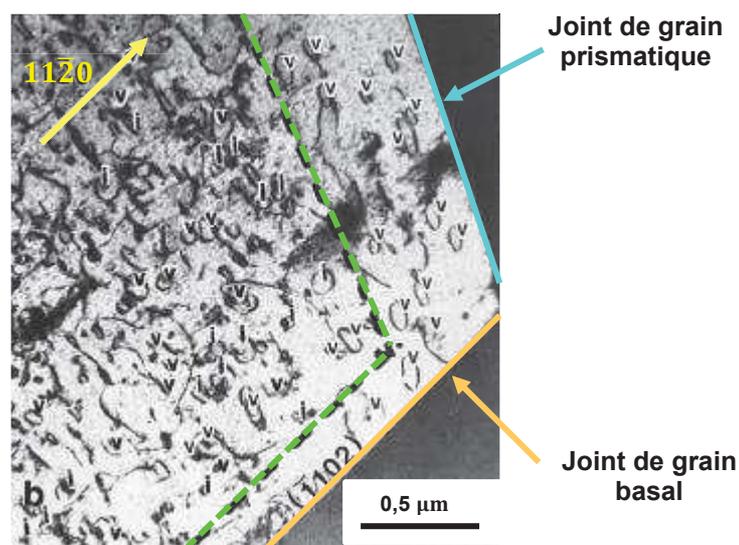


Figure I.2.8: Zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles à proximité des joints de grains dans du zirconium pur « crystal bar » irradié à 700 K et à une fluence neutronique de $1,5 \times 10^{26}$ n/m² [103] (les boucles interstitielles sont notées i et les boucles lacunaires v).

La proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires varie avec l'orientation cristallographique des surfaces libres [101]. Tout comme pour les joints de grains, les surfaces prismatiques dont la normale est perpendiculaire à l'axe $\langle c \rangle$ absorbent préférentiellement les auto-interstitiels, favorisant ainsi la croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires et inversement pour les surfaces de type basal (de normale parallèle à l'axe $\langle c \rangle$). Griffiths *et al.* [85], [104] ont examiné l'évolution de la population des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec l'orientation cristalline des surfaces libres de lames minces de zirconium irradiées aux électrons. Comme suggéré par Woo [101], au voisinage des surfaces prismatiques, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sont principalement lacunaires. Cependant, les observations n'attestent pas l'effet des surfaces basales prédit par l'anisotropie de diffusion des SIAs. Les deux types de boucles coexistent près d'une surface dont la normale est orientée à $\sim 6^\circ$ par rapport à l'axe $\langle c \rangle$. Woo [101] explique cet écart par une cinétique d'évolution plus lente pour l'annihilation des lacunes sur les surfaces basales (ou joints de grains basaux) par rapport à l'absorption des SIAs par les surfaces prismatiques (ou joints de grains prismatiques).

I.2.4 Les boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$

Le zirconium et ses alliages se distinguent par la présence d'un autre type de boucles de dislocation, des boucles basales de caractère lacunaire et dont le vecteur de Burgers présente une composante parallèle à l'axe $\langle c \rangle$. Ces boucles de dislocation, appelées boucles à composante $\langle c \rangle$, sont au centre de ce travail de thèse. Une étude bibliographique approfondie a porté sur leur caractérisation suite à des irradiations aux neutrons et aux particules chargées. L'évolution de leur microstructure sous l'effet de certains paramètres qui dépendent des conditions d'irradiation et du matériau a été également examinée.

I.2.4.1 Existence des boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$

L'existence des boucles à composante $\langle c \rangle$ a fait l'objet de plusieurs controverses dès les années soixante avec le modèle de croissance des alliages de zirconium sous irradiation neutronique, proposé par Buckley [105]. Selon ce modèle, l'allongement du monocristal de zirconium suivant la direction cristallographique $\langle a \rangle$ et son raccourcissement suivant l'axe $\langle c \rangle$ peuvent être expliqués par la formation et la croissance de boucles interstitielles dans les plans prismatiques et de boucles lacunaires dans les plans basaux. Ce modèle a été rejeté lorsque les observations réalisées dans le cadre du « Round-Robin » ne démontrèrent pas l'existence de telles boucles basales [80]. Seules les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ont été observées jusqu'à une fluence neutronique de 1×10^{25} n/m² [80]. D'autre part, l'existence simultanée de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires dans les plans prismatiques invalide ce modèle.

C'est Jostsons *et al.* [106] qui sont les premiers à avoir rapporté en 1977 la présence de boucles à composante $\langle c \rangle$ dans du zirconium de haute pureté irradié à 450°C à une fluence neutronique de $1,3 \times 10^{25}$ n/m². Ces boucles fautes de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ sont exclusivement lacunaires et coexistent avec les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ parfaites. L'existence des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été également prouvée à une température d'irradiation plus basse par Holt et Gilbert [107] et par Griffiths *et al.* [108] dans du Zircaloy-2 et du Zircaloy-4 recristallisés. Pour des températures d'irradiation de 277 à 307°C, les boucles à composante $\langle c \rangle$ n'apparaissent qu'à partir d'une fluence neutronique de 3 à 4×10^{25} n/m² [107].

En Microscopie Electronique en Transmission, ces défauts ont été analysés avec le vecteur de diffraction $\vec{g} = 0002$ qui permet d'éteindre les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ présentes en grand nombre dans la microstructure, la condition d'extinction $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ étant vérifiée. L'utilisation de ce vecteur de diffraction permet de visualiser les boucles à composante $\langle c \rangle$ sur la tranche. Elles apparaissent sous la forme de segments de dislocations (Figure I.2.9).

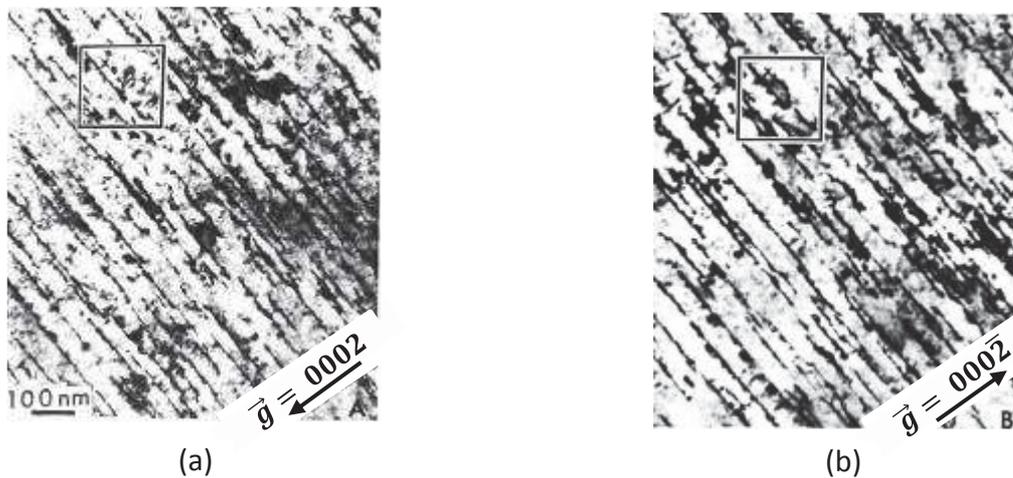


Figure I.2.9: Boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$ observées sur la tranche dans des échantillons de Zircaloy-2 recristallisé irradiés dans le réacteur EBR-II à 417°C et à une fluence neutronique de $6,3 \times 10^{25}$ n/m² [110] – (a) $\vec{g} = 0002$ et (b) $\vec{g} = 000\bar{2}$.

Au début des caractérisations microscopiques des échantillons d'alliages de zirconium irradiés à haute fluence neutronique, il a été difficile de dissocier ces boucles de l'ensemble du réseau de dislocations [109]. C'est en 1983 que Holt et Gilbert [110] ont montré que du fait de leur répartition homogène (Figure I.2.9) ces contrastes correspondent bien à des boucles de dislocation et non pas à des dislocations apparues pour accommoder la déformation de croissance sous irradiation.

L'existence de ces boucles basales lacunaires a été considérée au début comme une anomalie. Leur formation contredit deux règles généralement appliquées pour la prédiction de l'évolution de la microstructure. La première règle concerne le plan d'habitat des boucles de dislocation. Foll et Wilkens [111] ont établi un critère basé sur la distance entre les plans atomiques qui dépend du rapport c/a pour les métaux de structure hexagonale compacte. Pour un rapport $c/a < \sqrt{3}$, les plans prismatiques, correspondant aux plans denses, sont les plans principaux de germination des boucles de dislocation. Lorsque ce rapport est supérieur à $\sqrt{3}$, les défauts ponctuels s'agglomèrent dans les plans basaux. Pour le zirconium dont le rapport $c/a < \sqrt{3}$, les plans préférentiels de nucléation des boucles de dislocation sont les plans prismatiques. De ce fait, la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les plans basaux de la maille hexagonale compacte du zirconium paraît surprenante. Toutefois, il est important de noter que ce critère ne prend pas en compte les fautes d'empilement.

Par ailleurs, et comme mentionné précédemment pour les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (§ I.2.3.1), compte tenu de l'interaction élastique préférentielle des dislocations avec les auto-interstitiels, les boucles de dislocation lacunaires devraient absorber préférentiellement des auto-interstitiels. Les boucles lacunaires ne pourraient donc pas croître. En ne considérant que le biais dû à la Différence d'Interaction Élastique (EID) (§ I.3.1.2.1) [87] et en n'intégrant pas le biais induit par la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) (§ I.2.2.1 et I.2.2.2), les boucles de dislocation induites par l'irradiation dans le zirconium devraient être exclusivement interstitielles.

Face à ces contradictions, plusieurs études ont été menées et diverses hypothèses ont été avancées pour expliquer les mécanismes à l'origine de la formation et de la croissance de ces boucles à composante $\langle c \rangle$. Parmi les mécanismes proposés, on cite la modification du rapport c/a par la présence d'éléments chimiques ou de contraintes internes [112], la ségrégation des solutés sur la faute d'empilement et la diminution de son énergie [112], la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) entre les auto-interstitiels et les lacunes [88], [102], ...

1.2.4.2 Observation et caractérisation des boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$ induites par l'irradiation

1.2.4.2.1 Aux neutrons

Les boucles à composante $\langle c \rangle$ n'apparaissent qu'au-delà d'une dose seuil d'irradiation qui dépend de la composition chimique du matériau, de son état métallurgique et des conditions d'irradiation.

Pour le Zircaloy-4 recristallisé irradié aux neutrons à des températures de fonctionnement des REP (277 à 307°C), la fluence seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ se situe aux alentours de 3 et 4×10^{25} n/m² [107], correspondant à une dose de 4,4 et 5,8 dpa respectivement (conversion de Shishov pour les REP [53]). Quelques boucles à composante $\langle c \rangle$ ont été observées par Simonot [113] dans du Zircaloy-4 détendu irradié 4 cycles (14 dpa) en milieu REP. Toutefois, il convient de noter que l'observation de ces boucles dans les alliages détendus est très rare. Pour les alliages au niobium, la fluence neutronique seuil est plus élevée, elle est de $5,7 \times 10^{25}$ n/m² (soit 8,3 dpa) pour le M5® [22]. A des températures plus élevées, les boucles à composante $\langle c \rangle$ apparaissent à une plus faible fluence neutronique [108], [114].

Le vecteur de Burgers des boucles à composante $\langle c \rangle$ est égal à $1/6 \langle 2\bar{0}23 \rangle$ [106] et peut s'écrire comme la somme de deux composantes, $c/2$ et $1/3 \langle 10\bar{1}0 \rangle$. Ces boucles tiennent leur nom du fait que l'une de ses deux composantes est parallèle à l'axe cristallographique $\langle c \rangle$. Ces boucles sont exclusivement lacunaires et se situent dans le plan basal [106], [108], [114]. Elles présentent une faute d'empilement intrinsèque de type I_1 avec comme vecteur de faute $1/3 \langle 10\bar{1}0 \rangle$ et comme plan de faute le plan basal ou un plan adjacent. Après un recuit à haute température, ces boucles fautées peuvent devenir parfaites de vecteur de Burgers $\langle 0001 \rangle$ [108].

Les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont généralement plus grandes et moins nombreuses que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Régnard [86] rapporte une densité volumique comprise entre 3 et 6×10^{20} m⁻³ et une taille moyenne de 120 nm dans le Zircaloy-2 et le Zircaloy-4 recristallisés irradiés à 300°C et à une fluence neutronique de $5,4 \times 10^{25}$ n/m². La densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les alliages de type Zr-Nb est plus faible que celle dans les alliages à base de zirconium et d'étain [115], [116]. Une densité linéique de $3,14 \times 10^{13}$ m⁻² a été reportée pour les boucles à composante $\langle c \rangle$ présentes dans le M5® irradié 5 cycles ($17,1 \times 10^{25}$ n/m², 25 dpa) en REP [115]. La densité linéique dans le Zircaloy-4 bas étain irradié 6 cycles (21×10^{25} n/m², 31 dpa) en REP est de $1,75 \times 10^{14}$ m⁻². L'évolution de la microstructure (densité et taille) des boucles à composante $\langle c \rangle$ semble dépendre des éléments d'alliage présents dans le matériau irradié [90], [117]. Cet aspect sera détaillé dans la partie 1.2.4.3.2 de ce chapitre.

Une des caractéristiques microstructurales de ces boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par l'irradiation aux neutrons est leur nucléation préférentielle au voisinage des phases intermétalliques, comme les phases de Laves Zr(Fe,Cr)₂ dans le Zircaloy-4 [90], [107] (Figure I.2.10).

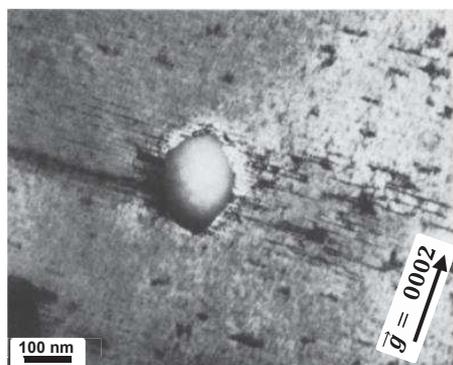


Figure I.2.10: Concentration des boucles à composante $\langle c \rangle$ au voisinage des phases de Laves Zr(Fe,Cr)₂ dans le Zircaloy-4 irradié en REP à 300°C à une fluence neutronique de 8×10^{25} n/m² [107].

L'observation de ces boucles à composante $\langle c \rangle$ est toujours accompagnée par une forte vitesse de croissance dans les alliages recristallisés. Le phénomène d'accélération a été corrélé à l'apparition de ces défauts d'irradiation spécifiques [107], [110], [114].

1.2.4.2.2 Aux électrons

En 1981, Carpenter et Watters [84] ont signalé la présence de lignes de défauts dans le plan basal du zirconium et du Zircaloy-2 irradiés aux électrons de 1 MeV à 300°C. Ces défauts n'apparaissent qu'à une dose d'irradiation élevée (12 dpa). Leur nature n'a pas été clairement identifiée par ces auteurs qui les considéraient comme étant des artefacts dus à la distorsion des lames minces soumises à de fortes doses d'irradiation.

Des travaux, principalement de Griffiths *et al.* [90], [118], [119], ont permis de mettre en évidence l'existence de trois types de boucles à composante $\langle c \rangle$ lors des irradiations aux électrons. Ces boucles se différencient par leur vecteur de Burgers, leur nature et leur plan d'habitat :

- Les boucles fautées de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ n'ont été observées que dans des échantillons de zirconium très oxydés [90], [118]. Elles sont de nature lacunaire ;
- Des boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 11\bar{2}3 \rangle$ sont apparues dans des lames minces de zirconium irradiées à des températures allant de 300 à 500°C [118]. Les observations montrent que ce sont les boucles les plus fréquemment rencontrées dans ces conditions d'irradiation aux électrons [118]. Ces boucles non-basales $\langle c + a \rangle$ ont un plan d'habitat proche de $\{10\bar{1}1\}$. Comme elles sont glissiles, elles partent vers les surfaces libres et une faible proportion seulement reste dans la lame mince. Les boucles analysées sont principalement de nature interstitielle [118]. Elles sont petites, leur taille ne dépassant pas les 50 nm à 400°C [119]. Leur présence a été signalée dans les alliages de Zircaloy-2 et Zircaloy-4 mais pas dans le Zr-2,5%Nb ni dans le zirconium de haute pureté [119]. L'existence de ce type de boucles a été également mise en évidence dans le Zircaloy-2 irradié dans le réacteur EBR-II à 417°C et à une fluence neutronique de $5,5 \times 10^{25}$ n/m² ;
- Un autre type de boucles basales a été observé dans des échantillons de zirconium irradiés aux électrons de 1 MeV à 440°C [90], [104]. Ce sont des boucles fautées de vecteur de Burgers $1/2 \langle 0001 \rangle$ et de caractère lacunaire. Elles sont sessiles et ont une taille moyenne de 40 nm. Suite à une communication personnelle, Griffiths remet, néanmoins, en question cette observation et estime qu'il est possible que ces boucles aient un vecteur de Burgers de type $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$.

Ces observations démontrent la formation de boucles à composante $\langle c \rangle$ à l'issue des irradiations aux électrons. Depuis, des travaux se sont intéressés à l'étude de l'effet de différents paramètres sur l'évolution de leur microstructure.

De Carlan [112] a examiné l'effet de la température sur la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$. A 250°C, la dose de nucléation de ces boucles dans le Zircaloy-4 se situe aux alentours de 30 dpa. A 300°C, les premières boucles apparaissent à une dose seuil d'irradiation plus faible (5 dpa). En plus de la sensibilité de la dose d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ à la température d'irradiation, les éléments chimiques présents dans la matrice de zirconium, et plus particulièrement le fer, jouent un rôle important dans la formation de ces défauts [90], [112], [119], [120]. Ce point sera détaillé ultérieurement dans la partie 1.2.4.3.2.

Dans le cas des irradiations aux électrons réalisées directement sur des lames minces, le dommage n'est créé que sur une épaisseur de quelques centaines de nanomètres. Les surfaces libres peuvent se présenter comme des puits biaisés par la DAD (§ 1.2.2.1 et 1.2.2.2). La formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ serait donc impactée par l'orientation cristalline des grains par rapport à la normale à la surface de la lame mince. Cet effet a été suggéré par Woo [101] à travers son modèle basé sur la DAD. Tout comme pour les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires (§ 1.2.3.2.4), la formation des boucles à

composante $\langle c \rangle$ serait favorisée à proximité des surfaces de type prismatique. Expérimentalement, l'effet de l'orientation des surfaces sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'a pas été étudié.

1.2.4.2.3 Aux ions lourds

En 1974, Lee et Koch [121] ont irradié des échantillons de Zircaloy-2 avec des ions de Ni^{2+} de 5 MeV à des températures variant de 300 à 600°C et des fluences neutroniques de 5,6 à 7×10^{19} ions/m² (correspondant à des doses de 7 à 87 dpa). Des défauts alignés dans le plan basal ont été observés à des températures de 400 et 500°C et pour des doses supérieures à 10,2 dpa. Ces lignes de défauts semblent évoluer avec la dose et avec une moindre mesure la température d'irradiation. En revanche, l'espacement entre les segments ne varie pas avec la dose et à fort grossissement, les lignes apparaissent comme étant discontinues. Ces défauts n'ont pas été clairement identifiés au cours de cette étude. Néanmoins, les auteurs [121] ont émis deux hypothèses qui pourraient justifier la présence de telles microstructures. La première concerne la possibilité de précipitation d'une seconde phase liée à l'introduction des atomes de nickel lors du bombardement ionique. La deuxième justification relie l'apparition de ce contraste à un déplacement réticulaire de la matrice suivant une composante parallèle à l'axe $\langle c \rangle$.

Adamson *et al.* [122] et Bell [123] ont observé un contraste de bandes parallèles au plan de base dans des échantillons de zirconium et de Zircaloy-2 irradiés aux neutrons. Le terme « Corduroy » (Velours à côtes) a été utilisé par Bell [123] pour décrire ces microstructures observées. Selon lui, ce contraste ne correspond pas à un défaut spécifique, dont le champ de déformation aurait une composante suivant l'axe $\langle c \rangle$, mais à de petits volumes cristallins désorientés de façon périodique. En rapprochant leurs observations (Figure I.2.11 (b)) à celles de Lee et Koch [121] (Figure I.2.11 (a)), il est possible que les défauts identifiés dans le Zircaloy-2 irradié aux ions Ni^{2+} correspondent au contraste de « Corduroy ».

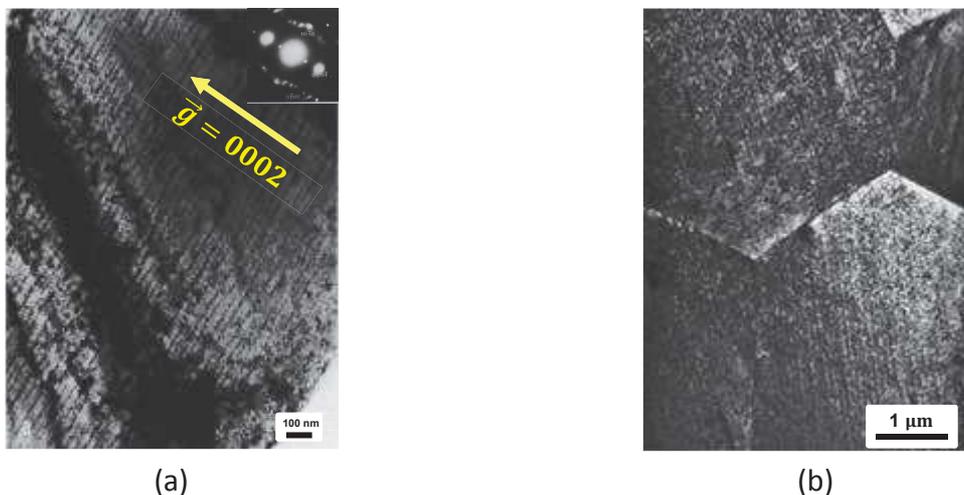


Figure I.2.11 – (a) Défauts alignés dans le plan basal, Zircaloy-2 irradié aux ions Ni^{2+} de 5 MeV à 400°C et 57,5 dpa [121] et (b) contraste de « Corduroy » dans du zirconium irradié aux neutrons à 290°C et à une fluence neutronique de $1,8 \times 10^{25}$ n/m² [123].

L'existence des boucles à composante $\langle c \rangle$ après irradiation aux ions lourds n'a été établie que récemment. Des irradiations, réalisées sur des échantillons de Zircaloy-4 recristallisé [124], [125] et de M5[®] [124] à 300°C avec des ions Zr^+ de 600 keV, ont montré des boucles à composante $\langle c \rangle$ plus petites et plus nombreuses que celles obtenues aux irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1). La petite taille des boucles et leur forte densité peuvent s'expliquer par l'effet du taux de création de défauts ponctuels, un effet qui est inverse à celui de la température d'irradiation (§ 1.2.3.2.1). Comme le taux

de création de dommage par les ions est beaucoup plus élevé (~ 1000 fois) que celui des neutrons, la concentration de défauts ponctuels dans la matrice de zirconium est plus importante. La probabilité pour que ces défauts s'agglomèrent pour former des germes est élevée. La nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$ se trouve alors favorisée par rapport à la croissance. Pour avoir une meilleure représentativité des microstructures observées par irradiation aux ions, le fort taux de création de dommage peut être compensé par une augmentation de la température.

Par ailleurs, la distribution spatiale des boucles à composante $\langle c \rangle$, induites par ces irradiations aux ions, apparaît homogène (Figure I.2.12 et Figure I.2.13). La nucléation préférentielle à proximité des phases de Laves, reportée lors des irradiations aux neutrons (§ I.2.4.2.1), n'a pas été observée lors de ces irradiations aux ions.

A 2,9 dpa ($4,9 \times 10^{14}$ ions/cm²), les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont rares (Figure I.2.12 (a) et Figure I.2.13 (a)) et ne sont clairement identifiées qu'à partir de 4,1 dpa ($6,7 \times 10^{14}$ ions/cm²) (Figure I.2.12 (b) et Figure I.2.13 (b)). La dose seuil de nucléation de ces boucles dans le Zircaloy-4 et le M5[®] irradiés aux ions Zr⁺ à 300°C se situerait aux alentours de 4,1 dpa. De plus, Tournadre [124] a noté que l'effet d'alliage, montré lors des irradiations aux neutrons (§ I.2.4.2.1), n'est pas reproduit lors de ces irradiations aux ions où les microstructures (densité et taille) de boucles à composante $\langle c \rangle$ sont quasi-équivalentes dans les deux alliages (Zircaloy-4 et M5[®]), à une même dose d'irradiation (Figure I.2.12 et Figure I.2.13).

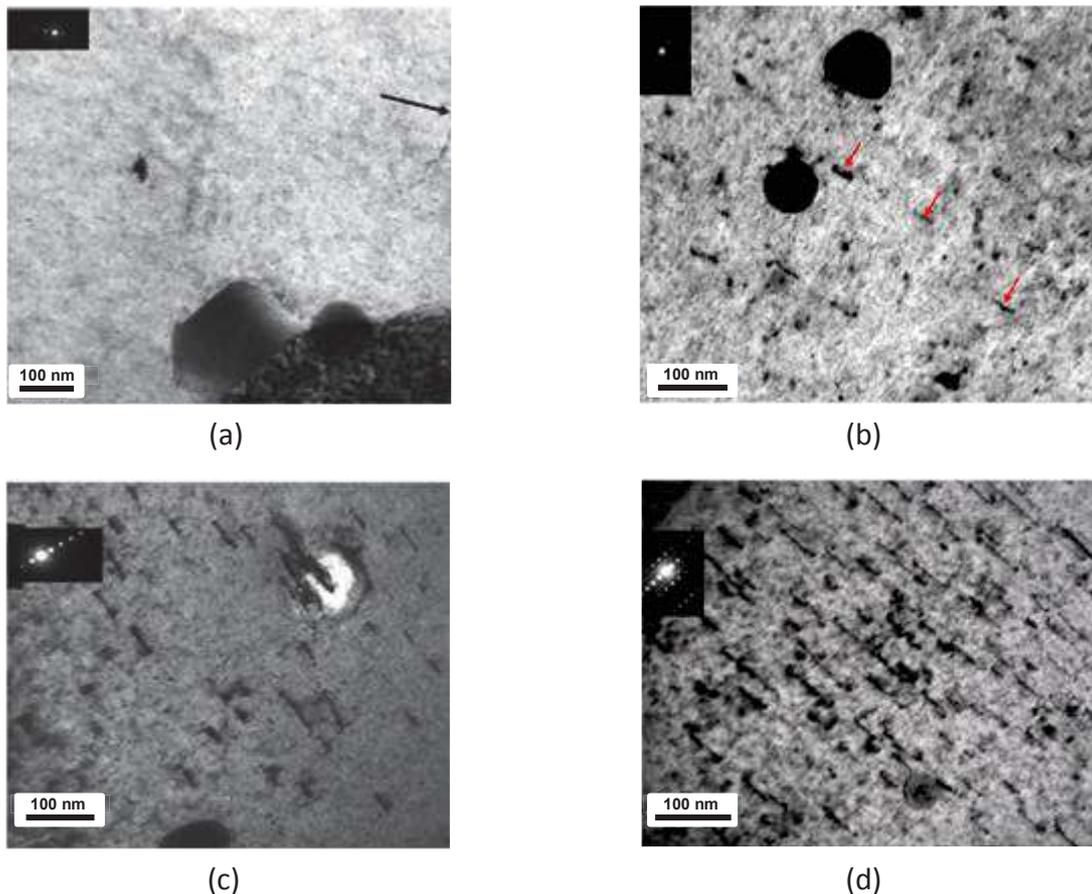


Figure I.2.12: Zircaloy-4 recristallisé irradié aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C – (a) pas de boucles à composante $\langle c \rangle$ à 2,9 dpa ($4,9 \times 10^{14}$ ions/cm²), dislocation $\langle c + a \rangle$ repérée par la flèche, (b) 4,1 dpa ($6,7 \times 10^{14}$ ions/cm²), (c) 5,5 dpa (9×10^{14} ions/cm²) et (d) 7 dpa ($1,15 \times 10^{15}$ ions/cm²) [125].

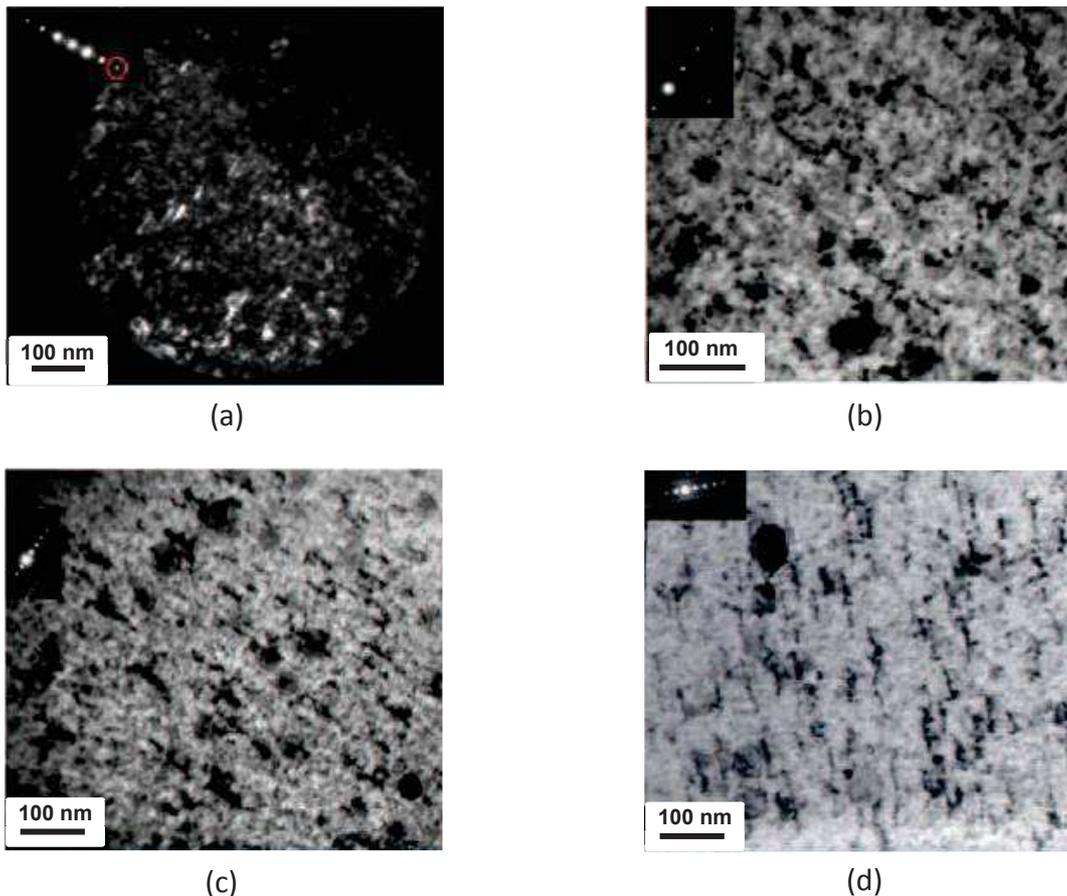


Figure I.2.13: M5[®] irradié aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C – (a) pas de boucles à composante $\langle c \rangle$ à 2,9 dpa ($4,9 \times 10^{14}$ ions/cm²), (b) 4,1 dpa ($6,7 \times 10^{14}$ ions/cm²), (c) 5,5 dpa (9×10^{14} ions/cm²) et (d) 7 dpa ($1,15 \times 10^{15}$ ions/cm²) [124].

Des observations *in-situ* de la microstructure du M5[®] irradié aux ions Kr²⁺ de 1 MeV à 300°C et jusqu'à une dose de 22 dpa (5×10^{15} ions/cm²) ont également mis en évidence la présence de boucles à composante $\langle c \rangle$ [126], [127]. La dose seuil d'apparition de ces boucles se situe aux alentours de 6,8 dpa.

Yamada *et al.* [128] ont montré la présence de boucles de vecteurs de Burgers $1/2 \langle 0001 \rangle$ dans le zirconium pur et le Zircaloy-2 irradiés aux ions Zr⁴⁺ de haute énergie (12 MeV) à des températures de 300 et 400°C. Cette étude a permis de souligner, qualitativement, l'effet de la température, de la dose d'irradiation et des éléments d'alliage sur la microstructure de ces boucles. En effet, ces boucles de vecteur de Burgers de type $1/2 \langle 0001 \rangle$ se forment dans le zirconium pur à une température d'irradiation de 400°C alors qu'elles ne sont pas observées à 300°C et ceci jusqu'à une forte dose d'irradiation (20 dpa). La température favoriserait donc la formation de ces boucles de dislocation. Dans le Zircaloy-2, ces boucles sont présentes à 300°C, ce qui suggère que certains éléments d'alliage favoriseraient la formation de ces défauts. Ce point serait détaillé dans la partie I.2.4.3.2.

Des irradiations *in-situ* aux ions Kr²⁺ de 1 MeV à des températures de 300, 400 et 500°C ont été réalisées sur du zirconium pur dans le but d'étudier la formation et l'évolution des défauts d'irradiation à de faibles doses, allant de 0,008 à 1 dpa [93]. Comme souligné par Yamada *et al.* [128], aucune boucle à composante $\langle c \rangle$ n'apparaît dans le zirconium pur irradié à 300°C. Selon Idrees *et al.* [93], l'absence de ces boucles à cette température peut être expliquée par la faible diffusion des impuretés dans la matrice de zirconium. Ces impuretés, bien que présentes en faible quantité dans le zirconium pur, stabiliseraient les premiers germes. A 400°C, les premières boucles ont été détectées à une dose de 0,8 dpa. La dose seuil d'apparition de ces défauts d'irradiation est d'environ 1 dpa pour une température de 500°C. Selon Idrees *et al.* [93], les contraintes intergranulaires qui peuvent être

généralisées par la présence de couches d'oxydes ou/et par la croissance sous irradiation des grains stabiliseraient les boucles à composante $< c >$. Une élévation de la température induit une relaxation thermique des contraintes internes, ce qui expliquerait selon Idrees *et al.* [93], pourquoi les boucles à composante $< c >$ apparaissent à une dose plus élevée à 500°C. Cependant, il est important de noter que dans le cas des irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1) et aux électrons (§ 1.2.4.2.2), la dose seuil d'apparition des boucles à composante $< c >$ dans les alliages de zirconium diminue avec la température. Les résultats à 400 et 500°C, présentés par Idrees *et al.* [93], sont donc en contradiction avec l'effet de température observé pour des irradiations aux neutrons et aux électrons.

La présence des boucles à composante $< c >$ à 500°C a été également reportée par Griffiths *et al.* [118] pour des lames minces de zirconium pur irradiées aux électrons de 1 MeV à des doses de 0,08 et 0,14 dpa. Ces auteurs ont aussi attribué au départ la formation de ces défauts à la présence de contraintes générées par les couches d'oxydes. Lors d'une communication personnelle, Griffiths nuance cette conclusion et estime que c'est plutôt l'effet de la surface qui est responsable de ce phénomène.

1.2.4.2.4 Aux protons

La littérature recense plusieurs travaux consacrés à l'étude des alliages de zirconium irradiés aux protons. Les thématiques abordées sont variées [129]–[134] mais les boucles à composante $< c >$ n'ont pas fait l'objet de ces travaux.

L'existence des boucles à composante $< c >$ a été établie grâce à des irradiations aux protons H^+ de 2 MeV réalisées à 350°C sur des barreaux de Zircaloy-4 recristallisé [124], [125] et de M5[®] [124]. Les observations en MET ont montré des microstructures représentatives de celles obtenues en REP. Comme pour les irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1), les boucles à composante $< c >$ sont grandes, leur taille moyenne est de 111 nm dans le Zircaloy-4 recristallisé irradié à 19 dpa ($1,36 \times 10^{20}$ ions/cm²). A cette dose d'irradiation, leur densité volumique est de $1,1 \times 10^{21}$ m⁻³. La densité des boucles apparaît également plus importante dans le Zircaloy-4 que dans le M5[®] (Figure 1.2.14) [124]. Les irradiations aux protons à 350°C reproduisent donc l'effet des éléments d'alliage constaté lors des irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1).

Par ailleurs, une dose seuil d'apparition des boucles à composante $< c >$ a pu être identifiée pour le M5[®]. En effet, aucune boucle n'a été observée à une dose de 4,9 dpa ($3,5 \times 10^{19}$ ions/cm²) (Figure 1.2.14 (d)). A 8,1 dpa ($5,78 \times 10^{19}$ ions/cm²), quelques boucles sont visibles (Figure 1.2.14 (e)), ce qui laisse supposer que la dose seuil se situe entre 4,9 et 8,1 dpa. Pour le Zircaloy-4, la dose seuil n'a pas été clairement identifiée mais semble être inférieure à celle du M5[®]. Une nucléation préférentielle des boucles à composante $< c >$ à proximité des phases de Laves a été également constatée. Les microstructures de Zircaloy-4, représentées dans la Figure 1.2.14, mettent en évidence une distribution homogène des boucles à composante $< c >$, ceci malgré une nucléation préférentielle au voisinage des phases de Laves. En revanche, pour le M5[®], les boucles se répartissent de façon hétérogène.

En conclusion, les irradiations aux protons permettent d'obtenir des microstructures assez représentatives de celles observées suites aux irradiations aux neutrons, contrairement aux irradiations aux ions lourds où certains phénomènes comme l'effet des éléments d'alliage et la nucléation préférentielle au voisinage des phases de Laves ne sont pas reproduits et où les boucles à composante $< c >$ sont petites et très nombreuses (§ 1.2.4.2.3). Ceci peut être expliqué, principalement, par le taux de création de dommage plus faible avec les protons qu'avec les ions Zr^+ . La croissance des boucles, lors des irradiations aux protons, est alors favorisée (§ 1.2.4.2.3) ce qui explique l'obtention de boucles plus grandes, ayant des tailles du même ordre de grandeur que celles obtenues à l'issue des irradiations aux neutrons. Un taux de création de dommage plus lent facilite également la diffusion du fer pouvant induire la formation de sites de nucléation de boucles à composante $< c >$. Ce point sera détaillé dans la partie 1.2.4.2.3. Il est aussi important de mentionner que lors des irradiations aux protons, les lames minces sont prélevées dans le volume irradié des

échantillons. L'effet des surfaces libres, qui est vraisemblablement de second ordre devant l'effet du taux de création de dommage, est alors négligeable.

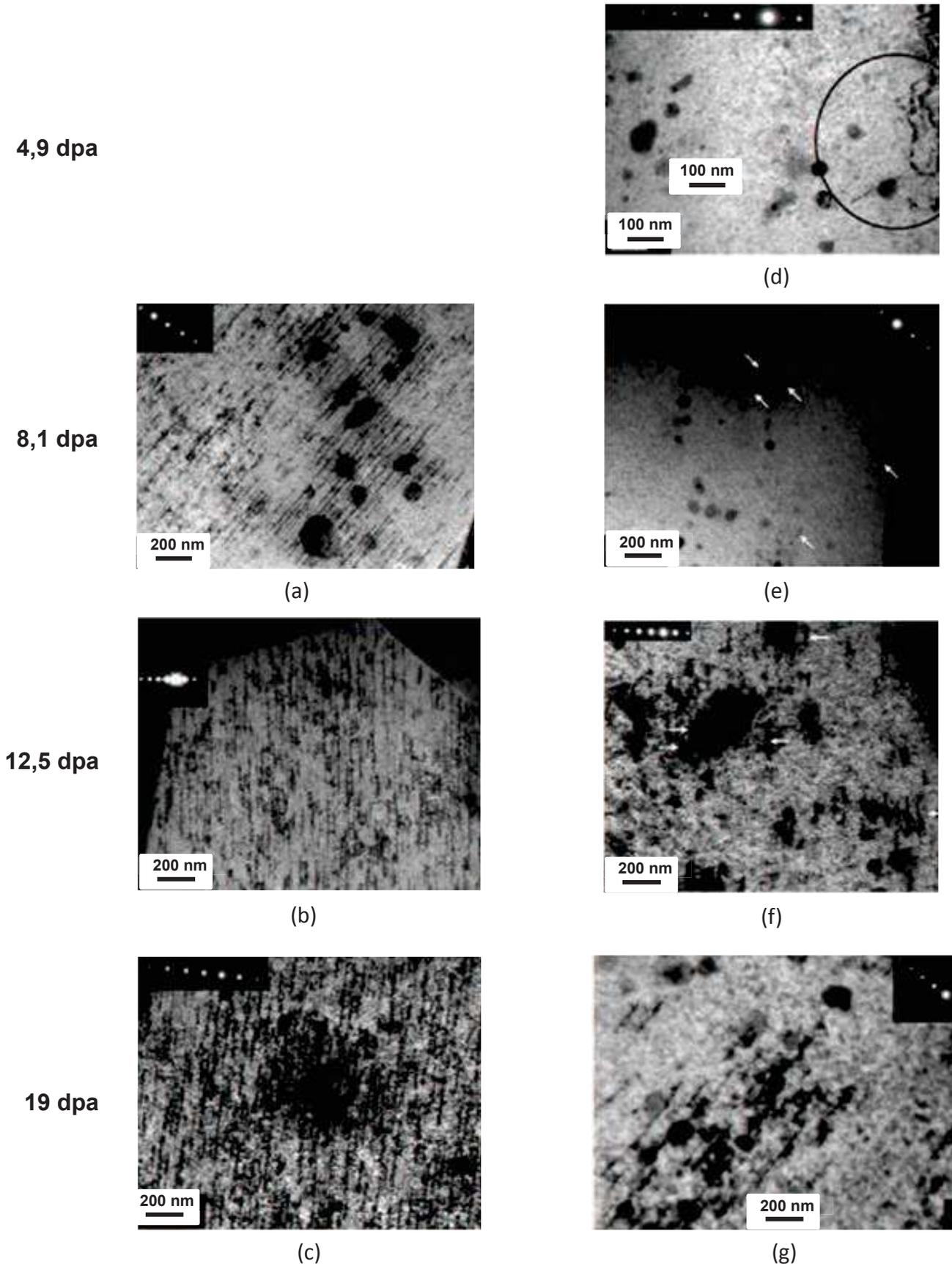


Figure I.2.14: Microstructures des boucles à composante $\langle c \rangle$ après irradiation aux protons H^+ de 2 MeV à 350°C – (a) Zircaloy-4, 8,1 dpa ($5,78 \times 10^{19}$ ions/cm²), (b) Zircaloy-4, 12,5 dpa ($8,93 \times 10^{19}$ ions/cm²), (c) Zircaloy-4, 19 dpa ($1,36 \times 10^{20}$ ions/cm²), (d) M5[®], 4,9 dpa ($3,5 \times 10^{19}$ ions/cm²), pas de boucles mais uniquement des dislocations $\langle c + a \rangle$ (entourées en noir), (e) M5[®], 8,1 dpa, (f) M5[®], 12,5 dpa et (g) M5[®], 19 dpa [124].

I.2.4.3 Paramètres influençant la microstructure des boucles de dislocation à composante $\langle c \rangle$

I.2.4.3.1 Dose d'irradiation

Plusieurs travaux ont porté sur la cinétique de croissance des monocristaux et des polycristaux de zirconium. Cependant, peu de données expérimentales illustrent l'évolution de la microstructure (densité et taille) des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation.

Des expériences en Diffraction des Rayons X (DRX) ont été réalisées par Griffiths *et al.* [135], [136] sur des échantillons de Zircaloy-4 recristallisé irradié en REP à 300°C. L'élargissement de la raie (0004), relative au plan de base, a été associé à la nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Trois stades d'évolution peuvent être distingués pour le Zircaloy-4 (Figure I.2.15) : un premier élargissement à faibles doses suivi d'un régime stationnaire puis à partir d'une dose seuil d'environ 3×10^{25} n/m², la raie s'élargit rapidement. Cette dose correspond à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par des irradiations aux neutrons à 300°C (§ I.2.4.2.1). Cette évolution peut donc être corrélée à l'augmentation de la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation.

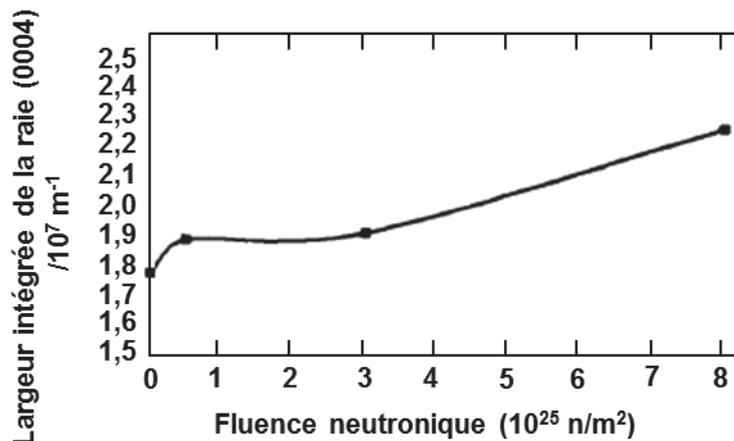


Figure I.2.15: Evolution de l'élargissement de la raie (0004) avec la fluence neutronique dans le Zircaloy-4 recristallisé irradié à 300°C [135].

L'augmentation de la densité et la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation a été observée lors des irradiations aux particules chargées [93], [112], [120], [124]–[128]. La densité linéique semble évoluer quasi-linéairement avec la dose d'irradiation [124], [126], [127].

I.2.4.3.2 Eléments d'alliage

La comparaison de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans différents alliages de zirconium suggère un effet des éléments d'addition sur leur densité et leur taille mais aussi sur leur distribution spatiale et leur dose seuil de nucléation (§ I.2.4.2.1, I.2.4.2.2 et I.2.4.2.4). L'étude de l'effet des éléments chimiques reste néanmoins difficile à établir du fait de la variation de la teneur de plusieurs éléments à la fois et de la possible corrélation entre les rôles joués par chacun d'entre eux.

L'influence de quatre principaux éléments chimiques présents dans les alliages de zirconium (le fer, le niobium, l'étain et l'oxygène) sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ est détaillée dans cette partie. Nous présentons aussi de façon succincte l'effet de l'hydrogène en solution solide ou sous forme d'hydrures précipités sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Plusieurs auteurs s'accordent à dire que le fer stabilise les boucles à composante $\langle c \rangle$, favorisant ainsi leur nucléation [90], [108], [112], [114], [116], [120], [137]. Des observations ont révélé une surconcentration de ces défauts d'irradiation au voisinage des phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ présentes dans le Zircaloy-2 et le Zircaloy-4 irradiés en REP [90], [107] (Figure I.2.10). L'amorphisation et la dissolution de ces précipités intermétalliques sous irradiation (§ I.2.5), accompagnées d'un rejet de fer dans la matrice de zirconium, jouent un rôle important sur la stabilisation et la distribution spatiale des boucles à composante $\langle c \rangle$.

En vue d'étudier l'effet du fer en solution, de Carlan [112], [120] a irradié des échantillons de Zircaloy-4 dopés en fer aux électrons de 1 MeV. Il a constaté que, pour des températures d'irradiation de 250 et 300°C, la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les échantillons implantés en fer est nettement supérieure à celle observée dans le Zircaloy-4 de référence. Pour les échantillons dopés à 0,6 et à 0,8% atomique en fer, les boucles apparaissent dès les premiers instants de l'irradiation. Selon lui, deux mécanismes, le premier d'origine cristallographique et le deuxième énergétique, pourraient expliquer l'influence de cet élément d'alliage sur la germination des boucles à composante $\langle c \rangle$. En effet, la présence d'éléments en solution peut conduire à une dilatation de la maille cristalline et à une augmentation du rapport cristallographique c/a . Pour le zirconium, ce rapport est inférieur à $\sqrt{3}$ et les plans les plus denses sont les plans prismatiques [111] (§ I.2.4.1). Une augmentation significative de ce rapport pourrait rendre le plan de base le plan principal de germination des boucles. Cependant, des mesures en Diffraction de Rayons X (DRX), réalisées sur une éponge de zirconium irradiée à 427°C à une fluence neutronique de $1,5 \times 10^{26}$ n/m², donnent une variation de 0,12% du rapport c/a [108]. Cette variation, qui peut être attribuée à la remise en solution du fer dans la phase Zr- α est insuffisante pour avoir un effet conséquent sur le plan de germination des boucles. En s'inspirant des travaux de Suzuki [138], un autre mécanisme selon lequel les atomes de fer ségrégent sur les fautes d'empilement, pourrait être envisagé. Ce mécanisme implique l'existence au préalable des germes de boucles fautées. En minimisant leur énergie de faute d'empilement, ils sont rendus énergétiquement plus stables. Leur croissance est ainsi favorisée. De ce fait, le fer ne jouerait plus un rôle sur la nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$ mais plutôt sur leur croissance. De Carlan [112] souligne que ce mécanisme ne permet pas d'expliquer l'augmentation très importante de la densité des boucles dans les échantillons dopés en fer. Il suggère que la formation des boucles est favorisée par la présence d'une précipitation en deux dimensions du fer sur les plans de base du zirconium, les lacunes étant substituées par les atomes de fer [112], [120]. Cette précipitation aurait une structure proche de celle du Zr_2Fe (structure quadratique C16 avec des paramètres $a = 0,6385$ nm et $c = 0,5596$ nm). Ces structures constitueraient les premiers sites de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Il est aussi possible que la ségrégation des atomes de fer sur les boucles modifie leur biais d'interaction avec les défauts ponctuels, favorisant ainsi leur croissance.

Comme mentionné dans la partie I.2.2.2, une lacune peut s'associer à un atome de fer, formant ainsi un couple fer/lacune [70], [71]. Des amas contenant des atomes de fer et des lacunes joueront alors le rôle de germes pour la nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Il est important de signaler que l'effet inverse du fer a été observé dans les alliages de type Zr-Nb [22] et les alliages dits Excel [139] comme par exemple pour l'alliage E635 (Zr-1,2%Sn-0,7%Nb-xFe) pour lequel une augmentation de la teneur en fer engendre la diminution de la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ [116]. Il existerait, dans ce cas une synergie entre le niobium et l'étain qui diminuerait la stabilité des boucles à composante $\langle c \rangle$. Les atomes d'étain et de niobium en solution solide ou les précipités intermétalliques $Zr(Nb_{1-x}Fe_x)_2$ joueraient donc un rôle dans l'évolution de la microstructure de ces boucles [140].

Les alliages de type Zr-Nb-O présentent une densité de boucles à composante $\langle c \rangle$ plus faible que celle dans les alliages de la famille Zr-Sn-O [21], [22], [115], [124]. Prenons comme exemple les deux alliages, le M5[®] et le Zircaloy-4. La quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les deux alliages irradiés en REP jusqu'à une fluence neutronique de 22×10^{25} n/m² montre une densité plus

faible pour le M5[®] et une dose de nucléation plus élevée [21]. De ce fait, il apparaît que le niobium, présent en solution solide, agit comme un élément inhibiteur à la nucléation et à la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$. La présence du fer dans les alliages de type Zr-Nb permet notamment d'augmenter la limite de solubilité du niobium dans la matrice de zirconium ce qui expliquerait l'effet observé dans l'alliage E635. Le mécanisme à l'origine du rôle inhibiteur du niobium sur la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'est pas encore connu. Les calculs atomistiques ont montré une faible interaction des atomes de niobium avec les lacunes [71]. Cet élément d'addition piège les auto-interstitiels et peut être considéré comme un site d'agglomération des SIAs en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles (§ 1.2.3.2.3).

L'effet de l'étain sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'a pas été clairement étudié. Néanmoins, Zee [141] et Rogerson [142] ont examiné son influence sur le comportement en croissance des alliages de zirconium. A 80°C, les déformations de croissance mesurées sur deux alliages, Zr-0,1%Sn et Zr-1,5%Sn, de composition chimique comparable respectivement à celle du zirconium purifié à l'iode et du Zircaloy-2, montrent que la présence d'étain conduit à une plus faible croissance [141]. Toutefois, l'accélération de croissance n'a pas été observée pour les échantillons de Zr-0,1%Sn irradiés à 80°C. Inversement, à plus haute température (280°C), les déformations sont plus élevées pour le matériau riche en étain [142]. L'origine de cette inversion de l'effet de l'étain avec la température d'irradiation n'a pas été rigoureusement identifiée et a été attribuée à l'influence d'autres éléments d'alliage comme pièges à lacunes [142]. Tout comme pour le niobium, les simulations à l'échelle atomique montrent une faible interaction des atomes d'étain avec les lacunes [71]. Par contre, l'étain agit comme piège à auto-interstitiels jusqu'à une température de 700 K. Au-delà de cette température, son effet sur la diffusion des SIAs devient minime.

Des échantillons de zirconium pur « crystal bar », d'éponge de zirconium, de Zircaloy-2 et de Zircaloy-4 ont été irradiés dans le réacteur EBR-II à des températures allant de 391 à 437°C [114]. Il a été reporté que la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ est beaucoup plus élevée dans les échantillons d'éponge de zirconium, de Zircaloy-2 et de Zircaloy-4 comparée à celle dans le zirconium pur. Cette densité élevée peut être liée à la présence du fer ou/et de l'oxygène, deux éléments principaux de ces matériaux. Comme les phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ conservent leur structure cristalline et ne se dissolvent pas dans ce domaine de température (§ 1.2.5), l'effet sur la microstructure des boucles peut être attribué à l'oxygène. Il semble alors que la teneur élevée en oxygène (970 à 990 ppm) dans l'éponge de zirconium comparée à celle dans le zirconium pur (150-350 ppm) favorise la nucléation et la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cependant, il est à noter que les simulations atomistiques ne permettent pas d'expliquer cet effet. Les atomes d'oxygène ne semblent pas agir sur la diffusion et la stabilité thermodynamique des lacunes [71]. Domain [11] montre même que l'oxygène augmente l'énergie de faute d'empilement basale ce qui aurait pour effet de rendre les boucles à composante $\langle c \rangle$ moins stables, leur formation étant plus coûteuse énergétiquement. Contrairement à l'effet suggéré précédemment, la formation des boucles ne serait pas favorisée en présence de l'oxygène.

Des travaux expérimentaux récents ont souligné l'effet de l'hydrogène sur la déformation de croissance libre des alliages de zirconium [143], [144]. Des échantillons de l'alliage russe E110, pré-hydrurés à une teneur de 200 à 500 ppm massiques d'hydrogène, voient leur déformation de croissance augmenter d'un facteur six par rapport au matériau non irradié [143]. Des échantillons de Zircaloy-4 recristallisé ont été prélevés de tubes guides irradiés en REP jusqu'à une fluence neutronique d'environ 1×10^{26} n/m² ($E > 1$ MeV) (~ 15 dpa) [144]. Ces échantillons qui présentent trois niveaux de teneur en hydrogène (135, 240 et 700 ppm massiques) ont été re-irradiés dans le réacteur expérimental Halden [144]. Les résultats ont révélé une dépendance de la déformation de croissance libre à la concentration en hydrogène. Plus la teneur est élevée, plus l'amplitude de croissance est importante [144]. Comme les échantillons ont été pré-irradiés en REP jusqu'à une dose élevée, il a été suggéré que l'hydrogène interagit plus particulièrement avec les boucles à composante $\langle c \rangle$.

Une étude expérimentale approfondie portant sur l'effet de l'hydrogène sur la microstructure des boucles à composante $< c >$ a été menée par Tournadre *et al.* [124], [145], [146]. Des échantillons de Zircaloy-4 et de M5[®], pré-hydrurés à une teneur d'hydrogène allant de 80 à 350 ppm massiques, ont été irradiés aux protons à 350°C. Les observations microstructurales mettent en évidence un effet double de la pré-hydruration sur la microstructure des boucles à composante $< c >$. L'hydrogène favorise à la fois la formation et la croissance des boucles à composante $< c >$ en diminuant leur dose seuil de nucléation et en augmentant leur densité linéique. De plus, à une teneur élevée en hydrogène (350 ppm massiques), une nano-précipitation d'hydrures a été observée sur les boucles à composante $< c >$. L'ensemble de ces résultats expérimentaux peut être expliqué par le piégeage des atomes d'hydrogène en solution solide par les lacunes et principalement par les boucles à composante $< c >$ [12], [13], [98]. Les amas contenant des atomes d'hydrogène et des lacunes peuvent jouer le rôle de sites de nucléation pour les boucles à composante $< c >$. D'après les calculs atomistiques [11], [97], [98], le piégeage de l'hydrogène sur les germes de boucles à composante $< c >$ diminue l'énergie de la faute d'empilement basale et la stabilise. L'hydrogène favorise ainsi la nucléation et la croissance des boucles à composante $< c >$.

Par ailleurs, lors de l'étude expérimentale de Tournadre *et al.* [124], [145], [146], il a été noté que la microstructure des boucles à composante $< c >$ n'est pas affectée par la présence d'hydrures micrométriques précipités. En revanche, des agglomérats de boucles à composante $< c >$ se forment au voisinage d'anciens hydrures dissous sous irradiation. La dissolution de ces hydrures précipités libère de l'hydrogène dans la matrice qui favorise la formation et la croissance des boucles à composante $< c >$.

1.2.5 Autres effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium

Outre la formation des boucles de dislocation, l'irradiation entraîne d'autres modifications microstructurales notamment la précipitation induite par l'irradiation et l'amorphisation totale ou partielle des précipités en fonction de leur taille, de la fluence et de la température d'irradiation.

Dans le domaine de température de fonctionnement des REP (290 à 330°C), les phases de Laves, $Zr(Fe,Cr)_2$ pour le Zircaloy-4, présentent une amorphisation partielle avec un cœur cristallin et une couche périphérique amorphe [90], [113], [137]. Cette transformation partielle semble, néanmoins, ne concerner que les précipités de taille supérieure à 240 nm, ceux de taille inférieure subissent une transformation cristal-amorphe totale.

L'amorphisation dans ce domaine de températures est progressive, l'épaisseur de la zone amorphe évoluant linéairement avec la dose d'irradiation et s'accompagne d'une remise en solution du fer (plus que 30% dans le cœur cristallin, 10% au niveau de l'interface cristal-amorphe et jusqu'à 5% dans la zone amorphe) et un maintien de la teneur en chrome [113], [137]. A des températures plus élevées, les phases de Laves conservent leur structure cristalline.

L'irradiation de l'alliage M5[®] entraîne une précipitation accélérée de fines particules d'une longueur moyenne de 6 nm, appelées des « aiguilles ». Ces aiguilles s'allongent suivant le plan basal et sont espacées d'une distance d'environ 50 nm [21], [22], [137]. Des microanalyses par spectroscopie des rayons X (EDX) ont montré que ces composés sont riches en niobium. Ces particules, thermodynamiquement stables, sont généralement considérées comme étant des aiguilles β -Nb formées sous irradiation. Par ailleurs, il a été montré que les précipités β -Nb, initialement présents dans le M5[®] non irradié (§ 1.1.2.1.3), conservent leur structure cristalline et ne s'amorphisent pas même après irradiation de 6 cycles en REP [22].

Contrairement aux aciers austénitiques, les alliages de zirconium apparaissent résistants à la formation des cavités sous irradiation. Leur présence n'a été observée que sous des conditions très particulières. En effet, il semble que leur apparition nécessite la présence de gaz insolubles [106], [147], [148], des impuretés et des fluences élevées. Ce dernier point permet d'expliquer leur plus grande stabilisation lors des irradiations aux électrons [112], [119], [120], [148], où des doses élevées peuvent être atteintes en quelques heures.

I.2.6 Conclusions

Cette deuxième partie d'analyse bibliographique apporte des éléments de réponse aux interrogations portant sur l'évolution de la microstructure des alliages de zirconium sous irradiation. On note essentiellement la formation de deux types de défauts microstructuraux bidimensionnels :

- **les boucles de dislocation $\langle a \rangle$** : boucles parfaites de vecteur de Burgers de type $1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$. Les observations réalisées dans le cadre du « Round-Robin » ont donné lieu à un consensus concernant les principales caractéristiques microstructurales (vecteur de Burgers, plan d'habitat, nature, géométrie, taille et densité) de ces boucles. Ainsi, il a été montré qu'elles ne sont pas purement coins, leur plan d'habitat se situant entre les plans prismatiques $\{10\bar{1}0\}$ et $\{11\bar{2}0\}$, et qu'elles sont de nature interstitielle et lacunaire. La proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires évolue avec la température d'irradiation : à 300°C, les boucles sont majoritairement interstitielles, à 350°C, les deux types de boucles sont en quasi égale proportion et à 400°C elles sont principalement lacunaires. Par ailleurs, la forme géométrique de ces boucles dépend de leur type interstitiel ou lacunaire et de leur taille. Si les boucles interstitielles sont toujours circulaires, les boucles lacunaires, elles, deviennent plus elliptiques pour les grandes tailles. Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ se caractérisent par leur grande densité et leur petite taille. Plusieurs études ont permis de montrer la dépendance de leur microstructure aux conditions d'irradiation et aux paramètres du matériau ;
- **les boucles à composante $\langle c \rangle$** : boucles fautées de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ qui se forment dans les plans de base de la maille hexagonale compacte du zirconium. Elles sont exclusivement lacunaires et sont en densité bien moindre que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ mais de taille beaucoup plus grande. L'apparition de ces boucles à partir d'une dose seuil d'irradiation a été corrélée au phénomène d'accélération de croissance des alliages de zirconium recristallisés. Un résumé des principales caractéristiques microstructurales des boucles à composante $\langle c \rangle$, faisant l'objet principal de ce travail de doctorat, est donné dans le Tableau I.2.4 .

Tableau I.2.4: Résumé des principales caractéristiques microstructurales des boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par irradiation neutronique et aux particules chargées.

Caractéristiques	Irradiations aux neutrons	Irradiations aux électrons	Irradiations aux ions lourds	Irradiations aux protons
Type de boucles	Boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$, fautées I_1 , basales et lacunaires	<ul style="list-style-type: none"> Boucles basales fautées de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ et de nature lacunaire [90], [118] Boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 11\bar{2}3 \rangle$, glissiles et interstitielles [118], [119] Boucles fautées de vecteur de Burgers $1/2 \langle 0001 \rangle$, lacunaires et basales [90], [104] 	<ul style="list-style-type: none"> Boucles basales fautées de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ et de nature lacunaire [125]–[127] Boucles fautées de vecteur de Burgers $1/2 \langle 0001 \rangle$, lacunaires et basales [93], [128] 	Boucles basales fautées de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ et de nature lacunaire [125], [146]
Dose seuil d'apparition	<p>Aux températures de fonctionnement du REP (290 à 350°C)</p> <ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : 3 à 4×10^{25} n/m² [107] (4,4 à 5,8 dpa) M5® : $5,7 \times 10^{25}$ n/m² [22] (8,3 dpa) 	<p>Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p>A 300°C</p> <p>Zircaloy-4 : 5 dpa [112]</p>	<p>Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p>A 300°C</p> <ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : aux alentours de 4,1 dpa [124], [125] M5® : aux alentours de 4,1 et 6,8 dpa [126], [127] 	<p>A 350°C</p> <ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : inférieure à 4,9 dpa [125] M5® : se situe entre 4,9 et 8,1 dpa [124]
Dépend de la composition chimique du matériau, du type et des conditions d'irradiation				
Densité et taille	<ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : une densité entre 1,5 et 3×10^{20} m⁻³ et un diamètre moyen de 100 nm pour des irradiations à 300°C et à une fluence neutronique de $3,9 \times 10^{25}$ n/m² (8 dpa) [86], pour une fluence neutronique de $5,4 \times 10^{25}$ n/m² (10,5 dpa), la densité varie entre 3 et 6×10^{20} m⁻³ et le diamètre moyen est de 120 nm 	<p>Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p>Zircaloy-4 : l'évolution de la densité linéique et de la taille des boucles avec la dose d'irradiation est donnée dans [112], [120] pour des températures de 300 et 350°C</p>	<p>Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p>A 300°C</p> <ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : une densité linéique de $3,3 \times 10^{13}$ m⁻² et un diamètre de 25 à 40 nm à 7 dpa [125], [146] 	<p>A 350°C</p> <ul style="list-style-type: none"> Zircaloy-4 : densité de $1,3 \times 10^{14}$ m⁻² et un diamètre de 111 nm à 19 dpa [125], [146] M5® : une densité linéique de 2×10^{13} m⁻² et un

I.2. EFFETS DE L'IRRADIATION SUR LA MICROSTRUCTURE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

	<p>Des tronçons de tube guides en Zircaloy-4 recristallisé irradiés 5 cycles en REP (14 dpa et 320°C) montrent une densité linéique de boucles à composante $\langle c \rangle$ égale à $2,1 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ [113]</p> <p><i>Une densité de $9,2 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ a été obtenue lors des irradiations dans le réacteur Phénix à une dose de 13 dpa [117]</i></p> <ul style="list-style-type: none"> ○ M5[®] : une densité linéique égale à $3,14 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ et une taille moyenne de 130 nm après 5 cycles en REP ($17,1 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$, 25 dpa) [115] 		<ul style="list-style-type: none"> ○ M5[®] : une densité linéique de $2,8 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ et un diamètre moyen de 20 à 45 nm à 7 dpa [146] <p><i>Se référer à [125]–[127], [146] pour plus de valeurs de densité et de taille de boucles à composante $\langle c \rangle$</i></p>	<p>diamètre moyen de 71 nm et à 19 dpa [146]</p> <p><i>Se référer à [125], [146] pour plus de valeurs de densité et de taille moyenne de boucles à composante $\langle c \rangle$</i></p>
Dépend de la composition chimique du matériau, du type et des conditions d'irradiation				
Effet d'alliage	<p style="text-align: center;">Oui</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ sur la dose d'apparition des boucles [90], [110] ○ sur la densité et la taille des boucles [21], [22], [90], [115], [117] 	<p style="text-align: center;">Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p style="text-align: center;">Oui</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ sur la dose d'apparition des boucles [112], [119], [120] ○ sur la densité et la taille des boucles [112], [120] 	<p style="text-align: center;">Non</p> <p style="text-align: center;">[125]–[127], [146]</p>	<p style="text-align: center;">Oui</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ sur la dose d'apparition des boucles [125], [146] ○ densité plus faible dans le M5[®] par rapport à celle dans le Zircaloy-4 [125], [146]
Nucléation préférentielle au voisinage des précipités	<p style="text-align: center;">Oui [22], [90], [107], [108]</p>	<p style="text-align: center;">Pour les boucles de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$</p> <p style="text-align: center;">Oui [112], [120]</p>	<p style="text-align: center;">Non</p> <p style="text-align: center;">[125]–[127], [146]</p>	<p style="text-align: center;">Oui</p> <p style="text-align: center;">[125]</p>
Dépend de la composition chimique du matériau, du type et des conditions d'irradiation				

I.3 Déformation macroscopique des alliages de zirconium sous irradiation: constats expérimentaux et mécanismes

Après avoir décrit l'évolution de la microstructure du zirconium et de ses alliages sous irradiation, l'objectif de cette partie est de présenter les déformations induites sous flux et les mécanismes qui en sont responsables.

Les gaines et les tubes guides de l'assemblage combustible sont soumis à de forts flux neutroniques et à des sollicitations thermiques et mécaniques induisant des variations dimensionnelles. Les déformations macroscopiques, observées pour les alliages de zirconium, sont liées au fluage thermique et à deux phénomènes qui trouvent leur origine dans la présence d'une grande concentration de défauts ponctuels créés lors de l'irradiation : la **croissance sous irradiation** et le **fluage d'irradiation**. En l'absence de contrainte et sous l'action du flux, la déformation des alliages de zirconium fortement texturés résulte du phénomène de croissance libre. Sous l'effet combiné de la contrainte et du flux, la déformation est due au fluage d'irradiation.

I.3.1 Comportement en croissance sous irradiation

I.3.1.1 Analyse des constats expérimentaux

I.3.1.1.1 Croissance libre sous irradiation d'un monocristal de zirconium

En 1962, Buckley [105] fut le premier à reporter la croissance sous irradiation des monocristaux de zirconium. Celle-ci consiste en un allongement de la maille hexagonale dans le plan basal et une contraction suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$. Selon lui, cette déformation induite par l'irradiation des monocristaux à une faible fluence neutronique (3×10^{23} n/m²) est expliquée par l'agglomération des auto-interstitiels en boucles interstitielles dans les plans prismatiques et des lacunes en boucles lacunaires dans les plans de base. Les observations microscopiques réalisées dans le cadre du « Round-Robin » (§ I.2.3.1 et I.2.4.1) ne montrant pas de boucles lacunaires basales à faible fluence neutronique (jusqu'à 1×10^{25} n/m²) [80], cette interprétation fut rejetée par la communauté scientifique. Des expériences d'irradiation sur des monocristaux de zirconium furent par la suite menées jusqu'à une forte fluence neutronique [149]–[151]. Les monocristaux de zirconium recristallisés, purifiés par la méthode de Van Arkel (« iodure de zirconium ») ou de fusion de zone (« zone-refined zirconium ») montrent un comportement de croissance sous irradiation assez similaire (Figure I.3.1). Leur cinétique de croissance suivant la direction $\langle a \rangle$ se caractérise par une évolution en trois stades avec la dose d'irradiation (Figure I.3.1) :

- Un stade primaire, correspondant aux faibles doses jusqu'à environ une fluence neutronique de 1×10^{25} n/m², se caractérise par une augmentation rapide de la déformation de croissance ;
- Un stade secondaire au cours duquel un régime stationnaire s'établit après un fort ralentissement de la vitesse de croissance. A 280°C, la valeur de saturation de la déformation de croissance est d'environ 2×10^{-4} pour le zirconium Van Arkel ;
- Un stade tertiaire appelé stade d'accélération de croissance qui a lieu à fortes doses d'irradiation, à partir d'une valeur seuil de fluence neutronique de 3 à 4×10^{25} n/m² pour le monocristal purifié à l'iode. Cette accélération de croissance du zirconium monocristallin a été associée à l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le plan de base [107], [110], [114].

La décomposition de la cinétique de croissance en trois stades est moins nette suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$. Il est important également de noter que la déformation par croissance libre s'opère à volume constant [149]–[151].

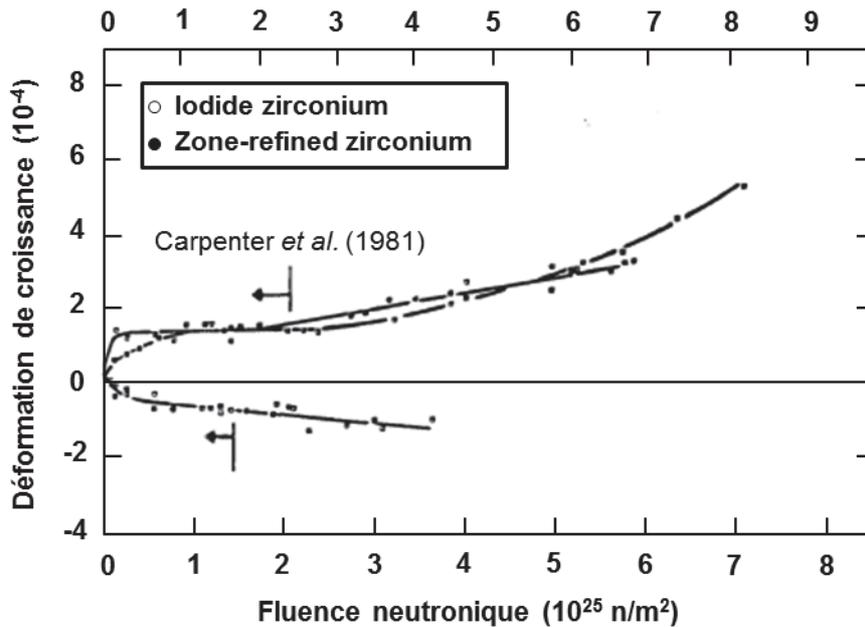


Figure I.3.1: Croissance sous irradiation du zirconium monocristallin à 280°C [150].

I.3.1.1.2 Croissance libre sous irradiation du zirconium polycristallin et de ses alliages

La croissance sous irradiation est un phénomène complexe qui dépend fortement des conditions d'irradiation et des caractéristiques du matériau (composition chimique, état métallurgique, texture, taille des grains, taux d'écroissage et densité initiale de dislocations). Dans une première étape, l'étude de la croissance des monocristaux a permis de s'affranchir de la plupart des paramètres relatifs au matériau et a constitué une base pour la compréhension de ce phénomène. La croissance sous irradiation des polycristaux de zirconium et de ses alliages a été par la suite examinée dans le but d'aboutir à une bonne caractérisation du comportement sous flux des tubes guides et des gaines.

L'étude de la croissance des polycristaux de zirconium a permis de mettre en évidence l'importance de la texture et de la taille des grains. Des polycristaux recristallisés de zirconium Van Arkel, présentant différentes textures cristallographiques définies par le facteur de Kearns f_l suivant la direction longitudinale, ont été irradiés dans le réacteur DIDO à 280°C et jusqu'à une fluence neutronique de $6 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ [151]. Comme le montre la Figure I.3.2, les éprouvettes faiblement texturées ($f_l = 0,3$) se déforment très peu. Celles avec une texture prononcée présentent, quant à elles, de forts taux de déformation. Les échantillons ayant un faible facteur de Kearns ($f_l = 0,16$) qui traduit une orientation préférentielle des grains avec leur axe cristallographique $\langle a \rangle$ suivant la direction longitudinale ont une croissance positive avec un taux d'allongement qui croît rapidement avec la fluence neutronique. En revanche, pour une texture avec des grains dont les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ sont orientés majoritairement suivant la direction longitudinale ($f_l = 0,4$), la croissance est négative. On note donc l'influence de la texture sur le comportement en croissance du zirconium polycristallin. Ce paramètre définit le signe de l'allongement du matériau suivant une direction d donnée (positif pour un faible facteur de Kearns f_d et négatif pour un facteur de Kearns f_d élevé) et influence l'amplitude de sa déformation de croissance. Dans les réacteurs CANDU, les tubes de force en alliages Zr-2,5%Nb présentent une texture transverse avec $f_{DT} = 0,6$, $f_{DR} = 0,3$ et $f_{DA} = 0,05$ [152]. Leur croissance sous irradiation se traduit par un allongement axial accompagné d'une réduction diamétrale ainsi qu'une augmentation de l'épaisseur. Les tubes guides et les gaines du REP ont une texture radiale (§ I.1.2.2.2). Sous flux, ces matériaux texturés s'allongent suivant la direction axiale [137], leur épaisseur diminue [153] mais la variation de leur diamètre est faible [154].

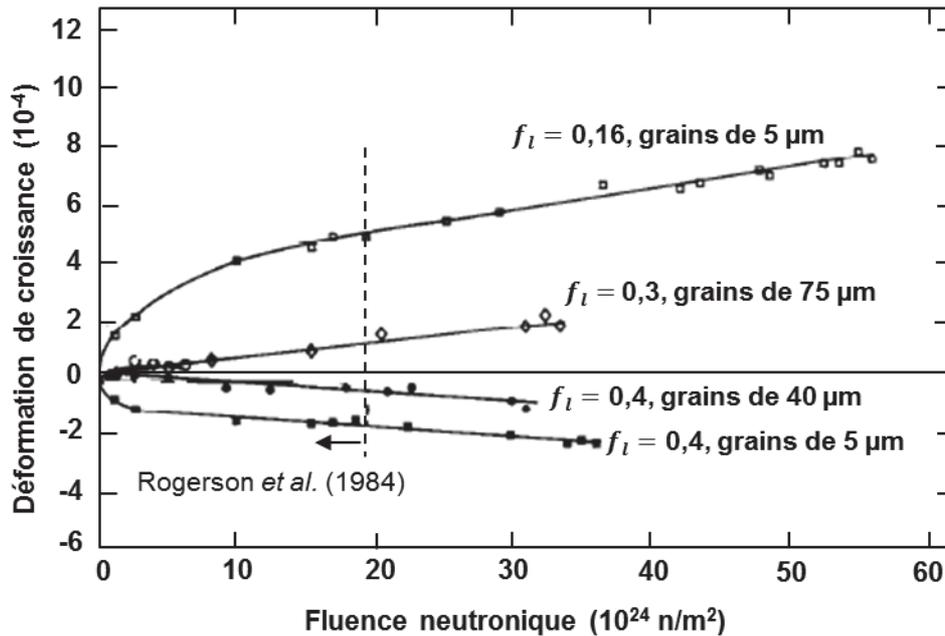


Figure I.3.2: Influence de la texture sur la croissance d'un zirconium polycristallin recristallisé irradié à 280°C [151].

La comparaison des monocristaux avec les polycristaux et les alliages de zirconium montre l'influence de la taille des grains sur leur comportement en croissance [90], [151], [153], [155]. La croissance du zirconium polycristallin est plus rapide que celle du monocristal et le taux de déformation augmente avec la diminution de la taille des grains (Figure I.3.3). Il a été noté que cet effet est plus important au premier stade transitoire de la croissance et semble augmenter avec la température d'irradiation [151]. Ces constats expérimentaux attestent du rôle important des joints de grains sur la déformation de croissance de ces matériaux. Par ailleurs, le zirconium polycristallin et ses alliages recristallisés présentent une cinétique de croissance en trois stades, similaire à celle décrite pour le monocristal de zirconium (§ I.3.1.1.1). A titre d'exemple, la Figure I.3.4 donne l'évolution caractéristique de la déformation axiale de croissance d'un tube de Zircaloy-4 recristallisé irradié aux neutrons à des températures de 277 à 307°C [156]. Après un premier stade de croissance rapide, la vitesse de déformation diminue pour atteindre le régime stationnaire. Puis, la déformation de croissance s'accélère à partir d'une valeur seuil de fluence neutronique de 4×10^{25} n/m².

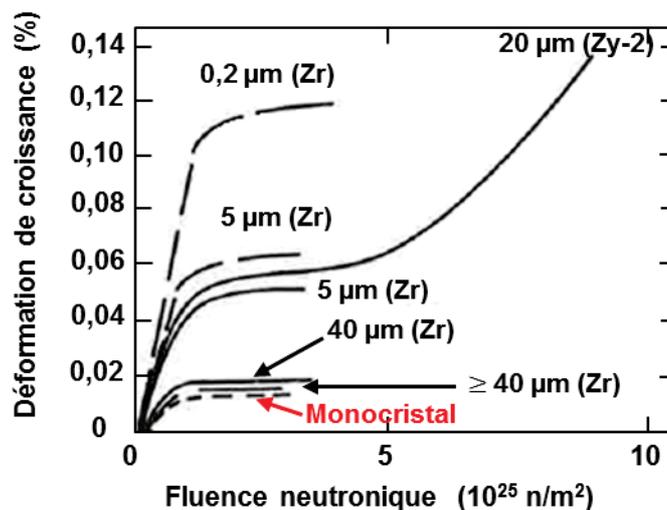


Figure I.3.3: Influence de la taille des grains sur la croissance d'un zirconium polycristallin recristallisé irradié aux neutrons à des températures de 277 à 307°C [90].

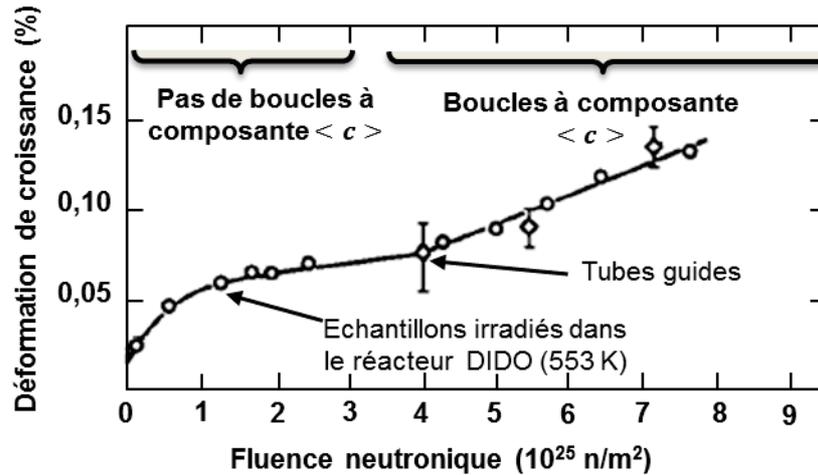


Figure I.3.4: Croissance du Zircaloy-4 recristallisé irradié aux neutrons à des températures de 277 à 307°C [156].

Les alliages écrouis et détendus présentent une cinétique de croissance en deux étapes, un premier stade transitoire suivi par un régime au cours duquel la déformation de croissance évolue de manière quasi-linéaire avec la dose d'irradiation. De plus, les déformations de croissance atteintes à des doses d'irradiation élevées sont beaucoup plus importantes que celles reportées dans les alliages recristallisés (Figure I.3.5). Le taux d'écrouissage et la densité initiale de dislocations apparaissent alors comme deux paramètres importants qui modifient à la fois la cinétique de la croissance et son amplitude.

Il a été montré qu'un taux d'écrouissage élevé augmente la vitesse de croissance sous irradiation de ces matériaux [151], [153], [156], [157]. Pour des taux très élevés (> 75%), le premier régime transitoire n'est plus observé et la déformation évolue linéairement avec la fluence d'irradiation. Ces déformations de croissance sont qualitativement proportionnelles à la densité initiale de dislocations introduites lors du traitement thermomécanique du matériau [153]. Comme on peut le noter sur la Figure I.3.5, l'effet du taux d'écrouissage s'amplifie avec la température.

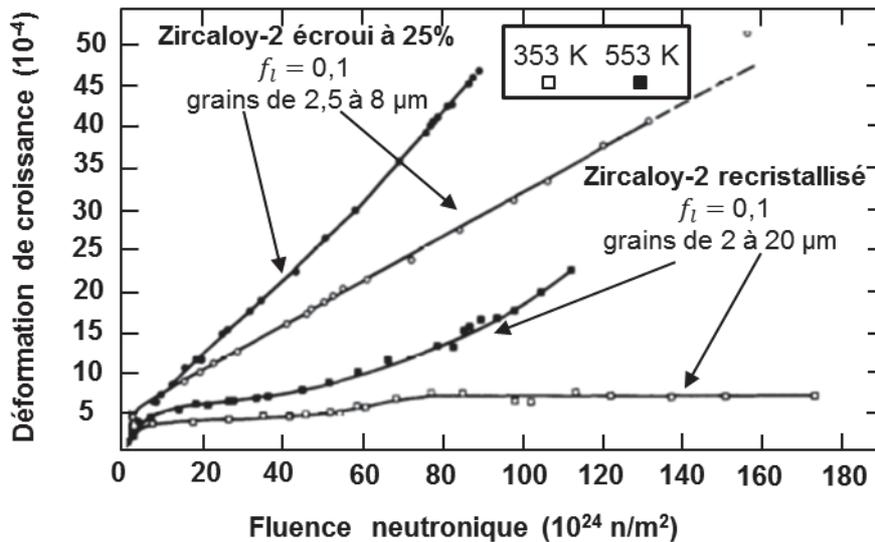


Figure I.3.5: Influence de l'écrouissage sur la croissance du Zircaloy-2 irradié aux neutrons à 8 et 280°C [151].

A ces différents paramètres matériau (état métallurgique, texture, taille des grains, taux d'écroissage et densité initiale de dislocations) s'ajoute l'influence de la composition chimique. A 280°C, la croissance d'un monocristal purifié par la méthode de Van arkel (« iodide zirconium ») s'accélère à partir d'une fluence neutronique de 3 à 4×10^{25} n/m² alors que l'accélération de croissance du monocristal de plus haute pureté « zone-refined zirconium » semble se produire à une fluence neutronique plus élevée (6×10^{25} n/m²) (Figure I.3.1). La teneur en éléments d'addition influence donc le comportement en accélération de croissance du matériau irradié (dose seuil marquant le début du stade d'accélération de croissance et l'amplitude des déformations atteintes) [142], [149]–[151], [158]. Cet effet peut être associé à l'influence de la présence des éléments chimiques en solution solide ou sous forme de précipités intermétalliques sur la microstructure du matériau et notamment sur la formation et la croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et à composante $\langle c \rangle$ (§ I.2.3.2.3 et I.2.4.3.2).

Le comportement en croissance des alliages de zirconium dépend aussi des conditions d'irradiation et notamment de la température. Trois régimes de température peuvent être distingués [158] :

- **Basses températures (80°C < T < 277°C)** : La croissance des alliages recristallisés sature rapidement [151], [156], [158]. Le régime d'accélération de croissance n'est pas observé à forte fluence d'irradiation (jusqu'à 2×10^{26} n/m²). Ceci suggère que les boucles à composante $\langle c \rangle$ ne se forment pas à ces basses températures ;
- **Températures intermédiaires (277°C < T < 307°C)** : La dépendance en température des deux premiers stades de croissance est assez faible. En revanche, le régime d'accélération de croissance est très sensible à la température [142], [156], [158], [159]. Une élévation de la température diminue la dose critique d'apparition du régime d'accélération de croissance et augmente considérablement l'amplitude des déformations associées. L'effet de la température est donc double avec une influence à la fois sur la dose seuil du début de l'accélération de croissance et sur le taux de déformation final. Pour les alliages écrouis et détendus, la vitesse de déformation de croissance augmente très rapidement avec la température [158] ;
- **Températures élevées (360°C < T < 437°C)** : Pour ce domaine de température, les alliages recristallisés et détendus présentent des déformations de croissance élevées [153], [158].

I.3.1.2 Modèles de prédiction de la croissance sous irradiation

A la lumière de ces constats expérimentaux, des mécanismes ont été proposés pour expliquer le phénomène de croissance sous irradiation du zirconium et de ses alliages. La prise en compte de ces mécanismes à travers des modèles de prédiction de la déformation sous flux de ces matériaux a permis de reproduire certains résultats caractéristiques de la croissance libre.

Le premier modèle de croissance sous irradiation du zirconium a été proposé par Buckley [105] au début des années soixante. En s'inspirant de ses travaux sur la croissance de l'uranium, il propose un mécanisme selon lequel les auto-interstitiels s'agglomèrent pour former des boucles interstitielles dans les plans prismatiques de la maille hexagonale compacte du zirconium alors que les lacunes s'organisent en boucles lacunaires dans le plan basal (§ I.2.4.1 et I.3.1.1.1). La déformation des monocristaux de zirconium qui se traduit par un allongement suivant la direction $\langle a \rangle$ et un raccourcissement suivant l'axe $\langle c \rangle$ serait le résultat d'un transfert d'atomes des plans de base vers les plans prismatiques par le biais des défauts ponctuels créés sous irradiation. Les observations réalisées dans le cadre du « Round-Robin » ne montrant pas la présence de boucles de dislocation dans les plans basaux [80], ce modèle a été écarté. Par ailleurs, la coexistence des boucles prismatiques de caractère interstitiel et lacunaire (§ I.2.3.1) rend ce modèle non valide.

Kelly [160] a suggéré un autre mécanisme selon lequel une migration anisotrope des défauts ponctuels vers les joints de grains serait à l'origine de la déformation induite par la croissance sous irradiation. Il explique cette anisotropie par la présence de contraintes internes induites par la

dilatation thermique anisotrope des grains. Ce mécanisme a été réfuté en raison de son incapacité de rendre compte des déformations mesurées expérimentalement.

Ces premiers modèles, peu prometteurs, ont été proposés avant la connaissance précise de l'évolution de la microstructure du zirconium et de ses alliages sous irradiation. Au fur et à mesure que les observations et les caractérisations microstructurales de ces matériaux progressaient, plusieurs travaux se sont focalisés sur une meilleure compréhension des mécanismes régissant le phénomène de croissance sous irradiation. Parmi ces modèles, on cite le modèle basé sur la différence d'interaction élastique des défauts ponctuels avec les dislocations et celui qui s'appuie sur la différence d'anisotropie de diffusion des SIAs et des lacunes.

1.3.1.2.1 Modèle basé sur la Différence d'Interaction Élastique (EID)

Carpenter et Northwood [87] ont proposé un mécanisme qui porte sur la Différence d'Interaction Élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les dislocations. Dans le zirconium, les auto-interstitiels, de volume de relaxation plus élevé que celui des lacunes (en valeur absolue), interagissent plus avec les dislocations. Il en résulte une élimination différentielle des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure, les SIAs s'annihilant sur les dislocations rectilignes $\langle a \rangle$ et les lacunes sur les puits neutres (comme les joints de grains). La montée des dislocations de type $\langle a \rangle$ par absorption d'un flux net de SIAs conduit à un allongement des grains suivant les directions $\langle a \rangle$. Le flux net des lacunes sur les joints entraîne la contraction des grains suivant l'axe $\langle c \rangle$.

Ce premier modèle a été par la suite modifié par plusieurs auteurs dans le but de prendre en compte les nouvelles observations microstructurales. Ces modifications sont recensées dans la revue de Holt [161]. Cependant, il est important de souligner que ces modèles basés sur la différence d'interaction élastique ne peuvent pas expliquer tous les résultats expérimentaux, notamment :

- la coexistence des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires mise en évidence lors des irradiations aux neutrons et aux électrons (§ 1.2.3.1). Les deux types de boucles ont des tailles voisines. Or du fait de l'interaction préférentielle des dislocations avec les auto-interstitiels, une boucle de dislocation interstitielle croît alors qu'une boucle lacunaire rétrécit ;
- les zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles observées au voisinage des joints de grains prismatiques, perpendiculaires aux directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (§ 1.2.3.2.4). Ce constat expérimental suggère l'existence d'un biais qui dépend de l'orientation cristallographique des joints de grains ;
- la présence des dislocations $\langle c + a \rangle$ principalement dans les matériaux écrouis. Ces dislocations ont un vecteur de Burgers plus élevé que celui des dislocations $\langle a \rangle$ (§ Tableau I.1.3). En considérant le modèle EID qui fait intervenir l'effet de la taille des défauts ponctuels dans leur énergie d'interaction avec les dislocations [162], les dislocations $\langle c + a \rangle$ présentent un biais pour les auto-interstitiels plus important que celui des dislocations de vecteur de Burgers $\langle a \rangle$. Par conséquent, la prise en compte de la présence de ces dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le modèle EID peut conduire à une croissance positive suivant les directions $\langle c \rangle$, résultat qui vient contredire les observations expérimentales (Figure I.3.5) ;
- la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ responsables du phénomène d'accélération de croissance (§ 1.2.4). Ces boucles sont exclusivement lacunaires, leur croissance ne peut donc être justifiée par une telle approche élastique.

1.3.1.2.2 Modèle basé sur la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD)

La diffusion des défauts ponctuels dans la maille hexagonale compacte a fait l'objet de plusieurs études. Les principaux résultats de ces études ont été synthétisés dans la partie I.2.2. Une discussion a également portée sur le caractère isotrope ou anisotrope de la diffusion des auto-interstitiels et des

lacunes dans le zirconium (§ 1.2.2). Nous considérons ici le modèle DAD basé sur la différence d'anisotropie de diffusion entre les auto-interstitiels qui migrent plus facilement dans le plan basal que suivant la direction $\langle c \rangle$ et les lacunes qui migrent de manière isotrope.

De cette différence d'anisotropie de diffusion entre les auto-interstitiels et les lacunes résulte une différence de leur taux d'absorption par les puits de la microstructure. Ce modèle, principalement développé par Woo [88], [101], introduit un biais supplémentaire qui ne dépend plus du volume de relaxation des défauts ponctuels comme le suggère le modèle basé sur l'EID (§ 1.3.1.2.1) mais de la différence d'anisotropie de diffusion des SIAs et des lacunes. Des calculs ont montré que ce biais peut être prépondérant par rapport à celui induit par la Différence d'Interaction Élastique [102]. Ainsi, dans le modèle de la DAD, les joints de grains ne constituent plus des puits neutres (hypothèse du modèle EID proposé par Carpenter et Northwood [87]) mais leur efficacité de piégeage des défauts ponctuels dépend de leur orientation cristallographique. Les joints de grains prismatiques (perpendiculaires aux directions $\langle a \rangle$) sont des puits préférentiels pour les auto-interstitiels alors que les joints de grains basaux (perpendiculaires à la direction $\langle c \rangle$) sont biaisés en faveur des lacunes. Ce modèle est en mesure d'expliquer l'apparition de zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles au voisinage des joints de grains prismatiques (§ 1.2.3.2.4). Les surfaces également se présentent comme des puits préférentiels pour les SIAs ou les lacunes en fonction de leur orientation cristallographique. Les boucles basales, quant à elles, constituent des puits préférentiels de lacunes. Ce mécanisme apporte donc un élément de réponse à la question de la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Ce mécanisme basé sur la DAD a permis de rendre compte du comportement en croissance sous flux des alliages de zirconium recristallisés. La densité initiale de dislocations dans ces matériaux est faible. Ainsi, au début de l'irradiation, les joints de grains constituent les puits dominants du milieu. En raison de la migration plus rapide des auto-interstitiels dans le plan de base que suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$, leur élimination se fait principalement sur les joints de grains prismatiques. Il subsiste un flux net de lacunes qui migrent de manière isotrope vers les joints de grains basaux. De là résulte une déformation rapide du monocristal de zirconium avec un allongement dans le plan basal et une contraction suivant l'axe $\langle c \rangle$. L'élimination différentielle des défauts ponctuels sur les joints de grains serait donc à l'origine du premier stade de croissance (Figure 1.3.6 (a)). Ce mécanisme permet aussi d'expliquer la sensibilité de la déformation initiale de croissance du zirconium polycristallin à la taille des grains (§ 1.3.1.1.2).

Au fur et à mesure de l'irradiation, la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ augmente. Le calcul des biais induits par la DAD a montré que les dislocations rectilignes de type $\langle a \rangle$ sont biaisées en faveur des auto-interstitiels alors que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sont relativement neutres. Ces dernières reçoivent donc un flux net de SIAs ou de lacunes selon leur environnement, ce qui explique la coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires. L'élimination préférentielle des SIAs sur les dislocations $\langle a \rangle$ et sur les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et des lacunes sur les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires conduit à une faible déformation du cristal. La vitesse de croissance diminue donnant lieu au régime stationnaire, deuxième stade de croissance (Figure 1.3.6 (b)). Enfin, à une fluence neutronique élevée, les boucles à composante $\langle c \rangle$ se forment. Selon la DAD, les lacunes s'éliminent préférentiellement sur ces boucles basales, conduisant à leur croissance. Les lacunes s'éliminent aussi sur les joints de grains basaux alors que les auto-interstitiels sont annihilés principalement par les dislocations de type $\langle a \rangle$ et les joints de grains prismatiques. Cette nouvelle répartition des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure explique une augmentation de la vitesse de croissance (Figure 1.3.6 (c)). Le phénomène d'accélération a été corrélé à la formation et l'évolution des boucles à composante $\langle c \rangle$ [107], [110], [114].

La cinétique de croissance des alliages de zirconium écrouis et détendus peut également être décrite par le modèle de la DAD. Ces matériaux sont caractérisés par une forte densité de dislocations qui constituent les puits dominants du milieu. L'élimination des lacunes se fait principalement sur les dislocations de type $\langle c + a \rangle$ (Figure 1.3.6 (d)). Les auto-interstitiels sont annihilés par les dislocations de type $\langle a \rangle$. Cette absorption préférentielle des défauts ponctuels conduit à une

montée des dislocations. La cinétique de croissance est très rapide et les taux de déformation sont plus élevés que ceux des alliages recristallisés.

De par sa capacité à reproduire plusieurs observations expérimentales, le modèle de la DAD est considéré jusqu'à présent comme le modèle le plus pertinent pour décrire le comportement en croissance sous flux des alliages de zirconium.

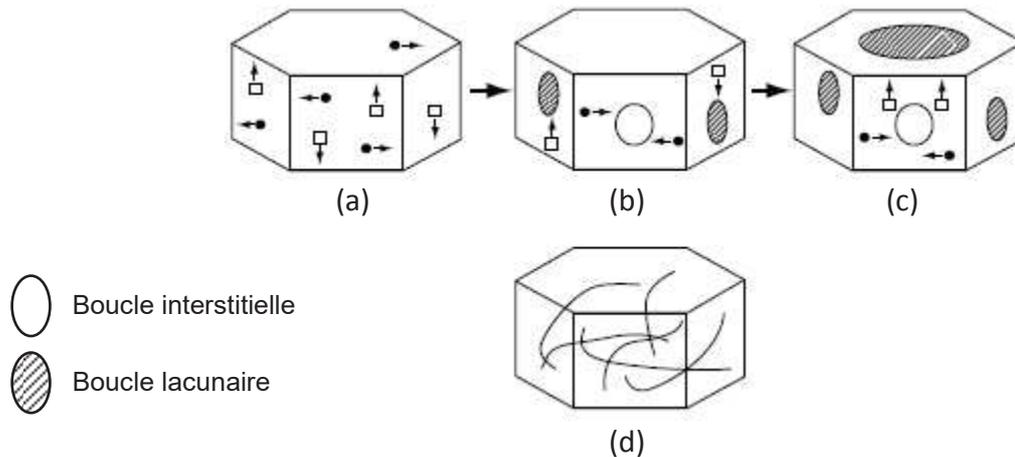


Figure I.3.6: Les trois stades de croissance sous flux des alliages de zirconium recristallisés (a-c) et des alliages écrouis (d) [47].

I.3.2 Comportement en fluage d'irradiation

En fonctionnement normal en réacteur, sous l'action combinée de la contrainte et du flux, la déformation est également liée au phénomène du fluage d'irradiation. Il convient de différencier ce phénomène du fluage d'irradiation du phénomène de fluage sous irradiation au sens large qui intègre à la fois la composante thermiquement activée du fluage (fluage thermique) et celle induite par la présence d'une contrainte sous flux (fluage d'irradiation).

Ce phénomène du fluage d'irradiation a fait l'objet de plusieurs études. Les retours d'expériences de réacteurs et les expériences réalisées dans des réacteurs expérimentaux ont permis de tirer des conclusions quant à l'effet des conditions d'irradiation et de certains paramètres matériau.

I.3.2.1 Analyse des constats expérimentaux

D'un point de vue expérimental, il est difficile de séparer la partie thermiquement activée du fluage de celle induite par la présence de la contrainte sous flux. Néanmoins, bien souvent, les deux mécanismes de déformation sont définis suivant le domaine de température et de contrainte considéré : le fluage thermique prédomine à haute température et pour des niveaux de contrainte élevés alors que le fluage d'irradiation s'impose à faible température et pour de faibles niveaux de contrainte.

Comme pour la croissance, la cinétique du **fluage sous irradiation** des alliages de zirconium peut se décomposer en plusieurs stades [154]. Au cours du premier stade, la vitesse de déformation diminue progressivement avec la fluence neutronique jusqu'à atteindre un régime stationnaire. Cette diminution est attribuée au durcissement du fluage thermique par les boucles de dislocation présentes dans la microstructure [156]. Puis, la vitesse de fluage s'accélère par la montée des dislocations (§ 1.3.2.2). La cinétique et l'amplitude du fluage dépend des conditions d'irradiation et des paramètres du matériau. La suite de cette partie porte sur une synthèse non exhaustive de l'influence de ces facteurs sur le comportement en **fluage d'irradiation** des alliages de zirconium.

Les expériences montrent un effet marqué de la contrainte et du flux sur les taux de déformation de fluage d'irradiation [156]. La dépendance de la vitesse de déformation à ces deux paramètres est généralement traduite par une loi de puissance. L'effet de la température étant décrit par la loi d'Arrhenius, la vitesse de déformation de **fluage d'irradiation** $\dot{\epsilon}$ peut s'écrire comme suit avec σ la contrainte, T_{act} la température d'activation et K un coefficient de proportionnalité :

$$\dot{\epsilon} = K \sigma^n \phi^p \exp\left(-\frac{T_{act}}{T}\right) \quad \text{Eq. I.3.1}$$

Plusieurs auteurs s'accordent à attribuer des valeurs allant de 0,25 à 1 pour l'exposant p [156]. Une dépendance quasi-linéaire au flux neutronique a été communément trouvée pour les tubes de force des réacteurs CANDU [152]. Dans le domaine de faibles contraintes ($\sigma < \sigma_e/2$, avec σ_e la limite d'élasticité), l'exposant n est égal à 1 [156]. Sa valeur augmente avec le niveau de la contrainte et la température. Pour l'alliage Zr-2,5%Nb écroui, l'exposant n varie entre 2 et 3 pour des contraintes de 200 à 400 MPa et augmente rapidement, atteignant la valeur de 100 pour une contrainte de 600 MPa.

L'effet de la température sur la vitesse de déformation de fluage des alliages de zirconium se traduit par deux régimes de basse et de haute température d'activation. En dessous de 570 K, la température d'activation varie entre 2000 et 5000 K. L'effet de la température d'irradiation sur la vitesse de fluage est alors faible. A des températures plus élevées, la température d'activation augmente rapidement et atteint des valeurs (25000 et 30000 K) de l'ordre de celles obtenues en fluage thermique sur matériau non irradié [156]. Par conséquent, en connaissant la température de transition entre les deux régimes, il est possible de déterminer qualitativement la frontière entre le domaine des faibles températures d'irradiation pour lequel le mécanisme de fluage d'irradiation est activé et celui des températures élevées où le fluage thermique est prépondérant. De plus, cette température de transition dépend de la composition chimique du matériau et de son état métallurgique. Elle est plus élevée pour un alliage de zirconium que pour le zirconium pur et décroît lorsque la densité de dislocations augmente.

Un effet de la texture sur la vitesse de fluage a été observé par plusieurs auteurs [152], [156], [163]. Il a été suggéré d'introduire un facteur d'anisotropie dans la loi en puissance (Eq. I.3.1) pour prendre en compte cet effet. Par ailleurs, des essais de relaxation réalisés sur des échantillons de Zircaloy-2 et de Zr-2,5%Nb irradiés à 295°C avec un flux neutronique de 2×10^{17} n/m²/s ont mis en évidence un rôle mineur de la taille des grains sur les vitesses de déformation de fluage, ceci pour une gamme de taille allant de 1 à 70 μm [164]. Cependant, des travaux récents de Walters *et al.* [163] ont montré un effet de la forme des grains sur la déformation diamétrale des tubes de force en Zr-2,5%Nb.

Par ailleurs, un alliage recristallisé a une vitesse de fluage plus faible que l'alliage détendu [154].

Le zirconium pur résiste peu au fluage. L'ajout d'éléments chimiques comme l'étain, l'oxygène et le soufre améliore considérablement la résistance de l'alliage au fluage thermique et dans certains cas au fluage d'irradiation [156], [165]. La résistance au fluage est plus marquée pour les éléments se trouvant en solution solide que pour ceux de faible limite de solubilité et participant à la formation de précipités. Il a été montré que l'ajout de seulement 10 ppm de soufre dans l'alliage M5[®] réduit d'un facteur trois la vitesse du fluage thermique. Sous irradiation, l'effet est moins marqué mais reste significatif (facteur 1,5) [154].

I.3.2.2 Mécanismes du fluage d'irradiation

Le premier modèle de fluage s'est basé sur un simple mécanisme de diffusion des lacunes. Ce modèle a été considéré tout d'abord pour le fluage thermique puis a été étendu au fluage d'irradiation en considérant l'augmentation de la concentration des lacunes [166]. Or, une concentration plus élevée de lacunes ne conduit pas forcément à une déformation plus importante en fluage. Les lacunes peuvent se recombinaison avec les auto-interstitiels ou s'éliminer sur les puits, auxquels cas aucune déformation n'est générée. Ce premier modèle s'est avéré donc erroné. D'autres modèles ont été par

la suite proposés et peuvent être classés en deux types : les modèles de type SIPA et SIPN qui attribuent la déformation de fluage d'irradiation à l'élimination différentielle des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure et ceux qui se basent sur le glissement des dislocations favorisé par la montée assistée par l'absorption des défauts ponctuels. Ces différents modèles sont détaillés dans l'article de synthèse de Matthews et Finnis [166]. Dans cette partie, nous nous focaliserons sur les deux mécanismes les plus communément proposés dans la littérature, à savoir le mécanisme SIPA et le mécanisme SIPN.

1.3.2.2.1 Mécanisme Stress Induced Preferential Absorption (SIPA)

Le mécanisme d'absorption préférentielle des défauts ponctuels induite par la contrainte (SIPA) a été proposé par Heald et Speight [167], [168] et Wolfer et Ashkin [162], [169], [170] et développé par ces auteurs et par Bullough [171], [172].

Comme détaillé dans la partie 1.3.1.2.1, il existe une différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les dislocations. Ces dernières interagissent préférentiellement avec les auto-interstitiels. Il en résulte un biais d'interaction des défauts ponctuels avec les dislocations. Selon le mécanisme SIPA, en présence d'une contrainte interne ou externe, ce biais est modifié suivant l'orientation relative du vecteur de Burgers des dislocations par rapport à la direction de la contrainte. Des auteurs [88], [173] ont suggéré un effet de la contrainte sur l'anisotropie de diffusion des défauts ponctuels, donnant lieu à un phénomène appelé élasto-diffusion à l'origine du modèle Stress Induced Preferential Absorption-Anisotropic Diffusion (SIPA-AD). Dans cette étude, nous nous intéresserons uniquement au mécanisme SIPA.

Ce modèle considère les défauts ponctuels comme des inclusions sphériques de propriétés élastiques différentes de celles de la matrice. Leur énergie d'interaction avec un champ local de contrainte est la somme de deux contributions, une énergie d'interaction E_1 qui fait intervenir l'effet de taille responsable de l'EID au premier ordre et une énergie E_2 qui traduit l'interaction inhomogène entre l'inclusion et la matrice de propriétés élastiques différentes (interaction diaélastique). Wolfer et Ashkin [162], [169], [170] définissent ces énergies pour un matériau isotrope comme suit :

$$E_1 = -vK\varepsilon_{ii} \quad \text{Eq. I.3.2}$$

$$E_2 = -\frac{1}{2}\alpha^K\varepsilon_{ii}\varepsilon_{jj} - \alpha^G\varepsilon_{ij}^D\varepsilon_{ij}^D \quad \text{Eq. I.3.3}$$

avec v le volume de relaxation du défaut ponctuel, K le module de compressibilité de la matrice, α^K et α^G les polarisabilités de compressibilité et de cisaillement des défauts ponctuels, ε_{ii} la trace du tenseur des déformations élastiques $\underline{\underline{\varepsilon}}$ et ε_{ij}^D sa partie déviatorique ($\varepsilon_{ij}^D = \varepsilon_{ij} - \frac{1}{3}\delta_{ij}\varepsilon_{kk}$ avec δ_{ij} le coefficient de Kronecker). Le tenseur des déformations globales $\underline{\underline{\varepsilon}}$ inclut les déformations dues à la dislocation et celles induites par la présence d'un champ de contrainte externe.

Le flux des défauts ponctuels autour d'un puits donné est déterminé par les gradients de concentration mais aussi par le gradient d'énergie d'interaction de ces défauts avec le champ de contrainte local. Ainsi, il est possible d'écrire ce flux comme suit [162], [170] :

$$\underline{J} = -\nabla(DC) - \frac{DC}{kT}\nabla E \quad \text{Eq. I.3.4}$$

Avec C la concentration du défaut ponctuel, D son coefficient de diffusion, E l'énergie d'interaction du défaut ponctuel avec le champ de contrainte local ($E = E_1 + E_2$), k la constante de Boltzmann et T la température. Le flux est obtenu par la résolution de l'équation de diffusion en régime stationnaire. Wolfer [174] a utilisé une méthode des perturbations pour donner des expressions approchées de ce

flux. Ainsi, le flux s'exprime comme la somme de plusieurs termes et fait intervenir le facteur Z d'efficacité d'interaction élastique du défaut ponctuel avec le puits étudié :

$$\underline{J} = \underline{J}_0 + \underline{J}_1 + \underline{J}_2 + \dots = \underline{J}_0 Z \quad \text{Eq. I.3.5}$$

En prenant comme puits une dislocation droite coin, un développement au troisième ordre donne [174] :

$$Z = Z_0 + Z(\sigma^H) + Z(\sigma^D) \quad \text{Eq. I.3.6}$$

Z_0 est le facteur d'efficacité d'interaction induit par l'EID en l'absence de contrainte, $Z(\sigma^H)$ est le terme qui dépend de la contrainte hydrostatique σ^H ($\sigma^H = \frac{1}{3}(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})$) et $Z(\sigma^D)$ dépend de la partie déviatorique du tenseur de contrainte extérieure. Comme la contribution de la partie hydrostatique au facteur Z est indépendante du vecteur de Burgers et de son orientation, le terme $Z(\sigma^H)$ n'aura aucune influence sur le fluage d'irradiation. La modification de l'absorption préférentielle des défauts ponctuels par une dislocation, en fonction de l'orientation du vecteur de Burgers par rapport à la direction de la contrainte, est donnée par le terme $Z(\sigma^D)$ dépendant de la partie déviatorique du tenseur de contrainte. Selon Wolfer [174], ce terme s'exprime comme suit :

$$Z(\sigma^D) = A v [2b_i b_j - (1 - 4\nu)l_i l_j] \sigma_{ij}^D \quad \text{Eq. I.3.7}$$

$$A = \frac{1}{3} \frac{\left(\frac{b}{4a}\right)^2}{\ln(d/a)} \frac{(1 + \nu)\alpha^G}{[2\pi(1 - \nu)kT]^2} \quad \text{Eq. I.3.8}$$

avec b la norme du vecteur de Burgers de la dislocation, $2d$ la distance moyenne entre les dislocations, a le rayon de cœur de la dislocation, ν le coefficient Poisson de la matrice, α^G la polarisabilité en cisaillement du défaut ponctuel, b_i, b_j les vecteurs unitaires parallèles au vecteur de Burgers de la dislocation, l_i, l_j les vecteurs unitaires parallèles au vecteur ligne de la dislocation et σ_{ij}^D la partie déviatorique du tenseur de contrainte extérieure. Les polarisabilités α^G des SIAs et des lacunes étant positives [175], le terme A est positif et le signe de $Z(\sigma^D)$ est donné par le signe de $(v[2b_i b_j - (1 - 4\nu)l_i l_j] \sigma_{ij}^D)$. Dans un repère orthonormé $(\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$, considérons comme exemple un tenseur de contrainte de traction suivant \vec{e}_3 , une dislocation coin de vecteur de Burgers $b\vec{e}_3$ et de vecteur ligne \vec{e}_1 . L'équation Eq. I.3.7 donne :

$$Z(\sigma^D) = A v \sigma \left(\frac{4}{3} + \frac{1}{3}(1 - 4\nu) \right) \quad \text{Eq. I.3.9}$$

Comme le volume de relaxation v des auto-interstitiels est positif, le terme $Z(\sigma^D)$ relatif aux SIAs l'est aussi. Une contrainte appliquée parallèlement au vecteur de Burgers d'une dislocation augmente donc l'efficacité de capture des auto-interstitiels par cette dislocation. Si on considère une contrainte appliquée suivant \vec{e}_1 , dans ce cas où le vecteur de Burgers de la dislocation est perpendiculaire à la direction de la contrainte, l'efficacité de capture des auto-interstitiels est diminuée avec $Z(\sigma^D)$ qui s'écrit :

$$Z(\sigma^D) = -A v \sigma \left(\frac{2}{3} + \frac{2}{3}(1 - 4\nu) \right) \quad \text{Eq. I.3.10}$$

En conclusion, une dislocation ayant un vecteur de Burgers parallèle à la direction de la contrainte reçoit un flux net d'auto-interstitiels plus important qu'une dislocation de vecteur de Burgers

I.3. DEFORMATION MACROSCOPIQUE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM SOUS IRRADIATION: CONSTATS EXPERIMENTAUX ET MECANISMES

perpendiculaire à la direction d'application de la contrainte. Cette différence d'absorption d'auto-interstitiels par les dislocations coins conduit au phénomène de montée différentielle de dislocations qui est responsable de la déformation de fluage à volume constant.

Une schématisation de ce mécanisme est illustrée dans la Figure I.3.7. Une dislocation absorbe un flux net de SIAs qui est plus ou moins élevé suivant l'orientation de son vecteur de Burgers par rapport à la contrainte appliquée.

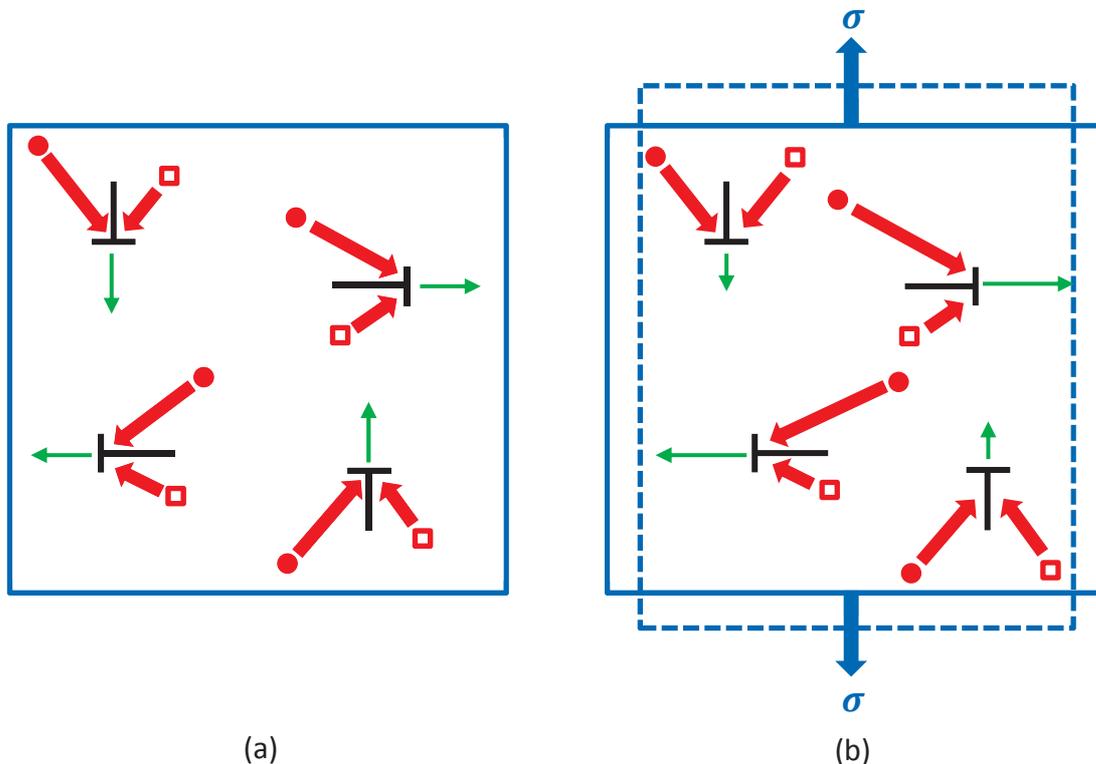
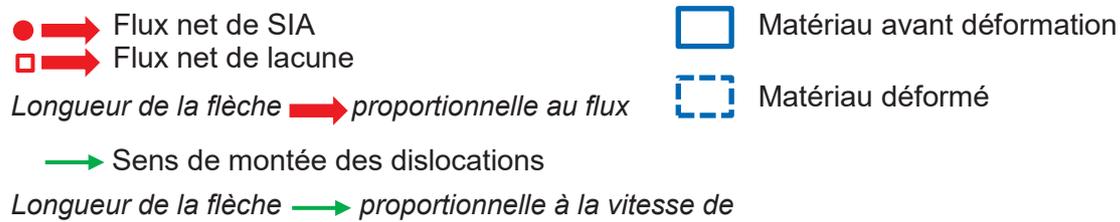


Figure I.3.7: Schématisation du principe de la montée différentielle des dislocations par le mécanisme SIPA – (a) cas non contraint et (b) cas contraint : augmentation du flux net des SIAs et de la vitesse de montée pour une dislocation de vecteur de Burgers parallèle à la direction de la contrainte et diminution du flux net des SIAs et de la vitesse de montée pour une dislocation de vecteur de Burgers perpendiculaire à la direction de contrainte.

Ce mécanisme de montée différentielle des dislocations assistée par la création de défauts ponctuels lors de l'irradiation conduit à une vitesse de fluage proportionnelle à la contrainte appliquée et au taux de création de défauts ponctuels [166], [176]. Il permet donc de rendre compte de l'effet du flux et de la contrainte sur le comportement en fluage des métaux (Eq. I.2.3). Cependant, le mécanisme SIPA ne peut être activé qu'en présence d'un réseau de dislocations coins dans le matériau. Or, un alliage de zirconium recristallisé est caractérisé par une faible densité initiale de dislocations, ce qui suggère que le fluage d'irradiation est contrôlé par l'élimination des défauts ponctuels sur un autre puits de la microstructure. Il est possible d'envisager un effet de la contrainte sur l'efficacité d'interaction élastique des défauts ponctuels avec les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Une contrainte appliquée perpendiculairement aux plans prismatiques favoriserait la croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et inversement, les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires croîtraient plus facilement dans les plans prismatiques de

normale perpendiculaire à la direction de la contrainte appliquée. Lors des irradiations aux protons de 3,5 MeV à une température de 250°C sur du zirconium recristallisé, Faulkner et McElroy [177] ont montré que le diamètre moyen des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ évolue avec la contrainte appliquée. D'après ces expériences, le fluage d'irradiation serait régi par le mécanisme SIPA appliqué aux boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Comme la densité de ces boucles sature rapidement (§ 1.2.3.2.2), le mécanisme SIPA ne peut expliquer la déformation de fluage d'irradiation qu'à faibles doses d'irradiation. En outre, la coalescence des boucles $\langle a \rangle$ à haute température peut générer un réseau de dislocations qui serait lui susceptible d'activer le mécanisme SIPA.

1.3.2.2 Mécanisme Stress Induced Preferential Nucleation (SIPN)

Le mécanisme SIPN a été introduit pour la première fois par Hesketh [178] lors de son étude portant sur le fluage d'irradiation de l'uranium. Ce mécanisme se base sur l'effet de la contrainte sur la germination des amas de défauts ponctuels. La contrainte favorise la nucléation des boucles interstitielles dans les plans de normale parallèle à sa direction d'application. Inversement, la probabilité de formation des boucles lacunaires est plus importante dans les plans de normale perpendiculaire à la direction de la contrainte. Ainsi ce mécanisme introduit une anisotropie de germination des boucles de dislocation déterminée à partir de leur énergie d'interaction, dès les premiers stades de formation, avec le champ de contrainte.

Un nombre plus important de boucles de dislocation interstitielles se trouvant dans les plans perpendiculaires à la contrainte et des boucles lacunaires se formant dans les plans parallèles à la contrainte induit un allongement du monocristal dans la direction de la contrainte. La déformation de fluage résulte donc de la germination préférentielle et assistée par la contrainte des boucles de dislocation. Plusieurs auteurs [179]–[182] ont fait référence à ce mécanisme pour expliquer le fluage d'irradiation dans les aciers austénitiques.

Notons que ce mécanisme suggère qu'une fois que le germe de défauts ponctuels a choisi son orientation préférentielle, la boucle de dislocation se forme et le taux de déformation induit n'est plus contrôlé par la contrainte appliquée mais uniquement par le flux. La déformation dépendra donc de la contrainte qu'aux tout premiers instants de l'irradiation et le phénomène de fluage pourrait se poursuivre même si la contrainte est retirée. Ceci a été constaté expérimentalement où il apparaît que le mécanisme SIPN ne semble intervenir que dans les matériaux recuits et à faibles doses [183]. De ce point de vue, ce modèle ne semble pas être pertinent pour expliquer le comportement en fluage des métaux.

1.3.2.3 Autres mécanismes

Les mécanismes SIPA et SIPN postulent que la déformation de fluage est induite par la montée des dislocations. Pour le second type de modèles proposés, la montée des dislocations n'est plus la cause directe du fluage d'irradiation mais elle permet aux dislocations de contourner plus facilement les obstacles et de glisser. C'est le glissement de ces dislocations « libérées » qui génère une déformation [166], [174], [176] et contrôle son amplitude. Toutefois, la vitesse de fluage dépend du mécanisme le plus lent c'est-à-dire la montée assistée par l'absorption préférentielle des défauts ponctuels.

Plusieurs modèles basés sur ce mécanisme de glissement contrôlé par la montée des dislocations ont été développés. Ces modèles, regroupés sous le nom de SICG (Stress Induced Climb and Glide), sont recensés dans l'article de synthèse de Matthews et Finnis [166].

I.3.3 Conclusions

Cette partie bibliographique a permis de faire un point sur les principales observations expérimentales portant sur le comportement en fluage et en croissance sous irradiation des alliages de zirconium ainsi que sur les mécanismes de déformation associés à ces deux phénomènes.

Il ressort de cette étude un nombre de points importants :

- La cinétique de croissance du monocristal, du zirconium polycristallin et de ses alliages recristallisés se caractérise par une évolution en trois stades avec la dose d'irradiation. Après un premier stade de croissance rapide, la vitesse de déformation diminue pour atteindre le régime stationnaire. Puis, la croissance s'accélère à partir d'une valeur seuil de dose d'irradiation ;
- La cinétique et l'amplitude de croissance dépend fortement des propriétés du matériau, notamment sa texture, sa taille de grains, son taux d'écrouissage et la densité initiale de dislocations ainsi que sa composition chimique. Le comportement en croissance des alliages de zirconium dépend aussi de la température d'irradiation. Dans le domaine de température de fonctionnement du REP, l'augmentation de la température diminue la dose seuil d'apparition du stade d'accélération de croissance et augmente le taux de déformation ;
- Nombre de modèles de croissance ont été proposés dans le but d'interpréter les résultats expérimentaux du comportement en croissance des alliages de zirconium. Certains de ces modèles ont été écartés car jugés incapables de reproduire les évolutions caractéristiques de la déformation sous flux de ces matériaux. A l'heure actuelle, le mécanisme de déformation basé sur la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) des défauts ponctuels est considéré comme étant le mécanisme le plus pertinent pour rendre compte du comportement en croissance sous flux des alliages de zirconium. Il est en mesure aussi d'expliquer des observations expérimentales, considérées au départ comme des anomalies. Parmi ces observations on cite la coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires, la formation de zones dénudées en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles près des joints de grains et des surfaces prismatiques et la croissance des boucles basales lacunaires à composante $\langle c \rangle$;
- Le phénomène de fluage sous irradiation intègre deux composantes : une composante thermiquement activée (fluage thermique) et une composante induite par la présence d'une contrainte sous flux (**fluage d'irradiation**). Expérimentalement, il est difficile de séparer ces deux composantes. Néanmoins, les deux mécanismes de déformation peuvent être définis suivant un domaine de température et de contrainte : le fluage thermique est prépondérant à une température élevée et pour des niveaux de contrainte élevés alors que le fluage d'irradiation prédomine à faible température et pour de faibles niveaux de contrainte. Le comportement en **fluage d'irradiation** des alliages de zirconium dépend de plusieurs facteurs, principalement la contrainte, le flux et la température d'irradiation. La vitesse de déformation en **fluage d'irradiation** peut s'écrire comme suit :

$$\dot{\epsilon} = K \sigma^n \phi^p \exp\left(-\frac{T_{act}}{T}\right)$$

En outre, plusieurs études ont révélé un effet de la texture, de la forme des grains, de l'état métallurgique et de la composition chimique du matériau sur sa vitesse de fluage sous irradiation. Plus particulièrement, des éléments chimiques comme l'étain, l'oxygène et le soufre améliorent considérablement la résistance de l'alliage au fluage thermique et au fluage d'irradiation. L'interprétation de ces constats expérimentaux a donné lieu à deux types de modèles : les modèles de type SIPA et SIPN qui attribuent la déformation de fluage d'irradiation à l'élimination différentielle des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure et ceux qui se basent sur le glissement des dislocations favorisé par la montée assistée par l'absorption des défauts ponctuels. Pour les alliages de zirconium, les modèles intégrant le mécanisme SIPA et le mécanisme SICG semblent être les plus pertinents pour décrire leur comportement en fluage d'irradiation et rendre compte de l'effet de certains paramètres comme le flux d'irradiation et la contrainte.

I.4 Références bibliographiques du chapitre 1

- [1] E. S. Fisher and C. J. Renken, "Single crystal elastic moduli and the hcp - bcc transformation in Ti, Zr and Hf," *Phys. Rev. A*, vol. 135, pp. 482–494, 1964.
- [2] D. O. Northwood, I. M. London, and L. E. Bahen, "Elastic constants of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 55, pp. 299–310, 1975.
- [3] J. Goldak, L. T. Llyod, and C. S. Barrett, "Lattice parameters, thermal expansions, and Gruneisen coefficients of zirconium 4.2 to 1130 K," *Phys. Rev.*, vol. 144, no. 2, pp. 478–484, 1966.
- [4] G. L. Garner, I. Q. Mensah, and J.-P. Mardon, "Performance of alloy M5® cladding and structure at burnups beyond the current licensing limit in U.S reactors," in *2006 International Meeting on LWR Fuel Performance "Nuclear Fuel: Addressing the Future,"* 2006, pp. 173–177.
- [5] D. Charquet, J. Senevat, and J. P. Mardon, "Influence of sulfur content on the thermal creep of zirconium alloy tubes at 400°C," *J. Nucl. Mater.*, vol. 255, pp. 78–82, 1998.
- [6] F. Ferrer, A. Barbu, T. Bretheau, J. Crepin, F. Willaime, and D. Charquet, "The effect of small concentrations of sulfur on the plasticity of zirconium alloys at intermediate temperatures," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 863–885.
- [7] J. P. Abriata, J. C. Bolcich, and D. Arias, "The Sn-Zr (Tin-Zirconium) System," *Bull. Alloy Phase Diagrams*, vol. 4, pp. 147–154, 1983.
- [8] F. Ferrer, "Etude des mécanismes de déformation du zirconium entre 25 et 400°C Influence d'une faible teneur en soufre," Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, 2000.
- [9] J. J. Kearns, "Therminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 22, pp. 292–303, 1967.
- [10] R. Khoda-Bakhsh and D. K. Ross, "Determination of the hydrogen site occupation in the α phase of zirconium hydride and in the α and β phases of titanium hydride by inelastic neutron scattering," *J. Phys. F Met. Phys.*, vol. 12, pp. 15–24, 1982.
- [11] C. Domain, "Simulations atomistiques ab-initio des effets de l'hydrogène et de l'iode dans le zirconium," Thèse de doctorat, Université des Sciences et des Technologies de Lille, 2002.
- [12] M. Christensen, W. Wolf, C. Freeman, E. Wimmer, R. B. Adamson, L. Hallstadius, P. E. Cantonwine, and E. V. Mader, "Diffusion of point defects, nucleation of dislocation loops, and effect of hydrogen in hcp-Zr: Ab initio and classical simulations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 460, pp. 82–96, May 2015.
- [13] M. Christensen, W. Wolf, C. Freeman, E. Wimmer, R. B. Adamson, L. Hallstadius, P. Cantonwine, and E. V. Mader, "Effect of hydrogen on dimensional changes of Zirconium and the influence of alloying elements: first principles and classical simulations of points defects, dislocation loops and hydrides," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2015, pp. 55–92.
- [14] K. Loucif, P. Merle, and R. Borrelly, "On the thermoelectric power variation according to temperature of zirconium alloys and its possible application to the estimation of the amount of solubility variations of iron and chromium in Zircaloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 202, pp. 193–196, 1993.

- [15] D. Charquet, R. Hahn, E. Ortlieb, J. P. Gros, and J. F. Wadier, "Solubility limits and formation of intermetallic precipitates in ZrSnFeCr alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023*, 1988, pp. 405–422.
- [16] X. Y. Meng and D. O. Northwood, "Intermetallic precipitates in Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 132, pp. 80–87, 1985.
- [17] X. Y. Meng and D. O. Northwood, "A TEM study of the C15 type Zr(Fe,Cr)₂ Laves phase in Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 136, pp. 83–90, 1985.
- [18] K. Kanematsu and Y. Fujita, "Magnetic moment in Laves phase compound I," *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 29, pp. 864–868, 1970.
- [19] D. Shaltiel, I. Jacob, and D. Davidov, "Hydrogen absorption and desorption properties of AB₂ laves-phase pseudobinary compounds," *J. Less Common Met.*, vol. 53, pp. 117–131, 1977.
- [20] J. P. Abriata and J. C. Bolcich, "The Nb-Zr (Niobium-Zirconium) System," *Bull. Alloy Phase Diagrams*, vol. 3, pp. 34–44, 1982.
- [21] S. Doriot, B. Verhaeghe, J.-L. Béchade, D. Menut, D. Gilbon, and J.-P. Mardon, "Microstructural evolution of M5TM alloy irradiated in PWRs up to high fluences - Comparison with other Zr base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2015, pp. 759–799.
- [22] S. Doriot, D. Gilbon, J.-L. Béchade, M. H. Mathon, L. Legras, and J.-P. Mardon, "Microstructural stability of M5TM alloy irradiated up to high neutron fluences," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 175–201.
- [23] Z. L. Pan, N. Wang, and Z. He, "Measurements of elastic modulus in Zr alloys for CANDU applications," in *Eleventh International Conference on CANDU Fuel*, 2010.
- [24] E. Tenckhoff, "Deformation mechanisms, texture and anisotropy in zirconium and Zircaloy," in *ASTM STP 966, American Society for Testing and Materials*, 1988, pp. 1–77.
- [25] P. Geyer, "Comportement élasto-viscoplastique de tubes en Zircaloy-4: approche expérimentale et modélisation micromécanique," Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1999.
- [26] A. Akhtar, "Basal slip in zirconium," *Acta Metall.*, vol. 21, pp. 1–11, 1973.
- [27] A. Akhtar and A. Teghtsoonian, "Plastic deformation of zirconium single crystals," *Acta Metall.*, vol. 19, pp. 655–663, 1971.
- [28] E. Tenckhoff, "Review of deformation mechanisms, texture, and mechanical anisotropy in zirconium and zirconium base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 25–50.
- [29] B. Legrand, "Influence de la structure électronique sur la facilité relative des glissements dans les métaux de structure hexagonale compacte," Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, 1984.
- [30] B. Legrand, "Structure de coeur de dislocation vis $\frac{1}{3}\langle 11-20 \rangle$ dans le titane," *Philos. Mag. A*, vol. 52, pp. 83–97, 1985.
- [31] B. Legrand, "Relations entre la structure électronique et la facilité de glissement dans les métaux hexagonaux compacts," *Philos. Mag. B*, vol. 49, pp. 171–184, 1984.

- [32] S. Naka and A. Lasalmonie, "Cross-slip on the first order pyramidal plane (10-11) of a-type dislocations [1-210] in the plastic deformation of α -titanium single crystals," *J. Mater. Sci.*, vol. 18, pp. 2613–2617, 1983.
- [33] S. Farenc, D. Caillard, and A. Couret, "An in situ study of prismatic glide in α titanium at low temperatures," *Acta Metall. Mater.*, vol. 41, pp. 2701–2709, 1993.
- [34] M. Rautenberg, "Étude macro et microscopique du comportement viscoplastique d'alliages de zirconium sollicités thermo-mécaniquement entre 300 et 420°C," Thèse de doctorat Confidentielle, Université de Toulouse, 2012.
- [35] M. Rautenberg, X. Feaugas, D. Poquillon, and J. M. Cloué, "Microstructural characterization of creep anisotropy at 673 K in the M5® alloy," *Acta Mater.*, vol. 60, pp. 4319–4327, Jun. 2012.
- [36] D. Caillard, M. Rautenberg, and X. Feaugas, "Dislocation mechanisms in a zirconium alloy in the high-temperature regime: An in situ TEM investigation," *Acta Mater.*, vol. 87, pp. 283–292, Apr. 2015.
- [37] N. Chaari, E. Clouet, and D. Rodney, "First-Principles study of secondary slip in zirconium," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 112, no. 7, p. 075504, Feb. 2014.
- [38] X. Feaugas and E. Conforto, "Influence de l'hydrogène sur les mécanismes de déformation et d'endommagement des alliages de titane et de zirconium," in *PlastOx 2007*, 2009, vol. 2007, pp. 161–178.
- [39] D. Mills and G. B. Craig, "The plastic deformation of Zr-O alloy single crystals in the range 77 to 950K," *Trans. Metall. Soc. AIME*, vol. 242, pp. 1881–1890, 1968.
- [40] P. Soo and G. T. Higgins, "The deformation of zirconium-oxygen single crystals," *Acta Metall.*, vol. 16, pp. 177–186, 1968.
- [41] C. Régnard, B. Verhaeghe, F. Lefebvre-Joud, and C. Lemaignan, "Activated slip systems and localized straining of irradiated alloys in circumferential loadings," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 384–399.
- [42] F. Onimus, "Approche expérimentale et modélisation numérique du comportement des alliages de zirconium irradiés," Thèse de doctorat, Ecole Centrale Paris, 2003.
- [43] F. Onimus, I. Monnet, J. L. Béchade, C. Prioul, and P. Pilvin, "A statistical TEM investigation of dislocation channeling mechanism in neutron irradiated zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, pp. 165–179, Jul. 2004.
- [44] F. Onimus, J. L. Béchade, C. Prioul, P. Pilvin, I. Monnet, S. Doriot, B. Verhaeghe, D. Gilbon, L. Robert, L. Legras, and J.-P. Mardon, "Plastic deformation of irradiated zirconium alloys: TEM investigation and micro-mechanical modelling," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 53–77.
- [45] K. Linga Murty and I. Charit, "Texture development and anisotropic deformation of zircalloys," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 48, pp. 325–359, May 2006.
- [46] P. Delobelle, P. Robinet, P. Geyer, and P. Bouffieux, "A model to describe the anisotropic viscoplastic behaviour of Zircaloy-4 tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 238, pp. 135–162, 1996.
- [47] F. Onimus and J. L. Béchade, "Radiation Effects in Zirconium Alloys," *Compr. Nucl. Mater.*, vol. 4, pp. 1–31, 2012.

- [48] S. J. Wooding, L. M. Howe, F. Gao, A. F. Calder, and D. J. Bacon, "A molecular dynamics study of high energy displacement cascades in α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 254, pp. 191–204, 1998.
- [49] F. Gao, D. J. Bacon, L. M. Howe, and C. B. So, "Temperature-dependence of defect creation and clustering by displacement cascades in α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 294, pp. 288–298, 2001.
- [50] M. J. Norgett, M. T. Robinson, and I. M. Torrens, "A proposed method of calculating displacement dose rates," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 33, pp. 50–54, 1975.
- [51] J. R. Beyster, M. Walt, and E. W. Salmi, "Interaction of 1.0-, 1.77-, 2.5-, 3.25-, and 7.0- MeV neutrons with nuclei," *Phys. Rev.*, vol. 104, pp. 1319–1331, 1956.
- [52] P. Guenther, A. Smith, and J. Whalen, " ^{90}Zr and ^{92}Zr : Neutron total and scattering cross sections," *Phys. Rev. C*, vol. 12, pp. 1797–1808, 1975.
- [53] V. N. Shishov, M. M. Peregud, A. V. Nikulina, Y. V. Pimenov, G. P. Kobylansky, A. E. Novoselov, Z. E. Ostrovsky, and A. V. Obukhov, "Influence of structure-phase state of Nb containing Zr alloys on irradiation-induced growth," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 666–686.
- [54] J. F. Ziegler and J. P. Biersack, "The stopping and range of ions in matter," in *Treatise on Heavy-Ion Science*, Pergamon P., 1985, pp. 93–129.
- [55] J. P. Biersack and L. G. Hagmark, "A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 174, pp. 257–269, 1980.
- [56] D. J. Bacon, A. F. Calder, and F. Gao, "Computer simulation of displacement cascade effects in metals," *Radiat. Eff. Defects Solids*, vol. 141, pp. 283–310, 1997.
- [57] R. A. Johnson and J. R. Beller, "Interatomic potentials and crystalline defects," in *AIME*, 1981.
- [58] F. Willaime, "Ab initio study of self-interstitials in hcp-Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 323, pp. 205–212, Dec. 2003.
- [59] G. Vérité, "Structure, stabilité et mobilité des défauts ponctuels dans le zirconium hexagonal compact: étude ab-initio," Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, 2007.
- [60] G. Vérité, C. Domain, C. C. Fu, P. Gasca, A. Legris, and F. Willaime, "Self-interstitial defects in hexagonal close packed metals revisited: Evidence for low-symmetry configurations in Ti, Zr, and Hf," *Phys. Rev. B*, vol. 87, p. 134108, Apr. 2013.
- [61] C. Varvenne, F. Bruneval, M. C. Marinica, and E. Clouet, "Point defect modeling in materials: Coupling ab initio and elasticity approaches," *Phys. Rev. B*, vol. 88, p. 134102, Oct. 2013.
- [62] G. D. Samolyuk, S. I. Golubov, Y. N. Osetsky, and R. E. Stoller, "Self-interstitial configurations in hcp Zr: a first principles analysis," *Philos. Mag. Lett.*, vol. 93, pp. 93–100, Feb. 2013.
- [63] D. J. Bacon, "A review of computer models of point defects in hcp metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 176–189, 1988.
- [64] G. D. Samolyuk, A. V. Barashev, S. I. Golubov, Y. N. Osetsky, and R. E. Stoller, "Analysis of the anisotropy of point defect diffusion in hcp Zr," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 173–180, Oct. 2014.
- [65] Y. N. Osetsky, D. J. Bacon, and N. D. Diego, "Anisotropy of point defect diffusion in alpha-zirconium," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 33, pp. 777–782, 2002.

- [66] C. H. Woo and X. Liu, "Atomistic calculation of point-defect diffusion anisotropy and irradiation growth in α -zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 87, pp. 2355–2369, Jun. 2007.
- [67] C. H. Woo, H. Huang, and W. J. Zhu, "Low-dimension self-interstitial diffusion in α -Zr," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.*, vol. 76, pp. 101–106, Jan. 2003.
- [68] J. Horvath, F. Dymont, and H. Mehrer, "Anomalous self-diffusion in a single crystal of α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 126, pp. 206–214, 1984.
- [69] G. M. Hood, "Point defect diffusion in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 149–175, 1988.
- [70] W. Frank, "Rapid-pair enhanced diffusion in alpha-Zr and its integration into the point defect scenario in hcp metals," *Philos. Mag. A Phys. Condens. Matter Struct. Defects Mech. Prop.*, vol. 63, pp. 897–913, 1991.
- [71] M. Christensen, W. Wolf, C. M. Freeman, E. Wimmer, R. B. Adamson, L. Hallstadius, P. E. Cantonwine, and E. V. Mader, "Effect of alloying elements on the properties of Zr and the Zr–H system," *J. Nucl. Mater.*, vol. 445, pp. 241–250, Feb. 2014.
- [72] E. Forlerer and C. Rodriguez, "On the influence of iron on the Zr- α (hcp) self-diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 185, pp. 167–173, 1991.
- [73] A. D. King, G. M. Hood, and R. A. Holt, "Fe-enhancement of self-diffusion in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 185, pp. 174–181, 1991.
- [74] R. C. Pasianot, R. A. Pérez, V. P. Ramunni, and M. Weissmann, "Ab initio approach to the effect of Fe on the diffusion in hcp Zr II: The energy barriers," *J. Nucl. Mater.*, vol. 392, pp. 100–104, Jul. 2009.
- [75] G. M. Hood and R. J. Schultz, "Tracer diffusion in α -Zr*," *Acta Metall.*, vol. 22, pp. 459–464, 1974.
- [76] G. Vérité, F. Willaime, and C. C. Fu, "Anisotropy of the vacancy migration in Ti, Zr and Hf hexagonal close-packed metals from first principles," *Solid State Phenom.*, vol. 129, pp. 75–81, 2007.
- [77] C. Varvenne, O. Mackain, and E. Clouet, "Vacancy clustering in zirconium: An atomic-scale study," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 65–77, Oct. 2014.
- [78] A. V. Barashev, S. I. Golubov, and R. E. Stoller, "Theoretical investigation of microstructure evolution and deformation of zirconium under neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 461, pp. 85–94, Jun. 2015.
- [79] H. Wen and C. H. Woo, "Temperature dependence and anisotropy of self- and mono-vacancy diffusion in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 420, pp. 362–369, Jan. 2012.
- [80] D. O. Northwood, R. W. Gilbert, L. E. Bahen, P. M. Kelly, R. G. Blake, A. Jostsons, P. K. Madden, D. Faulkner, W. Bell, and R. B. Adamson, "Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys - An international 'Round-Robin' experiment," *J. Appl. Phys.*, vol. 79, pp. 379–394, 1979.
- [81] D. O. Northwood, V. Fidleris, R. W. Gilbert, and G. J. Carpenter, "Dislocation loop generation and irradiation growth in a zirconium single crystal," *J. Nucl. Mater.*, vol. 61, pp. 123–130, 1976.
- [82] A. Jostsons, P. M. Kelly, and R. G. Blake, "The nature of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, pp. 236–256, 1977.

- [83] P. M. Kelly and R. G. Blake, "The characterization of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 28, pp. 415–426, 1973.
- [84] G. J. C. Carpenter and J. F. Watters, "A study of electron irradiation damage in zirconium using a high voltage electron microscope," *J. Nucl. Mater.*, vol. 96, pp. 213–226, 1981.
- [85] M. Griffiths and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - I. Defect structure and loop character," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 313–322, 1983.
- [86] C. Régnard, "Etude de la microstructure d'un tube de Zircaloy-4 irradié aux neutrons à 300°C, DTP/SECC n° 11/93," Note technique confidentielle, CEA Grenoble, 1993.
- [87] G. J. C. Carpenter and D. O. Northwood, "The contribution of dislocation loops to radiation growth and creep of Zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 56, pp. 260–266, 1975.
- [88] C. H. Woo, "Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: effects of anisotropic diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 237–256, 1988.
- [89] D. O. Northwood, "Irradiation damage in zirconium and its alloys," *At. Energy Rev.*, vol. 15, pp. 547–610, 1977.
- [90] M. Griffiths, "A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 190–218, 1988.
- [91] C. Hellio, "Etude par microscopie électronique à transmission des défauts induits par irradiation aux ions et aux électrons dans du zirconium pur et quatre de ces alliages," Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, 1988.
- [92] C. Hellio, C. H. Novion, and L. Boulanger, "Influence of alloying elements on the dislocation loops created by Zr ion or by electron irradiation in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 368–378, 1988.
- [93] Y. Idrees, Z. Yao, M. A. Kirk, and M. R. Daymond, "In situ study of defect accumulation in zirconium under heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 433, no. 1–3, pp. 95–107, Feb. 2013.
- [94] R. W. Gilbert, K. Farrell, and C. E. Coleman, "Damage structure in zirconium alloys neutron irradiated at 573 to 923 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 84, pp. 137–148, 1979.
- [95] Y. Shinohara, H. Abe, T. Iwai, N. Sekimura, T. Kido, H. Yamamoto, and T. Taguchi, "In situ TEM observation of growth process of zirconium hydride in Zircaloy-4 during hydrogen ion implantation," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 46, no. 6, pp. 564–571, Jun. 2009.
- [96] Y. Udagawa, M. Yamaguchi, H. Abe, N. Sekimura, and T. Fuketa, "Ab initio study on plane defects in zirconium–hydrogen solid solution and zirconium hydride," *Acta Mater.*, vol. 58, no. 11, pp. 3927–3938, Jun. 2010.
- [97] C. Domain, "Ab initio modelling of defect properties with substitutional and interstitial elements in steels and Zr alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 351, pp. 1–19, Jun. 2006.
- [98] C. Varvenne, O. Mackain, L. Proville, and E. Clouet, "Hydrogen and vacancy clustering in zirconium," *soumis à Acta Mater.*, 2015.
- [99] M. B. Lewis, "Deuterium-defect trapping in ion irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 125, pp. 152–159, 1984.

- [100] P. Vizcaino, A. D. Banchik, and J. P. Abriata, "Solubility of hydrogen in Zircaloy-4 : irradiation induced increase and thermal recovery," *J. Nucl. Mater.*, vol. 304, pp. 96–106, 2002.
- [101] C. H. Woo, "Rate theory analysis of radiation damage effects near surface in hexagonal metals," *Philos. Mag. A*, vol. 63, pp. 915–923, 1991.
- [102] C. H. Woo and U. Gosele, "Dislocation bias in an anisotropic diffusive medium and irradiation growth," *J. Nucl. Mater.*, vol. 119, pp. 219–228, 1983.
- [103] M. Griffiths, R. W. Gilbert, and C. E. Coleman, "Grain boundary sinks in neutron-irradiated Zr and Zr alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 405–416, 1988.
- [104] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Anisotropic distribution of dislocation loops in HVEM irradiated Zr," *Philos. Mag. A*, vol. 49, pp. 613–624, 1984.
- [105] S. N. Buckley, "Irradiation growth," in *Properties of Reactor Materials and the Effects of Radiation Damage*, 1962, p. 413.
- [106] A. Jostsons, R. G. Blake, J. G. Napier, P. M. Kelly, and K. Farrell, "Faulted loops in neutron-irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 68, pp. 267–276, 1977.
- [107] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "C-component dislocations in annealed zircaloy irradiated at about 570 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 137, pp. 185–189, 1986.
- [108] M. Griffiths and R. W. Gilbert, "The formation of c-component defects in zirconium alloys during neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 169–181, 1987.
- [109] A. Rogerson and R. A. Murgatroyd, "'Breakaway' growth in annealed Zircaloy-2 at 353 K and 553 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 113, pp. 256–259, 1983.
- [110] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "C-component dislocations in neutron irradiated Zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 16, pp. 127–130, 1983.
- [111] H. Foll and M. Wilkens, "Transmission Electron Microscope studies of dislocation loops in heavy-ion irradiated HCP cobalt," *Phys. Status Solidi*, vol. 39, pp. 561–571, 1977.
- [112] Y. De Carlan, "Contribution à l'étude des phénomènes d'accélération de la croissance en réacteur des alliages de zirconium - influence du fer sur la formation des boucles de dislocation de type <c>," Thèse de doctorat, Institut Polytechnique de Grenoble, 1996.
- [113] C. Simonot, "Evolutions microstructurales des alliages de zirconium sous irradiation, liens avec le phénomène de croissance," Thèse de doctorat, Université de Paris Sud, 1996.
- [114] M. Griffiths, R. W. Gilbert, V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, "Neutron damage in zirconium alloys irradiated at 644 to 710 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 159–168, 1987.
- [115] P. Bossis, B. Verhaeghe, S. Doriot, D. Gilbon, V. Chabretou, A. Dalmais, J.-P. Mardon, M. Blat, and A. Miquet, "In PWR comprehensive study of high burn-up corrosion and growth behaviour of M5® and recrystallized low-tin Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fifteenth International Symposium, ASTM STP 1505*, 2009, pp. 430–456.
- [116] M. Griffiths, "Microstructure evolution in Zr alloys during irradiation: dose, dose rate, and impurity dependence," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354*, 2000, pp. 19–26.

- [117] D. Gilbon and C. Simonot, "Effect of irradiation on the microstructure of Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium, ASTM STP 1245*, 1994, pp. 521–548.
- [118] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - II. Nucleation and growth of c-component loops," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 323–330, 1983.
- [119] M. Griffiths, D. Gilbon, C. Regnard, and C. Lemaignan, "HVEM study of the effects of alloying elements and impurities on radiation damage in Zr-alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 205, pp. 273–283, 1993.
- [120] Y. De Carlan, C. Regnard, M. Griffiths, D. Gilbon, and C. Lemaignan, "Influence of iron in the nucleation of c-component dislocation loops in irradiated Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 638–653.
- [121] D. Lee and E. F. Koch, "Irradiation damage in Zircaloy-2 produced by high dose ion bombardment," *J. Nucl. Mater.*, vol. 50, pp. 162–174, 1974.
- [122] R. B. Adamson, J. R. Beller, and D. Lee, "Use of ion bombardment to study irradiation damage in zirconium alloys," in *Zirconium in Nuclear Applications, ASTM STP 551, American Society for Testing and Materials*, 1974, pp. 215–228.
- [123] W. L. Bell, "Corduroy contrast observations in neutron-irradiated zirconium and zircaloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 55, pp. 14–22, 1975.
- [124] L. Tournadre, "Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium," Thèse de doctorat confidentielle, Université de la Rochelle, 2012.
- [125] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, X. Feugas, O. Toader, and C. Bachelet, "Experimental study of the nucleation and growth of c-component loops under charged particle irradiations of recrystallized Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 425, no. 1–3, pp. 76–82, Jun. 2012.
- [126] R. M. Hengstler-Eger, "Ion irradiation studies of the origins of Pressurized Water Reactor fuel assembly deformation," Thèse de doctorat, Université Technique de Munich, 2012.
- [127] R. M. Hengstler-Eger, P. Baldo, L. Beck, J. Dorner, K. Ertl, P. B. Hoffmann, C. Hugenschmidt, M. A. Kirk, W. Petry, P. Pikart, and A. Rempel, "Heavy ion irradiation induced dislocation loops in AREVA's M5® alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 423, no. 1–3, pp. 170–182, Apr. 2012.
- [128] S. Yamada and T. Kameyama, "Observation of c-component dislocation structures formed in pure Zr and Zr-base alloy by self-ion accelerator irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 422, no. 1–3, pp. 167–172, Mar. 2012.
- [129] X. T. Zu, M. Atzmon, L. M. Wang, L. P. Pou, F. R. Wan, G. S. Was, and R. B. Adamson, "Effect of ion irradiation on microstructure and hardness in Zircaloy-4," in *Effects of Radiation on Materials: Twentieth First International Symposium, ASTM STP 1447*, 2004, pp. 741–752.
- [130] J. J. Kai, W. I. Huang, and H. Y. Chou, "The microstructure evolution of Zircaloy-4 subjected to proton irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 170, pp. 193–209, 1990.
- [131] L. Fournier, A. Serres, Q. Auzoux, D. Leboulch, and G. S. Was, "Proton irradiation effect on microstructure, strain localization and iodine-induced stress corrosion cracking in Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 384, pp. 38–47, Jan. 2009.

- [132] G. E. Lucas, M. Surprenant, J. Dimarzo, and G. J. Brown, "Proton irradiation creep of Zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 101, pp. 78–91, 1981.
- [133] C. K. Chow, R. A. Holt, C. H. Woo, and C. B. So, "Deformation of zirconium irradiated by 4.4 MeV protons at 347 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, pp. 1–10, Jun. 2004.
- [134] Y. S. Lee, K. Y. Huang, C. Y. Huang, J. J. Kai, and W. F. Hsieh, "Effects of proton irradiation on the microstructural evolution and uniform corrosion resistance of Zircalloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 205, pp. 476–482, 1993.
- [135] M. Griffiths, R. A. Holt, and A. Rogerson, "Microstructural aspects of accelerated deformation of Zircaloy nuclear reactor components during service," *J. Nucl. Mater.*, vol. 225, pp. 245–258, 1995.
- [136] M. Griffiths, J. F. Mecke, and J. E. Winegar, "Evolution of microstructure in zirconium alloys during irradiation," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 580–602.
- [137] D. Gilbon, A. Soniak, S. Doriot, and J.-P. Mardon, "Irradiation creep and growth behavior and microstructural evolution of advanced Zr-base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354*, 2000, pp. 51–73.
- [138] H. Suzuki, "Segregation of solute atoms to stacking faults," *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 17, pp. 322–325, 1962.
- [139] V. N. Shishov, M. M. Peregud, A. V. Nikulina, P. V. Shebaldov, A. V. Tselishev, A. E. Novoselov, G. P. Kobylansky, Z. E. Ostrovsky, and V. K. Shamardin, "Influence of zirconium alloy chemical composition on microstructure formation and irradiation induced growth," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 758–779.
- [140] V. N. Shishov, A. V. Nikulina, V. A. Markelov, M. M. Peregud, A. V. Kozlov, S. A. Averin, S. A. Kolbenkov, and A. E. Novoselov, "Influence of neutron irradiation on dislocation structure and phase composition of Zr-base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 603–622.
- [141] R. H. Zee, A. Rogerson, and G. J. C. Carpenter, "Effect of tin on the irradiation growth of polycrystalline zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 120, pp. 223–229, 1984.
- [142] A. Rogerson and R. H. Zee, "Irradiation growth in zirconium-tin alloys at 353 and 553 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 152, pp. 220–224, 1988.
- [143] V. N. Shishov, "The evolution of microstructure and deformation stability in Zr-Nb-(Sn,Fe) alloys under neutron irradiation," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529*, 2010, pp. 37–66.
- [144] M. A. McGrath and S. Yagnik, "Experimental investigation of irradiation creep and growth of recrystallized Zircaloy-4 guide tubes pre-irradiated in PWR," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529*, 2010, pp. 875–898.
- [145] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, and X. Feaugas, "Toward a better understanding of the hydrogen impact on the radiation induced growth of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 222–231, Oct. 2013.
- [146] L. Tournadre, F. Onimus, D. Gilbon, and X. Feaugas, "Impact of hydrogen pick-up and applied stress on c-component loops : Toward a better understanding of the radiation induced growth

- of recrystallized zirconium alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2014, pp. 853–893.
- [147] D. Faulkner and M. P. Puls, “Radiation damage simulation experiments in zirconium,” in *International Conference on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals*, 1975, pp. 1287–1295.
- [148] D. Faulkner and C. H. Woo, “Void swelling in zirconium,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 307–316, 1980.
- [149] G. J. C. Carpenter, R. A. Murgatroyd, A. Rogerson, and J. F. Watters, “Irradiation growth of zirconium single crystals,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 101, pp. 28–37, 1981.
- [150] G. J. C. Carpenter, R. H. Zee, and A. Rogerson, “Irradiation growth of zirconium single crystals: a review,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 86–100, 1988.
- [151] A. Rogerson, “Irradiation growth in zirconium and its alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 43–61, 1988.
- [152] R. A. Holt, “In-reactor deformation of cold-worked Zr-2.5Nb pressure tubes,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 372, pp. 182–214, Jan. 2008.
- [153] V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, “An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behavior of zirconium alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium, ASTM STP 939*, 1987, pp. 49–85.
- [154] A. Soniak, N. L’Hullier, J.-P. Mardon, V. Rebeyrolle, P. Bouffieux, and C. Bernaudat, “Irradiation creep behavior of Zr-base alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 837–862.
- [155] F. Garzarolli, P. Dewes, G. Maussner, and H.-H. Basso, “Effects of high neutron fluences on microstructure and growth of Zircaloy-4,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023*, 1989, pp. 641–657.
- [156] V. Fidleris, “The irradiation creep and growth phenomena,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 22–42, 1988.
- [157] R. B. Adamson, “Irradiation growth of Zircaloy,” in *Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 633, American Society for Testing and Materials*, 1977, pp. 326–343.
- [158] M. Griffiths, R. W. Gilbert, and V. Fidleris, “Accelerated irradiation growth of zirconium alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023*, 1989, pp. 658–677.
- [159] R. A. Murgatroyd and A. Rogerson, “An assessment of the influence of microstructure and test conditions on the irradiation growth phenomenon in zirconium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 240–248, 1980.
- [160] P. M. Kelly, “Irradiation growth in zirconium,” in *International Conference on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements*, 1973.
- [161] R. A. Holt, “Mechanisms of irradiation growth of alpha-zirconium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, pp. 310–338, 1988.
- [162] W. G. Wolfer and M. Ashkin, “Diffusion of vacancies and interstitials to edge dislocations,” *J. Appl. Phys.*, vol. 47, pp. 791–800, 1976.

- [163] L. Walters, G. Bickel, and M. Griffiths, "The effects of microstructure and operating conditions on irradiation creep of Zr-2.5Nb pressure tubing," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2013.
- [164] A. R. Causey, "In-reactor stress relaxation of zirconium alloys," in *Zirconium in Nuclear Applications, ASTM STP 551, American Society for Testing and Materials*, 1974, pp. 263–273.
- [165] F. Tinti, "Uniaxial in-reactor creep of Zircaloy-2 - stress, flux and temperature dependance," *Nucl. Technol.*, vol. 60, pp. 104–113, 1983.
- [166] J. R. Matthews and M. W. Finnis, "Irradiation creep models - an overview," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, 1988.
- [167] P. T. Heald and M. V. Speight, "Steady-state irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 29, no. 1075–1080, 1974.
- [168] P. T. Heald and M. V. Speight, "Point defect behaviour in irradiated materials," *Acta Metall.*, vol. 23, pp. 1389–1399, 1975.
- [169] W. G. Wolfer and M. Ashkin, "Stress-induced diffusion of point defects to spherical sinks," *J. Appl. Phys.*, vol. 46, pp. 547–557, 1975.
- [170] W. G. Wolfer, M. Ashkin, and A. Boltax, "Creep and swelling deformation in structural materials during fast neutron irradiation," in *Properties of Reactor Structural Alloys After Neutron or Particle Irradiation, ASTM STP 570, American Society for Testing and Materials*, 1975, pp. 233–258.
- [171] R. Bullough and J. R. Willis, "The stress-induced point defect-dislocation interaction and its relevance to irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 31, pp. 855–861, 1975.
- [172] R. Bullough and M. H. Wood, "Mechanisms of radiation induced creep and growth," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 1–21, 1980.
- [173] E. J. Savino and C. N. Tomé, "Irradiation creep by stress-induced preferential attraction due to anisotropic diffusion (SIPA-AD)," *J. Nucl. Mater.*, vol. 108 & 109, pp. 405–416, 1982.
- [174] W. G. Wolfer, "Correlation of irradiation creep with experimental evidence," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 175–192, 1980.
- [175] W. G. Wolfer, "Fundamental properties of defects in metals," *Compr. Nucl. Mater.*, vol. 1, pp. 1–45, 2012.
- [176] C. H. Woo, "Irradiation creep due to stress-induced preferred absorption of point defects in zirconium single crystals," in *Effects of Radiation on Structural Materials, ASTM STP 683, American Society for Testing and Materials*, 1979, pp. 640–55.
- [177] D. Faulkner and R. J. McElroy, "Irradiation creep and growth in zirconium during proton bombardment," in *Effects of Radiation on Structural Materials, ASTM STP 683, American Society for Testing and Materials*, 1979, pp. 329–345.
- [178] R. V. Hesketh, "A possible mechanism of irradiation creep and its reference to uranium," *Philos. Mag.*, vol. 7, pp. 1417–1420, 1962.
- [179] A. Brailsford and R. Bullough, "Irradiation creep due to growth of interstitial loops," *Philos. Mag.*, vol. 27, pp. 49–64, 1973.

- [180] G. W. Lewthwaite, "Irradiation creep produced by the effect of stress on the nucleation of dislocation loops," *Philos. Mag.*, vol. 28, pp. 1287–1302, 1973.
- [181] K. Herschbach and W. Schneider, "Interconnection between irradiation creep and interstitial loop formation in fcc metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 51, pp. 215–220, 1974.
- [182] H. R. Brager, F. A. Garner, and G. L. Guthrie, "The effect of stress on the microstructure of neutron irradiated type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, pp. 301–321, 1977.
- [183] D. S. Gelles, F. A. Garner, and H. R. Brager, "Frank loop formation in irradiated metals in response to applied and internal stresses," in *Effects of Radiation on Materials: Tenth conference, ASTM STP 725, American Society for Testing and Materials*, 1981, pp. 735–753.

II. Chapitre 2

Matériaux et techniques expérimentales

Ce chapitre s'intéresse à la caractérisation avant irradiation des deux matériaux de l'étude expérimentale, le Zircaloy-4 recristallisé TREX et le M5[®] TREX (Tubes Reduced Extrusion). Tout d'abord, le choix du produit intermédiaire TREX est justifié. Ensuite, les deux alliages sont décrits en termes de composition et d'homogénéité chimique, de microstructure (morphologie et taille de grains) et de comportement mécanique (dureté et traction à haute température). Dans une deuxième partie, les principales conditions des irradiations aux ions, conduites pour simuler l'endommagement créé par irradiation neutronique en réacteur de puissance, sont présentées. Il s'ensuit une troisième partie consacrée à la méthode d'analyse *post-mortem* en Microscopie Electronique en Transmission mise en œuvre pour caractériser principalement la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Sommaire

II.1 Matériaux de l'étude	81
II.1.1 Choix du produit Tube Reduced Extrusion (TREX)	81
II.1.2 Caractérisation du matériau non irradié	83
II.2 Irradiations expérimentales aux ions Zr⁺	88
II.3 Méthode d'analyse en Microscopie Electronique en Transmission	91
II.3.1 Imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$	91
II.3.2 Mesure d'épaisseur des grains par spectroscopie de perte en énergie des électrons (EELS) ...	93
II.3.3 Quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$	96
II.3.4 Analyse de l'orientation cristallographique des grains par rapport au repère macroscopique	96
II.4 Conclusions du chapitre 2	102
II.5 Références bibliographiques du chapitre 2	103

II.1 Matériaux de l'étude

II.1.1 Choix du produit Tube Reduced Extrusion (TREX)

L'étude expérimentale, menée dans le cadre de ce travail de thèse, a porté sur deux alliages industriels de zirconium, le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®]. Les échantillons ont été prélevés des Tubes Reduced Extrusion (TREX) fournis par AREVA-NP. Ces tubes sont des produits intermédiaires du procédé de mise en forme des tubes guides et des gaines des REP (§ 1.1.2.2). Ils sont obtenus par une succession d'opérations de laminage à froid et par un traitement thermique de recristallisation dans le domaine Zr- α . Les tubes ébauches TREX ont un diamètre extérieur de 55 mm et une épaisseur de 11 mm.

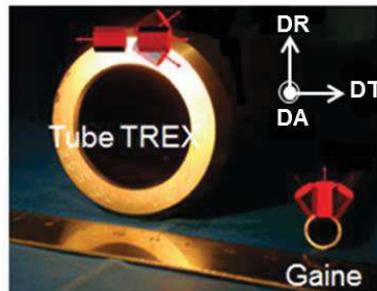


Figure II.1.1: Schématisation de l'orientation transverse préférentielle des grains du tube épais TREX.

La texture cristallographique de ces produits semi-finis a été caractérisée par Diffraction des Rayons X dans le cadre du travail de thèse de Tournadre [1]. Les figures des pôles (0002) , $\{10\bar{1}0\}$ et $\{11\bar{2}0\}$, recalculées à partir de la Fonction de Distribution des Orientations Cristallines, sont représentées sur la Figure II.1.2 pour le Zircaloy-4 et le M5[®] TREX. Les pôles (0002) de ces deux alliages mettent en évidence un maximum de densité de grains ayant des axes $\langle c \rangle$ orientés suivant la direction transverse avec un étalement dans le plan (DT-DR), DT correspondant à la direction transverse et DR à la direction radiale des tubes. Les pôles prismatiques $\{10\bar{1}0\}$ et $\{11\bar{2}0\}$ s'alignent préférentiellement suivant la direction axiale (DA) des tubes TREX. La distribution de l'orientation des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ selon les trois directions transverse, radiale et axiale est décrite par les facteurs de Kearns associés aux figures de pôles (Tableau II.1.1).

Le choix du TREX comme matériau d'étude est motivé par deux raisons majeures :

- Ces tubes semi-finis sont plus épais que les tubes finis (une épaisseur de 0,57 mm pour les gaines et de 0,4 à 0,5 mm pour les tubes guides) (Figure II.1.1). Leur épaisseur plus importante facilite le prélèvement d'un plus grand nombre d'échantillons ;
- Les tubes TREX se caractérisent par une texture transverse où les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ sont orientés préférentiellement suivant la direction transverse mais présentent également un étalement dans le plan (DT-DR) formé par la direction transverse et la direction radiale. Les échantillons prélevés dans l'épaisseur de ces tubes épais présentent une grande proportion de grains avec leurs axes $\langle c \rangle$ contenus dans le plan de la lame mince. Cette orientation cristallographique permet d'obtenir aisément la condition de diffraction optimale pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ par Microscopie Electronique en Transmission ($\vec{g} = 0002$). Ce point sera détaillé ultérieurement dans la partie II.3.1 de ce présent chapitre. Compte tenu de la texture radiale des tubes minces finis (§ 1.1.2.2.2), les grains des échantillons découpés dans l'épaisseur de ces tubes sont orientés avec leurs axes cristallographiques $\langle c \rangle$ suivant la direction radiale et donc normaux aux plans des lames minces. Par conséquent, ces produits ne permettent pas d'obtenir facilement les conditions de diffraction appropriées pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$.

En conclusion, les motivations principales qui ont conduit à ce choix du produit TREX résident dans sa texture cristallographique et son épaisseur.

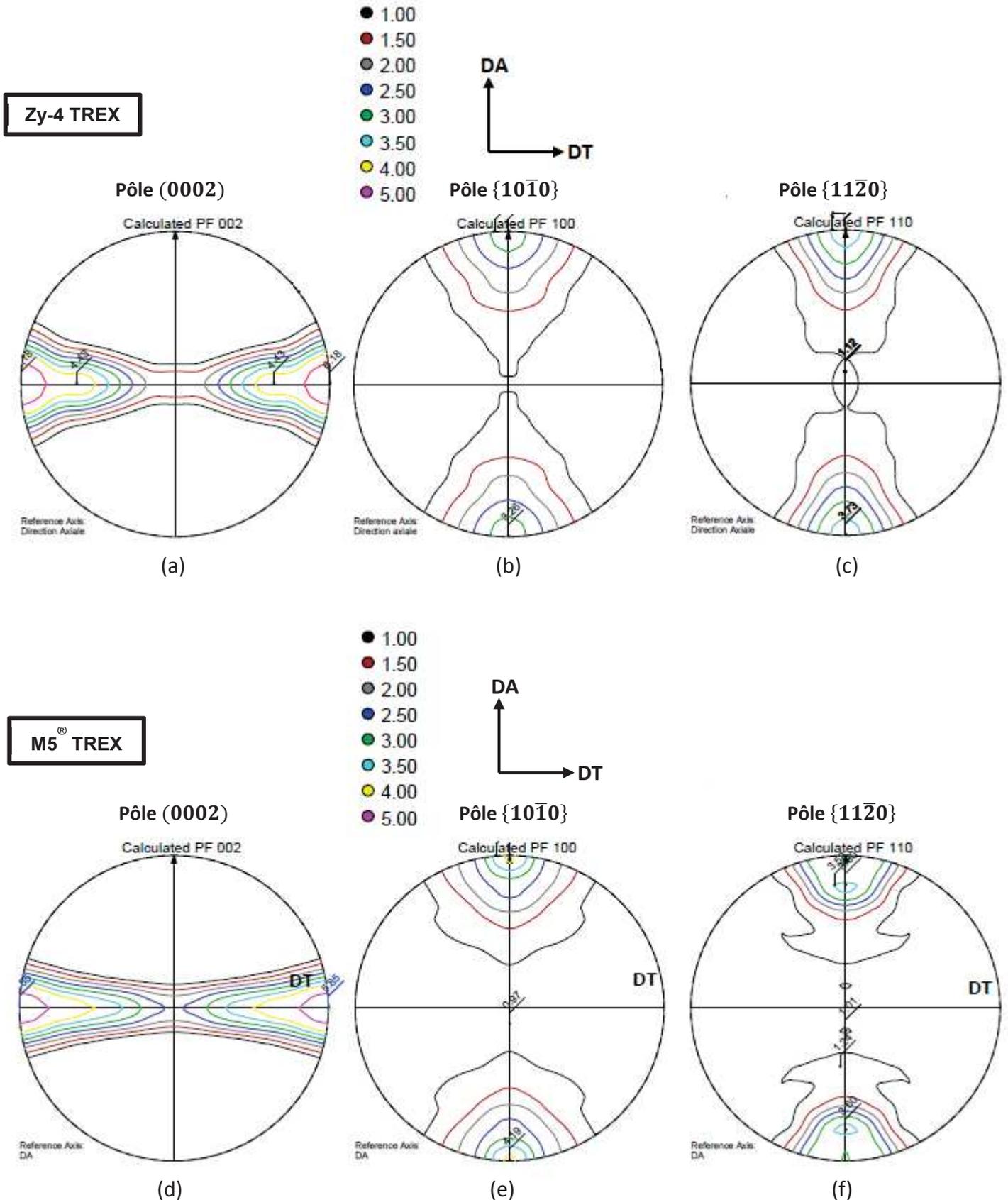


Tableau II.1.1: Facteur de Kearns des tubes TREX en Zircaloy-4 et en M5[®].

	f_{DT}	f_{DR}	f_{DA}
Zircaloy-4	0,53	0,38	0,09
M5 [®]	0,49	0,42	0,09

II.1.2 Caractérisation du matériau non irradié

Avant d'étudier de façon précise les défauts microstructuraux induits par irradiation, il apparaît nécessaire, dans une première étape, de caractériser le produit intermédiaire TREX non irradié dans le but de vérifier sa bonne représentativité chimique et mécanique par rapport aux tubes guides et aux gaines. L'homogénéité de la composition chimique, la morphologie et la taille des grains et la caractérisation mécanique en dureté Vickers des tubes TREX en Zircaloy-4 et en M5[®] ont fait l'objet d'une étude réalisée dans le cadre de la thèse de Tournadre [1]. Ces caractérisations sont complétées par des essais de traction à des températures de fonctionnement en REP (300 et 350°C) effectuées dans le cadre de ce travail de thèse.

II.1.2.1 Composition et homogénéité chimique

Les analyses à la microsonde électronique Castaing SX 100 ont permis de vérifier l'homogénéité de la composition chimique dans l'épaisseur des tubes TREX. La répartition des éléments d'alliage principaux du Zircaloy-4 (Sn, Fe, Cr et O) et du M5[®] (Fe, Nb et O) est globalement homogène. Toutefois, quelques zones riches en fer et en chrome ont été détectées dans le Zircaloy-4 TREX. Ces zones locales correspondraient aux précipités intermétalliques, les phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ qui se forment dans le Zircaloy-4 (§ 1.1.2.1.3).

En ce qui concerne le dosage des différents éléments chimiques, il a été montré que les teneurs mesurées en étain, en fer, en chrome et en niobium (Tableau II.1.2) sont en bon accord avec les spécifications chimiques des produits finis (Tableau I.1.2). Une teneur élevée de l'oxygène a été observée, notamment près de la face interne de la gaine. Elle serait due à la contamination de la surface lors de l'étape de préparation des échantillons.

Tableau II.1.2: Composition chimique des tubes TREX en Zircaloy-4 et en M5[®] (% massique).

	Sn	Fe	Cr	Nb
Zircaloy-4 TREX	1,3	0,21	0,1	-
M5 [®] TREX	-	0,04	-	0,95

Les observations en MET de la microstructure des deux alliages non irradiés montrent la présence de précipités intermétalliques de même nature que ceux identifiés dans les produits finis (§ 1.1.2.1.3). Les précipités rencontrés dans le Zircaloy-4 correspondent aux phases de Laves de type $Zr(Fe,Cr)_2$ dont la taille est de quelques centaines de nanomètres (Figure II.1.3). L'alliage M5[®] TREX montre un alignement de petites particules réparties de manière homogène dans la matrice. Il s'agit des précipités β -Nb natifs (Figure II.1.4 (a)) qui ont une taille moyenne de 60 nm. Quelques précipités de plus grande taille (environ 150 nm) ont été également observés (Figure II.1.4 (b)). D'après les analyses par spectroscopie des Rayons X (EDX), ces composés correspondent à des phases de Laves de type $Zr(Fe,Nb)_2$ présents en moins grand nombre que les particules β -Nb.

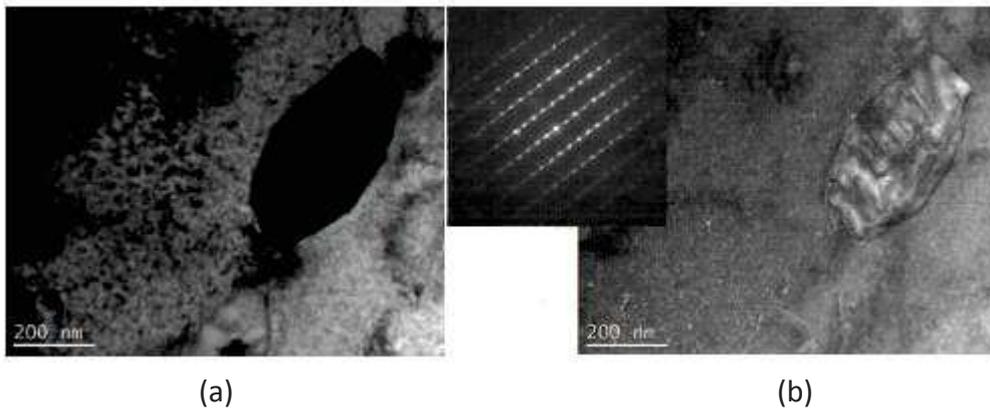


Figure II.1.3: Phase de Lave $Zr(Fe,Cr)_2$ observée dans le Zircaloy-4 TREX en axe de zone $(\bar{1}210)$ – (a) champ clair et (b) champ sombre [1].

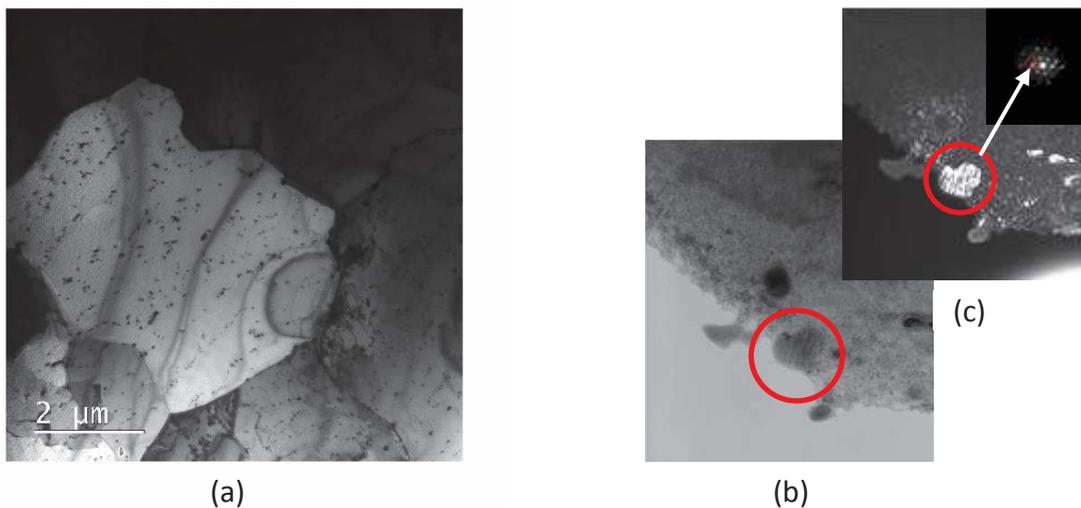


Figure II.1.4: Phases secondaires du M5® TREX – (a) particules β -Nb natifs, (b) phase de Lave $Zr(Fe,Nb)_2$ en champ clair et (c) phase de Lave $Zr(Fe,Nb)_2$ en champ sombre.

II.1.2.2 Morphologie et taille des grains

Les observations en microscopie optique ont été effectuées sur des échantillons prélevés dans les plans de normale DA (plan (DT-DR)) et DT (plan (DR-DA)) des tubes TREX.

Pour le Zircaloy-4, les métallographies suivant ces deux plans de prélèvement mettent en évidence une microstructure homogène formée par des grains equiaxes (Figure II.1.5 (a) et (b)) d'une taille moyenne de $5,3 \pm 0,9 \mu\text{m}$ suivant la direction axiale et de $5,9 \pm 0,6 \mu\text{m}$ suivant la direction transverse. Les échantillons de M5® prélevés dans le plan (DT-DR) présentent une microstructure similaire avec des grains equiaxes (Figure II.1.5 (c)) de diamètre moyen $5,5 \pm 0,4 \mu\text{m}$. Le prélèvement dans le plan (DR-DA) révèle, quant à lui, une microstructure caractérisée par une légère hétérogénéité de la taille des grains et leur allongement préférentiel suivant la direction de laminage correspondant à la direction axiale du tube TREX. Les observations dans ce plan de prélèvement mettent en évidence la présence de zones locales non recristallisées (Figure II.1.5 (d)), distribuées aléatoirement dans le matériau. Cette microstructure du M5® TREX est le résultat d'un traitement de recristallisation du TREX effectué à une plus faible température que pour le Zircaloy-4 TREX afin d'éviter la formation de la phase β -Zr. En effet, le diagramme de phase Zr-Nb [2] fait apparaître un palier eutectoïde à une température de 620°C .

Par ailleurs, les observations en microscopie optique réalisées sur des échantillons découpés sur plusieurs niveaux dans l'épaisseur des TREX révèlent un faible gradient de taille des grains avec une

taille légèrement plus élevée en peau interne des tubes. Néanmoins, ces écarts restant faibles. Les tubes épais TREX, en Zircaloy-4 et en M5[®], peuvent donc être considérés comme des produits homogènes.

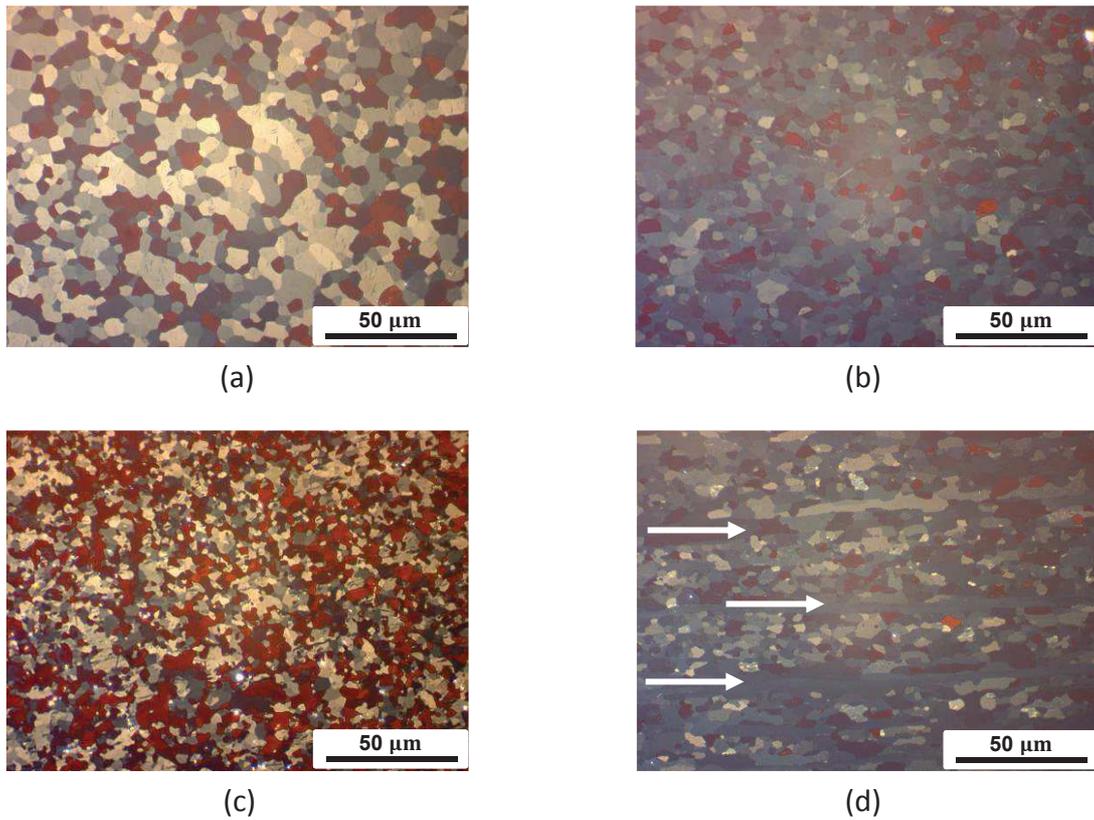


Figure II.1.5: Microstructure représentative des tubes TREX suivant un prélèvement dans le plan (DT-DR) ((a) et (c)) ou dans le plan (DR-DA) ((b) et (d)) – (a) Zircaloy-4, (b) Zircaloy-4, (c) M5[®] et (d) zones non recristallisées dans le M5[®] indiquées par des flèches blanches.

Une vue générale de la microstructure de l'alliage M5[®] TREX est donnée par les micrographies MET de la Figure II.1.6.

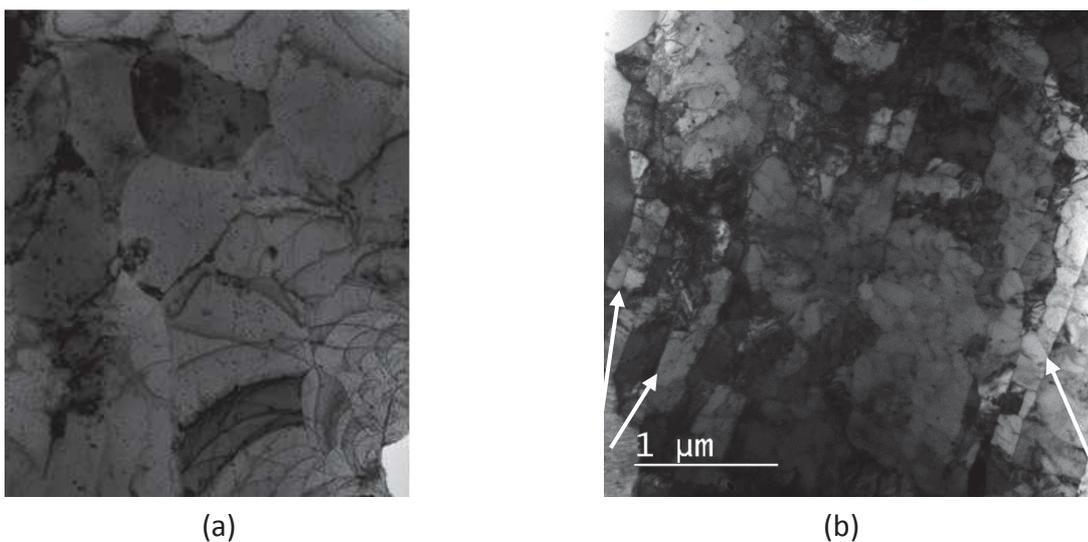


Figure II.1.6: Vue générale de la microstructure de l'alliage M5[®] TREX – (a) grains equiaxes et (b) présence de zones non recristallisées indiquées par des flèches blanches.

II.1.2.3 Caractérisation mécanique en dureté Vickers

La dureté Vickers du Zircaloy-4 TREX mesurée pour les échantillons découpés dans le plan de prélèvement (DR-DA) est de $203 \pm 9 \text{ HV}_1$. Elle est plus élevée que celle obtenue dans le plan de normale DA ($176 \pm 4 \text{ HV}_1$). Tout comme pour le Zircaloy-4 TREX, la dureté Vickers reportée dans le M5[®] TREX suivant le plan de normale DT ($186 \pm 7 \text{ HV}_1$) est supérieure à celle suivant la normale DA ($169 \pm 4 \text{ HV}_1$). Ceci se justifie par la conjonction de deux facteurs : l'anisotropie du comportement mécanique des alliages de zirconium (§ I.1.3.2) avec une difficulté à activer les systèmes de glissement $\langle c + a \rangle$ (§ I.1.3.1) et la texture transverse prononcée des tubes intermédiaires TREX qui font que ces matériaux sont plus durs suivant DT, direction préférentielle d'orientation des axes cristallographiques $\langle c \rangle$.

En outre, bien que la dureté soit légèrement inférieure en peau interne des tubes, les profils mesurés dans l'épaisseur des tubes de Zircaloy-4 et du M5[®] TREX sont globalement constants.

II.1.2.4 Comportement en traction à 300 et 350°C

Des essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes de Zircaloy-4 et de M5[®] TREX à une vitesse de déformation de $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et à des températures de 300 et 350°C. Le choix de la température pour ces essais mécaniques est guidé par l'étude expérimentale portant sur l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ qui fera l'objet du chapitre quatre de ce mémoire. Cette étude requiert la connaissance du domaine d'application de la contrainte et donc de la limite d'élasticité du matériau à la température étudiée.

Les essais ont porté sur des éprouvettes plates de traction d'une longueur utile de 7 mm et d'une épaisseur de 1 mm (Figure II.1.7 (a)). Deux types d'éprouvette sont distingués suivant leur sens de prélèvement: les éprouvettes de traction sens transverse (DT) et celles de sens axial (DA) (Figure II.1.7 (b)).

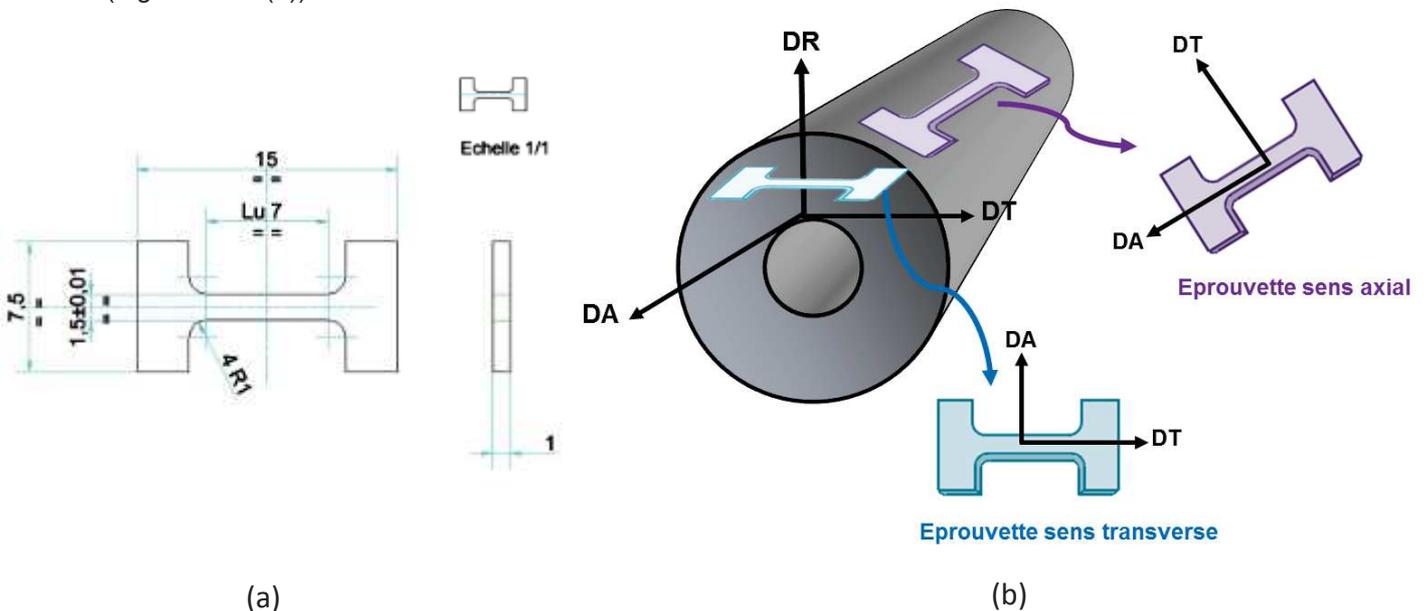


Figure II.1.7 – (a) Géométrie de l'éprouvette plate de traction et (b) schématisation du sens de prélèvement des éprouvettes transverses et axiales.

Lors de ces essais mécaniques conduits jusqu'à rupture des échantillons, deux grandeurs physiques ont pu être suivies : le déplacement de la traverse et la force mesurée par la cellule de charge de la machine de traction. Cette méthode qui consiste à évaluer le déplacement grâce à celui de la traverse fait intervenir la raideur de l'ensemble de l'éprouvette et de la machine. Pour obtenir la courbe typique contrainte – déformation du matériau suivant les deux directions de sollicitation (DT et DA), il est

nécessaire de s'affranchir de la raideur de la machine. Pour cela, on considère que cette dernière se comporte comme un ressort en série avec l'éprouvette. Sa compliance s'obtient donc en soustrayant la pente élastique de la courbe force – déplacement de la souplesse élastique des éprouvettes. Dans cette démarche, nous nous appuyons sur le fait que le comportement élastique des alliages de zirconium peut être considéré comme isotrope pour des sollicitations dans le plan (DT-DA) des tubes minces de texture classique (§ I.1.2.2.2). A 300°C, les modules de Young du Zircaloy-4 recristallisé [3] et du M5[®] sont pris égaux à 79 GPa. Les mêmes modules ont été considérés pour les essais à 350°C.

Les résultats des essais de traction réalisés pour le Zircaloy-4 et le M5[®] TREX suivant les directions de sollicitation DT et DA sont présentés par les courbes conventionnelles contrainte – déformation à 300°C en Figure II.1.8 (a) et à 350°C en Figure II.1.8 (b). Ces courbes montrent une limite d'élasticité plus élevée suivant la direction transverse que suivant la direction axiale. Ce résultat est cohérent avec l'anisotropie du comportement mécanique de ces matériaux caractérisés par leur texture transverse (§ II.1.1).

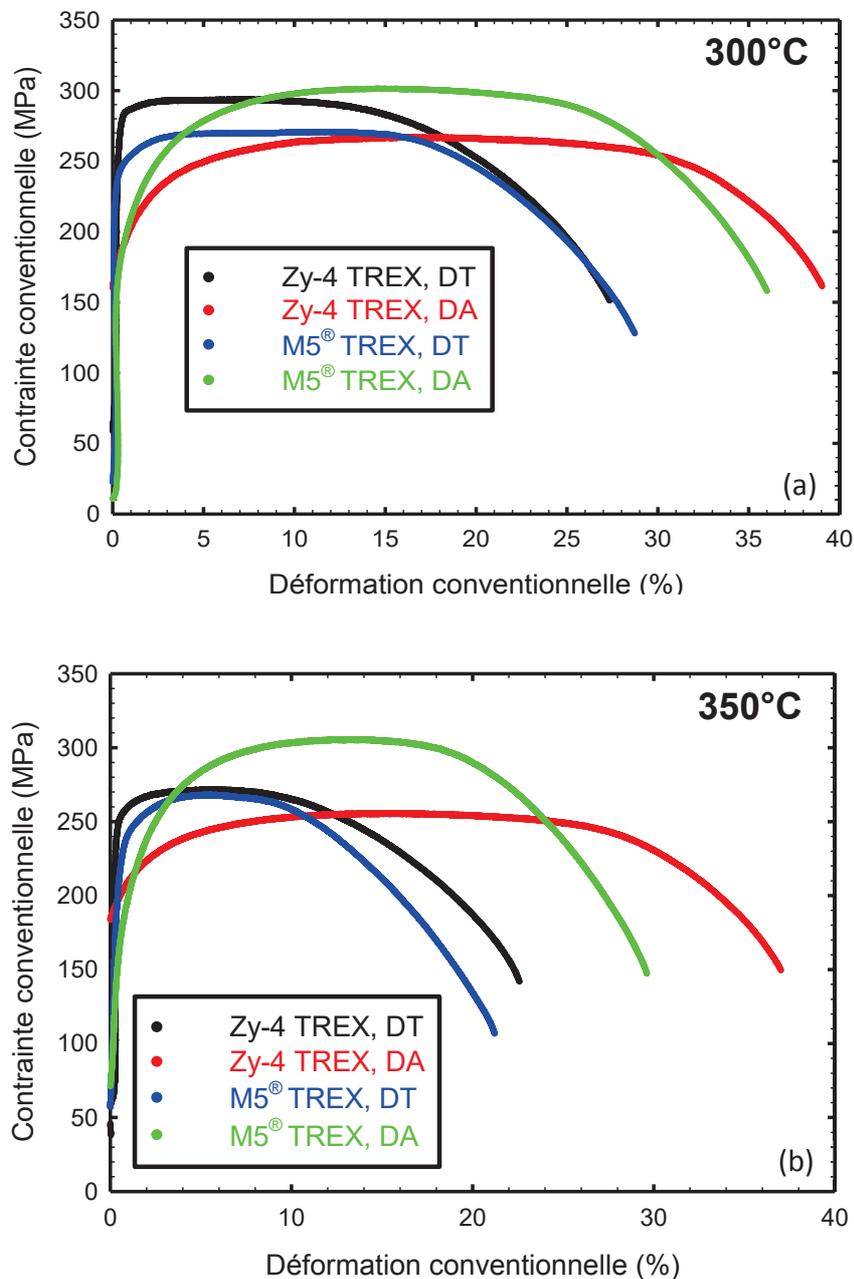


Figure II.1.8: Courbes conventionnelles contrainte-déformation du Zircaloy-4 et du M5[®] TREX suivant deux directions de sollicitation (DT et DA) – (a) à 300°C et (b) 350°C.

En effet, la déformation de ces alliages s'opère principalement par le glissement prismatique (§ I.1.3.1). Les systèmes de glissement secondaires pour accommoder une déformation le long des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ étant difficilement activés par rapport au glissement principal prismatique, la direction transverse, direction d'orientation préférentielle des axes $\langle c \rangle$ dans les tubes TREX, constitue une direction « dure » de ces matériaux. Pour des sollicitations uniaxiales, la texture cristallographique marquée du matériau et le nombre limité de systèmes de déformation plastique conduisent donc à une anisotropie de son comportement traduite ici par la différence entre la limite d'élasticité suivant les deux directions DT et DA.

Les valeurs des limites d'élasticité conventionnelles à 0,2% du Zircaloy-4 et du M5[®] TREX à 300 et 350°C sont regroupées dans le Tableau II.1.3. Il apparaît que le Zircaloy-4 TREX est plus résistant que le M5[®] TREX pour une sollicitation en traction suivant la direction transverse, ceci pour les deux températures 300 et 350°C. Ce comportement est inversé pour un chargement suivant la direction axiale. Cette inversion pourrait être imputée aux zones non recristallisées du M5[®] TREX (§ II.1.2.2).

Par ailleurs, ces essais montrent un effet de la température sur la limite d'élasticité du Zircaloy-4 et du M5[®] TREX. Cet effet est double : l'élévation de la température diminue la limite d'élasticité ainsi que l'anisotropie du comportement macroscopique suivant les deux directions de sollicitation transverse et axiale. Cet effet de la température sur les propriétés en plasticité des alliages de zirconium a été souligné dans le premier chapitre de synthèse bibliographique (§ I.1.3.2) et peut être associé à une activation facilitée des systèmes de déformation secondaires par l'augmentation de la température.

Dans le cadre du travail de thèse de Tournadre [1], des essais de traction suivant les deux directions de sollicitation, DT et DA, ont été réalisés à la température ambiante. Les résultats donnent une limite d'élasticité d'environ 570 MPa pour le Zircaloy-4 TREX suivant DT, 600 MPa pour le M5[®] TREX suivant DT, 320 MPa pour le Zircaloy-4 TREX suivant DA et 300 MPa pour le M5[®] TREX suivant DA. L'effet de la température est encore une fois prouvé avec des limites d'élasticité plus élevées à l'ambiante qu'à 300 et 350°C. Comme pour nos essais de traction à haute température, Tournadre [1] a noté une inversion du comportement du M5[®] TREX vis-à-vis du Zircaloy-4 TREX pour les deux directions de sollicitation en traction.

Tableau II.1.3: Limites d'élasticité conventionnelles à 0,2% (en MPa) des tubes TREX en Zircaloy-4 et en M5[®] pour les directions de sollicitation transverse (DT) et axiale (DA) à 300 et 350°C.

Matériau	300°C				350°C			
	R _{p0,2} moyen DT	Ecart type DT	R _{p0,2} moyen DA	Ecart type DA	R _{p0,2} moyen DT	Ecart type DT	R _{p0,2} moyen DA	Ecart type DA
Zircaloy-4 TREX	271	7,3	158	4,29	243	4,4	150	7,6
M5 [®] TREX	232	7,3	193	17,2	221	4,13	176	8,46

II.2 Irradiations expérimentales aux ions Zr⁺

Les irradiations aux neutrons réalisées dans les réacteurs de puissance ou dans les réacteurs expérimentaux sont généralement lourdes et coûteuses en temps et en argent. Le recours aux irradiations aux particules chargées permet de s'affranchir de ces contraintes et présente un certain nombre d'avantages. D'une part, les échantillons irradiés ne sont que faiblement actifs ce qui facilite leur manipulation et la caractérisation de leur microstructure après irradiation. D'autre part, les expériences d'irradiation aux particules chargées sont plus faciles à mettre en œuvre et permettent de réduire de façon significative la durée d'exposition des matériaux irradiés. Comme le flux de ces particules est de plusieurs ordres de grandeur plus élevé que celui des neutrons, le dommage d'irradiation est accéléré et il est possible d'atteindre en quelques heures ou quelques minutes des doses équivalentes à plusieurs années d'irradiation dans un réacteur nucléaire (Tableau I.1.2.1). La

prédiction du comportement du matériau à très long terme est améliorée. De plus, les conditions expérimentales des irradiations par particules chargées (flux des particules incidentes, dose et température d'irradiation) sont facilement modifiables et contrôlables permettant ainsi la mise en place des études paramétriques qui portent sur l'évolution de la microstructure sous irradiation.

Tout comme les neutrons rapides, les ions entrent en collision élastique avec les atomes cibles du matériau irradié en créant des cascades de déplacements (§ 1.2.1.2.2). Les défauts ponctuels, restant après la relaxation des cascades, diffusent et s'agglomèrent pour former des amas, et plus particulièrement des boucles de dislocation (§ 1.2.4.2.3). De ce point de vue, la simulation des irradiations neutroniques par irradiations aux ions apparaît comme une méthode efficace adaptée à notre étude de l'effet de la contrainte et de la température sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cependant, il est important de noter que l'endommagement créé dépend de l'énergie et de la masse des ions incidents. Le choix de ces paramètres ainsi que des conditions d'irradiation doit permettre d'obtenir une microstructure semblable à celle obtenue par irradiation neutronique.

Tout d'abord, nous avons choisi les ions zirconium comme particules incidentes afin d'éviter d'implanter des éléments chimiques étrangers dans les matériaux irradiés. Ces ions lourds créent des cascades de déplacements dont la morphologie est similaire à celle des neutrons. Concernant le choix de l'énergie des ions zirconium incidents, deux points doivent être pris en considération : la profondeur d'endommagement et la durée d'irradiation. Des ions de faible énergie sont rapidement arrêtés par la matière et le dommage d'irradiation créé est superficiel. En contrepartie, le taux de création de dommage est plus important et le temps d'irradiation est réduit. Dans le cadre de nos irradiations, le choix s'est porté sur les ions Zr^+ de 600 keV. Ces ions sont suffisamment énergétiques pour créer un dommage sur quelques centaines de nanomètres d'épaisseur (Figure II.2.2) ce qui permet la caractérisation par Microscopie Electronique en Transmission de la microstructure irradiée des lames minces dont l'épaisseur est d'environ 150 nm. De plus, avec un flux bien adapté, les doses d'irradiation souhaitées peuvent être obtenues après quelques heures d'irradiation. Ces irradiations ont été conduites dans l'accélérateur ARAMIS du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse (CSNSM) d'Orsay (Figure II.2.1). Notons également que Tournadre [1], [4] a montré que des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV permettent de former des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] à partir d'une dose seuil d'irradiation (§ 1.2.4.2.3). Ce résultat conforte notre choix des conditions d'irradiation pour notre étude analytique.

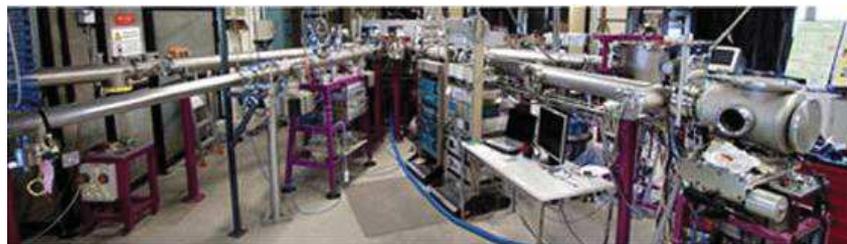


Figure II.2.1: Photo de l'accélérateur ARAMIS du CSNSM (Orsay).

Les profils de dommage des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV, effectuées dans le cadre de ce travail de thèse, ont été simulés à l'aide du logiciel *SRIM* (Version 2012). Le dommage d'irradiation et la profondeur de pénétration ont été calculés en prenant 40 eV comme énergie seuil de déplacement d'un atome de zirconium de son site cristallin (Norm Reference Test Standard E521-96, Annual Book of ASTM Standards, Philadelphia, PA, USA) [5] et en utilisant le mode « Detailed Calculation with Full Damage Cascades ». Ce mode permet de prendre en compte l'intégralité des cascades de déplacements générées par les ions incidents et les PKA.

Les simulations des irradiations aux ions zirconium avec le logiciel *SRIM* donnent accès au nombre $n(p)$ de lacunes créées par ion par *unité de longueur* à une profondeur de pénétration p de l'ion dans

le matériau. Le nombre de déplacements par atome pour une profondeur p donnée s'écrit de la manière suivante :

$$G(p) = 10^8 \frac{\phi t n(p)}{N_{at}} \quad \text{Eq. II.2.1}$$

Dans l'équation Eq. II.2.1, ϕt est la fluence en ions/cm², $n(p)$ le nombre de lacunes/ion/Å et N_{at} le nombre d'atomes par unité de volume exprimé en atomes/cm³ (égal à $4,34 \times 10^{22}$ atomes/cm³ pour le zirconium). Il est alors possible d'obtenir à partir de ce calcul le profil de dommage d'irradiation de l'échantillon (Figure II.2.2).

Jusqu'à récemment, la communauté scientifique des implantations ioniques utilisait l'option « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » pour le calcul du dommage d'irradiation. L'intérêt de cette option est qu'elle permet de suivre les cascades de déplacements générées par tous les atomes déplacés. Pour obtenir le nombre de lacunes créées par ion et par unité de longueur, deux méthodes de post-traitement sont possibles. La première méthode consiste à lire directement la grandeur $n(p)$ dans le fichier de sortie *Vacancy.txt*. Avec la deuxième méthode, le nombre de lacunes $n(p)$ est obtenu à partir des énergies transférées aux atomes déplacés. Ces énergies sont recensées dans le fichier de sortie *E2recoil.txt*. La première méthode, plus directe, est utilisée de manière assez systématique. Or, récemment, Stoller *et al.* [6] ont comparé les valeurs de $n(p)$ obtenues par *SRIM* avec les deux options de simulation « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » et « Ions Distribution and Quick Calculation of Damage » et les deux méthodes de calcul. La comparaison montre que lorsque l'option de calcul « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » est utilisée, le nombre de lacunes $n(p)$ lu dans le fichier de sortie *Vacancy.txt* est environ 2 fois supérieur à celui déduit du fichier *E2recoil.txt*. Au regard de ces résultats, les auteurs recommandent d'utiliser l'option « Ions Distribution and Quick Calculation of Damage » pour laquelle les deux méthodes de calcul conduisent à la même valeur de $n(p)$.

Toutefois, pour garder une certaine cohérence lorsque nous comparons nos valeurs de dommage d'irradiation avec celles données dans la littérature (calculées vraisemblablement à partir du fichier *Vacancy.txt*, sauf mention contraire), nous choisissons d'utiliser dans le cadre de ce travail de thèse l'option « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » et le fichier de sortie *Vacancy.txt*. A titre indicatif, pour des irradiations aux ions Zr⁺ de 600 keV, les valeurs de dommage d'irradiation obtenues avec l'option « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » sont 1,7 fois plus élevées que celles calculées avec l'option « Ions Distribution and Quick Calculation of Damage » de *SRIM* (Version 2012).

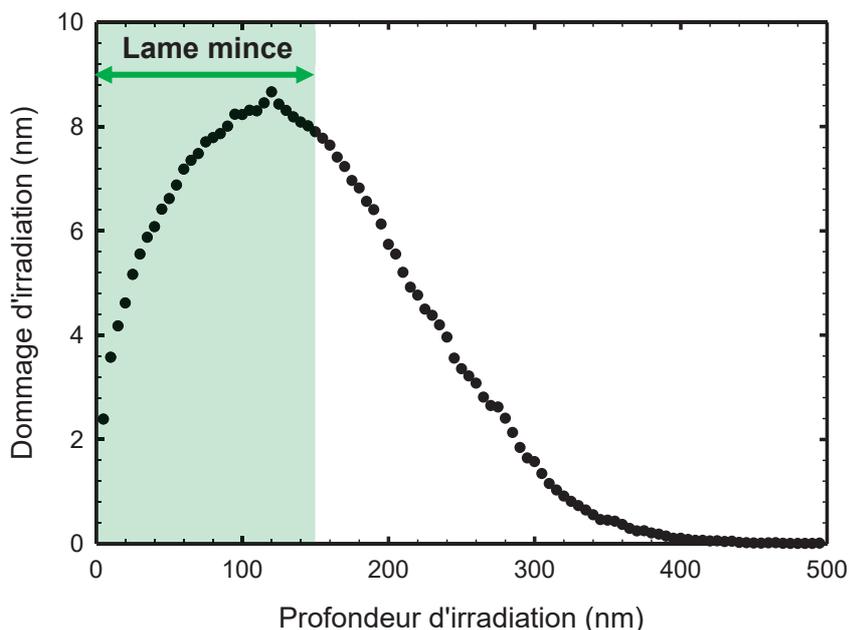


Figure II.2.2: Profil de dommage d'irradiation simulé par *SRIM*, irradiation aux ions Zr⁺ de 600 keV à une fluence de $11,5 \times 10^{14}$ ions/cm².

Les profils de dommage obtenus pour les différentes conditions d'irradiation seront spécifiés dans les chapitres trois et quatre consacrés à l'étude expérimentale de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par irradiation aux ions. A titre d'exemple, la Figure II.2.2 donne le profil de dommage créé par des ions Zr^+ de 600 keV à une fluence de $11,5 \times 10^{14}$ ions/cm². Le maximum du dommage, atteint pour une profondeur de pénétration d'environ 120 nm, est contenu dans la zone d'observation en MET.

En fonction de l'étude expérimentale, les échantillons irradiés aux ions zirconium sont des lames amincies ou des languettes dont l'une des faces est polie par polissage électrolytique. La géométrie et la préparation des languettes, échantillons spécifiques pour le dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions, sont présentés dans le chapitre quatre consacré à l'étude de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

II.3 Méthode d'analyse en Microscopie Electronique en Transmission

L'analyse expérimentale de l'effet de la contrainte et de la température sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été conduite grâce aux observations *post-mortem* en Microscopie Electronique en Transmission de lames minces irradiées aux ions Zr^+ . Le microscope utilisé pour ces caractérisations microstructurales est le JEOL 2100 du Laboratoire d'Analyse Microstructurale des Matériaux (LA2M) du CEA/SRMA. Ce microscope fonctionne avec une tension d'accélération des électrons de 200 keV et est équipé d'un filament LaB₆ et d'un détecteur GATAN GIF permettant d'acquérir des spectres de perte d'énergie d'électrons.

L'essentiel des observations MET effectuées dans le cadre de ce travail de thèse vise à caractériser la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Nous détaillons dans cette partie la méthode mise en œuvre pour mener à bien cette étude expérimentale.

II.3.1 Imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$

La visualisation d'un défaut cristallin en MET est obtenue en orientant le cristal suivant une position optimale de diffraction correspondant à la condition de deux ondes (un faisceau transmis et un seul faisceau diffracté). La famille des plans diffractés dépend du choix du vecteur de diffraction \vec{g} .

Comme décrit dans le premier chapitre, deux populations de boucles de dislocation se forment dans les alliages de zirconium irradiés: les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ caractérisées par leur grande densité et leur petite taille et les boucles à composante $\langle c \rangle$. Le contraste induit par les nombreuses boucles de dislocation $\langle a \rangle$ présentes dans la microstructure masque celui des boucles à composante $\langle c \rangle$ que nous souhaitons imager. Par conséquent, la visualisation des boucles à composante $\langle c \rangle$ nécessite une condition de diffraction optimale qui rend les boucles de type $\langle a \rangle$ invisibles. La condition d'extinction de ces boucles est obtenue pour un vecteur de diffraction perpendiculaire à leur vecteur de Burgers de type $1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$, la relation $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ étant alors vérifiée. Une orientation de la lame mince suivant une direction basale avec un vecteur de diffraction $\vec{g} = 0002$ permet d'éteindre les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Seuls les défauts dont le vecteur de Burgers possède une composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ sont observés. L'utilisation d'un vecteur de diffraction $\vec{g} = 0002$ facilite donc l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$. Il permet également de visualiser les dislocations de type $\langle c + a \rangle$.

L'extinction des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et la visualisation des boucles à composante $\langle c \rangle$ par un réflecteur $\vec{g} = 0002$ sont illustrées par la Figure II.3.1.

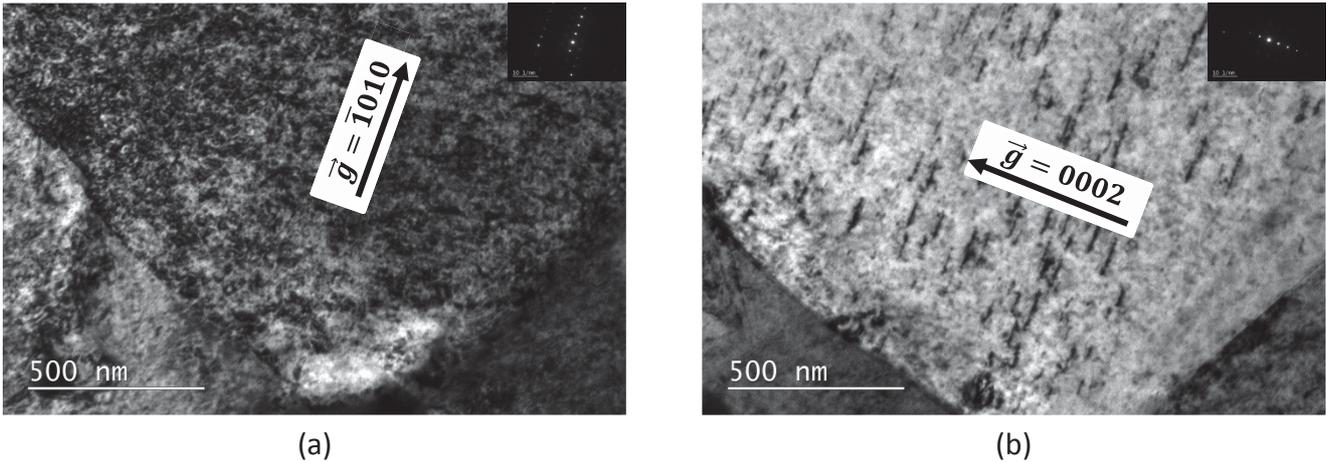


Figure II.3.1 – (a) Visualisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, $\vec{g} = \bar{1}010$ et axe de zone $\vec{B} = [\bar{2}4\bar{2}3]$ et (b) extinction des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ sur la tranche avec un $\vec{g} = 0002$.

L'obtention de la condition de diffraction optimale d'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ est facilitée pour des grains dont les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ sont contenus dans le plan de la lame mince (Figure II.3.2 (a)). Pour ces grains, la condition de diffraction $\vec{g} \parallel \langle c \rangle$ est plus facile à atteindre sans avoir à beaucoup tilter l'échantillon. Cette condition pour laquelle un grand nombre de grains présentent des axes $\langle c \rangle$ proches du plan de la lame mince constitue une des motivations du choix du produit TREX comme matériau d'étude.

En prenant un vecteur de diffraction $\vec{g} = 0002$, les plans de base des grains de structure hexagonale compacte sont quasi-parallèles au faisceau incident des électrons du microscope. Les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont visualisées sur la tranche et sont imagées par des segments continus (Figure II.3.2 (b), Figure II.3.1 (b)).

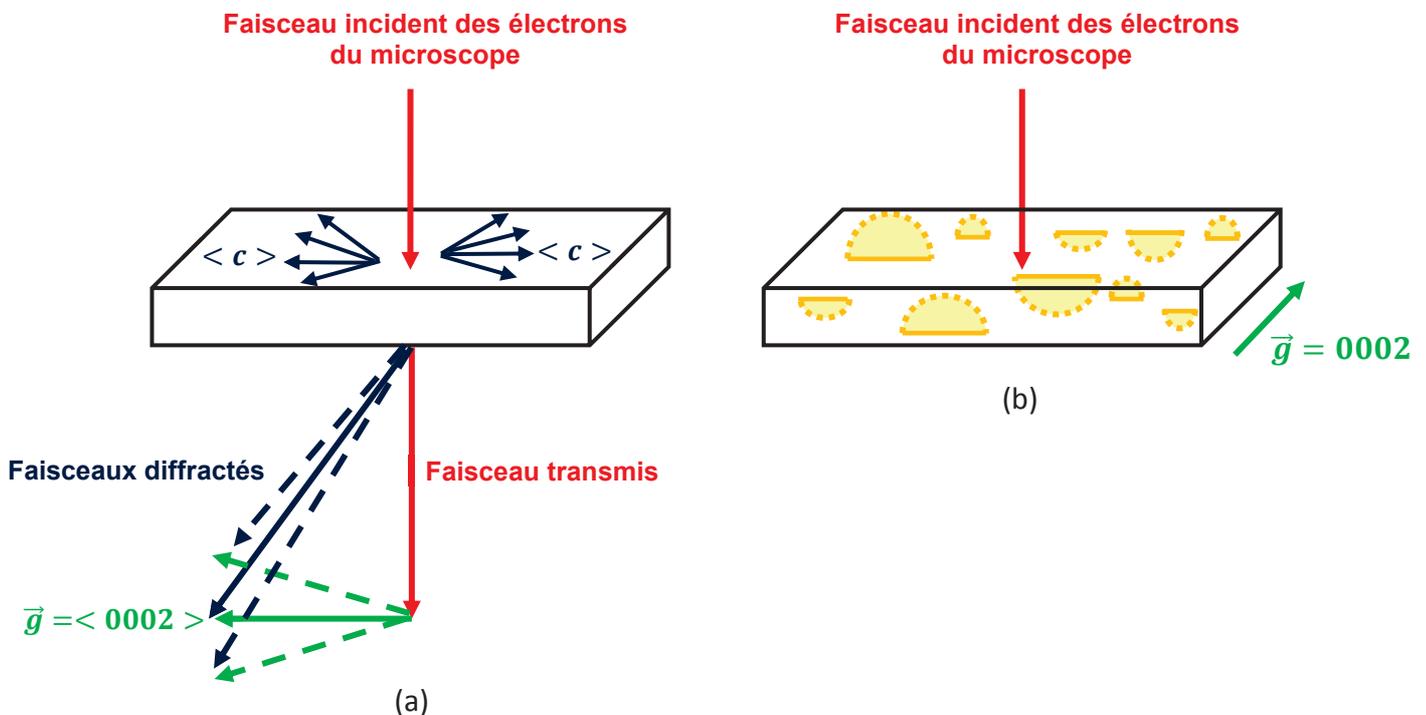


Figure II.3.2 – (a) Schématisation de l'obtention de la condition de diffraction optimale pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET et (b) imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ par des segments continus.

Deux aspects relatifs à la qualité de la surface de la lame mince peuvent compliquer l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET. Suite au polissage électrolytique, des phénomènes d'oxydation et d'hydruration peuvent avoir lieu dans la lame amincie ou percée. L'oxydation superficielle rend difficile la visualisation de la microstructure fine des défauts cristallins. Des hydrures superficiels sont également fréquemment observés dans les lames en alliages de zirconium. Ces artefacts de la préparation des lames minces induisent un contraste dans le plan basal qu'il convient de distinguer par rapport à celui des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour ce faire, il suffit d'inverser le vecteur de diffraction \vec{g} . Le contraste associé aux hydrures s'étale par le passage de $+\vec{g}$ à $-\vec{g}$ alors que celui des boucles à composante $\langle c \rangle$ reste symétrique [7] (Figure II.3.3). Dans le but d'atténuer la formation des hydrures, nous avons opté dans certains cas pour une solution électrolytique à base de méthanol (90% méthanol et 10% acide perchlorique) pour laquelle la température du polissage électrochimique peut être abaissée jusqu'à -20°C .

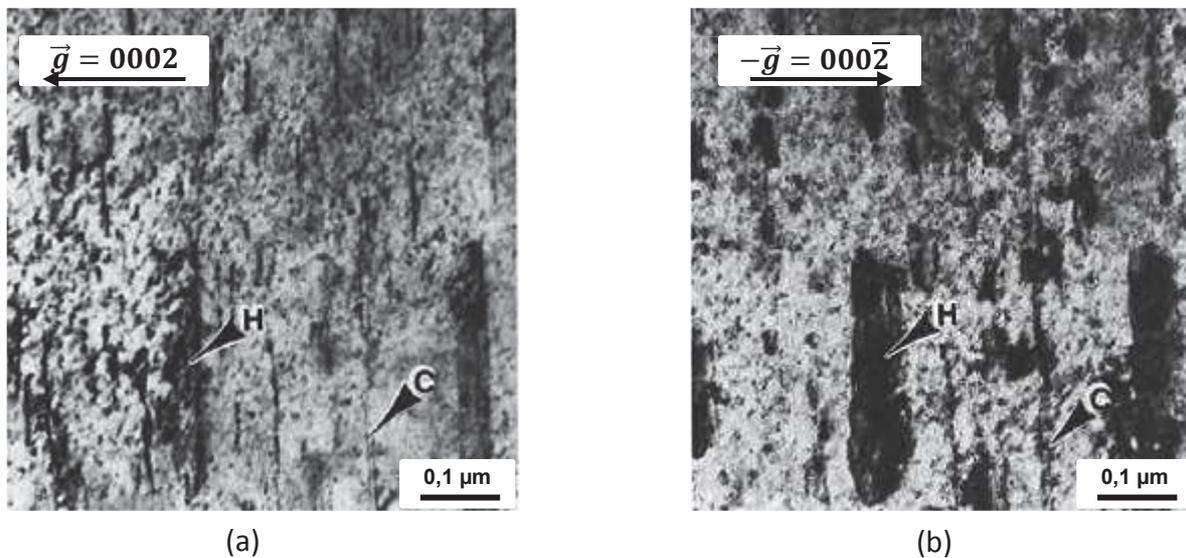


Figure II.3.3: Inversion du vecteur de diffraction \vec{g} de type $\langle 0002 \rangle$ pour distinguer le contraste d'une boucle à composante $\langle c \rangle$ (noté C) à celui d'un hydrure (noté H) – (a) $+\vec{g}$ et (b) $-\vec{g}$ [7].

II.3.2 Mesure d'épaisseur des grains par spectroscopie de perte en énergie des électrons (EELS)

Les électrons interagissent avec la matière par diffusion élastique, à grande distance de l'atome, et inélastique, à distance de l'ordre du rayon atomique. Lors de la diffusion élastique, les électrons sont déviés par les plans atomiques rencontrés au cours de leur traversée de la lame mince. Ce type d'interaction est à l'origine de la diffraction électronique, phénomène permettant la visualisation des défauts microstructuraux en MET. Au cours de la diffusion inélastique, les électrons incidents interagissent avec les électrons de la matière, perdent une partie de leur énergie et subissent une légère déviation. En fonction du transfert de l'énergie, ces interactions inélastiques peuvent conduire à des excitations de phonons, d'électrons ou à des ionisations des couches électroniques avec des émissions secondaires (photons X, électrons secondaires et électrons Auger). Sous l'effet du faisceau d'électrons incidents, le gaz des électrons faiblement liés de la matière oscille. L'énergie de ces oscillations, appelées plasmons de surface, est caractéristique du matériau.

La spectroscopie de perte en énergie des électrons (EELS : Electron Energy Loss Spectroscopy) est une technique d'analyse des pertes d'énergie d'une partie des électrons incidents via les interactions inélastiques avec l'échantillon. Cette technique peut être mise en place sur un MET au moyen d'un spectromètre de dispersion en énergie des électrons et d'un détecteur (de type Gatan Image Filter dans notre étude) placés sous la colonne du microscope. Le spectre obtenu permet d'obtenir des informations chimiques sur le matériau (éléments chimiques constituant l'échantillon, leur composition

chimique, leur état de valence et le type de liaison avec les atomes voisins) mais également de déterminer son épaisseur en calculant le rapport entre l'intensité du pic élastique qui correspond aux électrons qui n'ont pas perdu leur énergie cinétique et l'intensité des pertes d'énergie par diffusion inélastique. Dans le cadre de ce travail de thèse, la spectroscopie EELS est appliquée à la détermination de l'épaisseur des différents grains de la lame mince.

Un exemple d'un spectre EELS acquis dans un grain d'une lame mince en Zircaloy-4 irradiée aux ions Zr^+ de 600 keV est donné dans la Figure II.3.4. Plusieurs régions de pertes d'énergie peuvent être distinguées :

- Le pic à $\Delta E = 0$ eV correspond au pic des électrons transmis et les électrons diffusés élastiquement qui n'ont pas perdu leur énergie. Ce pic est appelé pic élastique ou ZLP (Zero Loss Peak) ;
- Le premier pic à faible énergie ($\Delta E \cong 20$ eV) résulte de l'excitation des électrons peu liés aux atomes de la matière. Il est constitué de pertes d'énergie correspondant à la création de paires électron-trou, de transitions intra et interbandes de valence ou de conduction et aux résonances associées aux plasmons ;
- Au-delà de la région de pertes de faible énergie qui s'étend jusqu'à environ $\Delta E \cong 50$ eV, le spectre présente une décroissance rapide. La région de pertes de haute énergie correspond aux interactions du faisceau des électrons incidents avec les électrons de cœur de l'échantillon et principalement aux ionisations des couches électroniques.

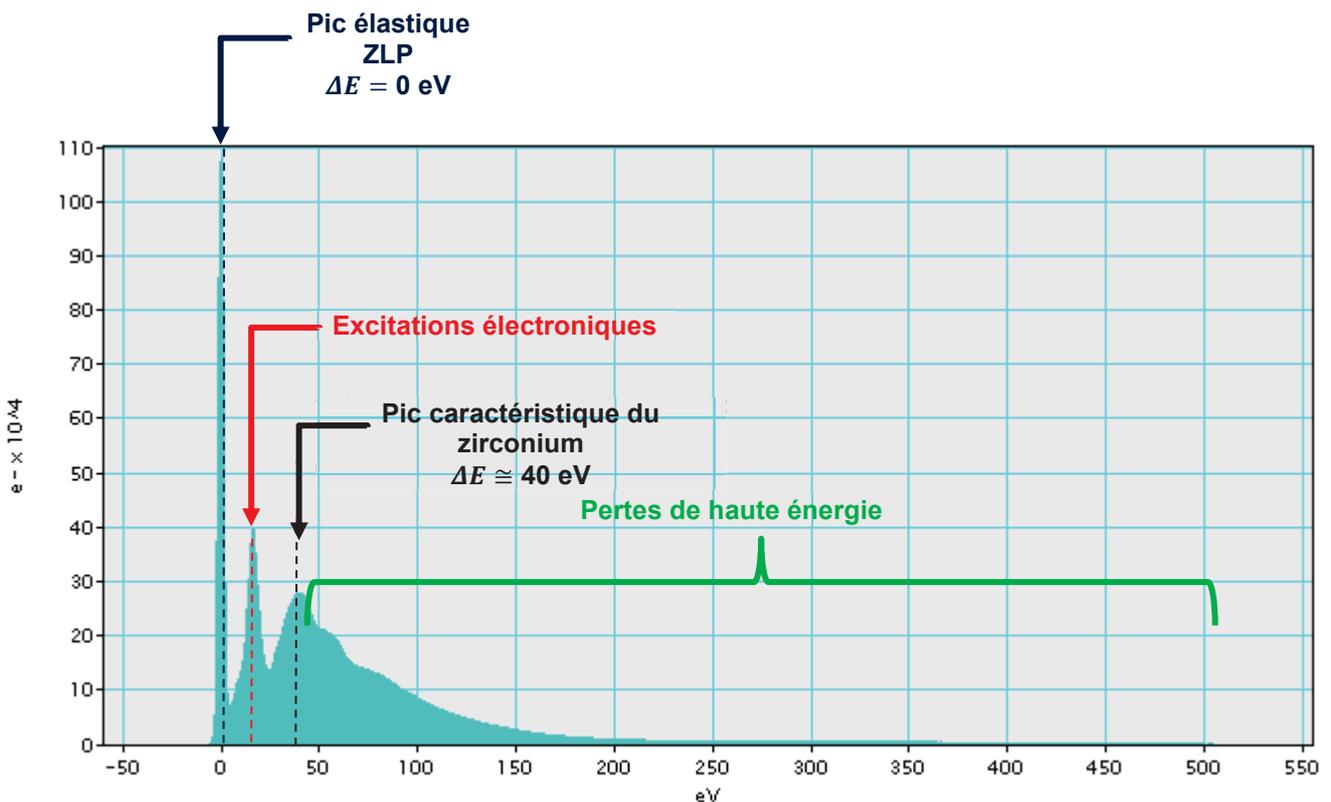


Figure II.3.4: Exemple d'un spectre EELS d'un grain d'une lame mince de Zircaloy-4 recristallisé TREX irradiée aux ions Zr^+ de 600 keV à une dose de 4,1 dpa.

L'épaisseur e d'un grain peut être directement liée au rapport entre l'intensité I_t des pertes d'énergie correspondant aux excitations et aux ionisations électroniques et l'intensité I_0 du ZLP à travers le modèle « log-ratio » défini par l'équation suivante :

$$\frac{e}{\lambda} = \ln\left(\frac{I_t}{I_0}\right) \quad \text{Eq. II.3.1}$$

Le paramètre λ donne le libre parcours d'excitation des plasmons. Il dépend du matériau et des conditions de mesure comme la tension d'accélération des électrons du microscope, l'angle de convergence du faisceau incident et l'angle de collection des électrons diffusés inélastiquement. Des mesures, réalisées dans le cadre d'une étude consacrée à la mise en place d'un protocole de mesure d'épaisseur par perte d'énergie des électrons sur le microscope JEOL 2100 équipé d'un détecteur Gatan Gif, ont permis de déterminer ce paramètre λ pour un alliage de zirconium recristallisé (Zircaloy-4) [8]. En prenant les mêmes conditions opératoires (angle de convergence, spot size, diaphragme condenseur, diaphragme de sélection d'aire, diaphragme d'ouverture, focalisation et longueur de caméra), la valeur de λ est de 115,67 nm.

Pour autant que le grain reste mince (rapport $\frac{e}{\lambda}$ inférieur à environ 2), la méthode de détermination de l'épaisseur par spectroscopie de perte en énergie des électrons présente une bonne précision comparée à d'autres méthodes comme l'utilisation des franges d'égale épaisseur ou les tâches de contamination. Les mesures d'épaisseur par spectroscopie EELS, réalisées sur des échantillons de Zircaloy-4 dans le cadre de l'étude présentée en [8], montrent une bonne cohérence avec les valeurs obtenues par la méthode de Convergent-Beam Electron Diffraction (CBED). Cette méthode CBED peut atteindre une bonne précision relative de $\pm 0,05$ mais est très complexe et consommatrice en temps [8].

Malgré la bonne précision des mesures d'épaisseur par EELS, nous tenons à identifier et à évaluer les possibles sources d'erreur. En plus d'une erreur sur la mesure du libre parcours λ et sur la détermination et l'application des conditions opératoires d'acquisition du spectre EELS, nous notons deux principales sources d'erreur :

- Deux méthodes sont possibles pour déterminer l'intensité I_0 du pic élastique. La première consiste à acquérir un spectre EELS dans le trou de la lame mince et d'utiliser l'option « Fit pre-measured Zero Loss » du logiciel *Digital Micrograph* qui permet d'ajuster le spectre total sur le spectre ZLP de référence. La deuxième procédure repose sur la symétrie du pic élastique du spectre acquis dans la zone d'intérêt (un grain de la lame mince) et consiste à utiliser l'option « Reflected Tail ». La validité de la mesure de I_0 dépend en particulier de la régularité du spectre acquis et de la précision de chacune de ces méthodes de déconvolution du ZLP à partir du spectre total. La comparaison des valeurs d'épaisseur obtenues par ces deux méthodes sur un ensemble de 25 grains nous donne une estimation de l'erreur absolue induite par l'imprécision de la mesure de l'intensité ZLP. Il a été noté que la valeur de $\frac{e}{\lambda}$ obtenue par l'application de la méthode « Reflected Tail » est supérieure à celle déduite par la méthode « Fit pre-measured Zero Loss », ceci pour l'ensemble des 25 grains étudiés et avec une erreur absolue moyenne de 20% ;
- Le modèle utilisé dans le cadre de nos études est le modèle le plus simple qui repose sur la méthode « log-ratio » (Eq. II.3.1). D'autres modèles d'analyse du spectre EELS peuvent être utilisés comme le modèle de la somme de Kramers-Kronig. Il a été montré dans [8] que les valeurs d'épaisseur obtenues par ces deux modèles sont assez semblables mais commencent à diverger vers un rapport $\frac{e}{\lambda}$ de 1, à moins d'une correction du paramètre λ ou d'un ajustement de l'indice de réfraction dans le modèle de la somme de Kramers-Kronig. Ces ajustements et le choix du modèle peuvent induire des erreurs d'évaluation de la mesure de l'épaisseur.

Par ailleurs, des spectres ont été acquis dans différents points d'un même grain. Nous avons ainsi vérifié l'homogénéité de la mesure de l'épaisseur du grain.

II.3.3 Quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$

Le comptage et la quantification des grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$ ont été réalisés sur un ensemble de micrographies MET recouvrant la surface du grain étudié. Pour une distribution spatiale homogène de ces boucles dans le grain, il suffit de sélectionner quelques clichés MET pour la comptabilisation de ces défauts. En revanche, pour une distribution plus hétérogène, il est indispensable d'acquérir plusieurs clichés représentatifs du grain. La quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans un grain donné est ensuite obtenue par une moyenne des quantifications effectuées sur l'ensemble des clichés pris dans ce grain.

Cette méthode a été mise en place grâce à l'utilisation d'une tablette connectée au logiciel de traitement d'images (*Visilog 7 Xpert*). Les boucles à composante $\langle c \rangle$, imagées par des segments continus en MET (§ II.3.1), sont retracées sur l'écran de la tablette en utilisant un stylet ou la souris. La surface d'analyse est définie par l'utilisateur. Il est possible qu'un cliché comporte une zone bien contrastée de boucles à composante $\langle c \rangle$ et une zone qui l'est moins ou qui se trouve hors contraste. Ces zones là doivent être exclues de la surface d'analyse pour éviter des erreurs de comptage. Le contraste et le grandissement du cliché visualisé sur la tablette peuvent être bien réglés pour faciliter la distinction et la comptabilisation des boucles.

Les grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$ déterminées à partir de cette méthode d'analyse numérique sous *Visilog* appliquée pour chaque cliché MET sont : la densité volumique, le diamètre moyen et la densité linéique. La densité volumique est définie comme le nombre total des boucles par unité de volume (m^{-3}) et la densité linéique comme la somme des longueurs des boucles par unité de volume (m^{-2}). La densité linéique a été introduite comme grandeur caractéristique de la population des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cette quantité est en effet plus représentative de la microstructure de ces défauts que les deux autres grandeurs (densité volumique et diamètre moyen) dans le cas où les boucles sont de grande taille et sont tronquées par les surfaces libres d'une lame mince.

Un critère a été établi de manière à éviter toute erreur de comptage des boucles à composante $\langle c \rangle$. En effet, un contraste aligné dans le plan basal est considéré comme une boucle uniquement lorsque la taille est supérieure à 9 nm et la largeur est inférieure à 2 nm. Autrement, il est difficile d'affirmer que le contraste observé correspond bel et bien à une boucle à composante $\langle c \rangle$.

La principale source d'erreur de détermination de la densité volumique et linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ est la mesure de l'épaisseur (§ II.3.2). Le traçage du diamètre des boucles et leur comptabilisation dépend de l'œil de l'expérimentateur.

II.3.4 Analyse de l'orientation cristallographique des grains par rapport au repère macroscopique

Une démarche a été mise en place pour déterminer l'orientation cristallographique des grains par rapport au repère macroscopique et plus précisément pour calculer l'angle θ entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain et la direction d'application de la contrainte macroscopique ainsi que l'angle λ entre l'axe $\langle c \rangle$ et la normale au plan de la lame mince. Ces deux angles présentent un intérêt particulier pour notre étude portant sur l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ Chapitre 4).

Tout d'abord, lors de l'étape de préparation des disques de lames minces, nous prenons le soin de faire un méplat servant de repérage de la direction transverse (DT) du tube TREX (Figure II.3.5), les lames étant prélevées dans le plan (DT-DR)). Afin de faciliter l'obtention de la condition de diffraction optimale pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET (§ II.3.1), la direction transverse,

direction d'orientation préférentielle des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ des grains du produit TREX (§ II.1.1), est alignée suivant l'axe de tilt principal TX du porte-objet double tilt du microscope JEOL 2100 (Figure II.3.5). La Figure II.3.5 (b) donne l'orientation des axes de tilt de ce porte-objet par rapport à l'horizontale et à la verticale de l'écran de projection du microscope. Pour simplifier la détermination de l'orientation cristallographique des grains, nous ramenons, lors de l'analyse des clichés de diffraction, l'axe de tilt TX à la verticale en tournant ces clichés d'un angle de -26° .

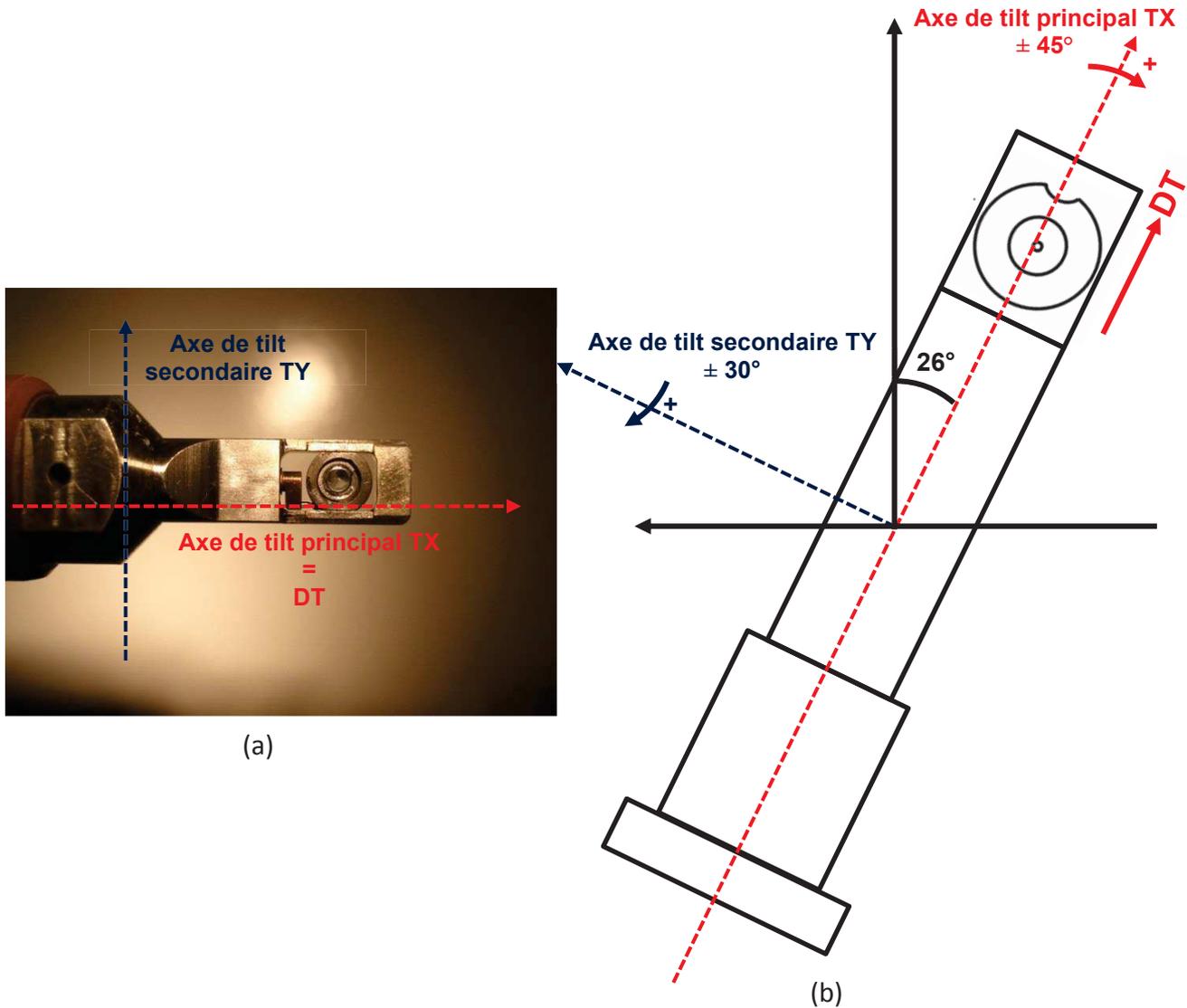


Figure II.3.5 – (a) Positionnement d'une lame mince sur le porte-objet double tilt du microscope JEOL 2100 avec un alignement de la direction transverse sur l'axe de tilt principal TX et (b) orientation des axes de tilt TX et TY par rapport à l'horizontale et la verticale de l'écran de projection du microscope.

Pour déterminer précisément l'orientation cristallographique d'un grain à tilt nul, il faut généralement commencer par déterminer les indices de l'axe de zone. Deux axes de zone sont proches de la condition de diffraction $\vec{g} = 0002$ pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$: les axes de zone de type $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ (Figure II.3.6 (a)) et $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (Figure II.3.6 (b)). Ces axes peuvent être identifiés par leur forme et la mesure des distances entre les tâches diffractées. Dans notre étude, nous avons utilisé principalement l'axe de zone de type $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. L'axe de zone peut être aussi déterminé en utilisant le logiciel *CaRIne Crystallography*. Pour cela, il suffit d'effectuer une rotation autour de la normale au plan de projection de l'angle mesuré entre une direction de l'axe de zone et l'axe de tilt TX ou TY. Cette étape est illustrée par un exemple donné en Figure II.3.7 (a) où l'angle entre la direction $\langle 0002 \rangle$ et l'axe TY est de 83° . Nous vérifions ainsi que l'axe de zone obtenu sur *CaRIne*

Crystallography (Figure II.3.7 (b)) est bien celui déterminé expérimentalement (Figure II.3.7 (a)). Par la suite, en réalisant des rotations inverses tout d'abord suivant TX puis TY, nous retrouvons l'orientation cristallographique du grain à tilt nul. Les angles de rotation correspondent à ceux déterminés lors des observations en MET. Il est important de noter qu'un ordre doit être bien suivi lors de l'application des rotations inverses (suivant TX puis TY) et des tilts (suivant TY puis TX).

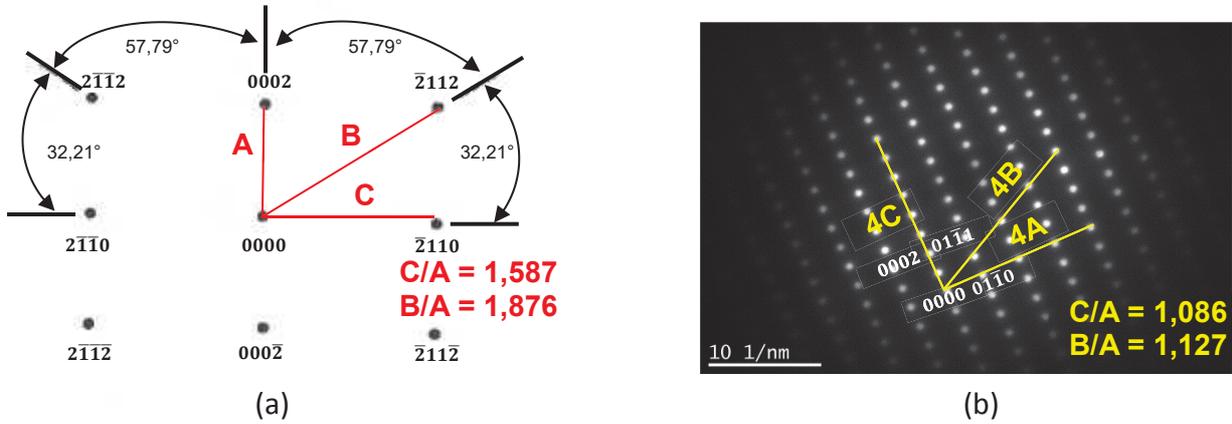


Figure II.3.6: Les deux axes de zone proches de la condition de diffraction $\vec{g} = 0002$
 - (a) axe de zone $\vec{B} = [01\bar{1}0]$ et (b) axe de zone $\vec{B} = [2\bar{1}\bar{1}0]$.

La projection stéréographique du grain à tilt nul dans le plan du porte objet (TX-TY) est obtenue par une rotation inverse de $+36,3^\circ$ suivant TX et de $-9,8^\circ$ suivant TY, dans l'exemple de la Figure II.3.7.

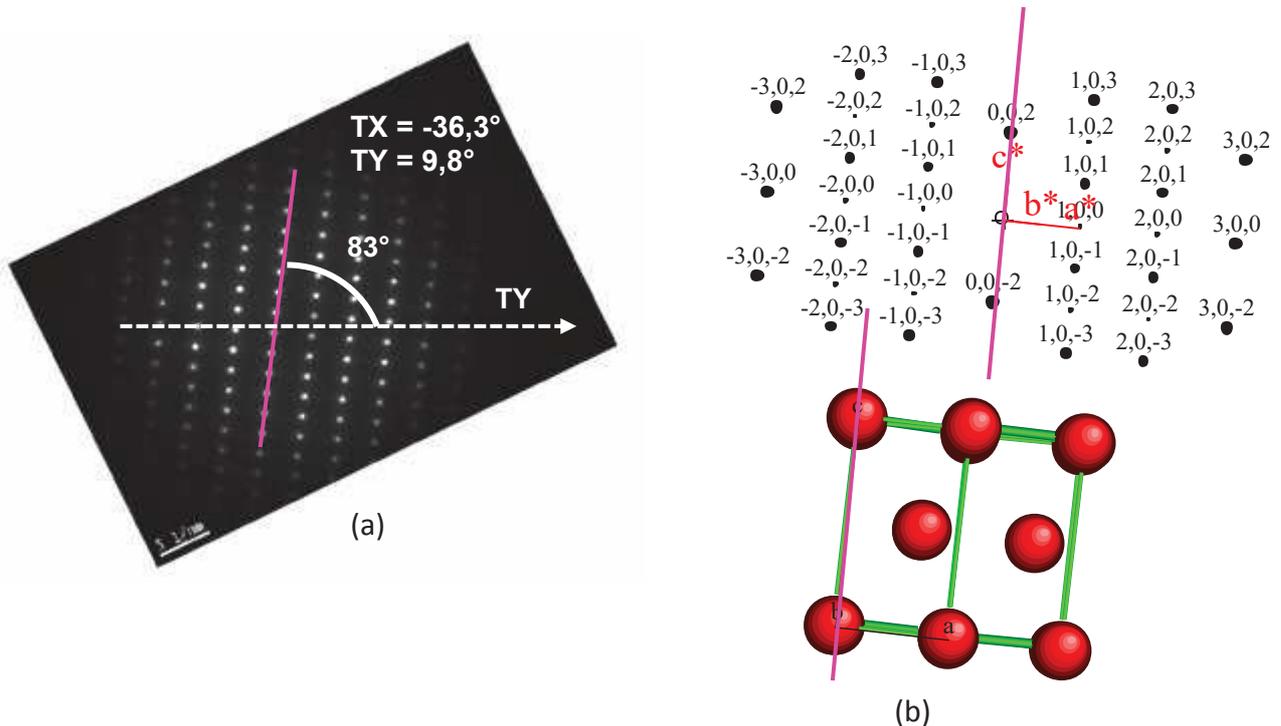


Figure II.3.7 – (a) Détermination de l'angle entre la direction $\langle 0002 \rangle$ et l'axe TY dans un cliché de diffraction en axe de zone $\vec{B} = [1\bar{2}10]$, ce cliché a été préalablement tourné de -26° et (b) axe de zone $\vec{B} = [1\bar{2}10]$ reproduit par le logiciel *CaRIne Crystallography*.

Enfin, il suffit d'appliquer les rotations suivant TX et TY à partir de l'orientation du cristal à tilt nul pour obtenir la condition de diffraction $\vec{g} = 0002$ qui a servi à imager les boucles à composante $\langle c \rangle$. Cette

condition a été obtenue pour des tilts de $9,8^\circ$ en TY et de $-29,2^\circ$ en TX pour le cas d'étude présenté ici (Figure II.3.8).

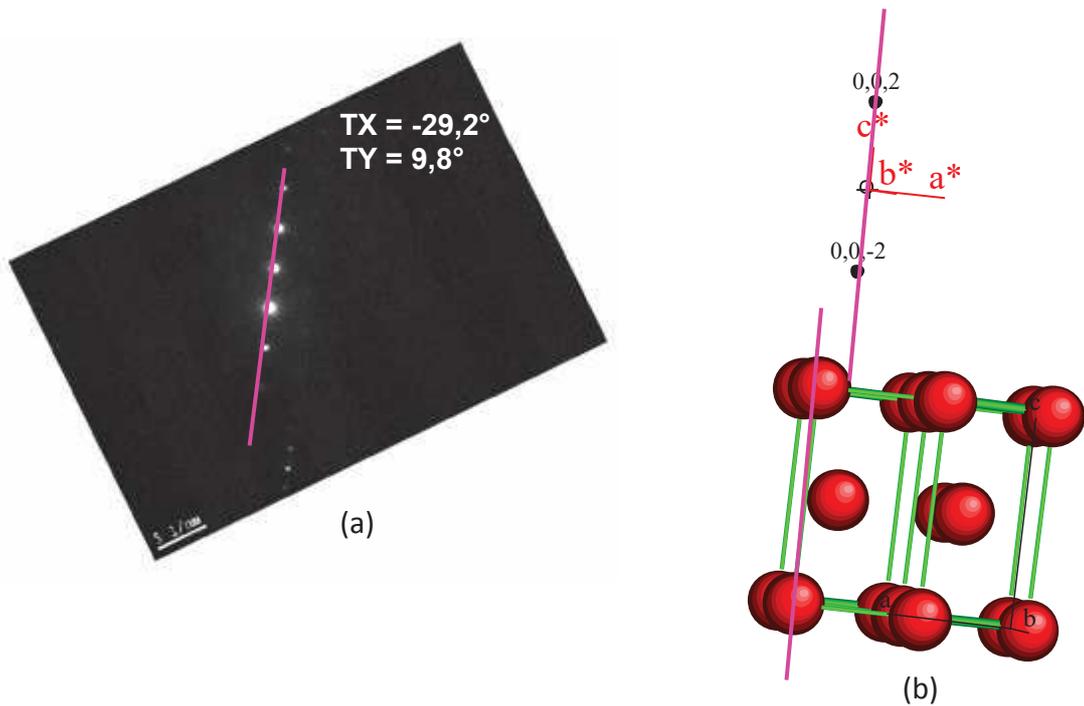


Figure II.3.8 – (a) Cliché de diffraction $\vec{g} = 0002$ et (b) orientation en $\vec{g} = 0002$ reproduite par le logiciel *CaRIne Crystallography*.

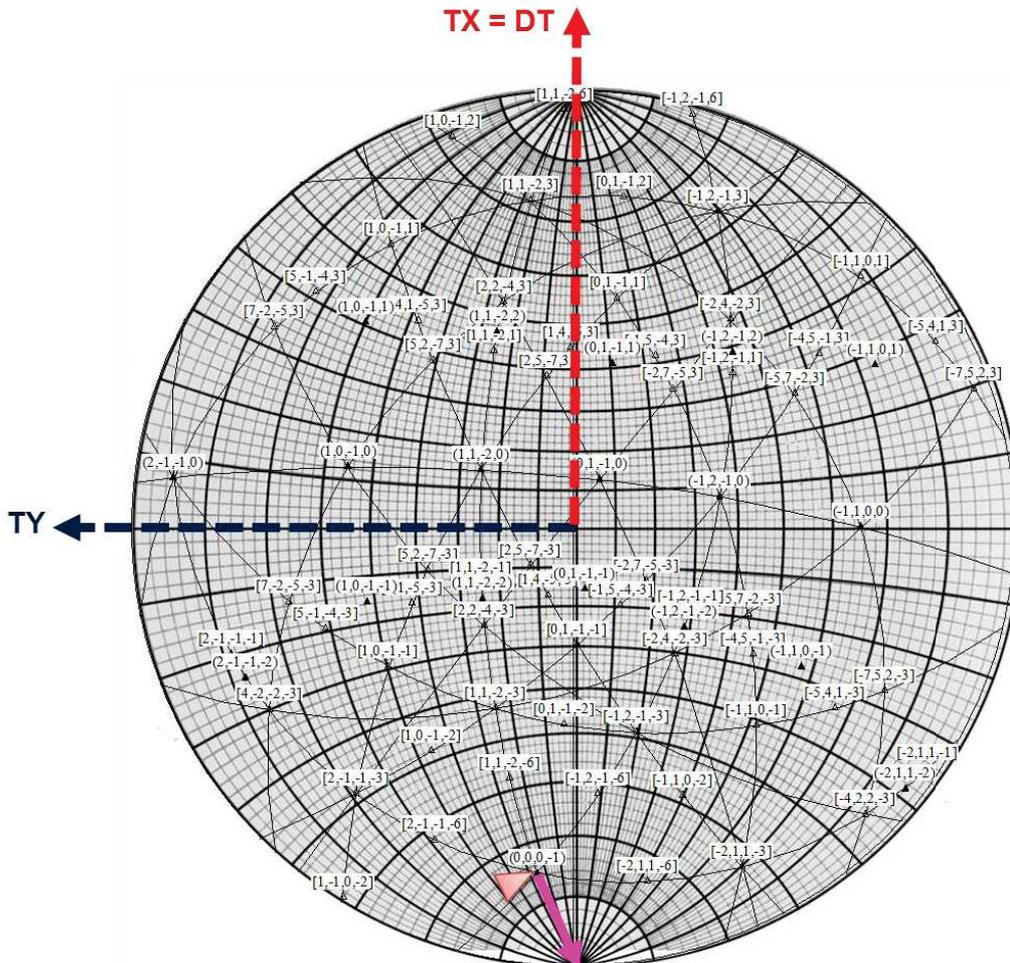


Figure II.3.9: Détermination de l'orientation de l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ par rapport à la direction d'application de la contrainte DT alignée suivant TX ($\theta = 14^\circ$ pour le grain exemple).

Pour l'étude de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ Chapitre 4), nous avons besoin de déterminer l'angle θ entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain et la direction d'application de la contrainte macroscopique qui correspond à DT (et donc à TX). Pour ce faire, nous utilisons la projection stéréographique du grain à tilt nul et l'abaque de Wulff (Figure II.3.9). L'orientation cristallographique complète du grain dans le repère macroscopique peut être définie par les trois angles d'Euler (φ_1 , ϕ et φ_2). L'abaque de Wulff est tourné de telle manière que le pôle (0001) soit positionné sur son équateur. Ainsi, φ_1 correspond à l'angle entre l'axe TX et l'intersection du plan de base avec l'abaque (noté X'), ϕ à l'angle entre le pôle basal (0001) et la normale au plan (TX-TY) et φ_2 à l'angle entre le pôle $\{11\bar{2}0\}$ et X' (Figure II.3.10). L'angle d'Euler ϕ correspond à l'angle entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain et la normale au plan de la lame mince, cet angle sera appelé λ par la suite.

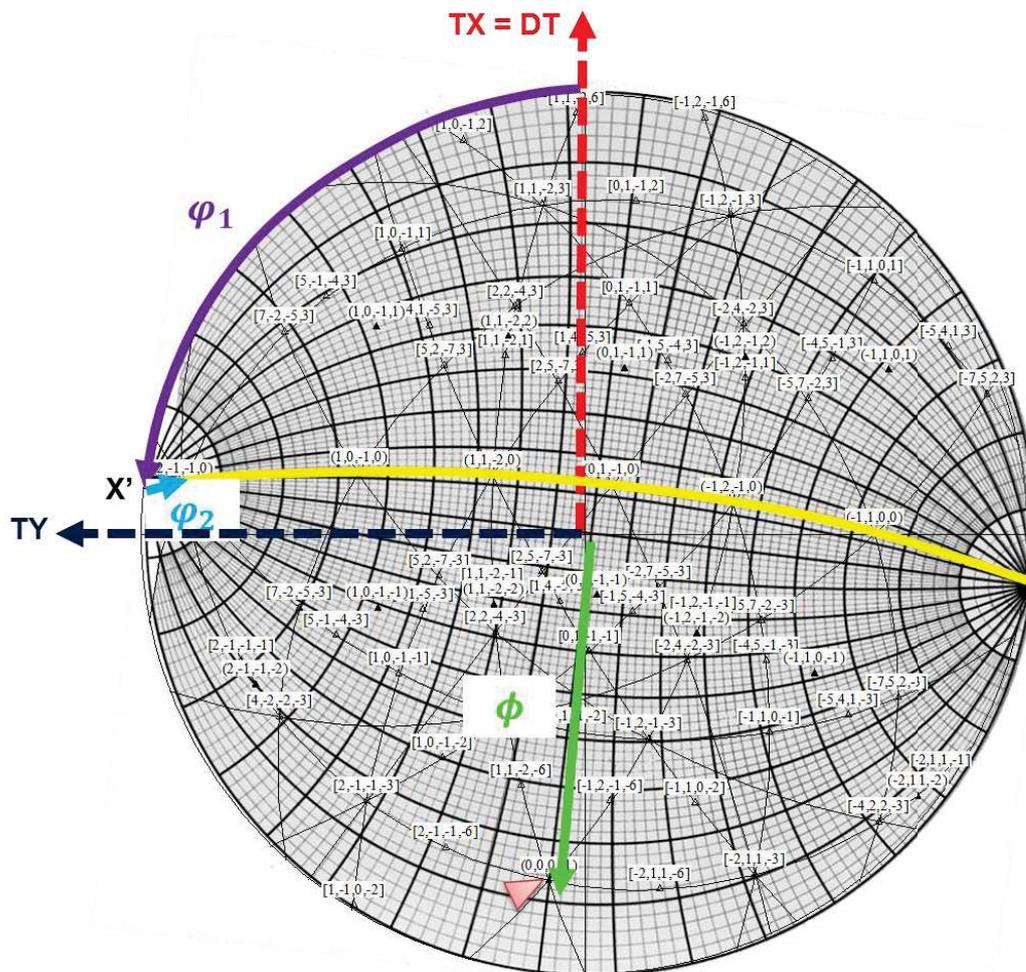


Figure II.3.10: Détermination des 3 angles d'Euler φ_1 , ϕ et φ_2 ($\varphi_1 = 86^\circ$, $\phi = -76^\circ$ et $\varphi_2 = -4^\circ$ pour le grain exemple).

D'autre part, nous proposons de reporter la direction d'application de la contrainte macroscopique DT dans le triangle standard défini par les directions cristallographiques $\langle 0001 \rangle$, $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $\langle 10\bar{1}0 \rangle$. Pour cela, nous repérons la direction DT = TX sur la projection stéréographique d'un grain donné dont le centre est ensuite ramené sur le pôle de base (0001). Il est alors possible de définir un angle $\varphi_{potaire}$ mais aussi de retrouver l'angle θ entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain et DT (Figure II.3.11). Cette représentation facilite la visualisation de l'orientation de l'axe $\langle c \rangle$ de chaque grain par rapport à DT, une donnée importante pour la compréhension du mécanisme à l'origine de l'effet de la contrainte sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ Chapitre 4). Ainsi, par exemple les grains G1, G3 sont soumis à une contrainte proche de leur axe

$\langle c \rangle$ (θ proche de 0°) alors que le grain G2 est sollicité perpendiculairement à son axe cristallographique $\langle c \rangle$ (θ proche de 90°) (Figure II.3.12).

De même que pour la direction d'application de la contrainte, il est possible de reporter la direction de la normale au plan de la lame mince dans un triangle standard de même type que celui représenté sur la Figure II.3.12. Cette représentation permet de visualiser l'orientation de l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ par rapport à la normale au plan de la lame mince donnée par l'angle λ .

Comme il sera décrit dans le chapitre quatre, l'étude expérimentale de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été menée sur un grand nombre de grains présentant diverses orientations cristallographiques. La procédure, détaillée ici, a été appliquée à de nombreux grains. Cependant, l'orientation à tilt nul de certains grains a été déterminée en se basant sur le cliché de diffraction $\vec{g} = 0002$ seulement et non pas sur l'axe de zone dont l'acquisition oblige dans certains cas de tilter l'échantillon suivant TY. La simplification de la méthode n'induit pas d'erreur sur les deux angles d'intérêt pour l'étude, θ et λ , déterminés avec une précision de $\pm 3^\circ$, ni sur l'angle d'Euler φ_1 . En effet, ces angles ne dépendent que de l'orientation de la direction $\langle 0002 \rangle$, donnée par le cliché de diffraction ou de l'axe de zone, par rapport à la direction d'application de la contrainte (DT) pour l'angle θ , la normale au plan (TX-TY) pour l'angle λ et TX pour l'angle φ_1 . En revanche, une erreur portera sur les angles φ_2 et φ_{polaire} du fait de l'indétermination sur l'axe de zone, $\{10\bar{1}0\}$ ou $\{11\bar{2}0\}$.

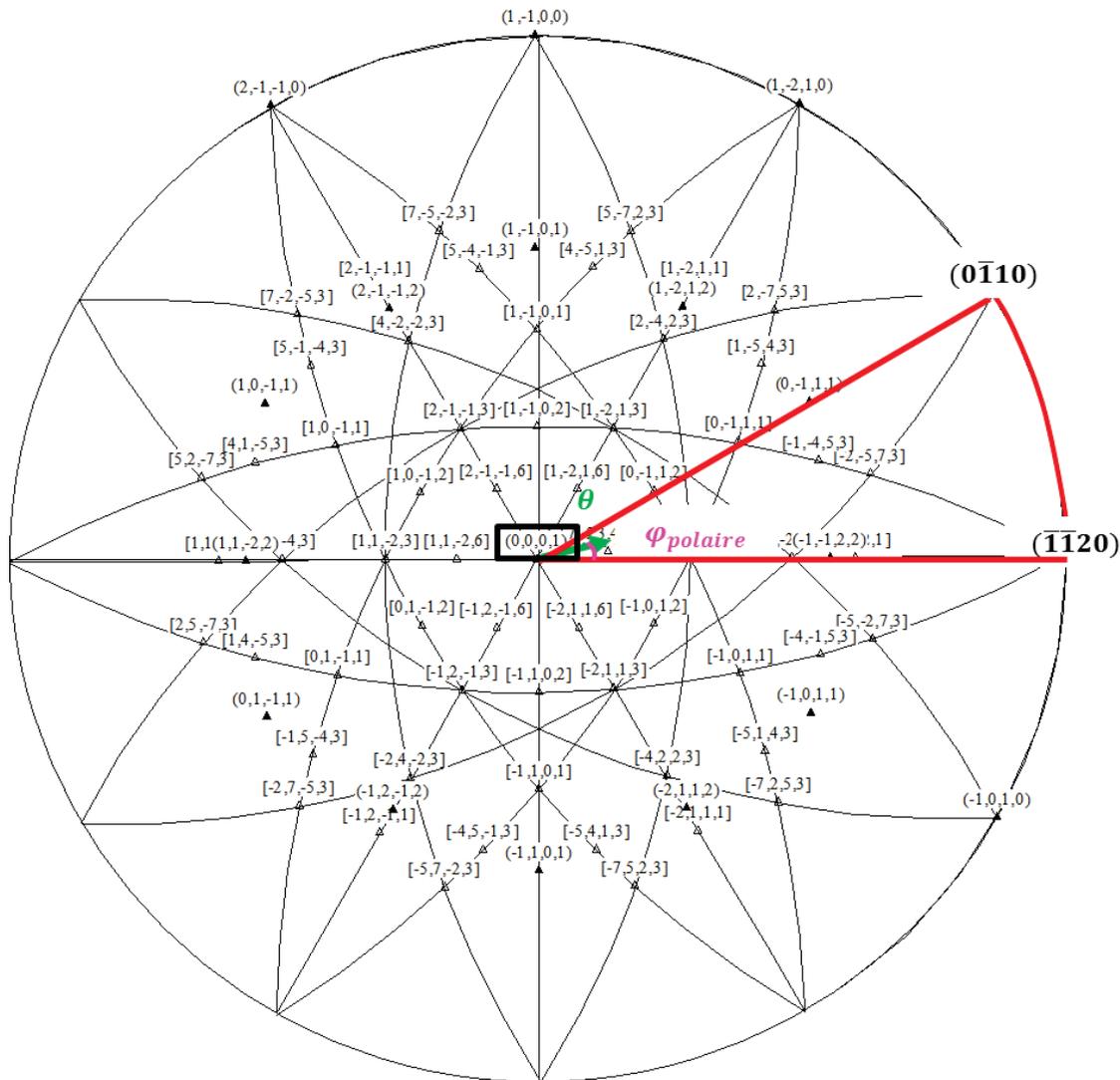


Figure II.3.11: Définition des angles θ et φ_{polaire} dans le triangle standard du grain étudié ($\varphi_{\text{polaire}} = 85,1^\circ$ et $\theta = 14,83^\circ$).

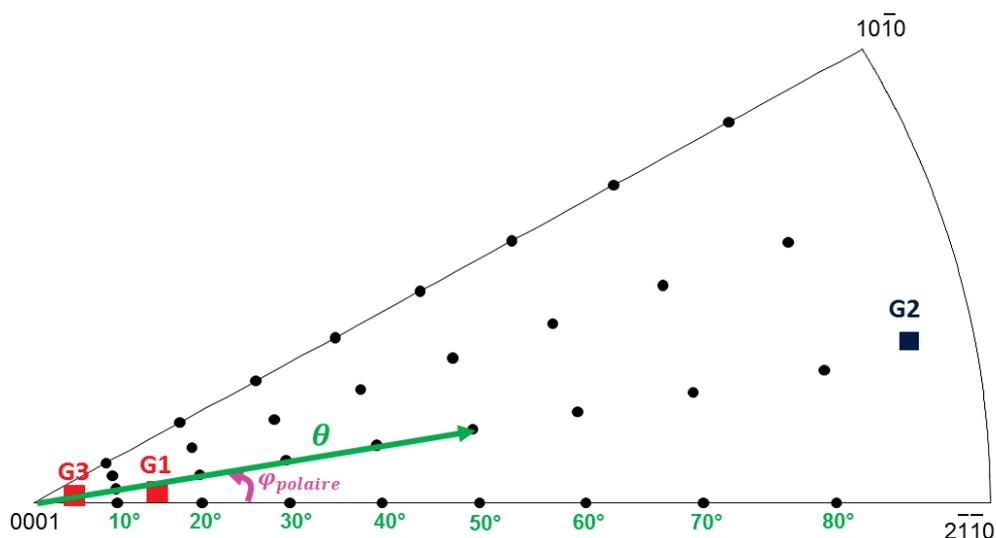


Figure II.3.12: Positionnement de l'orientation macroscopique DT de la direction d'application de la contrainte dans le triangle standard (G1 est le grain exemple : $\varphi_{polaire} = 85,1^\circ$ et $\theta = 14,83^\circ$).

II.4 Conclusions du chapitre 2

Ce chapitre introduit l'étude expérimentale portant sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par irradiation aux ions de deux alliages de zirconium, le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX. Le produit intermédiaire TREX a été choisi pour sa texture cristallographique transverse qui facilite l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET et pour son épaisseur plus importante que celle des tubes guides et des gaines. La caractérisation chimique, microstructurale et mécanique du TREX, à l'état de réception, a permis de vérifier sa représentativité par rapport aux produits finis. Les analyses montrent une homogénéité chimique dans l'épaisseur de ces tubes [1] et mettent en évidence la formation de précipités intermétalliques de même type que ceux observés dans les tubes finis (phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ dans le Zircaloy-4 et principalement des précipités $\beta-Nb$ dans le M5[®]). Par ailleurs, le Zircaloy-4 recristallisé TREX se caractérise par une microstructure avec des grains equiaxes, ceci dans les deux plans de prélèvement de normale DT et DA. Le M5[®] TREX, quant à lui, présente une microstructure similaire à celle du Zircaloy-4 dans le plan (DT-DR) mais se distingue par une hétérogénéité de la taille de ses grains et par la présence de zones non recristallisées dans le plan (DR-DA). Cette microstructure localement non recristallisée du M5[®] TREX est le résultat d'un traitement de recristallisation effectué au stade TREX à une plus faible température que pour le Zircaloy-4 TREX mais garantissant la microstructure de précipitation souhaitée au stade du tube M5[®] fini. Cependant, les deux nuances ne montrent pas de gradient de taille de grains dans l'épaisseur du tube. Les résultats des essais en dureté Vickers et en traction à 300 et 350°C sont cohérents avec l'anisotropie du comportement mécanique des alliages de zirconium TREX caractérisés par leur texture transverse. Ces derniers sont plus durs suivant DT, direction préférentielle d'orientation des axes cristallographiques $\langle c \rangle$, que suivant DA et leur limite d'élasticité est plus élevée suivant DT à 300 et 350°C. Il apparaît aussi qu'une élévation de la température diminue la limite d'élasticité de ces matériaux ainsi que l'anisotropie de leur comportement en traction.

En deuxième partie, ce chapitre donne une vue générale des conditions des irradiations aux ions réalisées dans le but de simuler l'endommagement créé par irradiation neutronique dans un réacteur de puissance. Par la suite, la méthode mise en place pour la caractérisation de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET et la détermination de l'orientation cristallographique du grain les contenant a été explicitée.

II.5 Références bibliographiques du chapitre 2

- [1] L. Tournadre, "Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium," Thèse de doctorat confidentielle, Université de la Rochelle, 2012.
- [2] J. P. Abriata and J. C. Bolcich, "The Nb-Zr (Niobium-Zirconium) System," *Bull. Alloy Phase Diagrams*, vol. 3, pp. 34–44, 1982.
- [3] Z. L. Pan, N. Wang, and Z. He, "Measurements of elastic modulus in Zr alloys for CANDU applications," in *Eleventh International Conference on CANDU Fuel*, 2010.
- [4] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, and X. Feaugas, "Toward a better understanding of the hydrogen impact on the radiation induced growth of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 222–231, Oct. 2013.
- [5] F. Onimus and J. L. Béchade, "Radiation Effects in Zirconium Alloys," *Compr. Nucl. Mater.*, vol. 4, pp. 1–31, 2012.
- [6] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. A. Garner, "On the use of SRIM for computing radiation damage exposure," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 310, pp. 75–80, Sep. 2013.
- [7] M. Griffiths, "A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 190–218, 1988.
- [8] A. Ould Amer, S. Doriot, J. Henry, B. Arnal, and T. Vandenberghe, "Mesure d'épaisseur par perte d'énergie sur un microscope JEOL 2100 équipé d'un détecteur GIF GATAN. Application à la détermination fine de la fraction volumique des aiguilles de β -Nb précipitant sous irradiation dans l'alliage M5[®] DEN/DANS/DMN/SRMA/LA2M/N," Note technique interne, CEA Saclay, 2011.

III. Chapitre 3

Etude expérimentale de l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

Ce chapitre porte sur la caractérisation microstructurale des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX irradiés aux ions zirconium à deux températures d'irradiation, l'objectif étant d'évaluer l'effet de la température sur la microstructure de ces défauts d'irradiation spécifiques. Pour cela, nous nous intéressons tout d'abord au choix des conditions d'irradiation, menées dans le cadre de cette étude, et au protocole expérimental mis en place. Les résultats microstructuraux sont par la suite présentés et analysés. Plus spécifiquement, la comparaison des microstructures de boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues aux ions à celles observées après irradiation aux neutrons nous permet de discuter la représentativité des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV. Enfin, l'effet de la température observé est confronté aux données bibliographiques. Une réflexion sur les mécanismes susceptibles de décrire l'influence de la température d'irradiation sur la formation et la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ est également engagée.

Pour des raisons de confidentialité, les résultats pour le Zircaloy-4 et le M5[®] portant sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à 400°C et l'effet de la température seront présentés dans une annexe confidentielle. Toutefois, nous dresserons dans ce chapitre un résumé public qui concerne les résultats de l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4, la confrontation des résultats expérimentaux aux données de la littérature et la réflexion sur les mécanismes à l'origine de cet effet.

Sommaire

III.1 Effet de la température sur les boucles à composante $\langle c \rangle$: état de l'art	105
III.2 Protocole expérimental	107
III.2.1 Choix des conditions d'irradiation.....	107
III.2.2 Qualification en température du porte-objet.....	109
III.3 Résultats microstructuraux : microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à 300°C.	111
III.4 Résumé public : effet de la température sur les boucles à composante $\langle c \rangle$	116
III.5 Références bibliographiques du chapitre 3.....	118

III.1 Effet de la température sur les boucles à composante $\langle c \rangle$: état de l'art

Le premier chapitre recense l'effet de la dose d'irradiation et des éléments d'alliage sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Concernant l'effet de la température, les études expérimentales ont porté essentiellement sur l'influence de ce facteur sur l'évolution de la cinétique de croissance des monocristaux et des alliages de zirconium (§ 1.3.1.1.2). Ainsi, il a été montré que dans la plage de température de fonctionnement en REP, l'accélération de croissance des alliages de zirconium dépend fortement de la température [1]–[4]. Cette dépendance se traduit par un effet double, à la fois sur la dose seuil du début du régime d'accélération de croissance mais également sur la vitesse et l'amplitude de la déformation atteinte au cours de ce stade. La dose seuil du début du stade d'accélération de croissance diminue lorsque la température augmente. Celle-ci accélère donc l'apparition du phénomène d'accélération de croissance dans les alliages de zirconium recristallisés et conduit également à une augmentation de leur vitesse et du taux de déformation final, pouvant atteindre des valeurs comparables à celles des alliages détendus. Afin de comprendre comment cet effet se manifeste à l'échelle microscopique, il semble judicieux d'examiner l'influence de la température sur la microstructure des défauts d'irradiation responsables de ce phénomène d'accélération de croissance dans les alliages recristallisés, les boucles à composante $\langle c \rangle$.

Rares sont les études expérimentales qui se sont focalisées sur l'effet direct de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Mais, il n'en demeure pas moins que plusieurs auteurs ont souligné qualitativement l'influence de la température sur la dose critique de nucléation, la nucléation et la croissance de ces défauts d'irradiation. Jostsons *et al.* [5], [6] ont été parmi les premiers à reporter un effet de la température d'irradiation sur la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Ces dernières n'apparaissent que pour une température d'irradiation élevée, à partir de 450°C, pour des échantillons de zirconium recristallisé de haute pureté irradiés jusqu'à une fluence neutronique de $1,3 \times 10^{25}$ n/m² dans le réacteur expérimental ORR (Oak Ridge Research Reactor). La température semble donc accélérer la germination et contribuer à la stabilisation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cet effet a été également signalé par Griffiths et Gilbert [7] qui ont constaté qu'à 77°C, aucune boucle à composante $\langle c \rangle$ n'est observée dans le Zircaloy-2 et le Zircaloy-4 irradiés aux neutrons ($E > 1$ MeV) jusqu'à une fluence neutronique de 6×10^{25} n/m² alors qu'à 427°C, ces boucles sont présentes dès les faibles fluences neutroniques (1×10^{25} n/m²). Simonot [8] a constaté la présence de boucles à composante $\langle c \rangle$ dans un tronçon de gaine en Zircaloy-4 détendu irradié 4 cycles (14 dpa) en REP à une température de 380°C. A 335°C, aucune boucle à composante $\langle c \rangle$ n'a été observée pour la même dose d'irradiation. Les observations microstructurales du zirconium et de ses alliages irradiés aux neutrons [7], [9] (§ 1.2.4.2.1) mais aussi aux électrons [10], [11] (§ 1.2.4.2.2) s'accordent sur le fait que la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ est inversement liée à la température d'irradiation. Comme précisé dans la partie 1.2.4.2.2, les boucles à composante $\langle c \rangle$ apparaissent à une dose critique d'environ 30 dpa pour des lames minces de Zircaloy-4 recristallisé irradiées aux électrons à 250°C [10]. A 300°C, cette dose seuil n'est plus que de 5 dpa. En plus de la dépendance de la germination et de la dose seuil de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$ à la température d'irradiation, de Carlan [10] suggère un effet sur leur croissance. A 300°C, la taille moyenne des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans du Zircaloy-4 irradié en REP à 18 dpa est de 115 nm et à 400°C, des échantillons de Zircaloy-2 irradiés en EBR II présentent des boucles de diamètre moyen de 180 nm. Toutefois, ces résultats doivent être considérés avec précaution puisque les irradiations n'ont pas été réalisées pour le même alliage ni avec le même flux neutronique, beaucoup plus élevé dans le réacteur EBR II que dans un REP. Les campagnes d'irradiation aux électrons des lames minces de Zircaloy-4 montrent une augmentation de la densité de longueur des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la température d'irradiation [10]. Cette densité a été évaluée en comptant le nombre d'intersections des boucles avec un réseau de traits parallèles à la direction $\langle 0001 \rangle$. Par ailleurs, la distribution spatiale des boucles à composante $\langle c \rangle$ apparaît plus homogène à température élevée.

Une étude, menée par irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} de 1 MeV sur du zirconium pur à des faibles doses allant de 0,008 à 1 dpa, apporte des éléments bibliographiques contradictoires concernant l'effet de la température sur la dose de nucléation et la microstructure des boucles à composante < c > [12]. A 400°C, les boucles à composante < c > apparaissent à partir d'une dose de 0,8 dpa. La dose critique est de 1 dpa à 500°C (§ I.2.4.2.3). Ce résultat vient contredire les observations détaillées précédemment [7], [9], [10]. Selon Idrees *et al.* [12], les contraintes intergranulaires stabiliseraient les boucles à composante < c >. La relaxation de ces contraintes à haute température serait à l'origine de l'augmentation de la dose seuil d'apparition des boucles à composante < c > [12]. D'autre part, les auteurs reportent un effet de la température sur le nombre de boucles par unité de surface qui semble diminuer avec la température. La taille, quant à elle, apparaît insensible à l'évolution de la température, de 300 à 500°C. Ces constatations doivent être appréhendées avec prudence au vu de deux limites : la faible plage de dose d'irradiation explorée et le comptage de la densité des « défauts » dont la petite taille rend difficile la distinction entre les boucles de dislocation < a >, les boucles à composante < c > et les artefacts de préparation des lames minces comme les hydrures superficiels. Plus récemment, Idrees *et al.* [13] ont examiné l'effet de la température sur la formation des boucles à composante < c > dans un alliage de zirconium Excel de composition Zr-3,5%Sn-0,8%Nb-0,8%Mo-0,2%Fe au moyen de campagnes d'irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} de 1 MeV jusqu'à une dose de 10 dpa. Les résultats confirment la dépendance « classique » de la dose seuil d'apparition des boucles à composante < c > à la température d'irradiation. Contrairement aux conclusions de son étude antérieure portant sur le zirconium pur irradié aux ions Kr^{2+} de 1 MeV à faible dose [12], les analyses microscopiques réalisées dans l'alliage Excel montrent que l'augmentation de la température d'irradiation diminue la dose critique à partir de laquelle les boucles à composante < c > sont visibles en MET. Ainsi, à 100°C, la dose de nucléation de ces boucles est de 5,8 dpa dans l'alliage zirconium Excel trempé. A 300°C, les boucles à composante < c > apparaissent à 3,5 dpa alors qu'à 400°C, leur formation est détectée à partir de la dose de 2,7 dpa. Ces résultats rejoignent donc ceux obtenus à l'issue des irradiations aux neutrons [7], [9] et aux électrons [10], [11]. L'effet de la température d'irradiation sur la taille et la densité surfacique des boucles à composante < c >, reporté lors de cette étude [13], est assez surprenant. En effet, il semble que, pour une dose d'irradiation donnée, le diamètre moyen et le nombre de boucles par unité de surface augmentent en passant d'une température d'irradiation de 100 à 300°C. En revanche, ces deux grandeurs caractéristiques de la microstructure des boucles à composante < c > diminuent à 400°C. D'après Idrees [13], la formation de petits amas d'étain à 400°C qui agissent comme des pièges pour les lacunes diminuerait la concentration de lacunes présentes dans la matrice de zirconium, réduisant ainsi la croissance des boucles à composante < c >. Cette explication reste à confirmer ou à infirmer puisque les simulations atomistiques tendent à montrer une faible interaction des lacunes avec l'étain [14].

L'ensemble de ces travaux souligne l'importance de l'interaction entre les défauts ponctuels et les solutés lors de l'étude d'un quelconque effet de la température sur la formation et la croissance des boucles à composante < c >. Au vu de la diversité des éléments chimiques présents dans les alliages de zirconium (Tableau I.1.2), il semble difficile de déconvoluer les différents effets. Il convient néanmoins de tenir compte de ces interactions solutés/défauts ponctuels lors de l'interprétation des résultats portant sur l'effet de la température.

Notre étude expérimentale prend tout son intérêt, face à si peu de données quantitatives de l'influence de la température d'irradiation sur les boucles à composante < c >. Elle portera uniquement sur l'effet de la température sur la microstructure (densité volumique, densité linéique et taille) de ces boucles dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX, l'analyse de l'effet sur la dose seuil de nucléation nécessitant des irradiations *in-situ*.

III.2 Protocole expérimental

III.2.1 Choix des conditions d'irradiation

Le choix du type et de l'énergie des ions incidents a été justifié dans la partie II.2. Nous nous intéressons ici, plus spécifiquement, à la définition de la température d'irradiation qui constitue le paramètre d'étude de l'évolution microstructurale des boucles à composante < c > dans ce chapitre. Pour ce faire, nous nous sommes basés sur deux critères visant à se rapprocher des conditions d'irradiation aux neutrons dans un réacteur de puissance de type REP :

- Des données expérimentales portant sur la microstructure des boucles à composante < c > formées dans les deux alliages, le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX, irradiés aux ions Zr⁺ de 600 keV à une température de **300°C** ont été obtenues au cours de l'étude de l'effet de la contrainte (§ Chapitre 4). Dans cette étude, les échantillons sont des languettes dont une des faces a été polie par polissage électrolytique. Parmi les échantillons, des languettes, appelées « témoins », ont été irradiées sans l'application d'aucun chargement mécanique. Ce sont les observations microstructurales effectuées dans ces échantillons « témoins » que nous considérons pour cette étude de l'effet de la température, et ceci pour les trois doses d'irradiation examinées : **2,9, 4,1 et 7 dpa**. Ainsi, nous disposons de données quantitatives sur la densité et la taille des boucles à composante < c > pour une température se trouvant dans le domaine de fonctionnement normal d'un REP ;
- Le deuxième critère s'appuie sur la détermination de la température d'irradiation associée au taux de création de dommage par les ions zirconium de 600 keV permettant de simuler l'irradiation neutronique, et plus précisément d'obtenir le même nombre de défauts ponctuels diffusant vers les puits de la microstructure. Ce critère peut se traduire par la relation suivante [15] où E_m^v est l'énergie de migration de la lacune, E_f^v son énergie de formation, k la constante de Boltzmann, T_i ($i = 1$ ou 2) la température d'irradiation et G_i ($i = 1$ ou 2) le taux de création de dommage en dpa/s :

$$T_2 - T_1 = \frac{\left(\frac{k T_1^2}{E_m^v + 2E_f^v} \right) \ln \left(\frac{G_2}{G_1} \right)}{1 - \left(\frac{k T_1}{E_m^v + 2E_f^v} \right) \ln \left(\frac{G_2}{G_1} \right)} \quad \text{Eq. III.2.1}$$

Considérons les conditions d'irradiation typiques des tubes guides dans un REP, avec une température T_1 de 320°C et un taux de création de dommage G_1 de $6,6 \times 10^{-8}$ dpa/s. En prenant un taux de création de dommage G_2 de 4×10^{-4} dpa/s, caractéristique des irradiations aux ions Zr⁺ de 600 keV sur l'accélérateur ARAMIS (Tableau III.2.1), une énergie de formation des lacunes de 2,07 eV [16] et une énergie de migration de 0,65 eV [17], l'équation Eq. III.2.1 donne une variation de température $T_2 - T_1$ de 61°C et donc une température d'irradiation aux ions T_2 de 381°C. Par conséquent, la deuxième température choisie pour les irradiations aux ions Zr⁺ de 600 keV est de **400°C**. Il est important de remarquer que cette température est inférieure à la température de recristallisation.

La campagne d'irradiation aux ions zirconium à 400°C a été réalisée sur des lames minces de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX. Pour comparer les résultats de caractérisation microstructurale des boucles à composante < c > à cette température avec ceux obtenus à 300°C, deux doses d'irradiation, **4,1 et 7 dpa**, ont été étudiées. La campagne d'irradiation à 400°C s'est effectuée en deux étapes. Premièrement, un premier diaphragme est disposé pour sélectionner une première zone irradiée par les ions zirconium jusqu'à une dose de 2,9 dpa. Cette première zone couvre 7 lames minces de Zircaloy-4 recristallisé TREX et 8 lames de M5[®] TREX, placées dans le

porte-objet (Figure III.2.3). Une fois cette première dose atteinte, le premier diaphragme est déplacé hors de la zone d'irradiation et un second est placé sur l'ensemble des échantillons (13 lames de Zircaloy-4 recristallisé TREX et 14 lames de M5[®] TREX) qui sont irradiés, à cette deuxième étape, avec une dose supplémentaire de 4,1 dpa. Ainsi, la première moitié des échantillons est irradiée à 7 dpa au total et la deuxième moitié à 4,1 dpa. En suivant ce protocole, il est donc possible d'obtenir les deux doses d'irradiation (4,1 et 7 dpa) au cours de la même expérience. Le choix d'irradier d'abord une zone à 2,9 dpa puis la totalité à 4,1 dpa supplémentaire permet d'éviter de recuire les défauts d'irradiation.

Le Tableau III.2.1 résume l'ensemble des conditions des irradiations aux ions zirconium de 600 keV menées dans le but d'étudier l'effet de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles à composante < c >.

Tableau III.2.1: Conditions des irradiations aux ions Zr⁺ de 600 keV menées dans le cadre de l'étude de l'effet de la contrainte (échantillons « témoins » à 300°C) et de l'effet de la température (lames minces à 400°C).

Température d'irradiation (°C)	Fluence (ions/cm ²)	Flux moyen (ions/cm ² /s)	Taux de création de dommage (dpa/s)	Temps d'irradiation (heure)	Dose (dpa)
300	4,8×10 ¹⁴	5,76×10 ¹⁰	3,50×10 ⁻⁴	2 h 19 min	2,9
	6,7×10 ¹⁴	7,44×10 ¹⁰	4,53×10 ⁻⁴	2 h 30 min	4,1
	11,5×10 ¹⁴	6,63×10 ¹⁰	4,03×10 ⁻⁴	4 h 49 min	7
400	6,7×10 ¹⁴	6,81×10 ¹⁰	4,14×10 ⁻⁴	2 h 44 min	4,1
	11,5×10 ¹⁴	5,24×10 ¹⁰	3,19×10 ⁻⁴	6 h 06 min	7

Les profils de dommage pour les trois fluences d'irradiation aux ions Zr⁺ de 600 keV (4,8×10¹⁴, 6,7×10¹⁴ et 11,5×10¹⁴ ions/cm²), calculés à partir des simulations *SRIM* sont représentés sur la Figure III.2.1.

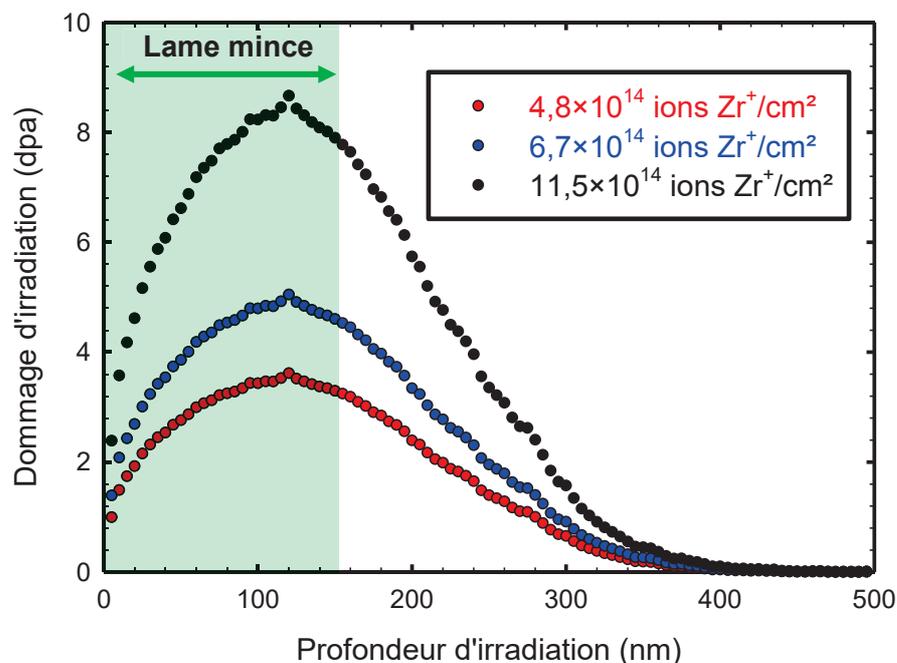


Figure III.2.1: Profils de dommage simulés par le logiciel *SRIM*, irradiation aux ions Zr⁺ de 600 keV pour les trois fluences : 4,8×10¹⁴, 6,7×10¹⁴ et 11,5×10¹⁴ ions/cm² (calculés avec l'option « Detailed Calculation with Full Damage Cascades »).

Nous noterons que le maximum de dommage est contenu dans la zone d'observation en MET (épaisseur d'environ 150 nm). Le profil de dommage pour une fluence de $11,5 \times 10^{14}$ ions/cm² a été donné à titre d'exemple dans le chapitre 2 (Figure II.2.1).

La température d'irradiation ne constitue pas un paramètre d'entrée du logiciel *SRIM*. Les simulations d'irradiations aux particules chargées par *SRIM* ne prennent donc pas compte de l'effet de la température. C'est la raison pour laquelle les profils de dommage de la Figure III.2.1 sont les mêmes pour les deux températures d'irradiation, 300 et 400°C.

III.2.2 Qualification en température du porte-objet

Les échantillons « témoins » à 300°C ont été irradiés en utilisant le dispositif développé pour l'étude de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sous flux d'ions sur la microstructure des boucles à composante < c >. Ce dispositif qui sera présenté dans la partie IV.4.2.2, consacré à cet effet, a été qualifié en température dans le cadre du travail de thèse de Tournadre [18]. Le montage de mise en contrainte est fixé sur un support chauffant (Figure III.2.2 (a)) et le transfert de la chaleur aux échantillons se fait par conduction thermique et par rayonnement. Seule la température du support chauffant est suivie en continu lors de l'étape de montée en température et au cours de l'irradiation. C'est pourquoi il est indispensable d'effectuer des tests thermiques hors et sous flux pour connaître précisément la température en surface irradiée des échantillons. Pour cela, des thermocouples ont été soudés sur la surface des languettes (Figure III.2.2 (b)). Les tests thermiques ont montré qu'il faut chauffer le support à 500°C pour avoir une température de 300°C au niveau des échantillons. De plus, le faisceau d'ions Zr^+ n'induit pas d'échauffement local de la surface irradiée des languettes.

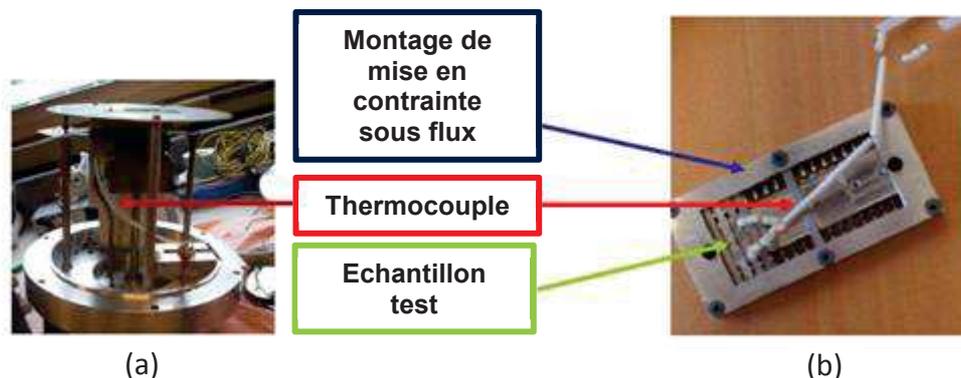


Figure III.2.2 – (a) Support chauffant de l'accélérateur ARAMIS du CNSM Orsay et (b) un échantillon instrumenté avec un thermocouple soudé par point et placé dans le dispositif de mise en contrainte [18].

Concernant les irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV à 400°C, nous avons utilisé le porte-objet de lames minces du CNSM (Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse) d'Orsay. Ce porte-objet permet d'accueillir près de 43 lames minces dont la face à irradier est polie électrochimiquement. Il est fixé sur le support chauffant de l'accélérateur ARAMIS au moyen de deux vis de maintien (Figure III.2.3).

Le transfert thermique aux échantillons se fait principalement par conduction et par rayonnement. Tout comme pour l'expérience d'irradiation avec le montage de mise en contrainte sous flux, la seule température suivie est celle de la résistance chauffante. Il nous a donc paru nécessaire de déterminer la température de consigne à imposer au support chauffant afin de s'assurer d'avoir une température constante de 400°C au niveau de la surface des lames minces. Pour ce faire, un thermocouple de type K en chromel/alumel est soudé par point sur la surface d'une lame mince. Le support est tout d'abord chauffé jusqu'à 300°C. La température atteinte au niveau des échantillons est de 243°C (Figure III.2.4). Du fait de l'inertie thermique des échantillons, elle se stabilise au bout de 20 minutes.

Une fois la température stabilisée, la température de chauffage du support est augmentée avec un pas de 50°C jusqu'à une valeur maximale de 550°C. Les mesures de température au niveau de la lame mince instrumentée sont réalisées hors flux. La Figure III.2.4 donne l'évolution de la température des échantillons avec la température de consigne du support chauffant. Une température de consigne de 550°C est nécessaire pour avoir des lames minces chauffées à 400°C.

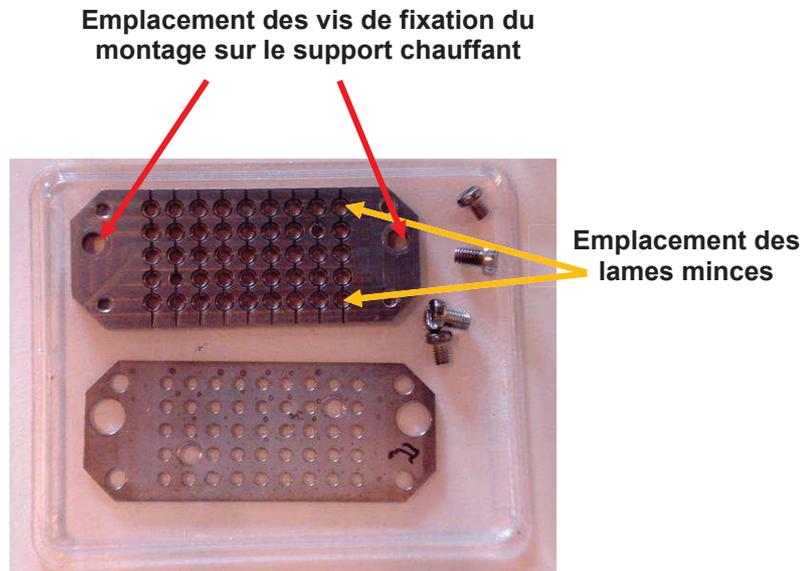


Figure III.2.3: Porte-objet de lames minces du CSNSM Orsay.

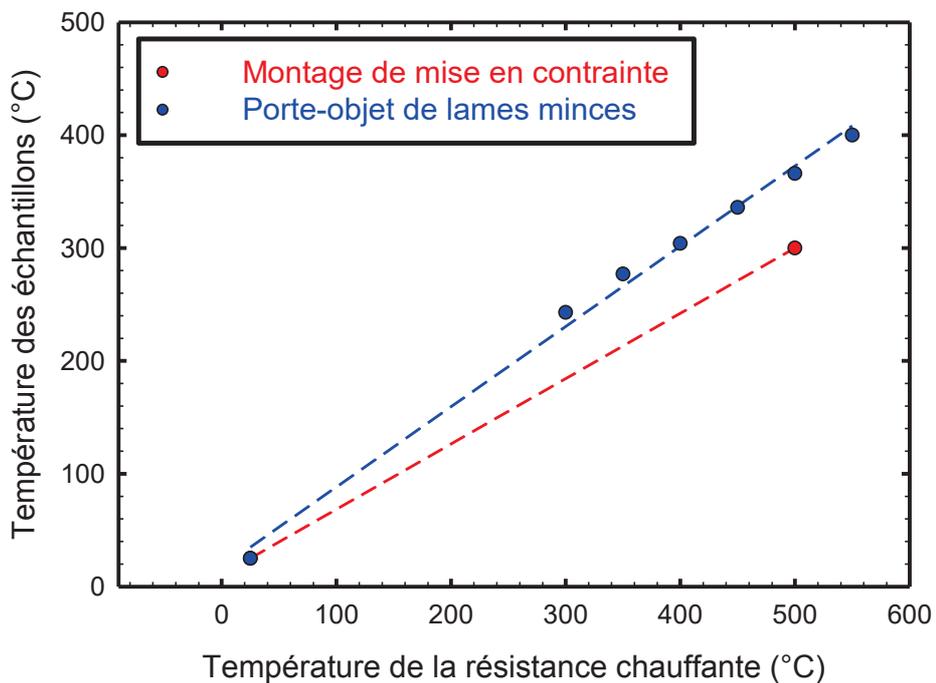


Figure III.2.4: Evolution de la température à la surface des échantillons en fonction de la température de consigne du support chauffant pour le montage de mise en contrainte sous flux et le porte-objet de lames minces.

L'échauffement de la surface irradiée des échantillons par le faisceau des ions Zr^{+} de 600 keV peut être considéré comme négligeable, la puissance déposée étant faible (de 71 W/m² pour un flux moyen de $7,44 \times 10^{10}$ ions/cm²/s) (Tableau III.2.2).

Tableau III.2.2: Puissance déposée par le faisceau des ions Zr^+ de 600 keV sur la surface irradiée des échantillons.

Température d'irradiation (°C)	Fluence (ions/cm ²)	Flux moyen (ions/cm ² /s)	Puissance déposée (W/m ²)
300°C	$4,8 \times 10^{14}$	$5,76 \times 10^{10}$	55,30
	$6,7 \times 10^{14}$	$7,44 \times 10^{10}$	71,42
	$11,5 \times 10^{14}$	$6,63 \times 10^{10}$	63,65
400°C	$6,7 \times 10^{14}$	$6,81 \times 10^{10}$	65,38
	$11,5 \times 10^{14}$	$5,24 \times 10^{10}$	50,30

III.3 Résultats microstructuraux : microstructure des boucles à composante < c > à 300°C

La caractérisation microstructurale des boucles à composante < c > porte tout d'abord sur les lames minces prélevées dans des languettes « témoins » qui ont été irradiées, sans application de contrainte, dans le montage de mise en contrainte sous flux à 300°C. Ensuite, les résultats microstructuraux obtenus à l'issue des observations en MET des lames minces irradiées dans le porte-objet à 400°C sont présentés pour aboutir à une évaluation de l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante < c >. Pour chacune de ces deux températures, les analyses microstructurales des boucles à composante < c > sont discutées à la lumière des données bibliographiques portant sur les caractéristiques de ces défauts obtenus par irradiation aux neutrons dans les réacteurs expérimentaux ou dans les réacteurs de puissance (§ 1.2.4.2.1).

Nous rappelons que pour les irradiations à 300°C, la microstructure des boucles à composante < c > a été examinée pour trois doses d'irradiation : 2,9, 4,1 et 7 dpa. Dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX, les boucles à composante < c > sont rares à 2,9 dpa (Figure III.3.1 (a)). A 4,1 dpa, quelques boucles sont observées (Figure III.3.1 (b)), celles-ci devenant nombreuses pour une dose d'irradiation de 7 dpa (Figure III.3.1 (c)). Ces observations indiquent que les boucles à composante < c > ne se forment pas dès le début de l'irradiation aux ions zirconium mais se caractérisent par une dose seuil de nucléation qui se situe entre 2,9 et 4,1 dpa à 300°C. Cette dose critique d'observation des boucles à composante < c > est proche de celle identifiée pour le Zircaloy-4 recristallisé irradié aux neutrons (entre 4,4 et 5,8 dpa) [19] (§ 1.2.4.2.1). Pour le M5[®] TREX irradié aux ions Zr^+ , aucune boucle à composante < c > n'est clairement visible à 2,9 dpa (Figure III.3.1 (d)). A 4,1 dpa, quelques boucles seulement sont observées (Figure III.3.1 (e)) alors qu'elles sont plus nombreuses à 7 dpa (Figure III.3.1 (f)). La dose seuil de nucléation des boucles à composante < c > dans le M5[®] TREX semble donc plus élevée que celle du Zircaloy-4 recristallisé TREX et serait proche de 4,1 dpa. Ce résultat est en accord avec les observations conduites par Tournadre [18], [20] sur des échantillons de Zircaloy-4 et de M5[®] TREX irradiés aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C (§ 1.2.4.2.3). Nos caractérisations microstructurales attestent d'un effet des éléments d'alliage sur la dose d'incubation des boucles à composante < c >. L'effet est toutefois plus faible que celui constaté lors des irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1).

III.3. RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$ A 300 C

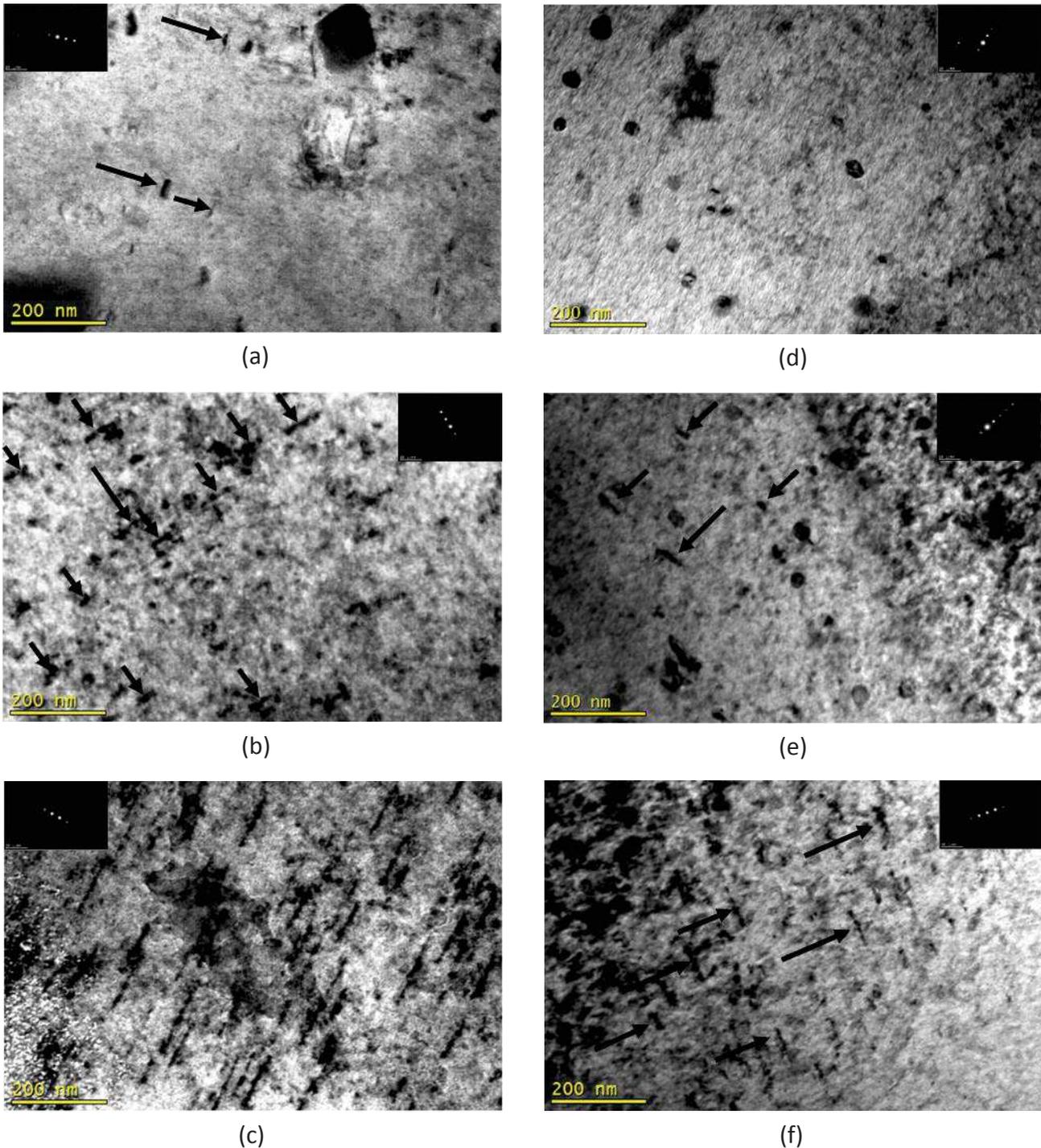


Figure III.3.1: Microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues par irradiation des languettes « témoins » aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C et imagées en $\bar{g} = 0002$ – (a) Zircaloy-4 à 2,9 dpa avec $\lambda = 84^\circ$, (b) Zircaloy-4 à 4,1 dpa avec $\lambda = 72^\circ$, (c) Zircaloy-4 à 7 dpa avec $\lambda = 74^\circ$, (d) M5[®] à 2,9 dpa avec $\lambda = 90^\circ$, (e) M5[®] à 4,1 dpa avec $\lambda = 85^\circ$ et (f) M5[®] à 7 dpa avec $\lambda = 80^\circ$.

Comme il a été détaillé dans la partie I.2.4.3.2, le fer favorise la nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Des irradiations aux électrons de 1 MeV à 300°C ont montré que la période d'incubation de ces boucles est plus courte pour des échantillons de Zircaloy-4 dopés à 0,8 et 1,8 % atomique en fer que pour ceux non dopés en fer [10], [11]. Un mécanisme de précipitation planaire des atomes de fer dans les plans de base de la maille hexagonale compacte du zirconium a été proposé par de Carlan [10], [11] pour rendre compte de l'effet de cet élément chimique sur la germination des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ I.2.4.3.2). Selon ce mécanisme, ces précipités agiraient comme des sites de

nucléation des premiers germes de boucles à composante $\langle c \rangle$. Au regard de ces observations, il serait tentant d'associer la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$, plus faible pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX que pour le M5[®] TREX, à l'effet du fer remis en solution suite à l'amorphisation et la dissolution des phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ du Zircaloy-4. Or, contrairement aux irradiations aux neutrons réalisées à des températures de 250 à 330°C (§ 1.2.5), l'amorphisation des composés $Zr(Fe,Cr)_2$ induite par irradiation aux ions ne s'accompagne pas toujours d'une remise en solution du fer dans la matrice (par exemple par irradiation aux ions Ar^{8+} de 127 MeV dans [21]). Les différences de l'évolution de la précipitation par irradiation aux neutrons et aux ions peuvent être dues au taux de création de dommage par ions beaucoup plus élevé que celui des neutrons. Par conséquent, pour des irradiations aux ions à basse température, le fer ne serait pas en mesure de jouer son rôle d'« initiateur » de la germination des boucles à composante $\langle c \rangle$. Le niobium, présent dans le M5[®] TREX, quant à lui, « inhibe » la nucléation de ces boucles (§ 1.2.4.3.2). Il pourrait être à l'origine d'une période d'incubation plus longue dans l'alliage M5[®] que dans le Zircaloy-4.

D'un point de vue qualitatif, les micrographies données dans la Figure III.3.1 (a-c) pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX et dans la Figure III.3.1 (d-f) pour le M5[®] TREX, irradiés aux ions zirconium à 300°C, mettent en évidence une évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation. La quantification précise de la densité et de la taille des boucles montre une dépendance quasi-linéaire avec le dommage d'irradiation (Figure III.3.2).

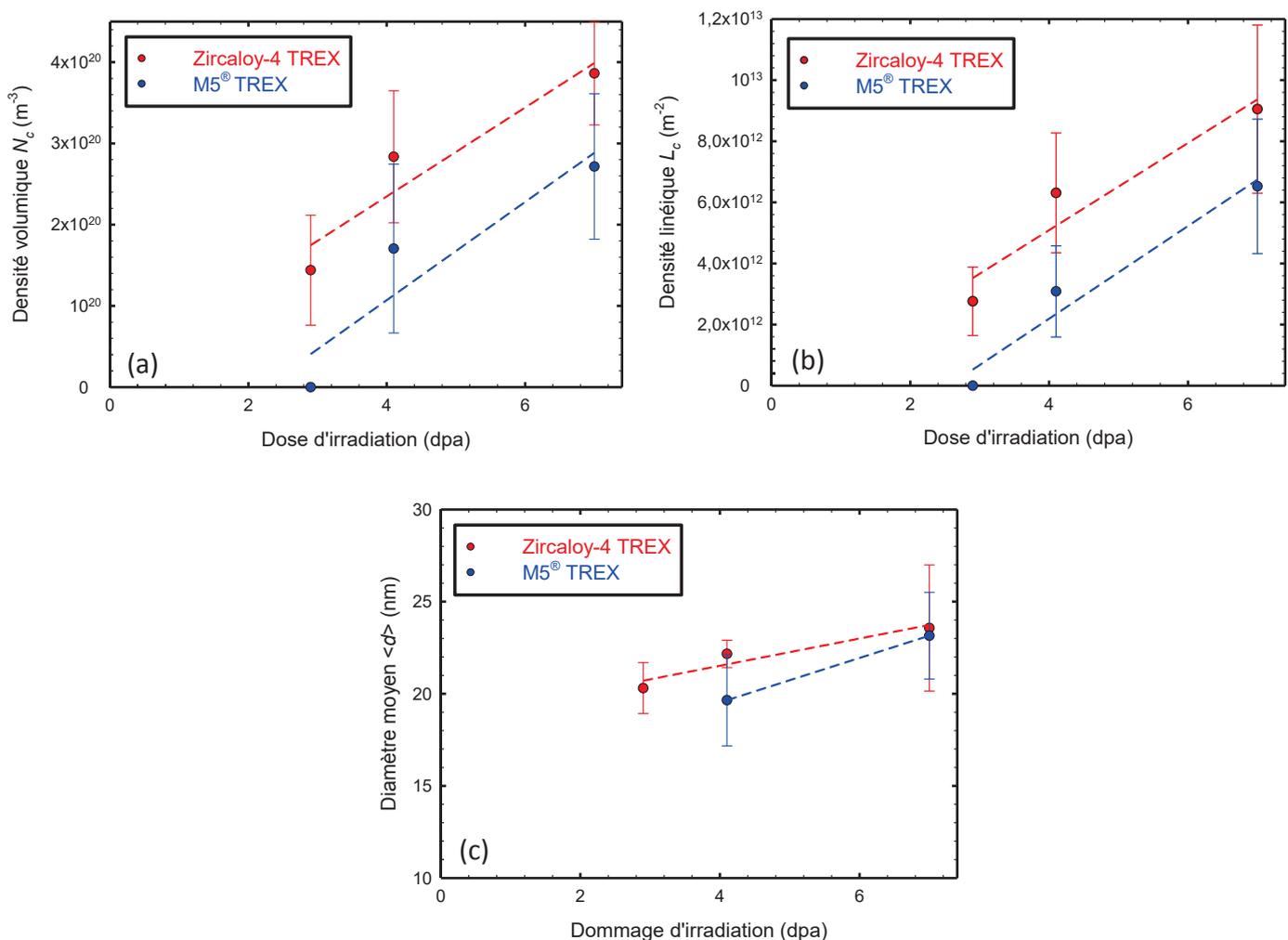


Figure III.3.2: Evolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation dans le Zircaloy-4 et le M5[®] TREX irradiés aux ions Zr^+ à 300°C – (a) densité volumique N_c (m⁻³), densité linéique L_c (m⁻²) et diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm).

Les valeurs de la densité volumique N_v , la densité linéique L_v et la taille $\langle d \rangle$ ainsi que des coefficients de la progression linéaire (pente de la droite notée a et ordonnée à l'origine b), uniquement valables dans le domaine de dose d'irradiation étudié (2,9 à 7 dpa), sont détaillées dans le Tableau III.3.1. En plus de l'effet sur la dose d'incubation, l'influence des éléments d'alliage se manifeste également sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, plus nombreuses dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX (●) que dans le M5[®] TREX (●). Cet effet des éléments d'addition est caractéristique des irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1 et 1.2.4.3.2). En revanche, la cinétique d'augmentation de la densité et de la taille des boucles avec la dose d'irradiation sont assez similaires dans les deux alliages (Figure III.3.2 et Tableau III.3.1).

Les boucles à composante $\langle c \rangle$, formées par irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C, se caractérisent par leur grande densité et leur petite taille (~25 nm à 7 dpa) comparée à celles observées après irradiation aux neutrons (~100 nm à 8 dpa [22]) (Tableau 1.2.4 et Tableau III.3.1). Comme cela a déjà été expliqué dans le chapitre bibliographique (§ 1.2.4.2.1), le fort taux de création de défauts par les ions, d'environ 6700 fois plus élevé que celui des neutrons pour les ions zirconium de 600 keV (Tableau III.2.1), favorise la nucléation des boucles au détriment de leur croissance. En effet, un taux de création de dommage élevé introduit une concentration importante de défauts ponctuels dans la matrice. La probabilité d'agglomération de ces défauts en germes de boucles est augmentée, favorisant ainsi la formation de nombreuses petites boucles à composante $\langle c \rangle$. Un fort taux de création de dommage qui dépend de la masse, de l'énergie et du flux des ions incidents peut être compensé par une augmentation de la température d'irradiation. Cette équivalence entre le taux de création de dommage et la température d'irradiation a été introduite par l'équation Eq. III.2.1 (§ III.2.1).

Contrairement aux irradiations aux neutrons pour lesquelles le dommage est créé dans le volume du matériau, l'épaisseur des échantillons irradiés aux ions Zr^+ de 600 keV n'est que de quelques centaines de nanomètres (Figure III.2.1). La surface libre des languettes polies une face peut donc jouer un rôle sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, en agissant comme un puits biaisé pour les auto-interstitiels ou pour les lacunes en fonction de son orientation cristallographique (§ 1.2.3.2.4). Selon la théorie de la DAD (Différence d'Anisotropie de Diffusion), la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ est favorisée à proximité des surfaces de type prismatique dont la normale est perpendiculaire à l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ des grains. Pour s'affranchir du rôle joué par la surface libre des échantillons irradiés aux ions sur la microstructure des boucles, nous considérons un critère de sélection des grains dont les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ sont orientés avec un angle λ de 70 à 90° par rapport à la normale à la surface. Ainsi, nous nous assurons que l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dépend du paramètre d'étude, la température d'irradiation dans ce chapitre, et non pas de l'orientation du grain par rapport à la normale à la surface des échantillons. Toutefois, il est important de noter que l'effet des surfaces libres est considéré comme de second ordre devant celui du taux de création de dommage.

En conclusion, les irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C conduisent à des microstructures de boucles à composante $\langle c \rangle$ « partiellement » représentatives de celles obtenues par irradiation neutronique. Bien que l'évolution avec la dose d'irradiation et l'effet des éléments d'alliage sur la période d'incubation et la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ soient qualitativement reproduits par les irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C, leur diamètre moyen reste nettement inférieur à celui des boucles obtenues par irradiation neutronique (Tableau III.3.1 et Figure III.3.2 (c)). De plus, le phénomène de nucléation au voisinage des précipités intermétalliques, les phases de Laves de type $Zr(Fe,Cr)_2$, caractéristique des irradiations aux neutrons (§ 1.2.4.2.1) n'a été observé que dans quelques grains de Zircaloy-4 recristallisé TREX irradiés à 4,1 dpa (Figure III.3.3 (a)). A 7 dpa, la distribution spatiale des boucles est homogène (Figure III.3.3 (b)). La diffusion des espèces chimiques étant plus faible pour un taux de création de dommage élevé, la redistribution du fer qui stabilise les boucles à composante $\langle c \rangle$ au voisinage des phases de Laves est plus lente. Ceci explique l'absence d'une concentration des boucles à composante $\langle c \rangle$ à proximité des

composés intermétalliques du Zircaloy-4 et l'homogénéité des microstructures observées après irradiation aux ions.

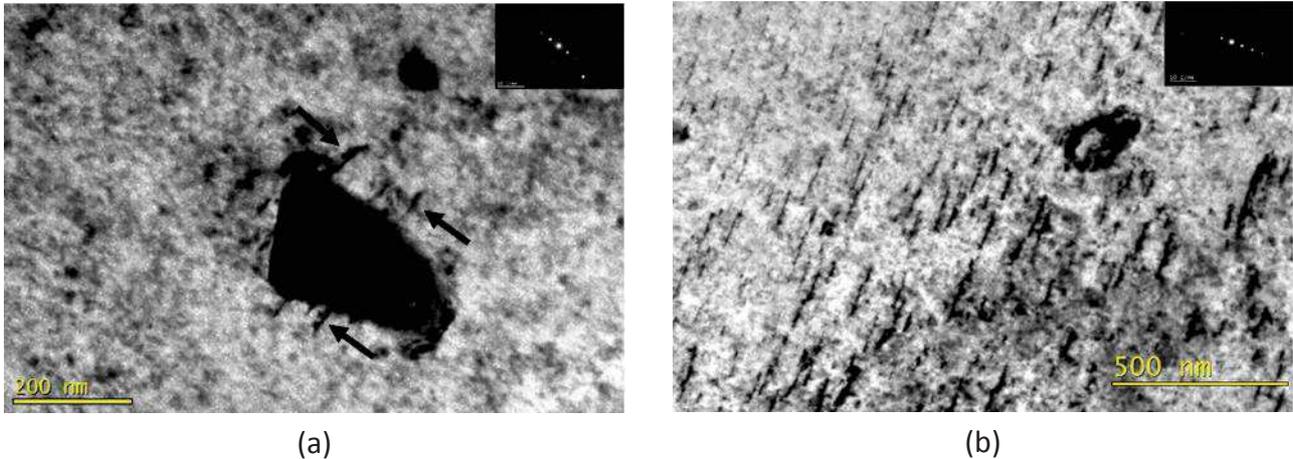


Figure III.3.3 – (a) Boucles à composante < c > au voisinage d'une phase de Lave dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX irradié aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C et à une dose de 4,1 dpa et (b) distribution homogène des boucles à composante < c > dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX irradié aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C et à une dose de 7 dpa.

Tableau III.3.1: Comparaison des grandeurs caractéristiques des boucles à composante < c > formées après irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C et aux neutrons (*a* la pente et *b* l'ordonnée à l'origine).

Conditions d'irradiation	Matériau	Dose (dpa)	Densité volumique N_c (m^{-3})		Densité linéique L_c (m^{-2})		Diamètre moyen < d > (nm)	
			<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>
Ions Zr^+ 600 keV (ARAMIS) 300°C	Zircaloy-4 recristallisé TREX	2,9	$1,44 \times 10^{20}$		$2,76 \times 10^{12}$		21	
		4,1	$2,84 \times 10^{20}$		$6,31 \times 10^{12}$		22	
		7	$3,86 \times 10^{20}$		$9,05 \times 10^{12}$		24	
			<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>
			$5,46 \times 10^{19}$	$1,59 \times 10^{19}$	$1,42 \times 10^{12}$	$-6,13 \times 10^{11}$	0,7	18,6
	M5® TREX	2,9	0		0		-	
		4,1	$1,71 \times 10^{20}$		$3,08 \times 10^{12}$		20	
		7	$2,72 \times 10^{20}$		$6,53 \times 10^{12}$		23	
		<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>a</i>	<i>b</i>	
		$6,04 \times 10^{19}$	$-1,35 \times 10^{20}$	$1,52 \times 10^{12}$	$-3,87 \times 10^{12}$	1,2	14,7	
Aux neutrons Belgian Reactor 3 prototype du REP 300°C [22]	Zircaloy-4 recristallisé	8	Entre $1,5$ et 3×10^{20}		-		100	
		10,5	Entre 3 et 6×10^{20}		-		120	
Aux neutrons REP, 300°C [23]	M5®	25	-		$3,14 \times 10^{13}$		130	
Aux neutrons REP, entre 305 et 350°C [24]	M5®	4,9	-		$1,64 \times 10^{12}$		-	
		10	-		$9,40 \times 10^{12}$		-	

**III.4 Résumé public : effet de la température sur les boucles à composante
< c >**

La caractérisation microstructurale des boucles à composante < c > formées à 400°C dans le **Zircaloy-4 recristallisé TREX** et le M5[®] TREX a permis d'évaluer l'effet de la température d'irradiation et de proposer des mécanismes microscopiques à l'origine de cet effet. Pour des raisons de confidentialité, nous résumons ici les principaux résultats portant uniquement sur l'effet de la température sur la microstructure des boucles à composante < c > dans le **Zircaloy-4 TREX** :

- La température d'irradiation accélère la croissance des boucles à composante < c > dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX (Figure III.4.1). A 400°C, leur taille moyenne est multipliée par un facteur d'environ 5 (Figure III.4.1, Figure III.4.2 (a) et Tableau III.4.1). L'augmentation de la taille des boucles à composante < c > est accompagnée d'une diminution de leur densité volumique (Figure III.4.2 (b)). En revanche, l'effet sur la densité linéique est moins net (Figure III.4.2 (c)) ;
- En termes de taille et de densité de boucles à composante < c >, les irradiations aux ions Zr⁺ de 600 keV à 400°C sont plus représentatives des irradiations aux neutrons en REP que les irradiations aux ions zirconium de même énergie (600 keV) à 300°C. De ce point de vue, l'élévation de la température d'irradiation a permis de compenser le fort taux de création de dommage par les ions Zr⁺ de 600 keV, favorisant ainsi la croissance des boucles à composante < c > ;
- Nos résultats microstructuraux sont en accord avec le rôle de la température sur la taille des boucles à composante < c > suggéré par de Carlan [10]. De plus, la croissance des boucles à composante < c > favorisée par l'augmentation de la température pourrait expliquer l'accélération de l'amplitude de la déformation de croissance avec la température reportée par plusieurs auteurs [1]–[4] (§ III.1);
- Plusieurs mécanismes peuvent être à l'origine de l'effet observé de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles à composante < c >. Parmi les principaux mécanismes, nous citons l'accélération de la diffusion des lacunes avec la température. En effet, l'élévation de la température augmente la mobilité et donc le libre parcours moyen des lacunes leur permettant de s'annihiler plus rapidement sur les puits de la microstructure, et notamment sur les germes de boucles à composante < c > déjà formés. La croissance de ces boucles est alors favorisée. Par ailleurs, l'élimination plus rapide des lacunes sur les puits de la microstructure (résultat de l'augmentation de la mobilité des lacunes à haute température) et l'augmentation de la concentration des lacunes à l'équilibre thermodynamique avec la température ont pour effet de diminuer la sursaturation lacunaire (concentration de lacunes résultant de l'irradiation par rapport à la concentration à l'équilibre thermodynamique), réduisant ainsi le taux de nucléation des boucles à composante < c >. Ce mécanisme de diffusion thermiquement activée des lacunes permet ainsi de rendre compte de nos observations microstructurales qui mettent en évidence des boucles à composante < c > moins nombreuses et plus grandes à 400°C qu'à 300°C ;
- Le phénomène de nucléation préférentielle des boucles à composante < c > au voisinage des phases de Laves Zr(Fe,Cr)₂ dans le Zircaloy-4 et l'effet des éléments d'alliage (boucles moins nombreuses dans le M5[®] que dans le Zircaloy-4) ne sont que qualitativement reproduits par les irradiations aux ions zirconium à 300 et 400°C. Il semble donc que l'augmentation de la température soit insuffisante pour compenser le fort taux de création de dommage par les ions zirconium et activer la remise en solution et la diffusion des éléments chimiques, plus particulièrement le fer qui jouerait le rôle de « stabilisateur » des boucles à composante < c > (ségrégation locale des atomes de fer sur les fautes d'empilement des boucles et minimisation de leur énergie de faute d'empilement) (§ I.2.4.3.2). Ainsi, nous écartons le mécanisme selon

lequel l'activation thermique de la diffusion du fer serait à l'origine de l'augmentation de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la température.

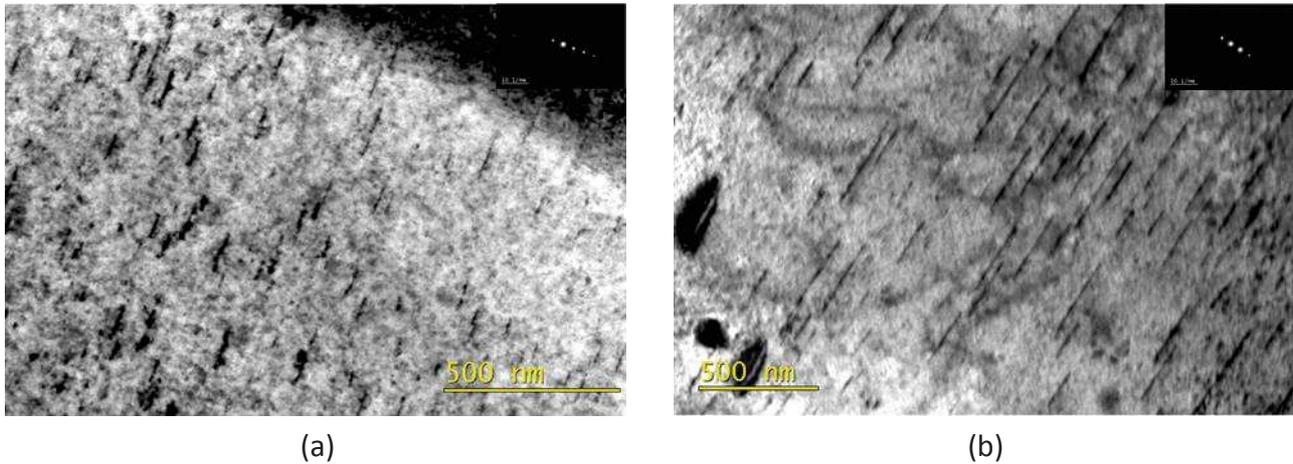


Figure III.4.1: Effet de la température sur la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX à l'issue des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV à 7 dpa – (a) à 300°C avec $\lambda = 76^\circ$ et (b) à 400°C avec $\lambda = 82^\circ$.

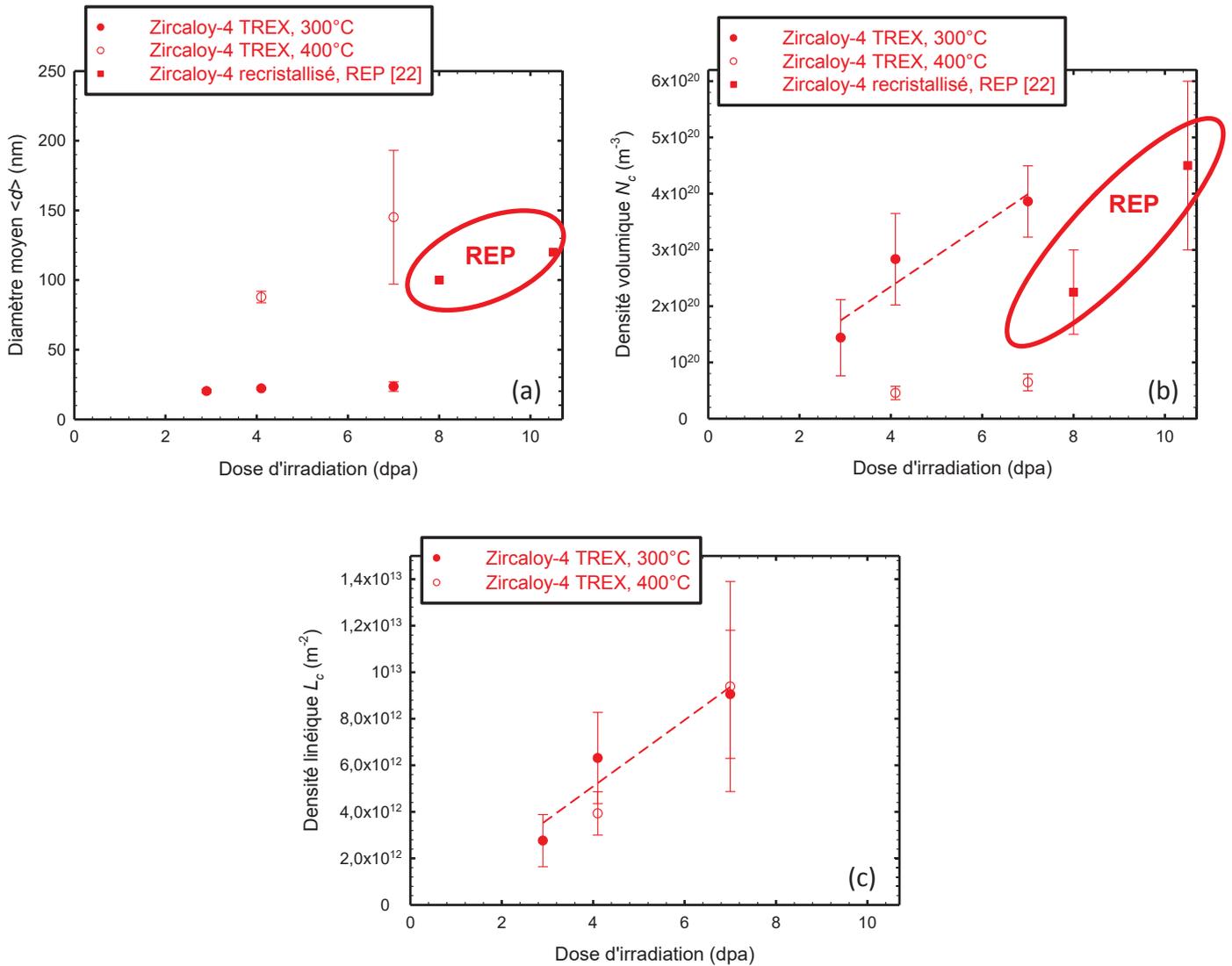


Figure III.4.2: Evolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX irradié aux ions Zr^+ à 400°C et comparaison avec les données bibliographiques issues des irradiations neutroniques en REP [22] – (a) diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm), (b) densité volumique N_c (m⁻³) et (c) densité linéique L_c (m⁻²).

Tableau III.4.1: Grandeurs caractéristiques des boucles à composante c formées dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX après irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV à 400°C.

Dose (dpa)	Densité volumique N_c (m^{-3})	Densité linéique L_c (m^{-2})	Diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm)
4,1	$4,56 \times 10^{19}$	$3,93 \times 10^{12}$	88
7	$6,45 \times 10^{19}$	$9,38 \times 10^{12}$	145

III.5 Références bibliographiques du chapitre 3

- [1] R. A. Murgatroyd and A. Rogerson, "An assessment of the influence of microstructure and test conditions on the irradiation growth phenomenon in zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 240–248, 1980.
- [2] A. Rogerson and R. H. Zee, "Irradiation growth in zirconium-tin alloys at 353 and 553 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 152, pp. 220–224, 1988.
- [3] V. Fidleris, "The irradiation creep and growth phenomena," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 22–42, 1988.
- [4] M. Griffiths, R. W. Gilbert, and V. Fidleris, "Accelerated irradiation growth of zirconium alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023*, 1989, pp. 658–677.
- [5] A. Jostsons, P. M. Kelly, R. G. Blake, and K. Farrell, "Neutron irradiation-induced defect structures in zirconium," in *Effects of Radiation on Structural Materials, ASTM STP 683, American Society for Testing and Materials*, 1979, pp. 46–61.
- [6] A. Jostsons, R. G. Blake, J. G. Napier, P. M. Kelly, and K. Farrell, "Faulted loops in neutron-irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 68, pp. 267–276, 1977.
- [7] M. Griffiths and R. W. Gilbert, "The formation of c-component defects in zirconium alloys during neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 169–181, 1987.
- [8] C. Simonot, "Evolutions microstructurales des alliages de zirconium sous irradiation, liens avec le phénomène de croissance," Thèse de doctorat, Université de Paris Sud, 1996.
- [9] M. Griffiths, R. W. Gilbert, V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, "Neutron damage in zirconium alloys irradiated at 644 to 710 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 159–168, 1987.
- [10] Y. De Carlan, "Contribution à l'étude des phénomènes d'accélération de la croissance en réacteur des alliages de zirconium - influence du fer sur la formation des boucles de dislocation de type $\langle c \rangle$," Thèse de doctorat, Institut Polytechnique de Grenoble, 1996.
- [11] Y. De Carlan, C. Regnard, M. Griffiths, D. Gilbon, and C. Lemaignan, "Influence of iron in the nucleation of c-component dislocation loops in irradiated Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 638–653.
- [12] Y. Idrees, Z. Yao, M. A. Kirk, and M. R. Daymond, "In situ study of defect accumulation in zirconium under heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 433, no. 1–3, pp. 95–107, Feb. 2013.
- [13] Y. Idrees, E. M. Francis, Z. Yao, A. Korinek, M. A. Kirk, M. Sattari, M. Preuss, and M. R. Daymond, "Effects of alloying elements on the formation of c-component loops in Zr alloy Excel under heavy ion irradiation," *J. Mater. Res.*, vol. 30, pp. 1310–1334, Apr. 2015.

- [14] M. Christensen, W. Wolf, C. M. Freeman, E. Wimmer, R. B. Adamson, L. Hallstadius, P. E. Cantonwine, and E. V. Mader, "Effect of alloying elements on the properties of Zr and the Zr-H system," *J. Nucl. Mater.*, vol. 445, pp. 241–250, Feb. 2014.
- [15] G. S. Was and R. S. Averback, "Radiation damage using ion beams," *Compr. Nucl. Mater.*, vol. 1, pp. 195–221, 2012.
- [16] C. Varvenne, O. Mackain, and E. Clouet, "Vacancy clustering in zirconium: An atomic-scale study," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 65–77, Oct. 2014.
- [17] H. Landolt and R. Börnstein, *Landolt-Börnstein - Atomic defects in metals : Series III/25*. .
- [18] L. Tournadre, "Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium," Thèse de doctorat confidentielle, Université de la Rochelle, 2012.
- [19] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "C-component dislocations in annealed zircaloy irradiated at about 570 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 137, pp. 185–189, 1986.
- [20] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, and X. Feaugas, "Toward a better understanding of the hydrogen impact on the radiation induced growth of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 222–231, Oct. 2013.
- [21] F. Lefebvre and C. Lemaignan, "Analysis with heavy ions of the amorphisation under irradiation of Zr(Fe,Cr)₂ precipitates in Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 171, pp. 223–229, 1990.
- [22] C. Régnard, "Etude de la microstructure d'un tube de Zircaloy-4 irradié aux neutrons à 300°C, DTP/SECC n° 11/93," Note technique confidentielle, CEA Grenoble, 1993.
- [23] P. Bossis, B. Verhaeghe, S. Doriot, D. Gilbon, V. Chabretou, A. Dalmais, J.-P. Mardon, M. Blat, and A. Miquet, "In PWR comprehensive study of high burn-up corrosion and growth behaviour of M5® and recrystallized low-tin Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fifteenth International Symposium, ASTM STP 1505*, 2009, pp. 430–456.
- [24] S. Doriot, B. Verhaeghe, J.-L. Béchade, D. Menut, D. Gilbon, and J.-P. Mardon, "Microstructural evolution of M5™ alloy irradiated in PWRs up to high fluences - Comparison with other Zr base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2015, pp. 759–799.

IV. Chapitre 4

Etude expérimentale de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

Ce chapitre est consacré à l'étude expérimentale de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la période d'incubation et la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Après avoir détaillé la motivation de cette étude, nous présentons une description succincte portant sur l'état de l'art des études expérimentales de caractérisation de l'effet d'une contrainte externe sur la microstructure des boucles de dislocation. Nous nous intéressons, par la suite, à la présentation détaillée du protocole expérimental mis en place pour mener à bien cette étude. Un intérêt particulier est porté au dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions et au contrôle du niveau de la contrainte appliquée pour les deux historiques de chargement considérés. Les résultats microstructuraux issus de ces deux historiques sont analysés et discutés au regard des mécanismes recensés dans la littérature et à la lumière d'une modélisation basée sur une approche micromécanique.

Sommaire

IV.1 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$: motivation de l'étude et état de l'art.....	121
IV.1.1 Motivation de l'étude	121
IV.1.2 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles de dislocation : état de l'art expérimental	122
IV.2 Mise en contrainte sous flux d'ions : protocole expérimental	125
IV.2.1 Géométrie et préparation des échantillons	125
IV.2.2 Dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions.....	127
IV.2.3 Contrôle du niveau de contrainte appliquée.....	131
IV.3 Résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.....	136
IV.3.1 Caractérisation de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les échantillons « témoins », irradiés sans contrainte lors de l'expérience I.....	136
IV.3.2 Résultats de l'historique de chargement de type I : effet de la contrainte sur la dose seuil de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$	138
IV.3.3 Résultats de l'historique de chargement de type II : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$	140
IV.4 Discussion des résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.....	147
IV.4.1 Discussion de l'effet de la contrainte au regard des mécanismes SIPN et SIPA	147
IV.4.2 Réflexion sur l'origine de la dispersion observée.....	150
IV.4.3 Confrontation avec une autre étude expérimentale	157
IV.5 Conclusions sur l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$	158
IV.6 Références bibliographiques du chapitre 4.....	159

IV.1 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante

$\langle c \rangle$: motivation de l'étude et état de l'art

IV.1.1 Motivation de l'étude

En fonctionnement normal en réacteur, les alliages de zirconium sont soumis à un fort flux neutronique et à différentes sollicitations thermomécaniques entraînant leur variation dimensionnelle. La déformation macroscopique sous flux neutronique de ces matériaux se décompose en trois types:

- Une déformation de **fluage thermique** activée hors flux, à haute température (domaine de température atteint en fonctionnement normal des REP) et pour des niveaux de contrainte élevés. Le phénomène de fluage thermique est contrôlé principalement par le glissement des dislocations ;
- Une déformation de **fluage d'irradiation** induite par l'action d'une contrainte sous flux neutronique. Cette déformation résulte vraisemblablement de la montée des dislocations par l'élimination différentielle des défauts ponctuels. Il se peut aussi que la montée des dislocations assistée par l'absorption préférentielle des défauts ponctuels ne soit pas directement responsable du fluage d'irradiation mais que la déformation soit contrôlée par un processus de glissement facilité par la montée des dislocations (§ 1.3.2) ;
- Une déformation de **croissance libre** qui apparaît sous flux neutronique en l'absence de toute contrainte appliquée et sans variation de volume (§ 1.3.2). Cette déformation trouverait son origine dans la différence d'anisotropie de diffusion des défauts ponctuels dans le réseau hexagonal, conduisant à la formation de défauts d'irradiation spécifiques : les boucles à composante $\langle c \rangle$.

La déformation totale de fluage sous flux, appelée déformation de **fluage sous irradiation**, englobe la partie thermiquement activée (**fluage thermique**) et celle s'opérant par l'action conjuguée de la contrainte et du flux (**fluage d'irradiation**). D'un point de vue expérimental, la séparation entre ces deux composantes de fluage sous irradiation est assez délicate. Néanmoins, il est possible de répartir la contribution de chacun de ces deux phénomènes suivant un domaine de température et de contrainte : à haute température et à un niveau de contrainte élevé, la composante de fluage thermique prédomine alors qu'à basse température et à faible niveau de contrainte c'est le fluage d'irradiation qui est prépondérant. En termes de modélisation, la vitesse de fluage sous irradiation s'écrit, habituellement, comme la somme de la vitesse de fluage thermique et de fluage d'irradiation [1]–[3].

Les mécanismes microscopiques à l'origine des phénomènes de fluage et de croissance sous irradiation, intervenant en réacteur, sont introduits dans des modèles prédictifs du comportement macroscopique sous flux des tubes en alliages de zirconium. Jusqu'à présent, les trois composantes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance libre sont généralement traitées séparément d'une manière additive dans le cadre de ces modélisations [2]–[8]. Pour les tubes de force en Zr-2,5%Nb [2], [3] des réacteurs CANDU, cette approche additive permet de bien reproduire les déformations sous flux mesurées. L'hypothèse de décorrélation entre le fluage d'irradiation et la croissance libre est justifiée par le fait que contrairement au fluage, la croissance a lieu en l'absence de contrainte. De plus, Holt et Ibrahim [4], [5], [7] attribuent le fluage d'irradiation des alliages de Zr-2,5%Nb et de Zircaloy-2 détendus, utilisés pour les tubes de force des réacteurs CANDU, à un mécanisme de glissement prismatique des dislocations et la croissance libre à la montée des dislocations assistée par la présence des défauts ponctuels. Dans ces modèles, l'approche additive s'appuie donc sur le postulat que les mécanismes responsables de la déformation de fluage (glissement des dislocations) et de croissance (montée des dislocations) sous irradiation sont différents. Or, bien qu'il n'y ait pas, à ce jour, un consensus concernant les mécanismes de fluage d'irradiation des alliages de zirconium, une bonne connaissance a été acquise sur les processus de leur déformation sous irradiation. En effet, les mécanismes qui semblent les plus pertinents pour la

description du comportement de ces matériaux en fluage d'irradiation peuvent être classés en deux catégories: les mécanismes de type SIPA (Stress Induced Preferential Absorption) pour lesquels la déformation résulte de la montée différentielle des dislocations induite par l'absorption préférentielle des défauts ponctuels et ceux de type SICG (Stress Induced Climb and Glide) qui font intervenir simultanément le glissement et la montée des dislocations (§ 1.3.2). A l'heure actuelle, il est considéré que la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) entre les auto-interstitiels et les lacunes est à l'origine de la croissance sous irradiation des alliages de zirconium (§ 1.3.1). De cette anisotropie de diffusion résulte une annihilation anisotrope des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure. Par conséquent, les deux phénomènes de croissance libre et de fluage d'irradiation sont directement liés à un processus d'élimination anisotrope des SIAs et des lacunes, créés sous irradiation, sur les puits de la microstructure (joints de grains, dislocations et boucles de dislocation). Par ailleurs, la croissance libre anisotrope des grains conduit à des incompatibilités de déformation entre grains et donc à des contraintes internes pouvant accélérer le fluage d'irradiation du matériau [9], [10]. Ces deux points nous amènent à nous interroger sur la validité de l'approche, habituellement adoptée, qui considère les contributions indépendantes et additives de la déformation de fluage d'irradiation et de croissance libre. Il semble que la modélisation du comportement de ces alliages sous irradiation pourrait être mieux appréhendée par l'étude d'un éventuel couplage entre les deux phénomènes de fluage d'irradiation et de croissance libre. A notre connaissance, peu d'études expérimentales se sont données comme objectif d'évaluer ce couplage à l'échelle microscopique. Comme les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont responsables du phénomène d'accélération de croissance des alliages de zirconium recristallisés, l'analyse du couplage entre le fluage d'irradiation et le phénomène de croissance à forte dose passe en particulier par l'examen de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sous irradiation sur la microstructure de ces boucles de dislocation.

IV.1.2 Effet de la contrainte sur la microstructure des boucles de dislocation : état de l'art expérimental

Les mécanismes classiques proposés pour le fluage d'irradiation associent la déformation à la montée (SIPA) ou au glissement facilité par la montée (SICG) des dislocations. D'autres mécanismes font intervenir les boucles de dislocation en considérant que la déformation de fluage d'irradiation est liée à leur germination et leur croissance différentes selon l'orientation de la contrainte par rapport à leur plan d'habitat. Ces mécanismes ont fait l'objet de nombreux travaux théoriques [11]–[18] mais il existe très peu d'études expérimentales portant sur l'influence de la contrainte sur les boucles de dislocation dans les alliages de zirconium. La plupart des travaux expérimentaux ont été menés dans les alliages de structure cubique, principalement les aciers.

Dans cette partie, nous analyserons succinctement les principales constatations tirées des études expérimentales sur les aciers. Etant donné l'anisotropie de la maille hexagonale et la spécificité des éléments microstructuraux induits par irradiation dans les alliages de zirconium, il est bien entendu que la transposition des résultats ne peut se faire de manière directe. Il n'en reste pas moins que ces expériences, réalisées dans les aciers, peuvent constituer une base de compréhension des mécanismes expliquant l'effet d'une contrainte sur la formation et la croissance des boucles de dislocation.

Dans leur étude microstructurale, Okamoto et Harkness [19] montrent une variation de la distribution en densité des boucles interstitielles de Frank suivant les quatre plans d'habitat $(\bar{1}\bar{1}1)$, (111) , $(\bar{1}11)$ et $(1\bar{1}1)$ d'un acier 316 irradié sous une contrainte circonférentielle de 206 MPa dans le réacteur EBR-II à 410°C et jusqu'à une fluence neutronique de $2,4 \times 10^{21}$ n/cm² ($E > 0,1$ MeV). La taille moyenne ne varie que de 5% entre les quatre populations de boucles et semble donc faiblement affectée par l'orientation de la contrainte appliquée. L'étude plus complète de Brager *et al.* [20], réalisée sur des échantillons de tubes pressurisés en acier austénitique 316 irradiés dans le réacteur EBR-II à 500°C jusqu'à une fluence neutronique de 3×10^{22} n/cm² et soumis à des contraintes circonférentielles allant

jusqu'à un niveau de 327 MPa, confirme l'effet d'une contrainte macroscopique sur l'anisotropie de répartition des boucles de dislocation sur les plans d'habitat de type $\{111\}$ (Figure IV.1.1 (b)).

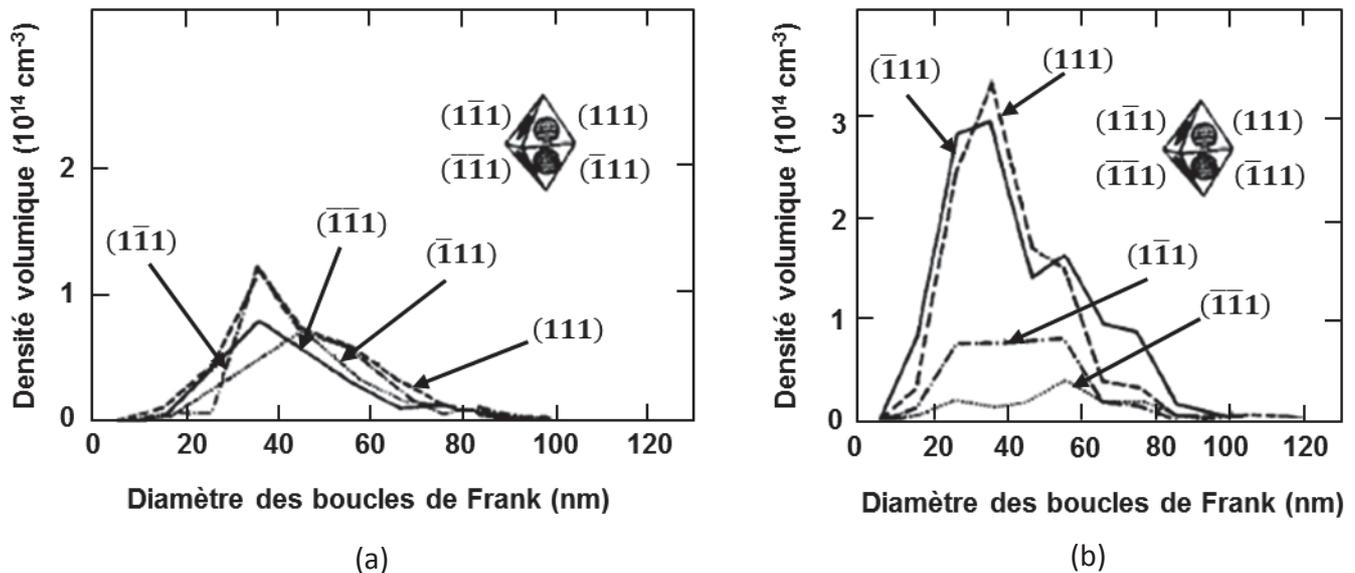


Figure IV.1.1: Effet de la contrainte sur l'anisotropie de répartition des boucles de Frank dans l'acier 316 écroui à 20% irradié à 500°C et à une fluence neutronique de 3×10^{22} n/cm² [20] – (a) répartition quasi-isotrope des 4 populations de boucles dans le matériau non contraint et (b) anisotropie de la distribution des boucles de Frank sur les plans de germination de type $\{111\}$ dans le matériau contraint à 327 MPa.

Cette anisotropie a été associée à la germination préférentielle des boucles interstitielles de Frank induite par la contrainte [19]–[21]. La quantification de la fonction de répartition des différentes populations de boucles a permis d'établir un lien entre la densité et la contrainte normale à leur plan d'habitat (Figure IV.1.2 (a)) [20]. La variation de la densité entre les populations de boucles de dislocation a été expliquée, au départ, par le mécanisme SIPN [20] selon lequel la nucléation des boucles interstitielles est favorisée dans les plans d'habitat de normale parallèle à la direction d'application de la contrainte (§ I.3.2.2.2). Par la suite, ce mécanisme a été remis en cause car jugé incapable de rendre compte de certaines observations. En effet, Garner *et al.* [22] ont fait remarquer que la dépendance à la contrainte normale, toujours positive, ne permet pas d'expliquer la diminution de la densité des boucles dans certains plans d'habitat. De plus, l'évolution de la taille des boucles avec la contrainte ne peut être reproduite par le mécanisme SIPN. Enfin, Garner *et al.* [22] soulignent qu'il n'existe pas de barrière énergétique de germination pour les boucles interstitielles de Frank du fait de la très grande stabilité des petits amas interstitiels. Les auteurs [22] concluent que l'anisotropie de la distribution des populations de boucles de dislocation en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte ne peut être expliquée par le mécanisme SIPN de germination préférentielle mais qu'en revanche, l'augmentation ou la diminution de la densité des boucles est bien reproduite par le mécanisme SIPA à travers l'effet de la composante normale au plan d'habitat du déviateur de la contrainte sur l'absorption préférentielle des auto-interstitiels (Figure IV.1.2 (b)) [22]. Dès lors, les études expérimentales [22]–[25], mettant en évidence une variation de la densité des boucles de dislocation dans les aciers austénitiques en fonction de l'orientation de leur vecteur de Burgers par rapport à la direction d'application de la contrainte, se sont appuyées sur le mécanisme SIPA pour l'interprétation et l'illustration des phénomènes observés.

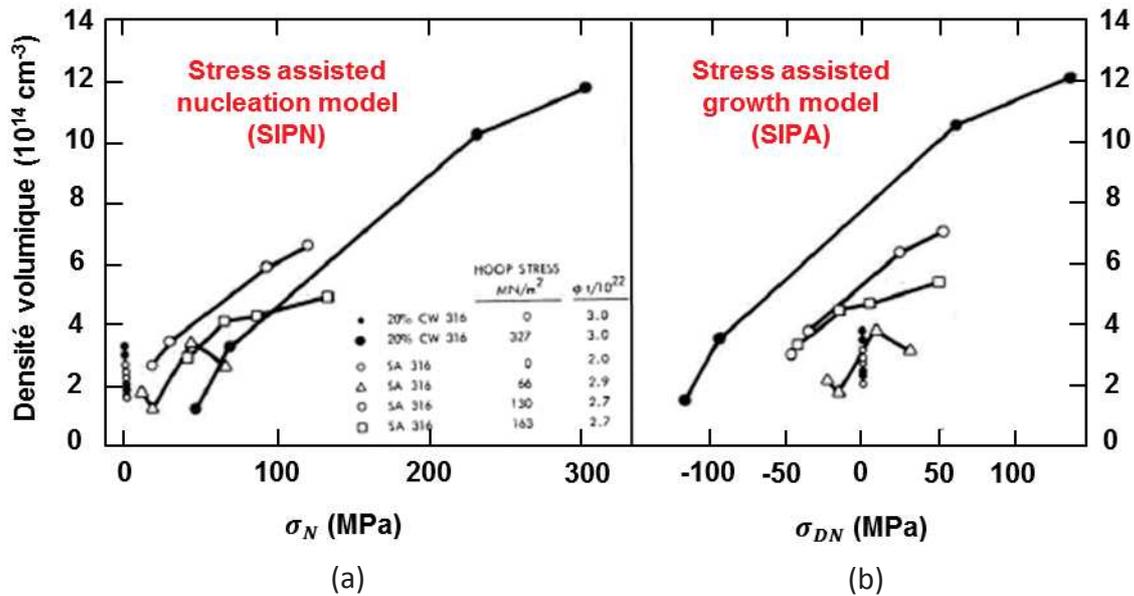


Figure IV.1.2: Evolution de la densité des boucles interstitielles de Frank avec – (a) la contrainte σ_N normale au plan de la boucle (mécanisme SIPN) et (b) la composante σ_{DN} du déviateur de contrainte normale au plan de la boucle (mécanisme SIPA) [22].

Toutefois, l'étude de Garnier [26], [27] est venue atténuer l'amplitude de l'effet de la contrainte sur l'anisotropie de densité et de taille des boucles de dislocation dans les aciers austénitiques 304 hypertrempe et 316 écroui irradiés aux neutrons dans le réacteur Osiris.

Plus récemment, Xu *et al.* [28] ont conduit une analyse quantitative de l'influence de la contrainte sur la répartition des boucles interstitielles dans les différents plans cristallographiques des aciers martensitiques de type T91, irradiés aux protons de 3 MeV sous un chargement en traction. Cette étude met en exergue une variation de la densité des boucles de dislocation avec l'angle défini entre la direction de la contrainte et la normale au plan d'habitat. Le diamètre des boucles est insensible à cette orientation mais augmente avec le niveau de contrainte appliquée.

Il est aussi intéressant d'examiner l'effet d'une contrainte appliquée sous irradiation sur la densité et la taille globale des boucles de dislocation. Ce point a été rarement analysé, l'objectif premier de ces études expérimentales étant d'observer et de quantifier la dépendance de l'anisotropie de distribution des boucles de dislocation à la contrainte. Néanmoins, quelques auteurs [22], [23] ont reporté une augmentation de la densité totale des boucles de Frank dans les aciers écrouis irradiés sous contrainte par rapport à ceux non contraints sous irradiation. Pour les aciers recristallisés, la densité totale des boucles de Frank ne semble pas évoluer avec la contrainte. Gelles *et al.* [23] attribuent l'augmentation de la densité globale des boucles interstitielles dans les aciers écrouis à une compétition entre le mécanisme SIPA appliqué aux dislocations droites et aux boucles de Frank de plus fort biais en faveur des SIAs. En revanche, selon l'étude microstructurale de Garnier [26], l'application d'une contrainte sous irradiation n'influence par la densité ni la taille moyenne des boucles dans les aciers 316 écroui et 304 hypertrempe.

Au-delà d'une taille critique, l'énergie d'une boucle de Frank fautive devient supérieure à celle d'une boucle parfaite. Les boucles fautes deviennent énergétiquement instables et ont tendance à se défauter pour former des boucles parfaites. Ce phénomène a été observé par Caillard *et al.* [21] lors de leur étude du fluage sous irradiation de l'acier 316, irradié *in-situ* aux électrons dans un microscope électronique à haute tension à 350 et 450°C. Ces auteurs soulignent que le défautage de quelques boucles de Frank a lieu à partir d'une dose critique qui dépend de la température d'irradiation. De plus, la présence d'une contrainte favorise le défautage de certaines boucles par rapport aux autres. Ainsi, ils concluent que ce mécanisme est thermiquement activé et que sous contrainte le défautage

est anisotrope. La probabilité de défautage sous contrainte des boucles interstitielles de Frank a été reliée à la contrainte résolue de cisaillement [29]. Une fois défautées, ces boucles parfaites sont glissiles, peuvent intégrer le réseau des dislocations et donc participer à la déformation de fluage d'irradiation par le biais des mécanismes classiques de glissement et de montée des dislocations.

Quelques auteurs [30]–[32] ont suspecté un effet de l'état de contrainte dans les alliages de zirconium sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Griffiths *et al.* [30], [31] ont mentionné que les contraintes induites par l'oxydation superficielle des lames minces irradiées aux électrons peuvent stabiliser les boucles à composante $\langle c \rangle$. La présence d'une couche d'oxyde génère une contrainte de traction dans le plan de la lame mince, de normale perpendiculaire à l'axe cristallographique $\langle c \rangle$, qui favoriserait la formation des boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$ dans les plans de base. Elle serait également à l'origine de l'anisotropie de distribution des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ lacunaires et interstitielles. Par la suite, ces auteurs ont revu l'effet évoqué des contraintes internes et ont interprété leurs observations microstructurales en termes d'influence de l'orientation cristalline des grains par rapport à la normale à la surface des lames minces. Par ailleurs, les travaux de Holt et Gilbert [33] peuvent laisser penser que l'application d'une contrainte externe a pour effet d'augmenter la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour deux échantillons de Zircaloy-4 recristallisé irradiés en réacteur de puissance dans des conditions similaires sous une contrainte de 30 MPa pour le premier et de 90 MPa pour le second, les auteurs [33] ont reporté une densité de boucles à composante $\langle c \rangle$ plus élevée pour le deuxième échantillon soumis à une contrainte plus élevée. Toutefois, la relation entre la présence de la contrainte macroscopique et la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'a pas été clairement établie.

Face au peu de données expérimentales, une première étude de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, responsables du phénomène d'accélération de croissance, a été engagée par Tournadre [34], [35]. Cette étude a été poursuivie dans le cadre de notre travail et a été approfondie par la mise en place d'une approche statistique portant sur la caractérisation fine de l'évolution de la microstructure de ces défauts d'irradiation sous un chargement en contrainte. Nos résultats expérimentaux seront confrontés à ceux obtenus lors d'une étude complémentaire, réalisée par des irradiations *in-situ* aux ions Kr^{2+} de 1 MeV.

IV.2 Mise en contrainte sous flux d'ions : protocole expérimental

IV.2.1 Géométrie et préparation des échantillons

Les échantillons de cette étude se présentent sous la forme de languettes de 24 mm de longueur, de 1,9 mm de largeur et de 100 μm d'épaisseur. Une attention particulière a été accordée au plan de prélèvement de ces échantillons dans les tubes TREX. Le choix s'est porté sur le plan (DT-DR), du fait qu'il présente deux intérêts pour notre étude de l'effet de la contrainte. Comme il a été détaillé dans la partie II.1.1, le tube TREX se caractérise par sa texture transverse avec les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ des grains principalement orientés suivant DT mais en présentant également un étalement dans le plan (DT-DR). De cette texture cristallographique et du choix du plan de prélèvement (DT-DR), il ressort que les grains présentent une large variabilité d'orientation de leur axe $\langle c \rangle$ par rapport à la direction d'application de la contrainte qui correspond à la direction transverse (DT) du tube. De plus, la condition de diffraction $\vec{g} = 0002$ optimale pour l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ en MET peut être facilement obtenue pour un grand nombre de grains dont leur axe $\langle c \rangle$ est contenu dans le plan de la lame mince (§ II.3.1).

Avant irradiation, les plaquettes prélevées dans le plan (DT-DR) des tubes TREX de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] sont amincies par polissage mécanique jusqu'à obtenir des languettes de 100 μm d'épaisseur (Figure IV.2.1 (a)).

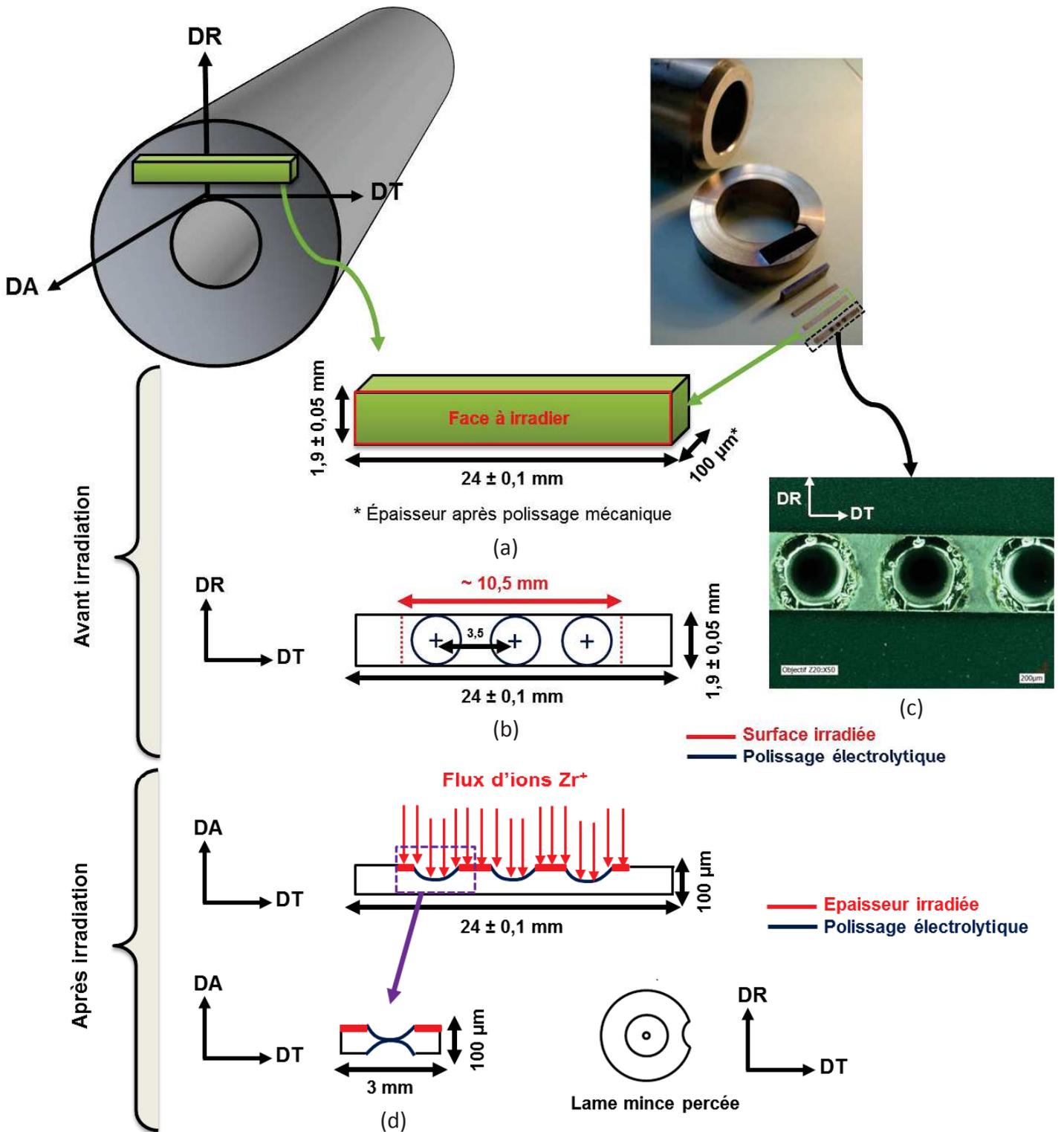


Figure IV.2.1: Géométrie et étapes de préparation des languettes avant et après irradiation aux ions – (a) géométrie d'une languette après polissage mécanique, (b) polissage électrolytique en cuvettes de la face à irradier, (c) cuvettes observées au microscope numérique 3D et (d) polissage électrolytique en face arrière après irradiation.

La face à irradier est ensuite polie par polissage électrochimique en utilisant le Tenupol 3 Struers et la solution électrolytique « 721 éthanol » (70% éthanol absolue, 20% d'éther mono butylique d'éthylène glycol et 10% d'acide perchlorique) refroidie à 5°C. La face polie des échantillons présente trois cuvettes (Figure IV.2.1 (b)) d'une profondeur d'environ 20 µm, mesurée avec le microscope numérique 3D (Figure IV.2.1 (c)).

Après irradiation, les languettes sont poinçonnées au niveau des cuvettes pour récupérer les trois disques de 3 mm de diamètre. La face irradiée de ces disques est protégée par un vernis, la « Lacomit ». Un polissage électrolytique est réalisé sur la face arrière de ces disques (Figure IV.2.1 (d)). Le jet électrolytique attaque la face non polie et non irradiée jusqu'à percer la lame mince. Celle-ci est ensuite nettoyée avec le « Lacomit Remover » et rincée à l'éthanol.

IV.2.2 Dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions

IV.2.2.1 Présentation du dispositif et des chargements mécaniques

Un dispositif a été spécialement conçu, dans le cadre du travail de thèse de Tournadre [34], [35], pour la mise en contrainte des languettes sous flux d'ions sur l'accélérateur ARAMIS du CSNSM Orsay. La solution technique retenue pour la mise en contrainte est la flexion en quatre points. Cette solution est particulièrement intéressante, d'un point de vue mécanique, car elle permet d'obtenir un état de flexion pure (sans contrainte de cisaillement) entre les deux appuis intérieurs B et C du dispositif (Figure IV.2.3 (a)). La zone irradiée, de quelques centaines de nanomètres en peau des languettes, se trouve donc en traction. La contrainte, considérée homogène dans cette zone irradiée, peut être connue précisément et contrôlée par la flèche imposée.

Pour assurer sa fonction de mise en flexion quatre points des échantillons, le dispositif est constitué de quatre parties principales (Figure IV.2.2):

- Un socle inférieur qui présente des stries dans lesquelles viennent se loger les languettes. Cette partie du dispositif est en contact avec le support chauffant de l'accélérateur ARAMIS ;
- Quatre blocs centraux peuvent se fixer au socle inférieur. Ces blocs de hauteur variable permettent de placer les appuis intérieurs des languettes à différentes hauteurs et donc d'imposer diverses flèches. Différents niveaux de contrainte peuvent être appliqués en une seule campagne d'irradiation. Des blocs centraux ont été usinés de façon à obtenir des contraintes en peau de 0, 80 et 120 MPa pour des échantillons de 100 µm d'épaisseur, chacun de ces blocs pouvant accueillir quatre languettes ;
- Une pièce intermédiaire qui permet de maintenir les languettes ;
- Un couvercle supérieur où sont définis les appuis extérieurs pour la flexion quatre points des échantillons.

Dans le cadre de notre travail de thèse, des améliorations ont été apportées à ce montage de mise en contrainte. En effet, nous avons constaté que lorsque les languettes sont placées sur les blocs centraux de 120 MPa, il est difficile de bien les fixer sur les bords. Le bloc, initialement usiné pour appliquer une contrainte de 120 MPa à des languettes de 100 µm d'épaisseur, présente une hauteur élevée qui rend le maintien des échantillons sur le montage assez délicat. Pour remédier à ce problème, nous avons eu l'idée d'usiner un nouveau couvercle en modifiant la côte des appuis extérieurs de façon à utiliser les blocs anciennement usinés pour une contrainte de 80 MPa comme des blocs à 120 MPa. L'intérêt de ces anciens blocs de 80 MPa est que leur hauteur est plus faible ce qui facilite le logement des languettes. Un nouveau bloc à 0 MPa a été usiné en prenant en compte la nouvelle côte du couvercle supérieur. Par ailleurs, ce montage, initialement conçu pour la mise en flexion quatre points des languettes, a été utilisé pour introduire un deuxième type de chargement mécanique : le flambage permettant d'obtenir une contrainte de compression dans la zone irradiée des échantillons (Figure IV.2.3 (b)). La charge de compression est appliquée grâce à des cales (Figure IV.2.2 (b)), placées de part et d'autre du socle inférieur (ou uniquement sur un côté du socle).

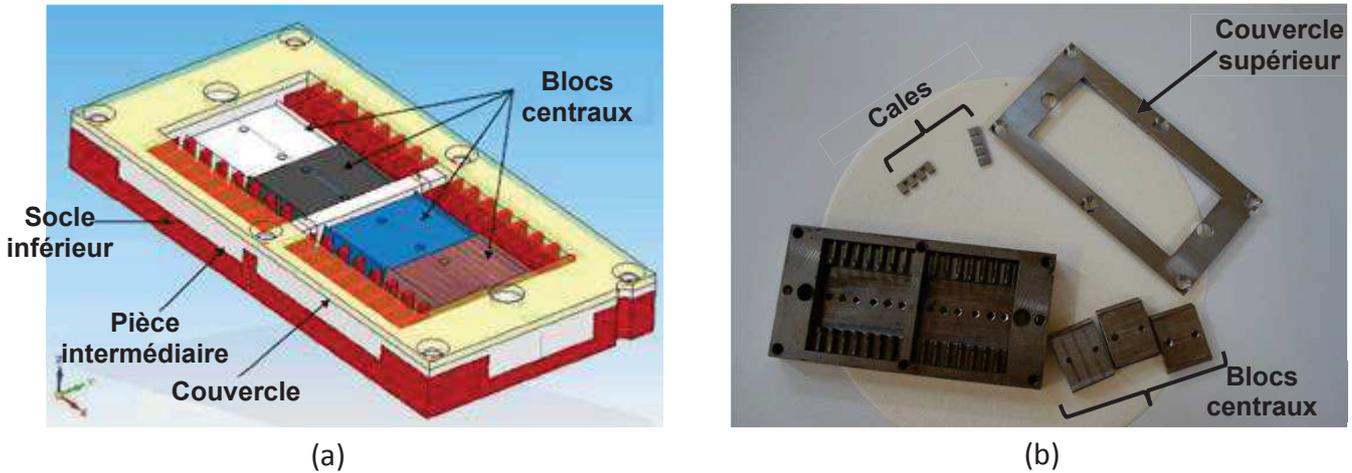


Figure IV.2.2 – (a) Montage de mise en contrainte sous flux d'ions et (b) vue des différentes parties du montage (support, couvercle supérieur, blocs centraux et cales pour la mise en flambage des languettes).

Le niveau de contrainte dans la zone irradiée des languettes mises en flexion ou en flambage peut être déterminé de manière précise. Pour la mise en flexion quatre points, la contrainte maximale de traction dans la zone centrale des languettes est directement liée à la flèche imposée u et à l'épaisseur h de l'échantillon par l'équation suivante :

$$\sigma_t = -6 \frac{E h u}{(L - l)(L + 2l)} \quad \text{Eq. IV.2.1}$$

avec E le module de Young, L la distance entre les appuis extérieurs A et D (égale à 20 mm) et l la distance entre les appuis intérieurs B et C (égale à 12 mm) (Figure IV.2.3 (a)). Le calcul de cette contrainte maximale de traction en peau des échantillons, basé sur la théorie des poutres, est détaillé dans l'Annexe C (§ C.1.1).

A l'issue de l'étape du polissage mécanique, les languettes ont une épaisseur qui varie entre 70 et 140 μm . Les flèches imposées étant égales à 0,58 ou à 0,88 mm, le niveau de la contrainte maximale de traction s'étend de 76 à 171 MPa. Les essais de traction, réalisés à 300°C sur des éprouvettes de Zircaloy-4 recristallisé TREX et de M5[®] TREX, donnent une limite d'élasticité $R_{p0,2}$ suivant DT (direction d'application de la contrainte) de 271 et 232 MPa, respectivement (§ II.1.2.4 et Tableau II.1.3). La contrainte de traction est donc appliquée dans le domaine d'élasticité.

Pour le chargement en flambage, la contrainte maximale de compression en peau peut être déterminée à partir de la loi de flexion appliquée à une poutre bi-articulée dans le cadre des petits déplacements (§ C.1.2). Le calcul, détaillé dans l'Annexe C, donne l'expression suivante où P est la charge de compression, B la flèche maximale au centre de la languette et b la largeur de la languette :

$$\sigma_c = -6 \frac{P B}{b h^2} \quad \text{Eq. IV.2.2}$$

Le premier mode de flambage de la languette est obtenu pour une charge de compression égale à la charge critique d'Euler. En considérant les hypothèses du problème d'Euler (matériau homogène, section constante de la languette, poids négligeable de la languette, raccourcissement de la languette négligeable vis-à-vis de la déformation due à la flexion), la charge critique P_c pour la languette en compression axiale s'écrit comme suit :

$$P_c = \frac{\pi^2 E I}{l_f^2} \quad \text{Eq. IV.2.3}$$

I est l'inertie de la section bh de la languette qui vaut $bh^3/12$ et l_f la longueur de flambage qui dépend des conditions de fixation des languettes. Dans notre cas, les languettes sont bi-articulées et l_f est égale à leur longueur initiale (24 mm).

La mise en flambage d'une languette conduit à une flèche B maximale en son centre, mesurée par le microscope numérique 3D. Les mesures sur six languettes donnent une valeur moyenne de B égale à 1025 μm . Le niveau de contrainte maximale de compression en peau des échantillons varie de - 63 MPa à - 89 MPa. Il convient de préciser que la flèche initiale de flambage B dépend de la manière avec laquelle les languettes sont intercalées dans le montage. Un écart type de 220 μm pour la flèche initiale a été mesuré et pris en compte dans l'estimation de l'erreur de calcul de la contrainte de compression dans la peau irradiée des languettes.

Les valeurs de contrainte en peau irradiée sont évaluées avec plus de précision pour un chargement en flexion quatre points qu'en flambage.

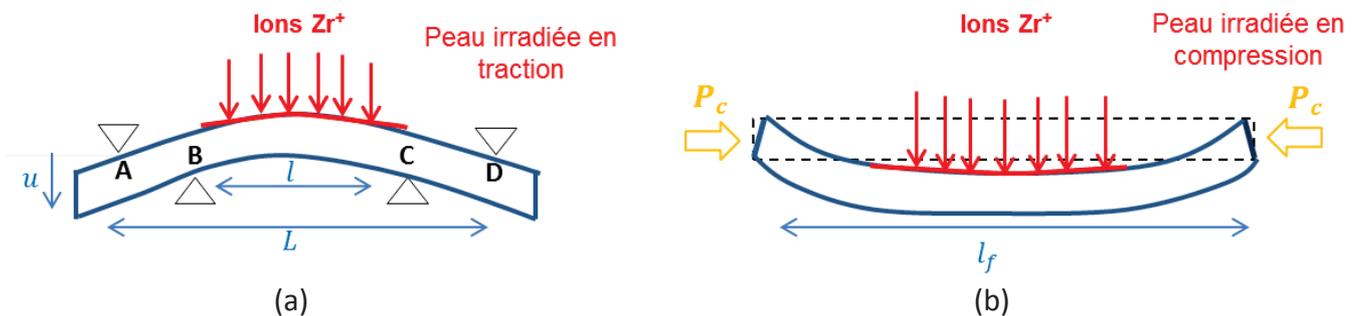


Figure IV.2.3: Deux types de chargement mécanique – (a) chargement en traction pour les languettes en flexion quatre points et (b) chargement en compression pour les languettes en flambage.

De par sa géométrie spécifique, le dispositif de mise en contrainte sous flux d'ions présente une limite d'un point de vue thermique. Le transfert de la chaleur aux languettes s'effectue par rayonnement et par conduction via les quatre contacts linéiques et les deux contacts latéraux (Figure IV.2.2). La qualification en température de ce dispositif, présentée dans la partie III.2.2, montre qu'il est nécessaire de monter à une température de 500°C pour le support chauffant afin d'assurer une température de 300°C au niveau de la surface des échantillons.

IV.2.2.2 Historiques de chargement en contrainte sous flux

Les campagnes d'application d'une contrainte macroscopique sous flux d'ions Zr^+ de 600 keV ont été menées sur l'accélérateur ARAMIS à une température d'irradiation de 300°C. Elles sont conduites en deux étapes : une première phase de pré-irradiation où les échantillons sont irradiés sans application de contrainte externe (Figure IV.2.5 (a)), puis dans une deuxième étape, ils sont soumis à un chargement mécanique sous flux d'ions (Figure IV.2.5 (b)).

Deux historiques de chargement ont été considérés pour l'étude de l'effet d'une contrainte macroscopique sur les boucles à composante c (Figure IV.2.4) :

- **Historique de chargement de type I** : les languettes sont pré-irradiées sans contrainte jusqu'à une dose de 2,9 dpa. Le chargement mécanique, en flexion quatre points ou en flambage, est ensuite appliqué jusqu'à une dose totale d'irradiation de 4,1 dpa. Au cours de ce premier historique de chargement, la contrainte est appliquée avant l'apparition des boucles à composante c. En effet, la dose d'introduction de la contrainte, 2,9 dpa, est inférieure à la dose seuil de nucléation des boucles à composante c qui est proche de 4,1 dpa pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX irradiés aux ions zirconium de 600 keV à 300°C (§ III.3 et [34], [36]). Ce premier historique de chargement vise donc à examiner

l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la période d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$;

- **Historique de chargement de type II** : le chargement est appliqué à une dose où les boucles à composante $\langle c \rangle$ se sont déjà formées, le but étant **d'étudier l'effet direct de la contrainte sur la microstructure de ces boucles de dislocation**. Ainsi, la pré-irradiation est menée jusqu'à 4,1 dpa, correspondant à la dose seuil d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX irradiés aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C. Puis, les languettes sont soumises à un chargement en flexion quatre points ou en flambage jusqu'à une dose totale de 7 dpa.

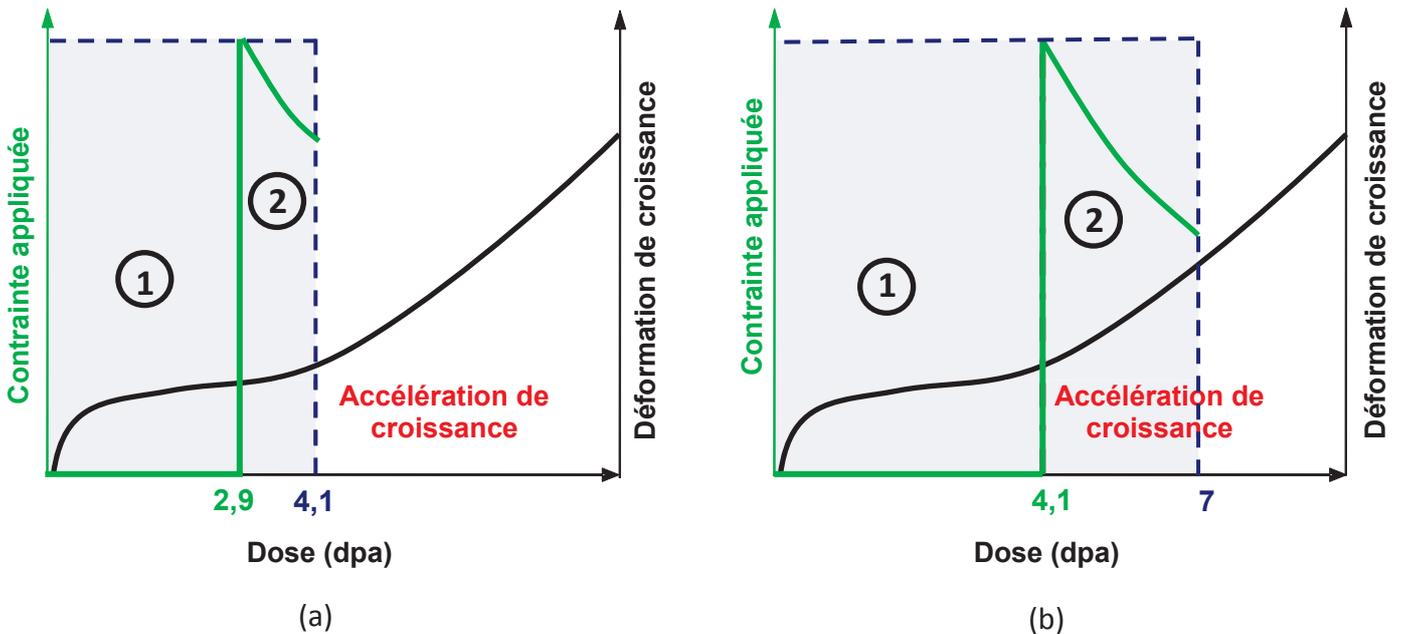


Figure IV.2.4: Schématisation des deux historiques de chargement avec (1) la première étape de pré-irradiation et (2) la deuxième étape de chargement mécanique – (a) historique de chargement de type I et (b) historique de chargement de type II.

Pour chaque campagne d'irradiation, en plus des échantillons contraints, quatre languettes, deux de chaque alliage, ont été irradiées aux mêmes conditions mais sans application de contrainte macroscopique. Ces échantillons non contraints sont appelés « témoins ».

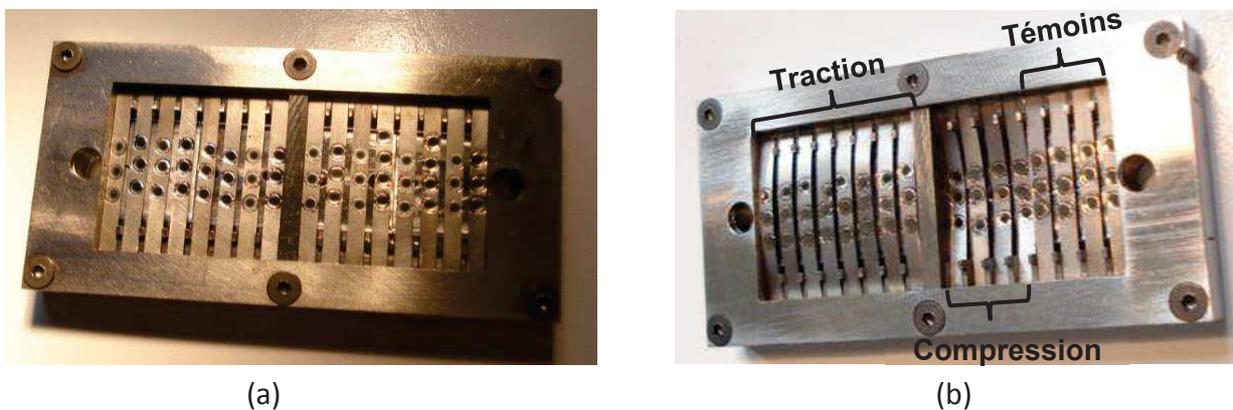


Figure IV.2.5 – (a) Première étape de la campagne d'irradiation consistant à pré-irradier les languettes sans application de contrainte et (b) deuxième étape de la campagne d'irradiation consistant en un chargement mécanique en flexion quatre points (surface irradiée en traction) et en flambage (surface irradiée en compression) sous flux d'ions.

Les conditions des irradiations aux ions zirconium de 600 keV à 300°C sont spécifiées dans le Tableau IV.2.1 pour les deux historiques de chargement. Les profils de dommage pour les deux fluences ($4,8 \times 10^{14}$ ions/cm² et $6,7 \times 10^{14}$ ions/cm²) auxquelles le chargement mécanique est appliqué sont donnés dans la Figure III.2.1. Nous notons que la zone d'observation au MET de la lame mince est intégralement irradiée.

Tableau IV.2.1: Conditions des campagnes d'irradiation aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C menées dans le cadre de l'étude de l'effet de la contrainte sur les boucles à composante c.

Historique de chargement	Etape	Fluence (ions/cm ²)	Flux moyen (ions/cm ² /s)	Taux de création de dommage (dpa/s)	Temps d'irradiation	Dose (dpa)	Date
Historique de chargement de type I	Pré-irradiation	$4,8 \times 10^{14}$	$3,23 \times 10^{10}$	$1,96 \times 10^{-4}$	4 h 08 min	2,9	10/2013
	Chargement mécanique	2×10^{14}	$4,73 \times 10^{10}$	$2,88 \times 10^{-4}$	1 h 11 min	1,2	
Historique de chargement de type II	Pré-irradiation	$6,7 \times 10^{14}$	$7,44 \times 10^{10}$	$4,53 \times 10^{-4}$	2 h 30 min	4,1	09/2012
	Chargement mécanique	$4,8 \times 10^{14}$	$5,76 \times 10^{10}$	$3,50 \times 10^{-4}$	2 h 19 min	2,9	
	Pré-irradiation	$6,7 \times 10^{14}$	$3,72 \times 10^{10}$	$2,26 \times 10^{-4}$	5 h	4,1	09/2013
	Chargement mécanique	$4,8 \times 10^{14}$	$3,20 \times 10^{10}$	$1,95 \times 10^{-4}$	4 h 10 min	2,9	

IV.2.3 Contrôle du niveau de contrainte appliquée

IV.2.3.1 Effet des cuvettes

La face irradiée des languettes, soumises à un chargement mécanique sous flux d'ions, présente trois cuvettes créées lors de l'étape du polissage électrolytique (§ IV.2.1). Le calcul de la contrainte maximale en peau supérieure (Eq. IV.2.1 et Eq. IV.2.2), basé sur la théorie des poutres, ne tient pas compte de la présence de ces cuvettes. Il est donc apparu nécessaire d'évaluer leur éventuel effet sur la contrainte appliquée au moyen d'une modélisation par éléments finis avec le code de calcul CAST3M. Cette modélisation a été initiée dans le cadre de ce travail et a été principalement développée lors du stage de fin d'étude de Caspari [37].

Pour cette étude numérique, nous avons considéré le chargement en flexion quatre points. La problématique a été traitée en élasticité, tout d'abord en deux dimensions avec l'hypothèse de contraintes planes, puis en trois dimensions. Le matériau est considéré comme isotrope et est défini par son module d'élasticité de 79,8 GPa et son coefficient de Poisson de 0,4 à 300°C. Compte tenu de la symétrie de la géométrie dans le plan (\vec{e}_y, \vec{e}_z), il suffit de modéliser une demi-languette tout en considérant les conditions de blocage de symétrie et de flexion quatre points. La flèche u est imposée au point d'appui P4 (Figure IV.2.6 (a)). Les cuvettes ont une géométrie sphérique avec un rayon de 900 μm et une profondeur variable de $20 \pm 10 \mu\text{m}$. Une représentation schématique de la géométrie d'une demi-languette et des conditions aux limites, en 2D et en 3D, est donnée dans la Figure IV.2.6 (a) et la Figure IV.2.6 (b), respectivement.

Pour commencer, la modélisation en deux et trois dimensions de la flexion quatre points d'une languette ne présentant pas de cuvette a permis de vérifier la formule analytique de la contrainte maximale en peau définie pour une flèche imposée (Eq. IV.2.1), à une erreur près de 3%.

Les calculs en 2D montrent une concentration de la contrainte axiale au fond des cuvettes. Pour une profondeur de 20 μm , la contrainte en fond de cuvette (P8 et P9 en Figure IV.2.6 (a)) est 1,57 fois plus élevée que celle hors de la cuvette (P5 en Figure IV.2.6 (a)). De plus, la contrainte en fond de cuvette

est 30% plus élevée que celle calculée par la formule analytique (Eq. IV.2.1) pour une languette sans cuvette. Il a été également constaté que l'effet des cuvettes est d'autant plus important que la profondeur est élevée.

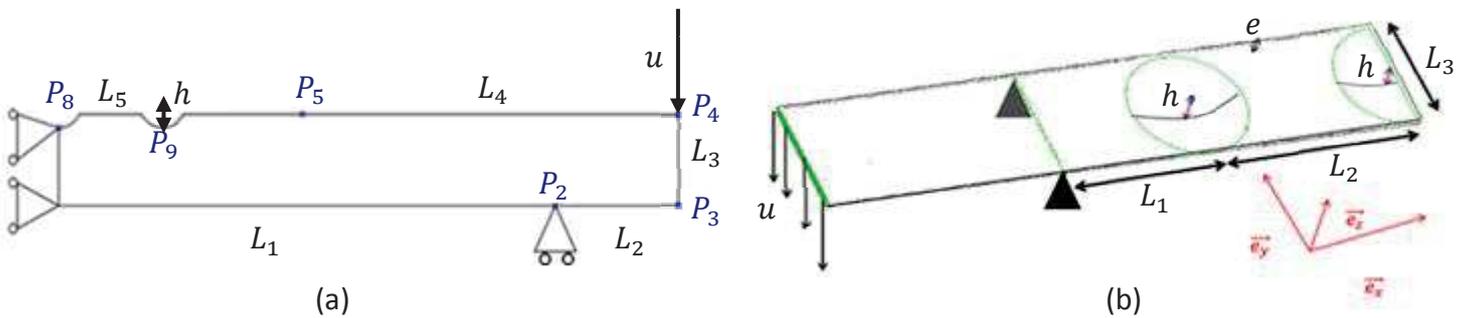


Figure IV.2.6: Représentation schématique de la géométrie d'une demi-languette et des conditions aux limites – (a) en deux dimensions et (b) en trois dimensions [37].

Tout comme en 2D, la modélisation en 3D fait apparaître une augmentation de la contrainte dans la zone affectée par la présence de la cuvette (P1 en Figure IV.2.7) par rapport à celle se trouvant hors de la cuvette (P2 en Figure IV.2.7). Cependant, un problème de convergence a été identifié. En effet, en considérant une flèche imposée u de 0,735 mm, la contrainte axiale en peau d'une languette sans cuvette est de 100 MPa. La modélisation en 3D d'une languette avec une cuvette, dont la profondeur tend vers 0, donne une contrainte σ_{xx} qui converge vers 128 MPa et non pas 100 MPa. Ce problème de convergence de la contrainte pourrait être dû à un problème de maillage (rectangle noir de la Figure IV.2.7). En prenant comme référence la valeur de 128 MPa, il a été estimé qu'en présence d'une cuvette de 20 μm de profondeur, la contrainte σ_{xx} n'est augmentée que de 13% par rapport à celle d'une languette sans cuvette.

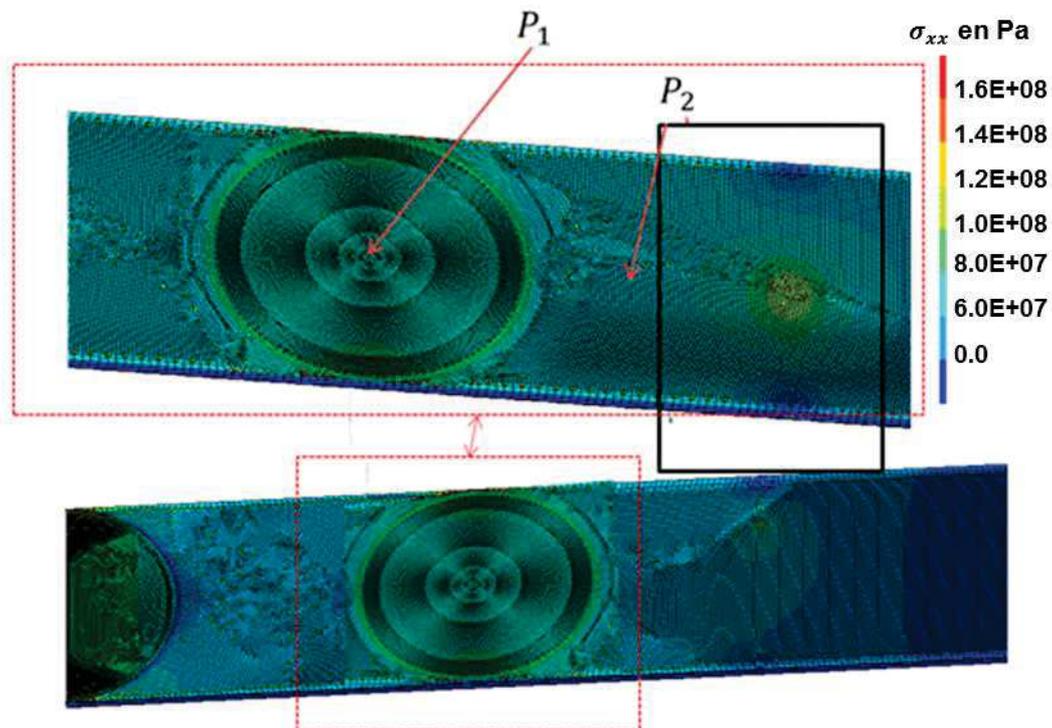


Figure IV.2.7: Isovaleurs de la contrainte axiale σ_{xx} pour une cuvette de 20 μm de profondeur [37].

De cette étude numérique, il est possible de conclure qu'en présence d'une cuvette de 20 μm (profondeur mesurée sur nos languettes avec le microscope numérique 3D, § IV.2.1), la contrainte maximale de traction peut augmenter d'environ 13 à 30% par rapport à celle d'une languette sans cuvette. En raison des incertitudes liées au maillage en 3D de la languette présentant trois cuvettes, la valeur de 13% est à considérer avec précaution. Il serait d'ailleurs intéressant de reprendre ce cas de modélisation en s'affranchissant des problèmes de maillage.

IV.2.3.2 Relaxation de la contrainte appliquée

IV.2.3.2.1 Relaxation thermique des languettes

Après irradiation et déchargement du montage de mise en contrainte sous flux d'ions, les languettes contraintes présentent une déflexion résiduelle. Cette déflexion est la preuve que ces languettes se sont déformées viscoplastiquement et que le niveau de contrainte, correspondant à la déformation initialement imposée, a diminué au cours de l'expérience. Cette relaxation peut être due au fluage d'irradiation dans la zone irradiée et/ou fluage thermique dans la couche non irradiée. Comme l'irradiation aux ions zirconium de 600 keV est superficielle, l'épaisseur irradiée étant de quelques centaines de nanomètres (300 nm environ pour une fluence de $11,5 \times 10^{14}$ ions/cm² comme constaté en Figure II.2.2 et en Figure III.2.1), la déflexion résiduelle observée est due principalement au fluage thermique ayant lieu dans la couche non irradiée d'une épaisseur de 99,7 μm . Avec un rapport d'épaisseur des couches d'environ 340, il est possible de considérer la contribution du fluage d'irradiation à la relaxation observée expérimentalement comme négligeable.

La déflexion résiduelle des languettes contraintes en flexion et en flambage au cours des expériences de septembre et d'octobre 2013 (Tableau IV.2.1) a été mesurée à travers la reconstruction d'image par le microscope numérique 3D (§ C.3). Le taux de relaxation thermique, défini comme étant le rapport de la déflexion résiduelle par la flèche imposée [38] (u pour la flexion en quatre points et B pour le flambage), a été moyenné sur l'ensemble des languettes de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX en flexion et en flambage pour les deux historiques de chargement (Tableau IV.2.2).

Tableau IV.2.2: Relaxation thermique de la contrainte pour les deux types de chargement en flexion quatre points et en flambage à 300°C et pour les historiques de type I et II.

Matériau	Historique de chargement de type I (1 h 11 min)		Historique de chargement de type II (4 h 10 min)	
	Flexion 4 points	Flambage	Flexion 4 points	Flambage
Zircaloy-4 recristallisé TREX	31%	29%	16%	56%
M5 [®] TREX	22%	33%	23%	70%

Les mesures mettent en évidence une relaxation thermique limitée des languettes de Zircaloy-4 et de M5[®] en flexion quatre points, ceci pour les deux historiques de chargement. Le taux de relaxation moyen de ces languettes est de 23% (Tableau IV.2.2), ce qui signifie que 77% de la contrainte appliquée au début du chargement en flexion quatre points est conservée jusqu'à la fin de l'expérience. Pour les languettes en flambage, le taux de relaxation moyen est de 31% lors du premier historique de chargement. Pour le deuxième historique de chargement de plus long durée (4 h 10 min) que le premier (1 h 11 min), la relaxation thermique paraît plus importante. Comme il a été précisé précédemment dans la partie IV.2.2.1 de ce présent chapitre, la flèche B imposée en flambage dépend de la manière avec laquelle chaque languette est mise en compression dans le dispositif. Ne pouvant pas faire les mesures de cette flèche initiale au cours de la campagne d'irradiation, nous avons considéré a posteriori six languettes types soumises à un chargement en flambage. La valeur considérée pour B correspond à la moyenne des flèches mesurées sur ces six languettes types avec

le microscope numérique 3D. Les taux de relaxation des languettes contraintes en flambage doivent être considérés avec prudence, de par l'incertitude portant sur la mesure de la flèche imposée au début de l'expérience.

Le taux de relaxation thermique moyen de 23% pour les languettes sollicitées en flexion quatre points a été également obtenu par Tournadre [34] grâce à des mesures au microscope optique. Carassou *et al.* [38] ont reporté une relaxation de 13% de la contrainte initiale après 100 heures à 315°C pour des languettes plus épaisses en flexion trois points. Comme nos expériences d'irradiation sous contrainte sont de plus courte durée, il semble que la relaxation thermique de nos languettes est relativement élevée comparée à celle obtenue par Carassou *et al.* [38]. La relaxation plus importante dans le cas de nos expériences pourrait être due au fait que nos languettes sont deux fois plus fines (de 100 µm d'épaisseur) que celles considérées dans les expériences de Carassou *et al.* [38] (de 210 µm d'épaisseur). Les chargements mécaniques des deux expériences sont aussi différents : flexion en quatre points pour notre étude et flexion en trois points pour l'étude de Carassou *et al.* [38].

IV.2.3.2.2 Relaxation sous irradiation des languettes

Dans la couche irradiée des languettes sollicitées en flexion et en flambage sous flux, la relaxation de la contrainte est induite par irradiation. Un modèle simple a été proposé par Morize *et al.* [39] pour décrire l'évolution du taux de relaxation des languettes irradiées dans le réacteur Siloé à 315°C :

$$1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \exp[-C E \phi t] \quad \text{Eq. IV.2.4}$$

avec σ_0 la contrainte initiale, E le module de Young, ϕt la fluence neutronique exprimée en n/m^2 et C un coefficient déterminé expérimentalement à partir des essais de relaxation sous irradiation. Le taux de relaxation, donné en Eq. IV.2.4, est obtenu par la résolution de l'équation explicitant la vitesse de déformation en fluage d'irradiation, $\dot{\epsilon}_{fi}$:

$$\dot{\epsilon}_{fi} = -\frac{\dot{\sigma}}{E} = C \sigma \phi \quad \text{Eq. IV.2.5}$$

Cette expression est communément adoptée pour déterminer la relaxation de la contrainte sous irradiation, comme par exemple pour les aciers austénitiques 316 [40].

Dans le cadre de nos campagnes d'irradiation, la contrainte initiale est appliquée à partir d'une certaine dose, correspondant à $4,8 \times 10^{14}$ ions/cm² (2,9 dpa) pour l'historique de chargement de type I et à $6,7 \times 10^{14}$ ions/cm² (4,1 dpa) pour l'historique de chargement de type II. En prenant en compte la fluence neutronique ϕt_0 à laquelle les languettes sont soumises à la contrainte initiale σ_0 , nous écrivons le taux de relaxation, à partir de l'équation Eq. IV.2.4, de la manière suivante :

$$1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \exp[-C E (\phi t - \phi t_0)] \quad \text{Eq. IV.2.6}$$

Moyennant l'hypothèse que le fluage d'irradiation ne dépend que du dommage créé en déplacements par atome (dpa) et non du type de l'irradiation, les fluences neutroniques équivalentes aux dpa créés par les ions Zr^+ de 600 keV sont obtenues à partir de la conversion de Shishov [41] pour les réacteurs expérimentaux (1 dpa équivalent à 4×10^{24} n/m² pour les MTR : Materials Testing Reactors). Morize *et al.* [39] donnent un coefficient C de $1,85 \times 10^{-30}$ (MPa⁻¹ n⁻¹m²) pour le Zircaloy-4 détendu. D'après Carassou *et al.* [38], la relaxation de la contrainte sous irradiation du Zircaloy-4 détendu est similaire à celle du Zircaloy-4 recristallisé. Etant donné le fait que les mesures des taux de relaxation des languettes de Zircaloy-4 détendu n'ont été réalisées qu'à faible fluence neutronique jusqu'à 2×10^{24} n/m² [38], l'affirmation d'un comportement similaire pour les deux états métallurgiques doit être considérée avec précaution. En vue d'évaluer la relaxation sous irradiation de nos languettes de

Zircaloy-4 recristallisé, nous considérons, en première approximation, l'expression Eq. IV.2.6 et la valeur de Morize *et al.* [39] pour le coefficient C .

L'application du modèle simplifié de Morize *et al.* [39] met en évidence une relaxation rapide de la contrainte dans la couche irradiée des languettes (Figure IV.2.8). Néanmoins, environ 60% de la contrainte initiale est conservée après 1 dpa de chargement suivant les deux historiques de type I et II (Figure IV.2.8).

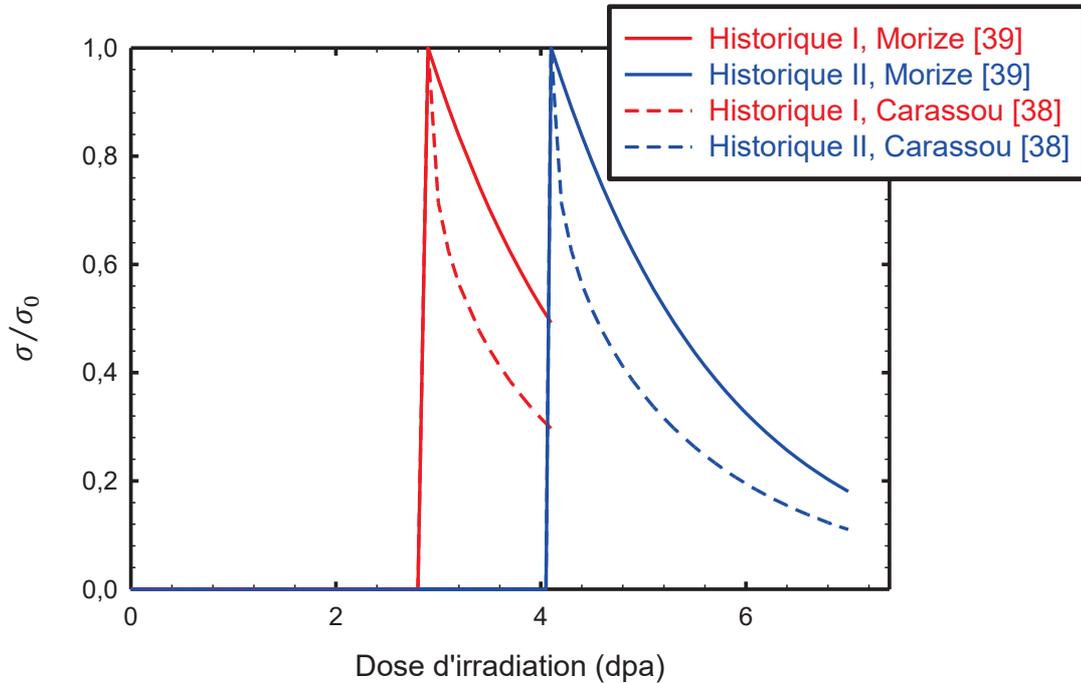


Figure IV.2.8: Relaxation de la contrainte dans la couche irradiée des languettes pour les deux historiques de chargement et suivant les modèles de Morize *et al.* [39] et de Carassou *et al.* [38].

Dans le cadre des expériences REFLET (languettes de Zircaloy-4 recristallisé et détendu de 210 μm d'épaisseur, flexion trois points, irradiation dans le réacteur Osiris à 315°C), Carassou *et al.* [38] ont proposé une loi de relaxation de la contrainte dont les paramètres ont été ajustés sur les résultats des essais de fluage et de relaxation :

$$1 - \frac{\sigma}{\sigma_0} = 1 - \exp \left[-E \exp \left(-\frac{Q}{T} \right) [B_1 \ln(1 + w(\phi t - \phi t_0)) + B_2(\phi t - \phi t_0)] \right] \quad \text{Eq. IV.2.7}$$

Pour le Zircaloy-4 recristallisé, la température d'activation Q est égale à 5000 K, les coefficients B_1 et B_2 à 0,01 et le paramètre w à 20.

Comme nous pouvons le constater sur la Figure IV.2.8, la relaxation prédite par le modèle de Carassou *et al.* [38] (Eq. IV.2.7) est plus rapide que celle déduite du modèle simple de Morize *et al.* [39]. Après 1 dpa de chargement mécanique, la contrainte n'est que de 35% de la contrainte appliquée initialement.

Les paramètres phénoménologiques (C, Q, w, B_1 et B_2) de ces lois dépendent des conditions expérimentales. Il est donc important d'avoir conscience de la limite d'une transposition directe des valeurs de ces paramètres aux cas spécifiques de nos irradiations (languettes de 100 μm d'épaisseur, flexion quatre points, irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C). Toutefois, il est possible de s'appuyer sur ces données bibliographiques pour donner une estimation de la relaxation des languettes.

L'étude de l'effet des cuvettes et de la relaxation des languettes apporte quelques éléments de réponse aux interrogations portant sur le contrôle du niveau de la contrainte appliquée sous flux. Plus particulièrement, nous pouvons affirmer que la relaxation thermique est relativement limitée. En revanche, la relaxation sous irradiation est rapide. En s'appuyant sur les modèles recensés dans la littérature et moyennant certaines hypothèses, il est possible de donner un ordre de grandeur du taux de cette relaxation sous irradiation. Dans la mesure où la contrainte « réelle » au niveau des cuvettes, dans lesquelles sont prélevés les disques de lames minces, est sous-estimée de 13 à 30% par rapport à celle calculée analytiquement, nous pouvons considérer que la relaxation viendrait compenser cet effet des cuvettes. Toutefois, il est important de noter que ces considérations ne sont qu'approximatives et que par la suite nous nous appuyons sur les calculs analytiques simples (§ IV.2.2.1 et C.1) pour définir le niveau de contrainte initial dans la peau irradiée des languettes en flexion quatre points ou en flambage.

IV.3 Résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

Dans un premier temps, cette partie décrit les résultats de la caractérisation microstructurale des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les lames minces prélevées des languettes « témoins », irradiées sans contrainte sous un flux d'ions zirconium à 300°C, au cours de l'expérience I. Puis, les observations et les analyses porteront successivement sur chacun des historiques de chargement en contrainte : l'historique de chargement de type I pour l'étude de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la période d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ et l'historique de chargement de type II pour l'influence de la contrainte sur l'évolution de la microstructure de ces boucles de dislocation.

IV.3.1 Caractérisation de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les échantillons « témoins », irradiés sans contrainte lors de l'expérience I

Pour commencer, nous tenons à bien préciser que les résultats microstructuraux présentés dans la partie III.3 sont issus de la campagne d'irradiation de septembre 2012 (Tableau IV.2.1) au cours de laquelle les échantillons « témoins » ont été irradiés suivant l'expérience II. Dans ce paragraphe, nous exposons uniquement les observations MET réalisées sur les lames minces prélevées des languettes « témoins » irradiées sans contrainte au cours de l'expérience I (expérience d'octobre 2013, Tableau IV.2.1). La caractérisation microstructurale a porté sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues à la dose finale, 4,1 dpa, dans les échantillons « témoins » de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX.

A 4,1 dpa, les boucles à composante $\langle c \rangle$ ne sont pas clairement visibles dans les lames minces « témoins » de M5[®] TREX. En revanche, quelques boucles sont observées dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX, à cette même dose d'irradiation (Figure IV.3.1). La dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le M5[®] semble donc plus élevée que celle dans le Zircaloy-4. Ces premières observations MET permettent de souligner qualitativement l'effet des éléments d'alliage sur la période d'incubation de ces boucles. Cet effet a été également observé pour les languettes « témoins » irradiées au cours de l'expérience II (§ III.3) et est caractéristique des microstructures de boucles à composante $\langle c \rangle$ induites par irradiation neutronique (§ I.2.4.2.1). Cependant, nous constatons que la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$, formées dans les languettes « témoins » irradiées en continu jusqu'à 4,1 dpa (expérience II), est plus importante que celle des boucles créées dans les échantillons « témoins » irradiés au cours de l'expérience I, pour laquelle la même dose (4,1 dpa) est atteinte au bout de la deuxième phase d'irradiation. La comparaison entre les grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$, formées à 4,1 dpa à l'issue de l'expérience I, avec celles obtenues suite à l'expérience II (Tableau III.3.1) est donnée dans le Tableau IV.3.1 .

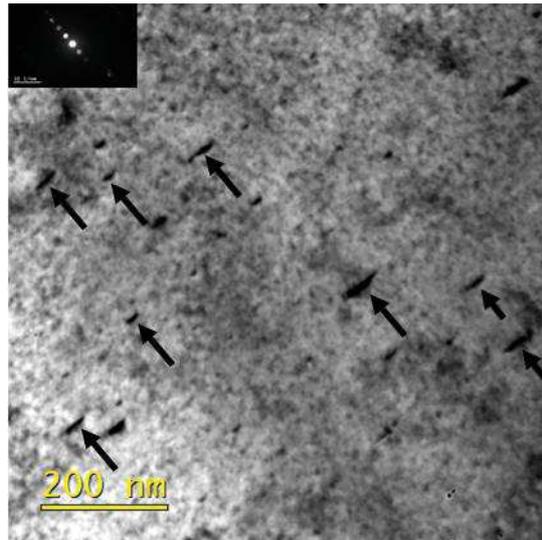


Figure IV.3.1: Quelques boucles à composante $\langle c \rangle$ observées dans les échantillons « témoins » de Zircaloy-4 recrystallisé TREX irradiés aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C à 4,1 dpa au cours de l'expérience I.

Tableau IV.3.1: Comparaison des grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans les échantillons « témoins » à 4,1 dpa à l'issue des expériences I et II.

Expérience	Densité volumique N_c (m^{-3})		Densité linéique L_c (m^{-2})		Diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm)	
	Zircaloy-4 recrystallisé TREX	M5® TREX	Zircaloy-4 recrystallisé TREX	M5® TREX	Zircaloy-4 recrystallisé TREX	M5® TREX
Expérience I	$6,40 \times 10^{19}$	0	$1,48 \times 10^{12}$	0	23	-
Expérience II	$2,84 \times 10^{20}$	$1,71 \times 10^{20}$	$6,31 \times 10^{12}$	$3,08 \times 10^{12}$	22	20

Les échantillons irradiés sans contrainte au cours de l'expérience I (2,9 dpa au début puis jusqu'à 4,1 dpa au final) sont soumis à un cycle thermique décrit comme suit :

- La première phase de chauffage du support chauffant à la température de consigne de 500°C permet d'obtenir une température de 300°C au niveau des languettes (§ III.2.2). Cette température d'irradiation est maintenue constante jusqu'à atteindre la dose de 2,9 dpa ;
- A 2,9 dpa, la température est abaissée rapidement, en à peu près une heure. Le support refroidi est alors retiré de la chambre d'irradiation ;
- Après avoir placé les échantillons contraints sur les blocs centraux de flexion ou entre les cales pour la mise en flambage, le support est remis dans la chambre d'irradiation. La deuxième phase de chauffage a lieu jusqu'à 500°C. Une fois la température stabilisée, l'irradiation est conduite jusqu'à obtenir la dose finale de 4,1 dpa.

Les échantillons « témoins » irradiés sans contrainte jusqu'à 4,1 dpa au cours de l'expérience I ont suivi un cycle thermique différent par rapport à ceux de l'expérience II. En effet, comme la dose de 4,1 dpa est atteinte lors de la première phase d'irradiation de l'expérience II, les languettes irradiées jusqu'à cette dose n'ont subi qu'une seule phase de chauffage avant irradiation (montée de la température au niveau du support chauffant jusqu'à 500°C avant irradiation). La densité plus faible et le diamètre légèrement plus élevé des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans les échantillons « témoins » de Zircaloy-4 recrystallisé TREX, irradiés à 2,9 dpa puis jusqu'à 4,1 dpa au total, selon

l'expérience I, peuvent donc être dus à un recuit des défauts lors de l'étape de montée en température de la deuxième phase d'irradiation.

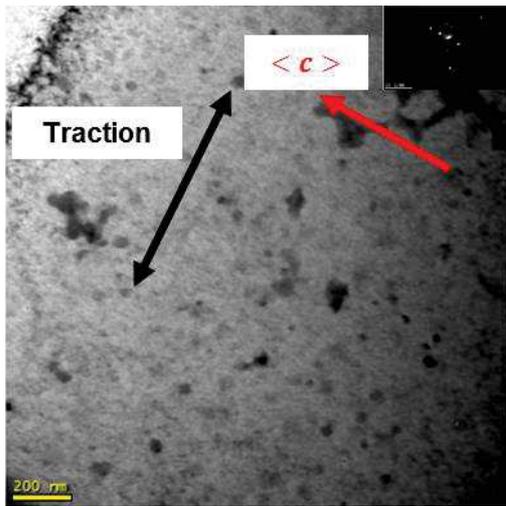
IV.3.2 Résultats de l'historique de chargement de type I : effet de la contrainte sur la dose seuil de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$

Pour le premier historique, le chargement mécanique est appliqué juste avant la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ par irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C (§ IV.2.2.2). En effet, comme décrit dans la partie III.3 et en [34], [36], la dose de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$ se situe entre 2,9 et 4,1 dpa pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX et est proche de 4,1 dpa pour le M5® TREX. Le choix de 2,9 dpa comme dose pour le début de la deuxième phase d'irradiation, correspondant à la mise en flexion quatre points ou en flambage des languettes (Figure IV.2.5 (b)), semble judicieux car cette dose est inférieure à la fois à la dose seuil de nucléation du Zircaloy-4 et du M5®. De plus, la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les échantillons « témoins » non contraints est connue à cette dose d'irradiation (Figure III.3.1 (a) et Figure III.3.1 (d)).

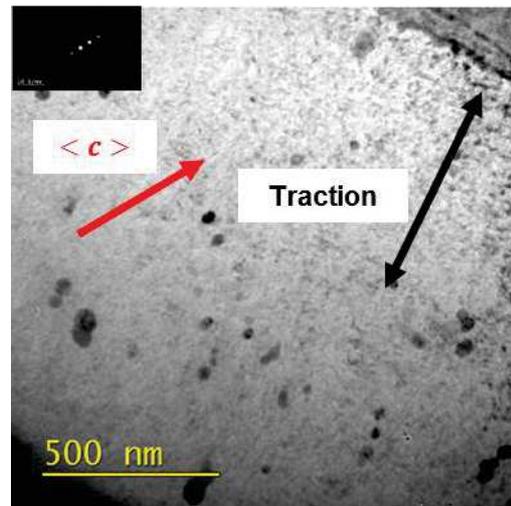
L'objectif des analyses microscopiques conduites sur les échantillons contraints selon ce premier historique de chargement est d'examiner si la période d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ est réduite pour des grains favorablement orientés par rapport à la direction d'application de la contrainte externe.

Pour le M5® TREX, les observations microstructurales en MET réalisées sur un ensemble de grains d'orientations cristallographiques variées par rapport à la direction de la contrainte ne mettent pas en évidence un effet perceptible de la contrainte macroscopique sur la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$. En effet, tout comme dans les languettes « témoins » (§ IV.3.1), les boucles à composante $\langle c \rangle$ ne sont pas clairement visibles à 4,1 dpa, ceci indépendamment de l'orientation cristallographique des grains par rapport à la direction d'application de la contrainte macroscopique de traction ou de compression. Les micrographies MET de la Figure IV.3.1 sont données à titre d'exemple pour illustrer cette constatation. Le grain « Ga » dont l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ est éloigné de la direction de traction ne présente pas de boucle à composante $\langle c \rangle$ (Figure IV.3.1 (a)), et pareillement aucune boucle à composante $\langle c \rangle$ n'est clairement identifiée dans le grain « Gb » d'axe cristallographique $\langle c \rangle$ proche de la direction de traction (Figure IV.3.1 (b)). Il en est de même pour les deux grains « Gc » (Figure IV.3.1 (c)) et « Gd » (Figure IV.3.1 (d)) sollicités en compression. Nous rappelons que θ désigne l'angle entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ et la direction de la contrainte et λ représente l'angle entre l'axe $\langle c \rangle$ et la normale au plan de la lame mince (§ II.3.4). L'orientation de la direction de la contrainte de traction pour les grains « Ga » et « Gb » et de compression pour les grains « Gc » et « Gd » dans le repère cristallographique est représentée par le triangle standard donné en Figure IV.3.3. Comme pour l'étude de l'effet de la température présentée dans le chapitre 3, nous ne considérons que les grains qui vérifient le critère de sélection ($70^\circ \leq \lambda \leq 90^\circ$) choisi pour découpler l'effet de la surface libre de l'effet du paramètre d'étude, la contrainte, dans ce chapitre.

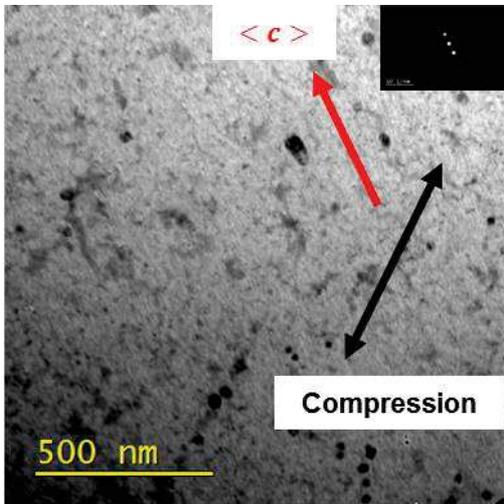
Pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX, quelques boucles à composante $\langle c \rangle$ sont déjà présentes à la dose d'application du chargement mécanique (2,9 dpa). Par conséquent, aucune conclusion ne peut être tirée quant à l'effet de la contrainte sur la période d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans cet alliage. Il serait pertinent d'introduire la contrainte à une plus faible dose ou d'envisager des irradiations *in-situ* plus adaptées pour une telle étude.



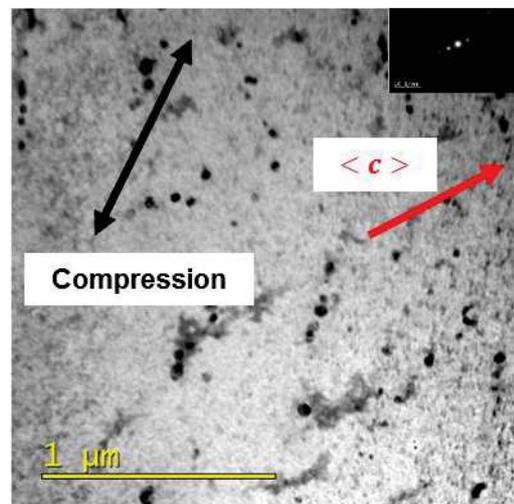
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure IV.3.2: Micrographies à 4,1 dpa des grains de M5[®] TREX irradiés aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C selon l'historique de chargement de type I – (a) Grain Ga avec $\theta = 86^\circ$, $\lambda = 76^\circ$ et $\sigma_t = 150$ MPa, (b) Grain Gb avec $\theta = 31^\circ$, $\lambda = 88^\circ$ et $\sigma_t = 144$ MPa, (c) Grain Gc avec $\theta = 54^\circ$, $\lambda = 86^\circ$ et $\sigma_c = -74$ MPa et (d) Grain Gd avec $\theta = 38^\circ$, $\lambda = 84^\circ$ et $\sigma_c = -74$ MPa.

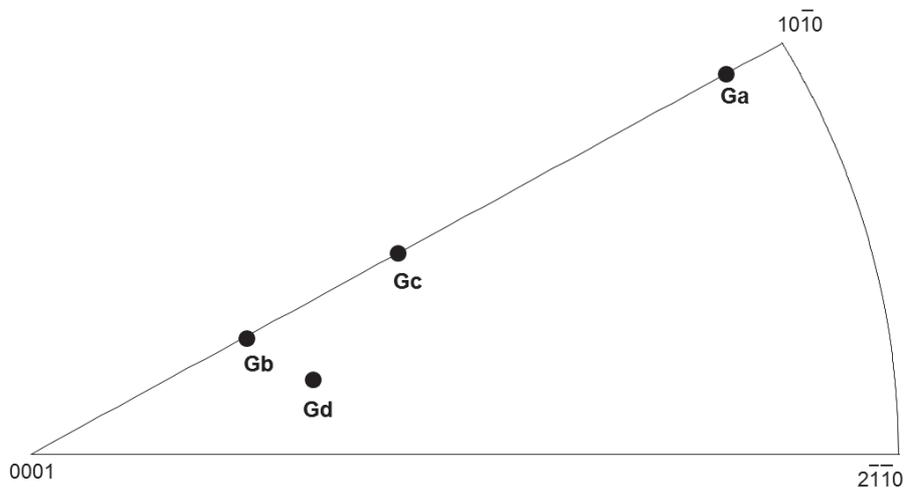


Figure IV.3.3: Représentation de la direction de la contrainte de traction ou de compression dans le triangle standard pour les grains Ga, Gb, Gc et Gd.

IV.3.3 Résultats de l'historique de chargement de type II : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

L'historique de chargement de type II a été considéré dans le but d'étudier l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour cela, le chargement mécanique est appliqué à une dose où les boucles à composante $\langle c \rangle$ se sont déjà formées. Les observations en MET ont été conduites sur les lames minces prélevées dans les languettes de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX sollicitées en flexion ou en flambage jusqu'à la dose finale de 7 dpa. Les examens microscopiques ont été effectués sur un grand nombre de grains présentant différentes orientations cristallographiques par rapport à la direction de la contrainte (Figure IV.3.4 et Figure IV.3.5). Pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX, 41 grains contraints ont été étudiés donnant lieu à un comptage de 19067 boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour Le M5[®] TREX, nous comptons 33 grains et 7904 boucles analysés. La caractérisation en MET de ce large ensemble de grains permet de rendre compte de l'aspect statistique de cette étude.

Les micrographies MET de la Figure IV.3.6 et de la Figure IV.3.7 représentent la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues à 7 dpa dans huit grains dont les axes $\langle c \rangle$ sont orientés différemment par rapport à la direction d'application d'une contrainte de traction ou de compression.

Le bilan de nos observations microscopiques conduites sur les lames minces issues des languettes de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX irradiées jusqu'à 7 dpa montre que les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont toujours présentes pour n'importe quelle orientation de la contrainte. Il apparaît donc que l'application d'une contrainte macroscopique de traction ou de compression ne conduit pas à la suppression totale des boucles à composante $\langle c \rangle$. En revanche, comme nous pouvons le noter à partir des exemples de microstructures de boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues à l'issue d'un chargement en traction ou en compression sous flux d'ions zirconium et présentées en Figure IV.3.6 pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX et en Figure IV.3.7 pour le M5[®] TREX, le nombre de ces boucles est plus ou moins important selon l'orientation de l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain par rapport à la direction d'application de la contrainte macroscopique. Pour ces deux alliages de zirconium, les micrographies MET mettent en évidence des boucles à composante $\langle c \rangle$ plus nombreuses dans les grains d'axes $\langle c \rangle$ éloignés de la direction de traction (Figure IV.3.6 (a) et Figure IV.3.7 (a)) que dans ceux présentant des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ proches de la direction de traction (Figure IV.3.6 (b) et Figure IV.3.7 (b)). Pour un chargement en compression, la tendance observée est inversée. En effet, les boucles à composante $\langle c \rangle$ se trouvent en plus grand nombre dans les grains avec des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ proches de la direction de compression (Figure IV.3.6 (c) et Figure IV.3.7 (c)) que dans ceux avec des axes $\langle c \rangle$ éloignés de la direction d'application de la contrainte de compression (Figure IV.3.6 (d) et Figure IV.3.7 (d)).

En suivant la méthode détaillée dans la partie II.3.3, la quantification précise des grandeurs caractéristiques (densité volumique N_c , densité linéique L_c et diamètre moyen $\langle d \rangle$) des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été entreprise sur l'ensemble des grains étudiés pour les deux types de chargement mécanique, les différents niveaux de contrainte et les diverses orientations cristallographiques.

Comme il a été expliqué dans la partie bibliographique IV.1.2, le mécanisme SIPA prédit une évolution de la microstructure des boucles de dislocation avec la composante suivant la normale au plan d'habitat du déviateur du tenseur des contraintes. Une dépendance au déviateur permet de rendre compte des contributions positives et négatives de la contrainte et donc de mettre en évidence une diminution ou une augmentation des grandeurs caractéristiques des boucles de dislocation. Pour cette raison, nous choisissons, par la suite, de représenter l'évolution des densités et de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ en fonction de la composante suivant $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes, notée $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Pour une contrainte appliquée σ et un angle θ entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ et la direction de la contrainte, $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ s'exprime par la formule suivante :

$$\sigma_D^{<c>} = \sigma \left(\frac{2}{3} \cos^2\theta - \frac{1}{3} \sin^2\theta \right) \quad \text{Eq. IV.3.1}$$

Le calcul de $\sigma_D^{<c>}$ est détaillé dans l'annexe C (§ C.2).

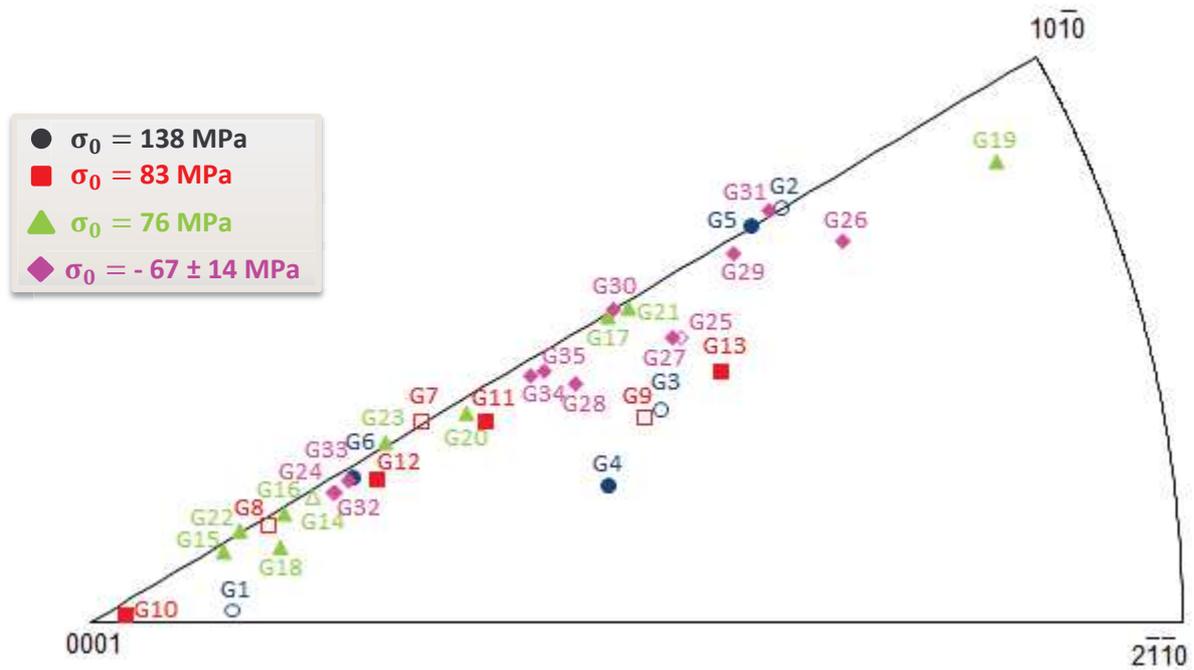


Figure IV.3.4: Représentation de la direction de la contrainte dans le triangle standard pour les grains de Zircaloy-4 TREX étudiés.

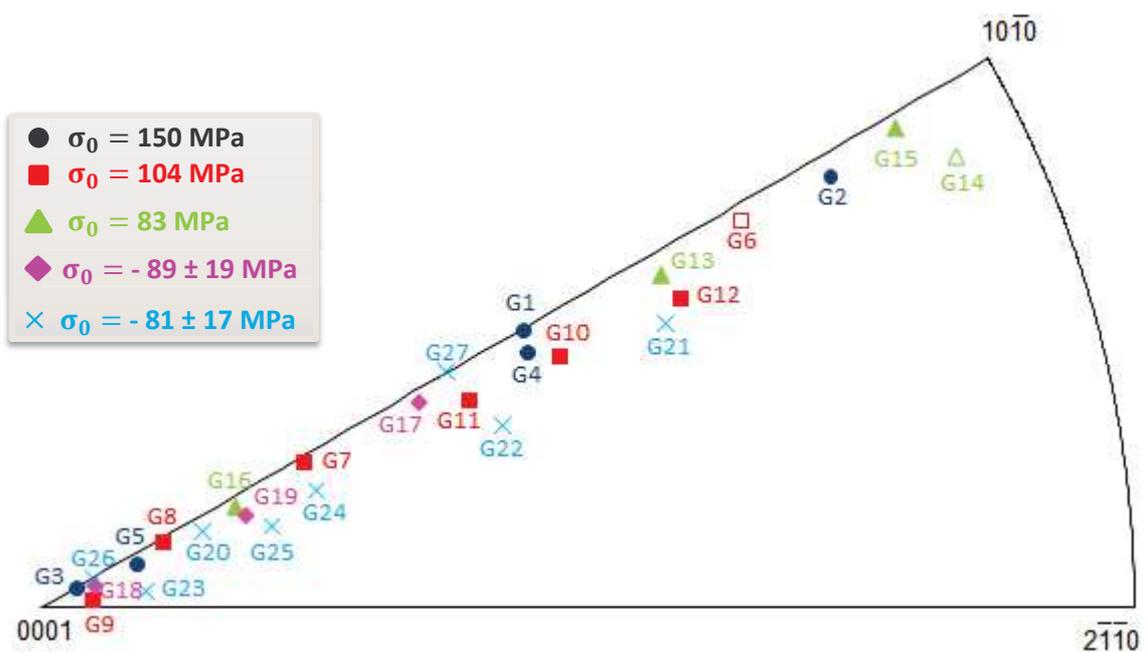


Figure IV.3.5: Représentation de la direction de la contrainte dans le triangle standard pour les grains de M5® TREX étudiés.

IV.3. RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$

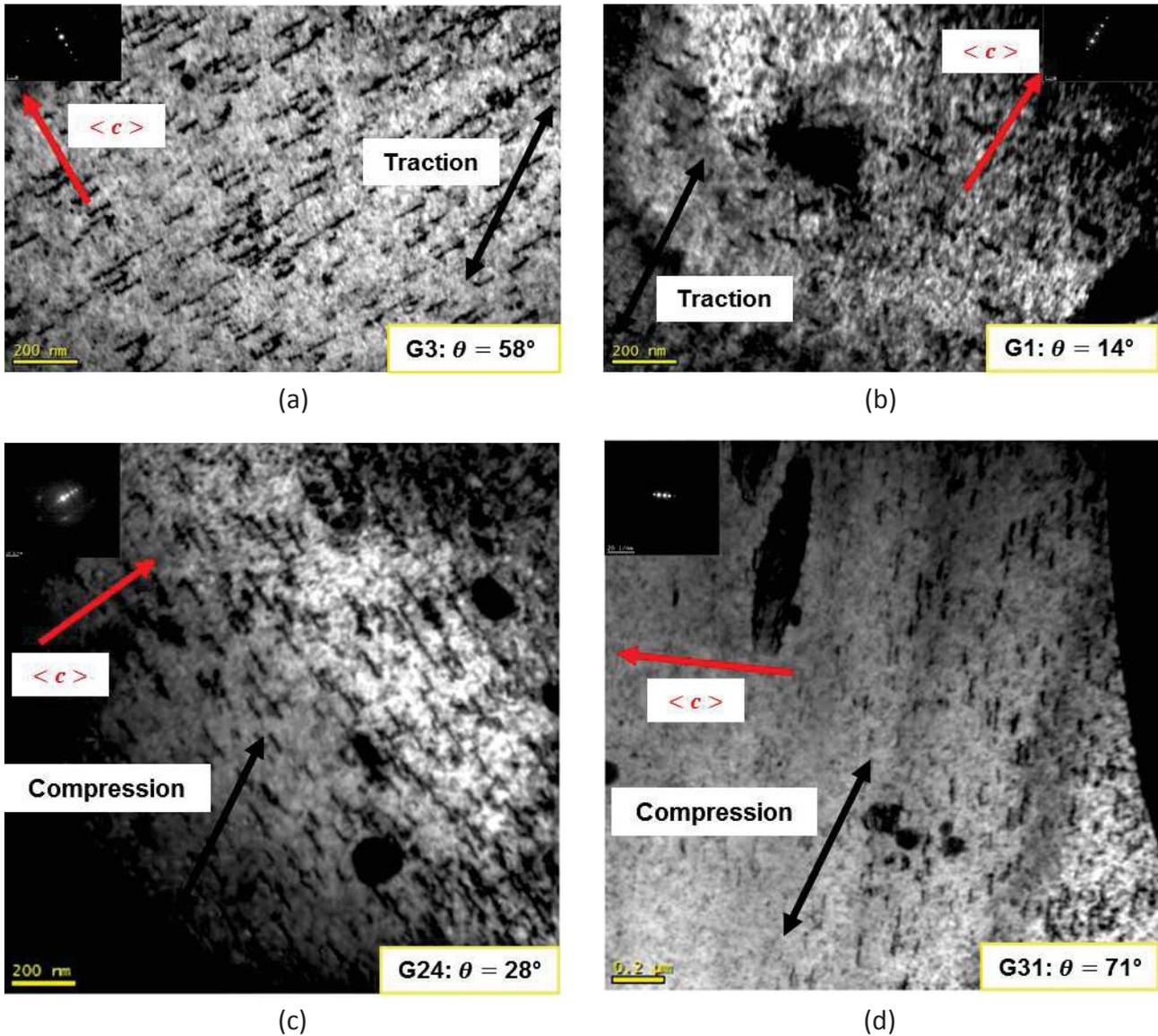


Figure IV.3.6: Microstructure à 7 dpa des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX irradié aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C selon l'historique de chargement de type II – (a) Grain G3 avec $\theta = 58^\circ$, $\lambda = 74^\circ$ et $\sigma_t = 138$ MPa, (b) Grain G1 avec $\theta = 14^\circ$, $\lambda = 76^\circ$ et $\sigma_t = 138$ MPa, (c) Grain G24 avec $\theta = 28^\circ$, $\lambda = 77^\circ$ et $\sigma_c = -67 \pm 14$ MPa et (d) Grain G31 avec $\theta = 71^\circ$, $\lambda = 83^\circ$ et $\sigma_c = -67 \pm 14$ MPa.

L'évolution de la densité volumique, de la densité linéique et du diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est donnée dans la Figure IV.3.8 pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX et la Figure IV.3.9 pour le M5[®] TREX. L'écart type d'une grandeur donnée, reporté pour chaque grain, représente la variation des quantifications, réalisées sur l'ensemble des clichés MET couvrant la surface du grain, par rapport à la valeur moyenne. Cet écart nous donne donc une indication sur l'homogénéité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ au sein du grain considéré.

Les résultats quantitatifs confirment les tendances dégagées qualitativement à partir des micrographies MET données dans la Figure IV.3.6 et la Figure IV.3.7. Les courbes de tendance sont représentées en trait noir discontinu. Les courbes en trait noir continu correspondent aux courbes de résidu de la régression linéaire. Il apparaît que la densité volumique N_c (Figure IV.3.8 (a) et Figure IV.3.9 (a)) et la densité linéique L_c (Figure IV.3.8 (b) et Figure IV.3.9 (b)) des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont plus faibles pour des valeurs positives de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$, correspondant à des grains avec des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ proches de la direction d'application d'une contrainte de traction ou éloignés de la direction d'application d'une contrainte de compression. Cependant, compte

tenu de la dispersion grain à grain, l'amplitude de l'effet de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes sur les densités des boucles est faible. L'écart type du résidu de la régression linéaire est à peu près deux fois plus élevé que la différence entre la valeur maximale et minimale des densités déduites de la tendance linéaire.

Les coefficients des régressions linéaires de N_c et de L_c avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ sont consignés dans le Tableau IV.3.2. Pour la population des grains de Zircaloy-4 recristallisé TREX étudiés, le coefficient critique donné par l'approche statistique de Pearson [42] pour un niveau de confiance de 90% vaut 0,275. Il est de 0,317 pour la population de grains de M5[®]. Les coefficients de corrélation calculés à partir des tendances expérimentales de N_c et de L_c (Tableau IV.3.2) sont plus faibles que les valeurs critiques de Pearson, ce qui confirme la conclusion d'une dépendance plutôt faible des densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ à $\sigma_D^{\langle c \rangle}$.

Notons également que les mêmes tendances avec des amplitudes équivalentes sont obtenues dans les deux alliages, le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX.

La taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ semble légèrement impactée par la contrainte appliquée (Figure IV.3.8 (d) et Figure IV.3.9 (d)). Une faible tendance est mise en évidence dans le M5[®] TREX où le diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ est plus faible pour des grains sollicités en traction suivant une direction proche de leur axe cristallographique $\langle c \rangle$ ou en compression suivant une direction éloignée de leur axe $\langle c \rangle$. Pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX, la dispersion grain à grain est telle qu'il est difficile de déceler une évolution claire du diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. En revanche, il est intéressant de mentionner que la distribution en taille des boucles est assez homogène au sein du même grain.

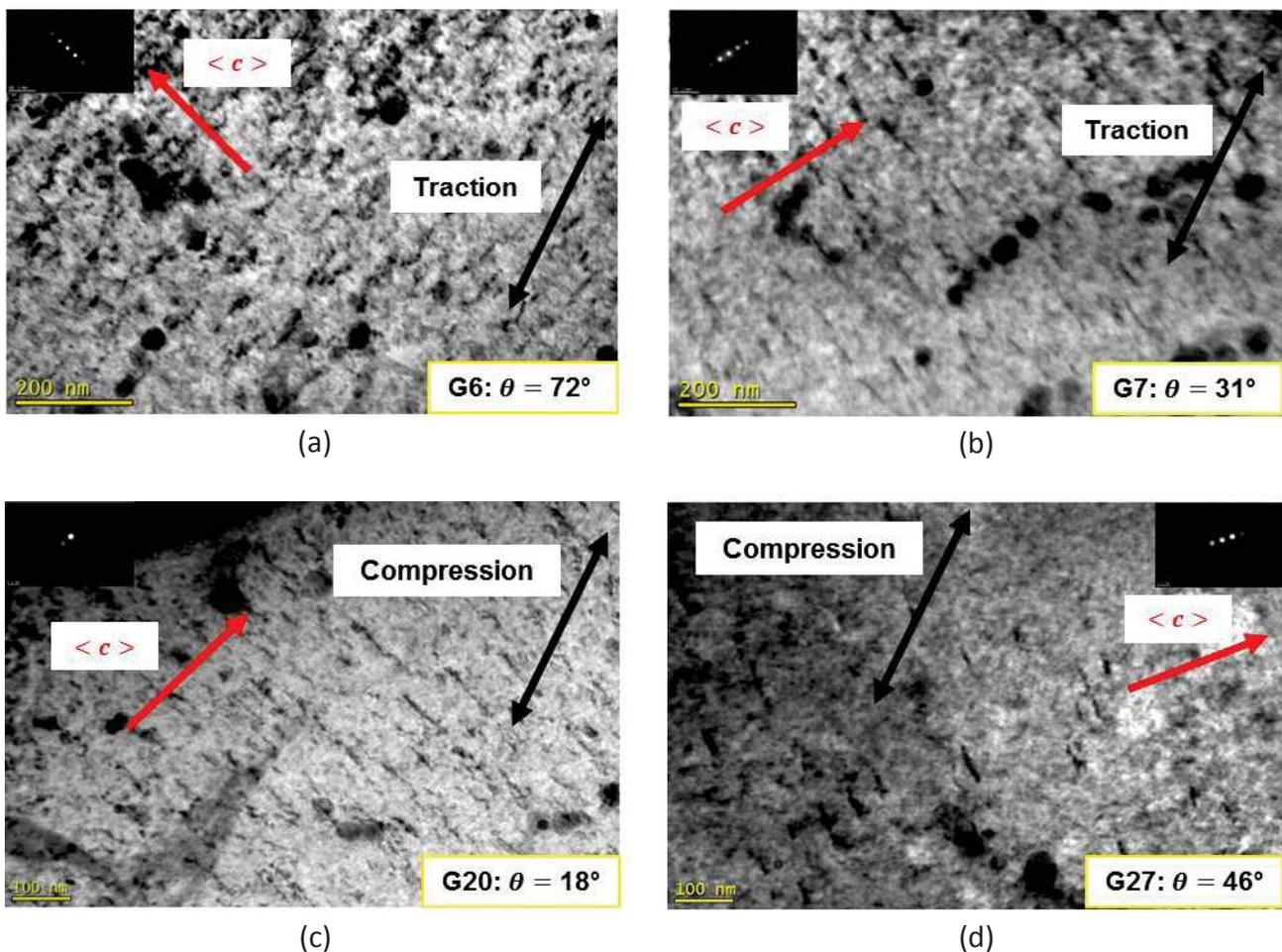
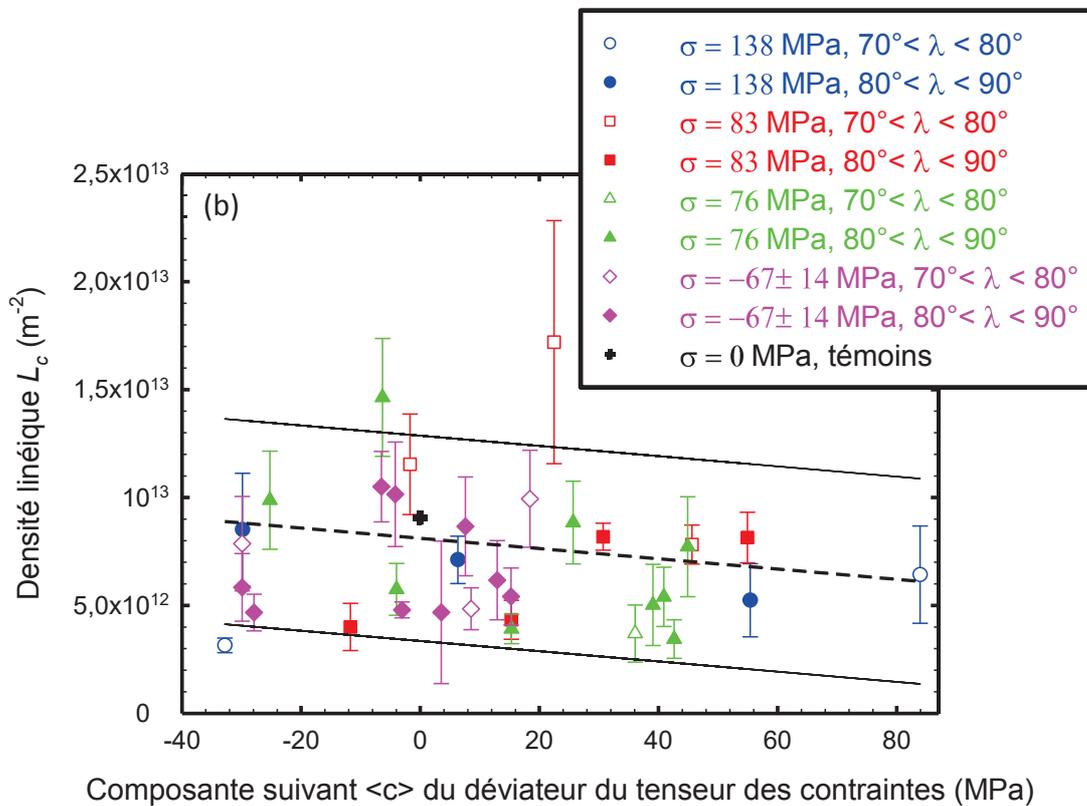
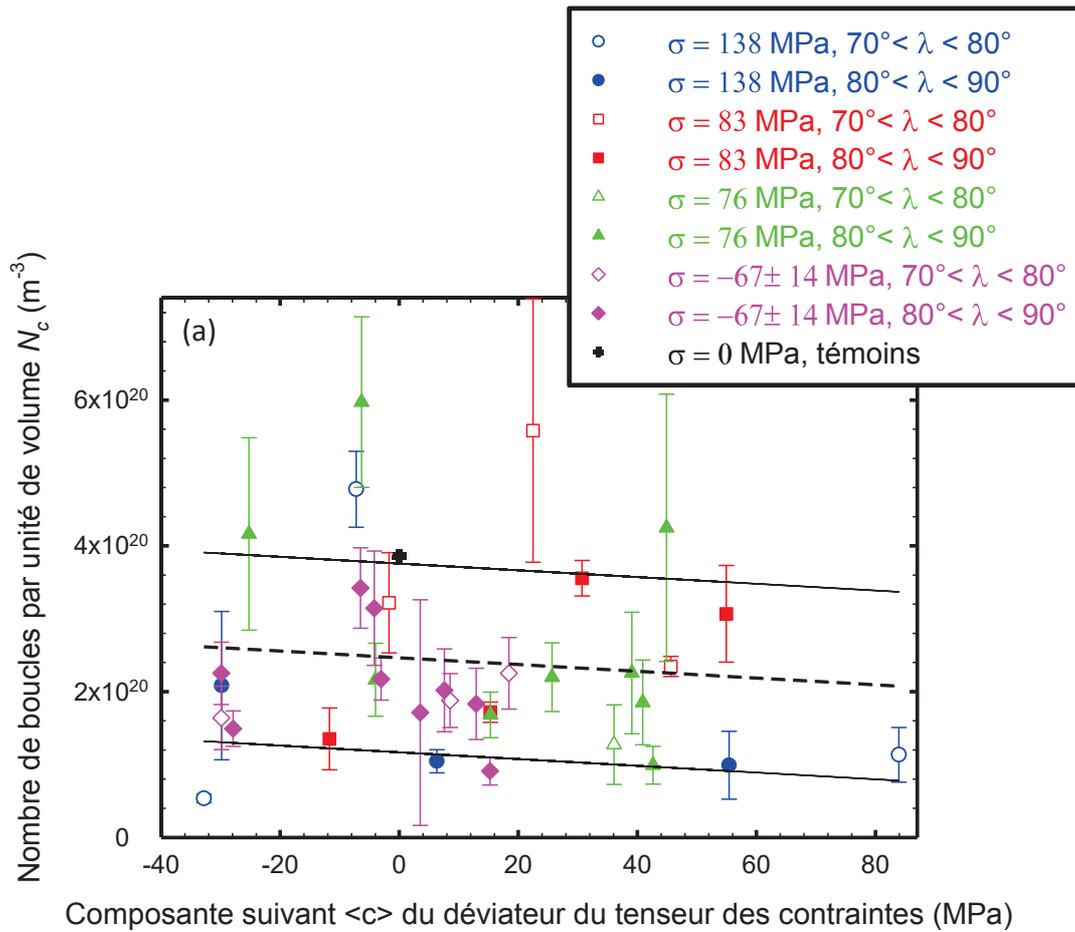


Figure IV.3.7: Microstructure à 7 dpa des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le M5[®] TREX irradié aux ions Zr⁺ de 600 keV à 300°C selon l'historique de chargement de type II – (a) Grain G6 avec $\theta = 72^\circ$, $\lambda = 78^\circ$ et $\sigma_t = 104$ MPa, (b) Grain G7 avec $\theta = 31^\circ$, $\lambda = 87^\circ$ et $\sigma_t = 104$ MPa, (c) Grain G20 avec $\theta = 18^\circ$, $\lambda = 90^\circ$ et $\sigma_c = -81 \pm 17$ MPa et (d) Grain G31 avec $\theta = 40^\circ$, $\lambda = 88^\circ$ et $\sigma_c = -81 \pm 17$ MPa.

IV.3. RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$



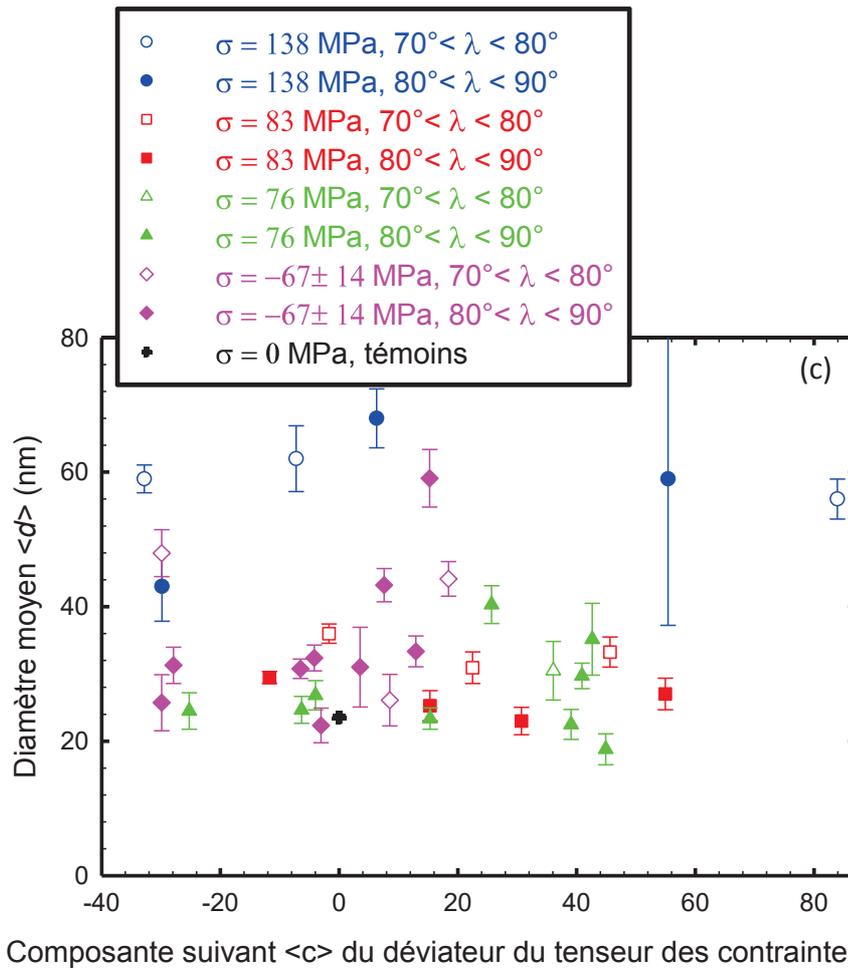
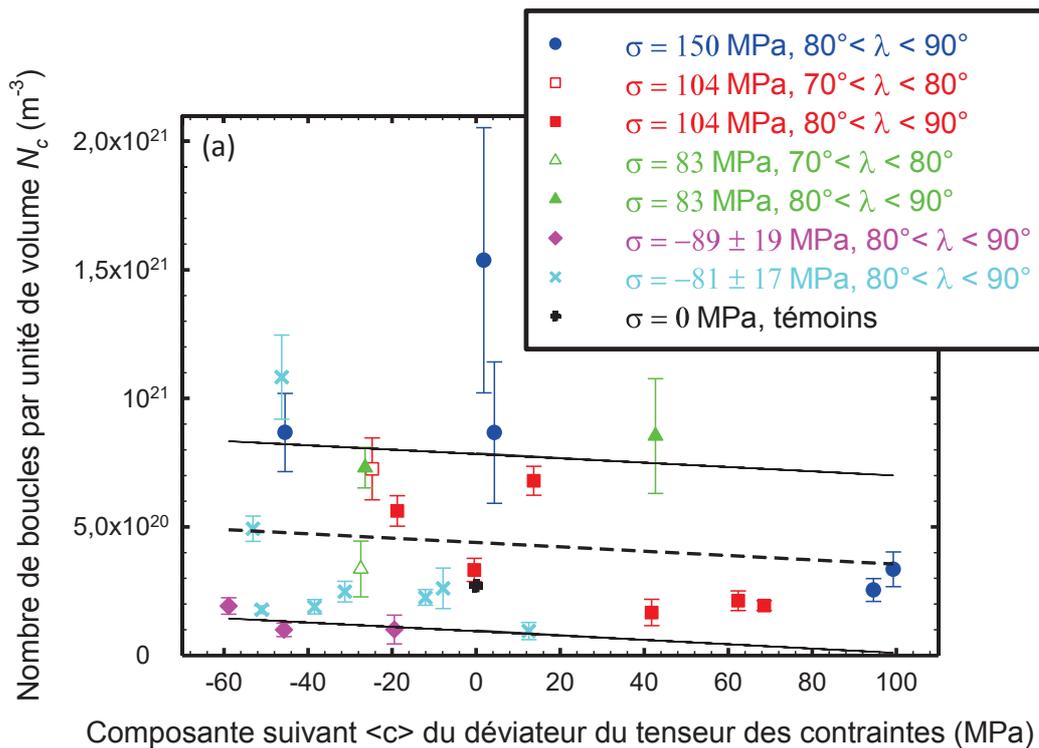


Figure IV.3.8: Evolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX – (a) nombre de boucles par unité de volume N_c (m^{-3}), (b) densité linéique L_c (m^{-2}) et (c) diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm).



IV.3. RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$

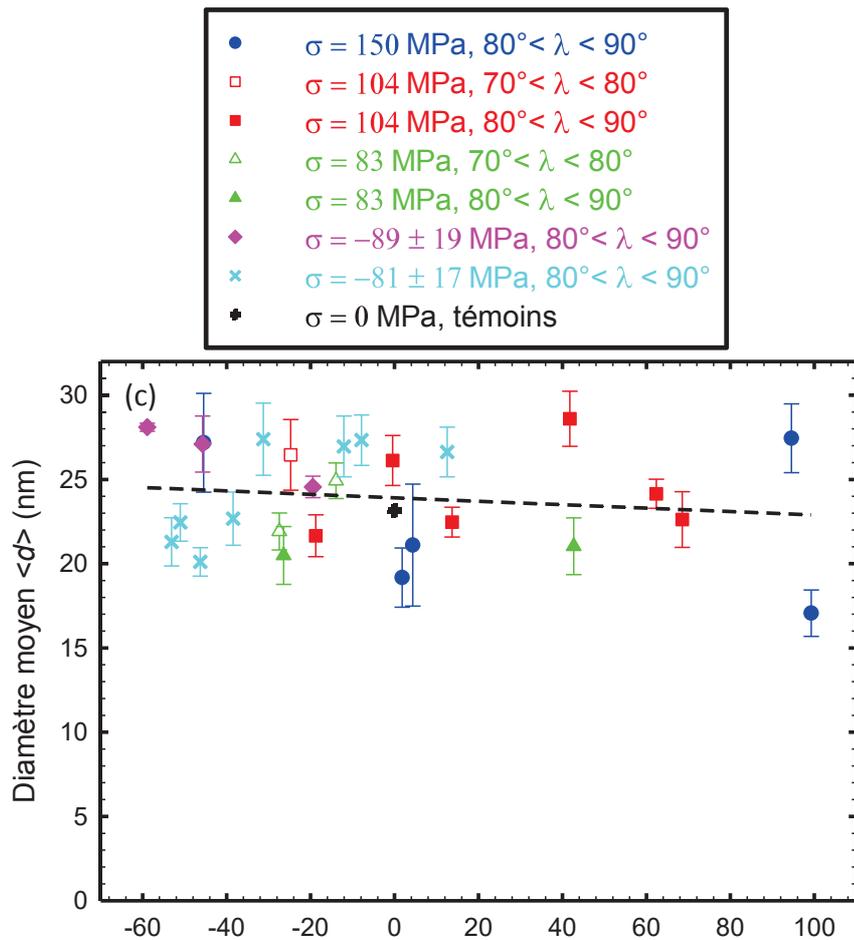
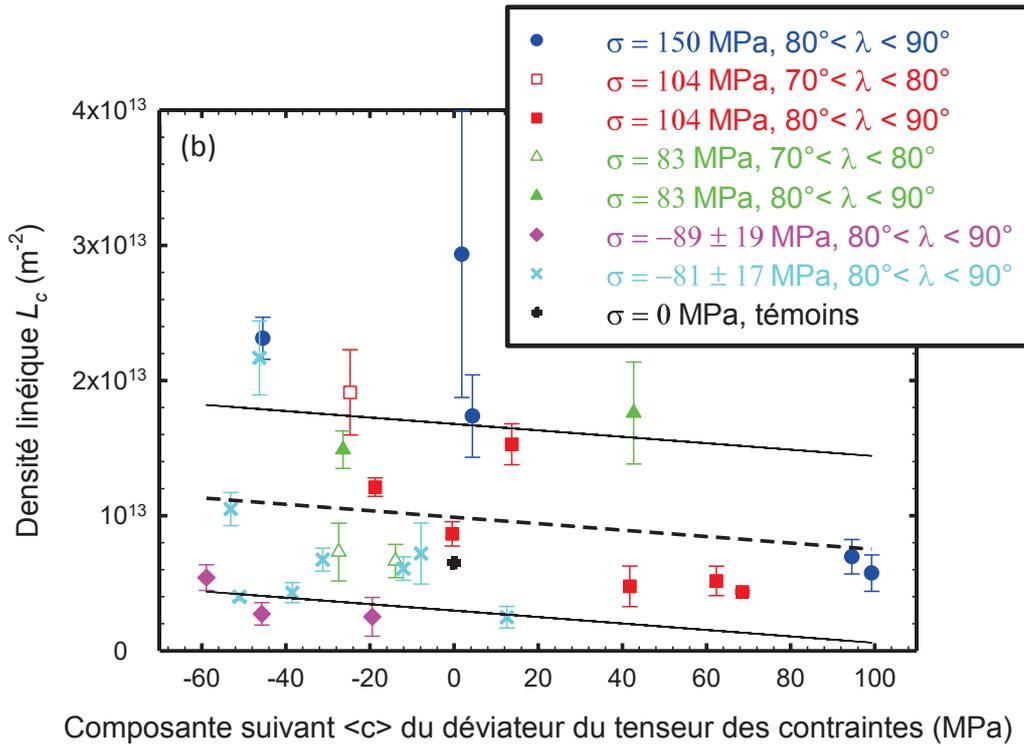


Figure IV.3.9: Evolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes dans le M5[®] TREX – (a) nombre de boucles par unité de volume N_c (m^{-3}), (b) densité linéique L_c (m^{-2}) et (c) diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm).

Tableau IV.3.2: Coefficients des évolutions linéaires des densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$.

Densité des boucles	Zircaloy-4 recristallisé TREX			M5 [®] TREX		
	Pente	Ordonnée à l'origine	Coefficient de corrélation	Pente	Ordonnée à l'origine	Coefficient de corrélation
$N_c \text{ (m}^{-3}\text{)}$	$-4,62 \times 10^{17}$	$2,46 \times 10^{20}$	0,099	$-8,42 \times 10^{17}$	$4,39 \times 10^{20}$	0,104
$L_c \text{ (m}^{-2}\text{)}$	$-2,37 \times 10^{10}$	$8,11 \times 10^{12}$	0,137	$-2,38 \times 10^{10}$	$9,88 \times 10^{12}$	0,147

IV.4 Discussion des résultats microstructuraux : effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

Cette partie est consacrée uniquement à la discussion des résultats microstructuraux obtenus à l'issue des irradiations conduites selon **l'historique de chargement de type II** et portant sur l'effet d'une contrainte macroscopique, appliquée à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$, sur leur **microstructure** (§ IV.3.3). Cette discussion comporte plusieurs volets. En premier lieu, les tendances, mises en évidence par les observations en MET de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX, sont confrontées aux prédictions des deux mécanismes SIPN et SIPA, généralement adoptés dans les modèles de description du comportement en fluage d'irradiation des métaux. Puis, des pistes de réflexion sur les origines de la dispersion grain à grain, constatée expérimentalement, sont présentées. Ce point de discussion est étayé au regard d'une modélisation micromécanique à l'échelle du polycristal. Enfin, nos résultats sont comparés à ceux obtenus dans le cadre d'une étude complémentaire conduite par des irradiations *in-situ* aux ions Kr²⁺ de 1 MeV.

IV.4.1 Discussion de l'effet de la contrainte au regard des mécanismes SIPN et SIPA

IV.4.1.1 Discussion au regard du mécanisme SIPN

Nous rappelons que le mécanisme SIPN (Stress Induced Preferential Nucleation) concerne l'effet de la contrainte sur la germination des boucles de dislocation. Selon ce mécanisme, la probabilité de germination des boucles interstitielles est plus importante dans les plans de normale parallèle à la direction d'application de la contrainte. Inversement, la germination des boucles lacunaires est favorisée dans les plans de normale perpendiculaire à la direction de la contrainte (§ I.3.2.2.2). Ainsi, la contrainte induit une anisotropie de distribution des boucles de dislocation sur les différents plans de germination. Dans le cas des aciers, la variation de la distribution en densité des boucles interstitielles de Frank sur les quatre plans d'habitat de type $\{111\}$ a été associée au départ à la germination préférentielle induite par la contrainte (§ IV.1.2). Néanmoins, le mécanisme SIPN a été jugé, par la suite, non pertinent pour les aciers austénitiques puisqu'il ne rend compte que de l'augmentation de la densité des boucles dans certains plans. Certaines observations, comme la diminution de la densité des boucles dans des plans énergétiquement moins favorables ou l'effet de la contrainte sur la taille moyenne, ne peuvent être interprétées à la lumière de ce mécanisme (§ IV.1.2).

Examinons maintenant la validité du mécanisme SIPN pour le cas des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les alliages de zirconium. Comme il a été mentionné dans la partie IV.1.2, le mécanisme SIPN se base sur le fait que la germination des boucles est contrôlée par la contrainte normale à leur plan d'habitat. Cette composante, dont l'expression est donnée par $\sigma \cos^2 \theta$ pour les boucles à composante $\langle c \rangle$, est toujours positive. Une contribution négative de la contrainte qui se traduit par une diminution de la densité des boucles par rapport au cas non contraint ne peut donc être reproduite par ce mécanisme. Au vu de nos résultats expérimentaux (§ IV.3.3), ce mécanisme ne

semble donc pas pertinent d'autant plus qu'il n'est pas en mesure d'expliquer la tendance observée pour la densité linéique L_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ ni celle pour le diamètre moyen. En effet, comme le mécanisme SIPN concerne l'effet de la contrainte sur la germination des boucles, il ne peut expliquer que l'évolution de la densité volumique N_c des boucles.

IV.4.1.2 Discussion au regard du mécanisme SIPA

Selon le mécanisme SIPA (Stress Induced Preferential Absorption), l'application d'une contrainte externe modifie l'énergie élastique d'interaction des défauts ponctuels avec les dislocations ou les boucles de dislocation, agissant ainsi sur le biais induit par la Différence d'Interaction Élastique (EID) (§ 1.3.2.2.1). Cet effet de la contrainte sur l'efficacité de capture des défauts ponctuels dépend de l'orientation de la direction de la contrainte par rapport au vecteur de Burgers des dislocations ou à la normale au plan d'habitat des boucles de dislocation.

Dans le cadre de l'étude des mécanismes de fluage d'irradiation des alliages de zirconium, nous avons détaillé l'effet de la contrainte sur la montée différentielle des dislocations droites. Dans cette partie, nous nous intéressons au mécanisme SIPA appliqué aux boucles de dislocation dans le but d'alimenter la discussion de l'effet d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Considérons un champ de contrainte décrit par le tenseur σ_{ij} . L'efficacité de capture des auto-interstitiels par une boucle de dislocation soumise à ce champ de contrainte, $Z_{boucle}^{SIA}(\sigma)$, est modifiée par rapport à celle induite par l'EID en l'absence de toute contrainte, $Z_{boucle}^{SIA}(0)$, selon l'expression simplifiée de Wolfer [43] :

$$Z_{boucle}^{SIA}(\sigma) = Z_{boucle}^{SIA}(0) + C \sum_{i,j} n_i \sigma_{ij}^D n_j \quad \text{Eq. IV.4.1}$$

avec n_i et n_j les composantes du vecteur unitaire normal au plan d'habitat de la boucle de dislocation et C une constante positive qui dépend du matériau, de la polarisabilité de cisaillement de l'auto-interstitiel, de la norme du vecteur de Burgers et de la taille de la boucle. Le déviateur du tenseur des contraintes, σ_{ij}^D est défini comme suit :

$$\sigma_{ij}^D = \sigma_{ij} - \frac{1}{3} \sum_{k=1}^3 \sigma_{kk} \delta_{ij} \quad \text{Eq. IV.4.2}$$

Pour la boucle basale à composante $\langle c \rangle$, l'efficacité d'absorption des SIAs, déduite de l'équation Eq. IV.4.1, s'écrit en fonction de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$:

$$Z_{boucle}^{SIA}(\sigma) = Z_{boucle}^{SIA}(0) + C \sigma_D^{\langle c \rangle} \quad \text{Eq. IV.4.3}$$

Prenons, à titre d'exemple, les deux cas extrêmes d'orientation d'une contrainte de traction par rapport à l'axe cristallographique $\langle c \rangle$. Pour une contrainte de traction appliquée parallèlement à l'axe $\langle c \rangle$ ($\theta = 0^\circ$), la composante $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est égale à $\frac{2}{3} \sigma$ (Eq. IV.3.1). D'après l'équation Eq. IV.4.3, l'efficacité de capture des SIAs par la boucle lacunaire à composante $\langle c \rangle$ est augmentée. Sa croissance est donc ralentie. En revanche, une contrainte de traction appliquée perpendiculairement à l'axe $\langle c \rangle$ ($\theta = 90^\circ$) conduit à une diminution de l'efficacité de capture des SIAs par la boucle lacunaire à composante $\langle c \rangle$, la composante σ_{ij}^D étant égale à $-\frac{1}{3} \sigma$ (Eq. IV.3.1). Dans ce cas, la croissance de la boucle est accélérée. Pour un chargement en compression, il suffit de remplacer σ par $-\sigma$ dans

l'équation Eq. IV.3.1. Par conséquent, l'effet de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ sur la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ est inversé par rapport à celui correspondant à un chargement en traction. Une contrainte de compression parallèle à l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ accélère la croissance de la boucle à composante $\langle c \rangle$, alors qu'une contrainte de compression perpendiculaire à l'axe $\langle c \rangle$ la ralentit.

Dans la partie I.3.2.2.1, consacrée à l'introduction du mécanisme SIPA, il a été rappelé que le terme d'efficacité de capture des défauts ponctuels intervient dans l'expression du flux de ces défauts ponctuels vers les dislocations (ou les boucles de dislocation) (Eq. I.3.5). L'absorption différentielle des défauts ponctuels par les boucles à composante $\langle c \rangle$ induite par la contrainte est schématisée dans la Figure IV.4.1. Nous notons que le flux net des SIAs et des lacunes varie selon l'orientation de la contrainte par rapport à l'axe $\langle c \rangle$ du cristal. Dans un grain d'axe $\langle c \rangle$ perpendiculaire à la direction de traction, le flux net des auto-interstitiels allant vers les boucles à composante $\langle c \rangle$ est diminué alors que le flux net des lacunes est augmenté (Figure IV.4.1 (c)) par rapport au flux des défauts ponctuels dans un grain non contraint (Figure IV.4.1 (a)). Pour cette orientation, la variation du flux des défauts ponctuels accélère la croissance de la boucle lacunaire à composante $\langle c \rangle$ (Figure IV.4.1 (c)). Inversement, pour un grain d'axe $\langle c \rangle$ parallèle à la direction de traction, le flux net des auto-interstitiels allant vers les boucles à composante $\langle c \rangle$ est augmenté alors que celui des lacunes est diminué (Figure IV.4.1 (b)) par rapport au flux des défauts ponctuels dans un grain non contraint (Figure IV.4.1 (a)). Ainsi, pour cette orientation la croissance de la boucle lacunaire à composante $\langle c \rangle$ est ralentie. Cette schématisation nous permet d'illustrer le fait que la boucle lacunaire reçoit toujours un flux net de lacunes plus élevé que celui des auto-interstitiels mais que la contrainte conduit à une augmentation ou à une diminution de ces flux par rapport au cas du cristal non contraint. De cette différence d'absorption des défauts ponctuels, il découle un effet de la contrainte sur la vitesse de croissance des boucles de dislocation. A cela s'ajoute éventuellement un effet sur le taux de germination des boucles à composante $\langle c \rangle$. D'après les travaux de Russell *et al.* [44], [45] sur la théorie de germination des cavités, sous irradiation la taille critique de germination des boucles fait intervenir non seulement la barrière énergétique de germination « purement » thermodynamique (cas hors irradiation) mais également les efficacités d'absorption des SIAs et des lacunes par les germes de boucles de dislocation. Ainsi, au moyen d'un effet de la contrainte sur l'efficacité d'absorption des défauts ponctuels par les boucles à composante $\langle c \rangle$ mais aussi par les germes de boucles à composante $\langle c \rangle$, la contrainte agit, selon le mécanisme SIPA, non seulement sur la croissance des boucles mais également sur leur germination.

Les tendances d'évolution des densités des boucles avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$, mises en évidence par les caractérisations microstructurales et les quantifications des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans un grand nombre de grains orientés différemment par rapport à la direction d'application de la contrainte (§ IV.3.3), sont en bon accord avec les prédictions du mécanisme SIPA. Le nombre de boucles par unité de volume N_c et la densité linéique L_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont plus faibles pour $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $\frac{2}{3} \sigma$ (contrainte de traction parallèle à l'axe $\langle c \rangle$) ou de $\frac{1}{3} \sigma$ (contrainte de compression perpendiculaire à l'axe $\langle c \rangle$) que pour $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $-\frac{1}{3} \sigma$ (contrainte de traction perpendiculaire à l'axe $\langle c \rangle$) ou de $-\frac{2}{3} \sigma$ (contrainte de compression parallèle à l'axe $\langle c \rangle$), respectivement.

Concernant l'effet de la contrainte macroscopique sur la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$, il a été montré expérimentalement que le diamètre moyen ne dépend que légèrement de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. La tendance identifiée pour la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le M5[®] TREX (Figure IV.3.9 (d)) est, toutefois, bien expliquée par le mécanisme SIPA. Cette faible dépendance du diamètre des boucles de dislocation à la contrainte appliquée a déjà été constatée pour les boucles interstitielles de Frank dans les aciers austénitiques (§ IV.1.2). Selon les auteurs [20], [22], [23], la contrainte ne peut accélérer la croissance de la population des boucles de dislocation favorablement orientées qu'à faible fluence et qu'à fluence élevée l'effet de la contrainte est amoindri par l'annihilation des boucles sur le réseau des dislocations, ceci plus particulièrement pour les matériaux écrouis. Nos résultats expérimentaux mettent en évidence un effet de la contrainte plus significatif sur les densités volumique et linéique des boucles à

IV.4. DISCUSSION DES RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$

composante $\langle c \rangle$ que sur leur diamètre moyen, les tendances obtenues étant conformes à celles prédites par le mécanisme SIPA. Il semble donc que le mécanisme SIPA joue un rôle plus important sur les densités des boucles que sur leur diamètre. A la lumière de ce résultat, nous pouvons déduire que la contrainte agit principalement sur la croissance des germes de boucles à composante $\langle c \rangle$ en augmentant ou en diminuant la taille critique de germination suivant leur orientation relative à la direction d'application de la contrainte.

- → Flux net de SIA: J_i
- → Flux net de lacune: J_v

Longueur de la flèche proportionnelle au flux

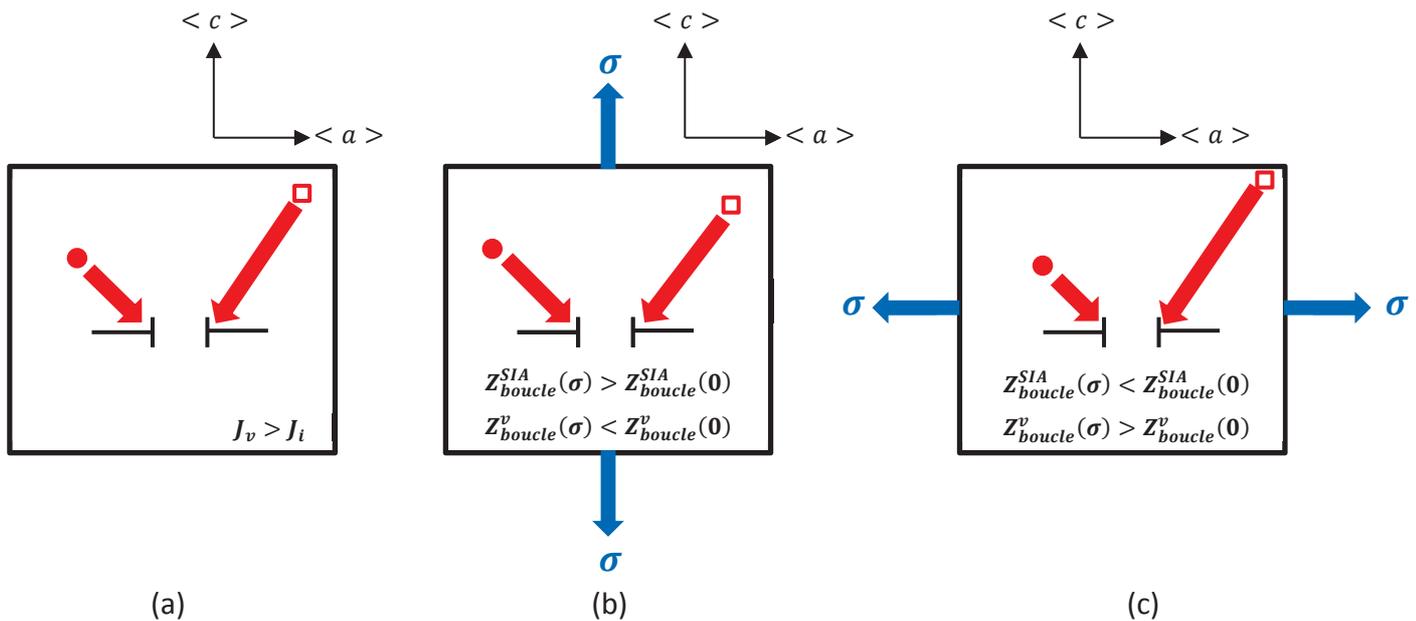


Figure IV.4.1: Schématisation du mécanisme SIPA appliqué aux boucles à composante $\langle c \rangle$ – (a) boucle à composante $\langle c \rangle$ dans un grain non contraint, (b) boucle à composante $\langle c \rangle$ dans un grain d'axe $\langle c \rangle$ parallèle à la direction de traction : croissance ralentie de la boucle et (c) boucle à composante $\langle c \rangle$ dans un grain d'axe $\langle c \rangle$ perpendiculaire à la direction de traction.

IV.4.2 Réflexion sur l'origine de la dispersion observée

Cette partie propose des éléments de réponse concernant l'origine de la dispersion grain à grain constatée lors de la quantification des grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans un grand nombre de grains contraints, 74 au total (§ IV.3.3). La réflexion sur l'origine de cette dispersion a abouti à l'identification de facteurs liés à l'impact de l'environnement métallurgique de chaque grain étudié. En effet, dans notre analyse expérimentale de l'influence de la contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, chaque grain est considéré comme isolé et n'est défini que par son orientation cristallographique. Or, il est bien établi que l'interaction d'un grain donné avec son voisinage métallurgique joue un rôle important dans la réponse du matériau à une sollicitation macroscopique.

Selon la théorie de la DAD, les joints de grains constituent des puits d'élimination de défauts ponctuels biaisés en faveur des SIAs ou des lacunes en fonction de leur orientation cristallographique (§ I.2.3.2.4). Le biais local des défauts ponctuels pour ces puits microstructuraux varie d'un grain à un autre, introduisant ainsi une hétérogénéité entre grains.

Bien que les analyses à la microsonde électronique ont permis de vérifier l'homogénéité chimique globale des tubes de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX (§ II.1.2.1), la présence de précipités intermétalliques et la variation de leur structure, leur cristallinité, leur densité et leur distribution de taille d'un grain à un autre peut induire une hétérogénéité de nature chimique. Ces précipités, comme les phases de Laves de type $Zr(Fe,Cr)_2$ dans le Zircaloy-4 jouent un rôle majeur sur la stabilisation et la distribution spatiale des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ I.2.4.3.2).

La présence de puits microstructuraux comme les joints de grains ou les phases de Laves peut être à l'origine des hétérogénéités intergranulaires et expliquer, dans une certaine mesure, la dispersion grain à grain observée expérimentalement. Leur effet serait, néanmoins, de second ordre devant les hétérogénéités d'origine mécanique. Ces hétérogénéités peuvent être classées en deux types : interphases entre grains de différentes orientations cristallographiques (§ IV.4.2.1) et intraphases entre grains de même orientation cristallographique (§ IV.4.2.2).

IV.4.2.1 Les incompatibilités de déformation élastique et plastique

Des incompatibilités de déformation élastique et plastique peuvent exister entre des grains de différentes orientations cristallographiques. La non uniformité de la déformation dans les grains induit une différence des contraintes locales. L'hétérogénéité de la distribution de la contrainte dans les grains peut être attribuée à leur anisotropie élastique, bien que faible, et à l'anisotropie de leur comportement thermique due à la différence des coefficients de dilatation thermique suivant les axes cristallographiques $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ (§ I.1.1). La présence des contraintes internes peut aussi provenir de l'anisotropie de la croissance libre sous irradiation des grains (§ I.3.1.1.1). Nous proposons ici une démarche simplifiée pour l'évaluation de ces contraintes internes induites par l'anisotropie de croissance sous irradiation. L'approche mise en place néglige la relaxation de la contrainte qui se produit à l'échelle des grains du fait des mécanismes de fluage et notamment du fluage d'irradiation. Considérons deux grains isolés et désorientés l'un par rapport à l'autre dans une matrice de zirconium, considérée comme isotrope et homogène pour simplifier les calculs. Le grain appelé G_a est orienté de telle façon que son axe cristallographique $\langle c \rangle$ soit perpendiculaire à la direction d'application de la contrainte macroscopique de traction. L'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain noté G_b est quant à lui parallèle à la direction de la contrainte de traction. Ces deux grains peuvent être perçus comme des inclusions de forme sphérique de mêmes propriétés élastiques que la matrice environnante. Le problème d'interaction de ces inclusions avec leur matrice infinie homogène et isotrope peut alors être traité en considérant le formalisme du problème classique de l'inclusion d'Eshelby [46]. La matrice est sollicitée en contrainte macroscopique de traction, représentée par le tenseur $\underline{\underline{\Sigma}}$. Une schématisation de ce problème est donnée dans la Figure IV.4.2. Le tenseur de contrainte dans le grain, $\underline{\underline{\sigma}}_g$ s'écrit comme suit [47] :

$$\underline{\underline{\sigma}}_g = \underline{\underline{\Sigma}} + \underline{\underline{C}} \left(\underline{\underline{S}} - \underline{\underline{I}} \right) \underline{\underline{\varepsilon}}_g \quad \text{Eq. IV.4.4}$$

avec $\underline{\underline{C}}$ le tenseur d'élasticité identique pour la matrice et les deux inclusions et $\underline{\underline{I}}$ le tenseur identité. La déformation propre de l'inclusion ou « eigenstrain », donnée par $\underline{\underline{\varepsilon}}_g$, représente dans notre cas la déformation par croissance libre sous irradiation. En prenant une déformation de croissance de -10^{-3} suivant l'axe $\langle c \rangle$ du cristal, la conservation de volume donne un allongement de 5×10^{-4} suivant la direction $\langle a \rangle$ [48]. Le tenseur d'Eshelby $\underline{\underline{S}}$ dépend de la forme de l'inclusion. Pour le cas d'une inclusion sphérique dans un milieu élastique isotrope, l'expression de $\underline{\underline{\sigma}}_g$ est donnée par [49] :

IV.4. DISCUSSION DES RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$

$$\underline{\underline{\sigma}}_g = \underline{\underline{\Sigma}} - 2 \mu (1 - \beta) \underline{\underline{\varepsilon}}_g \quad \text{Eq. IV.4.5}$$

$$\beta = \frac{2}{15} \left(\frac{4 - 5\nu}{1 - \nu} \right) \quad \text{Eq. IV.4.6}$$

μ est le module de cisaillement, ν le coefficient de Poisson et β le coefficient Eshelby qui dépend de la forme de l'inclusion. L'équation Eq. IV.4.6 donne la valeur de β pour une inclusion sphérique.

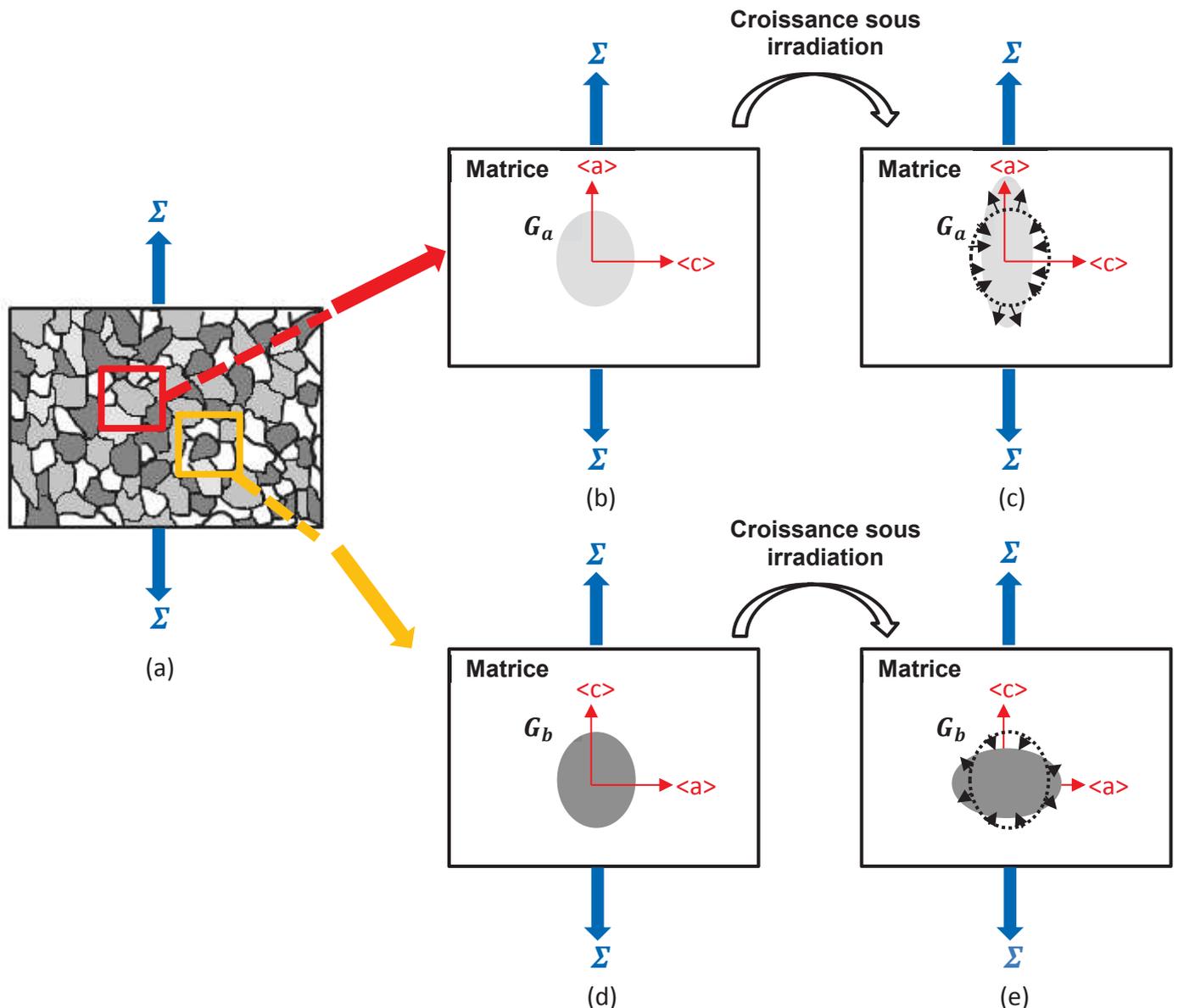


Figure IV.4.2: Schématisation du problème traité – (a) Microstructure du matériau « réel » avec des grains de taille et d'orientation différentes, (b) représentation du grain G_a dans la matrice, (c) croissance sous irradiation du grain G_a , (d) représentation du grain G_b dans la matrice et (e) croissance sous irradiation du grain G_b .

Le calcul de la contribution de la contrainte interne induite par la croissance sous irradiation à la contrainte totale, exprimée par $-2 \mu (1 - \beta) \underline{\underline{\varepsilon}}_g$ dans l'équation Eq. IV.4.5, donne une contrainte de compression de -16 MPa le long de la direction macroscopique de traction du grain G_a . Cette

contrainte interne induite par la croissance libre diminue la contrainte macroscopique de traction (parallèle à l'axe $\langle a \rangle$ du grain G_a). Pour le grain G_c , la croissance sous irradiation donne lieu à une contrainte interne positive suivant la direction macroscopique de traction (parallèle à l'axe $\langle c \rangle$ du grain G_c) et égale à 32 MPa. Nous notons donc que la contribution de la contrainte interne de croissance sous irradiation à la contrainte totale au niveau du cristal peut être positive ou négative et de différente amplitude pour deux grains orientés différemment. Cependant, en calculant la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes, nous nous apercevons que la contribution de la contrainte interne de croissance sous irradiation est la même pour les deux grains, G_a et G_b . En effet, la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes vaut $32 - \Sigma/3$ (MPa) pour le grain G_a et $32 + 2\Sigma/3$ (MPa) pour le grain G_b . Ce résultat conduit à une simple translation de la même quantité (égale à la valeur de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur de contrainte locale dans chaque grain, 32 MPa dans notre exemple) pour tous les grains suivant l'axe des abscisses des courbes de la Figure IV.3.8 et de la Figure IV.3.9. Les pentes des régressions linéaires, obtenues pour les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] TREX, restent donc inchangées. Par conséquent, les contraintes internes induites par la croissance anisotrope des grains ne peuvent en soi expliquer la dispersion constatée expérimentalement. Il convient, toutefois, de bien noter que ce résultat est issu de calculs simplifiés basés sur des hypothèses fortes. Plus particulièrement, la matrice est considérée comme isotrope et homogène. La texture prononcée du matériau et son anisotropie élastique, non pris en considération dans le cadre de ces calculs simplifiés, peuvent expliquer en partie la dispersion grain à grain. Il nous est donc paru nécessaire d'examiner ce point au moyen d'une modélisation microscopique à l'échelle du zirconium polycristallin.

Afin d'évaluer l'influence de la texture et de l'élasticité anisotropes sur les contraintes locales dans les deux grains G_a et G_b , nous menons une étude de modélisation par une approche micromécanique. L'objectif final est de voir si les contraintes générées par la croissance sous irradiation peuvent expliquer la dispersion grain à grain constatée expérimentalement. Pour cela, nous avons utilisé le modèle à champ moyen développé par Brenner [49] pour décrire le comportement thermoélastoviscoplastique des alliages de zirconium. Ce modèle s'appuie sur une méthode d'homogénéisation auto-cohérente et sur une procédure de linéarisation tangente des lois de comportement local.

Le modèle de Brenner [49], implémenté dans le code de calcul AVESC, permet de traiter les comportements thermoélastique, viscoplastique et élastoviscoplastique. Dans le cadre spécifique de notre étude et par souci de simplification, la déformation par croissance sous irradiation est introduite de façon analogue à une dilatation thermique. Comme pour le cas du traitement du problème de l'inclusion d'Eshelby, nous considérons une déformation de croissance de -10^{-3} suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du grain et une déformation de 5×10^{-4} suivant les directions $\langle a \rangle$. Ainsi, nous définissons le tenseur de dilatation thermique dans le modèle appliqué en option thermoélastique.

Les simulations ont été conduites dans le cas d'une élasticité isotrope ($E = 76$ GPa et $\nu = 0,35$) ou d'élasticité anisotrope en utilisant le tenseur d'élasticité de Brenner [49] donné ci-dessous (en MPa) :

$$\underline{\underline{C}} = \begin{pmatrix} 125700 & 79900 & 65900 & 0 & 0 & 0 \\ 79900 & 125700 & 65900 & 0 & 0 & 0 \\ 65900 & 65900 & 152600 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 27000 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 27000 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 22900 \end{pmatrix} \quad \text{Eq. IV.4.7}$$

Le polycristal de zirconium a été décrit par l'orientation de 2528 grains suivant une texture cristallographique isotrope ou anisotrope correspondant à celle du Zircaloy-4 TREX. Les figures de pôles discrétisées associées à la texture cristallographique du Zircaloy-4 TREX sont représentées en Figure IV.4.3. Parmi l'ensemble de ces orientations, nous distinguons les deux grains suivants : le grain G_a d'axe cristallographique $\langle c \rangle$ perpendiculaire à la direction d'application de la contrainte de traction (correspondant à la direction transverse DT du tube TREX) et le grain G_b d'axe $\langle c \rangle$ parallèle à DT.

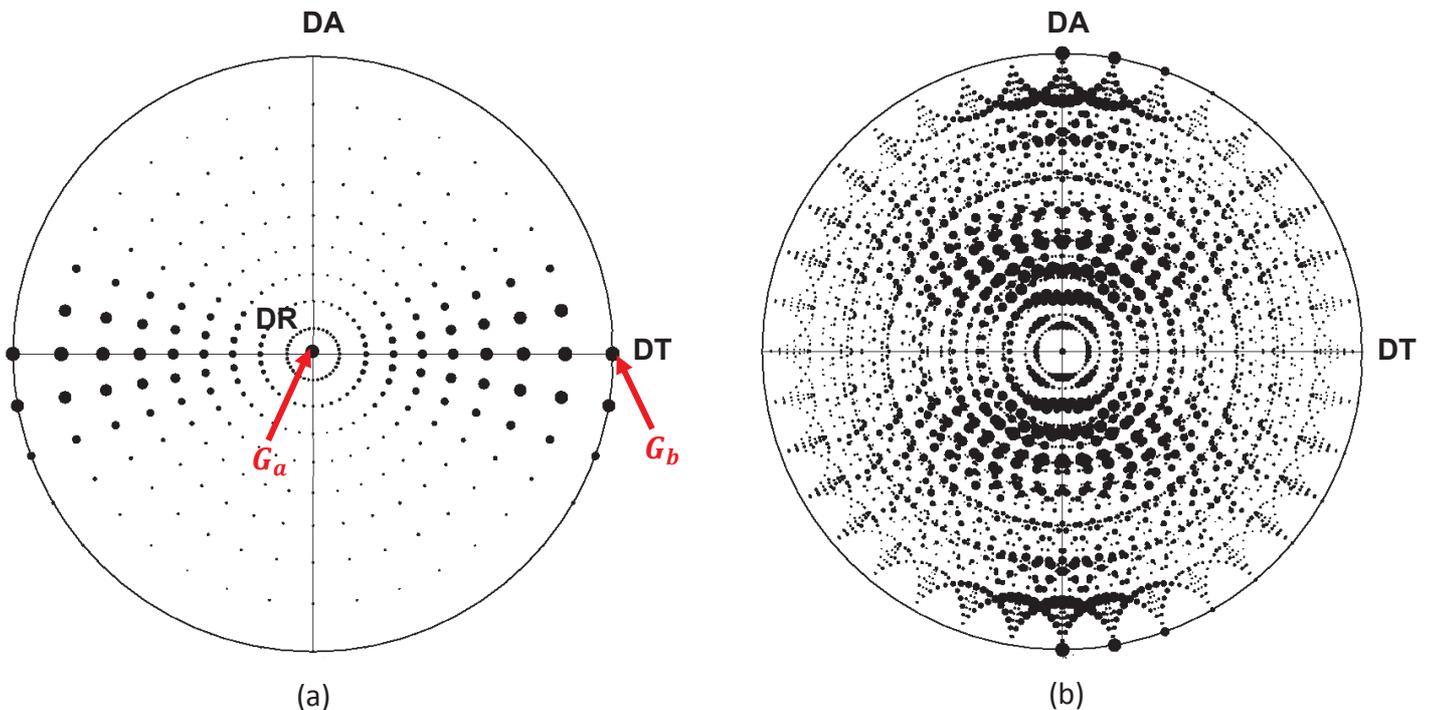


Figure IV.4.3: Figures de pôles discrétisées – (a) figure du pôle (0002) de la texture anisotrope du Zircaloy-4 TREX et (b) figure du pôle {1120} de la texture anisotrope du Zircaloy-4 TREX.

Quatre cas de figure ont été simulés par le modèle ainsi défini :

- **Cas 1** : Dans ce premier cas de simulation, nous considérons une **élasticité isotrope** et une **texture isotrope**, le but étant de vérifier les résultats issus de la résolution analytique du problème de l'inclusion d'Eshelby. L'étude du comportement local des deux grains d'intérêt, G_a et G_b , valide les calculs analytiques simplifiés. La croissance libre sous irradiation, simulée par la dilatation thermique, génère une contrainte de compression de -15,3 MPa suivant DT dans le grain G_a et une contrainte de traction de 30,2 MPa suivant DT dans le grain G_b . Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par les équations Eq. IV.4.5 et Eq. IV.4.6 (la contrainte locale dans le grain G_a était de -16 MPa et de 32 MPa dans le grain G_b). Comme dans ce cas de simulation nous nous plaçons en élasticité isotrope, la contrainte locale vue par un grain donné est égale à la somme de la contrainte macroscopique appliquée et de la contrainte interne induite par la croissance sous irradiation. Pour un chargement en traction de 100 MPa suivant DT, la contrainte locale dans le grain G_a est alors de 84,7 MPa. Pour le grain G_b , la contrainte locale suivant DT est égale à 130,2 MPa. La composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales, $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ vaut -2,7 MPa dans le grain G_a et 96,8 MPa dans le grain G_b . Les valeurs de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$, représentées dans la Figure IV.3.8 et la Figure IV.3.9 sont calculées selon l'hypothèse que la contrainte locale dans chaque grain est égale à la contrainte macroscopique (hypothèse de Reuss). Pour un chargement en traction

de 100 MPa, cette hypothèse donne une valeur de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ de $-\Sigma/3 = -33,4$ MPa pour le grain G_a et de $2\Sigma/3 = 66,7$ MPa pour le grain G_b . La prise en compte des contraintes internes induites par la croissance sous irradiation résulte donc en une simple translation de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$, de -30,7 MPa pour le grain G_a et de -30,2 MPa pour le grain G_c . Nous retrouvons le même résultat que celui obtenu par les calculs analytiques simplifiés à savoir que la composante $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est translatée de la même quantité pour des grains d'orientations différentes. Les pentes des régressions linéaires obtenues expérimentalement pour les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ restent donc inchangées suite à la considération des contraintes internes générées par la croissance sous irradiation des grains.

En conclusion, en élasticité isotrope et pour une texture cristallographique isotrope, les contraintes internes induites par la croissance anisotrope des grains ne sont pas en mesure d'expliquer la dispersion grain à grain observée dans une représentation en fonction de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ (Figure IV.3.8 et Figure IV.3.9) ;

- **Cas 2** : Ce cas correspond à la simulation, en **élasticité isotrope**, de la croissance d'un polycristal de Zircaloy-4 TREX de **texture anisotrope**. Ce polycristal est également soumis à un chargement en traction de 100 MPa suivant DT. Le grain G_a affiche une contrainte de 72,3 MPa suivant DT alors que la contrainte locale dans le grain G_b est égale à 117,7 MPa suivant la même direction. Compte tenu de la texture anisotrope du polycristal, les contraintes ne sont pas symétriques suivant les directions $\langle a \rangle$ des grains. La composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ vaut -2,3 MPa dans le grain G_a et est égale à 84,4 MPa dans le grain G_b . En prenant en considération la contribution de la croissance libre à la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales, les valeurs de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ calculées expérimentalement sont translatées d'une quantité variable pour chaque grain d'orientation différente. Cette quantité est égale à -31,1 MPa pour le grain G_a et à -17,7 MPa pour le grain G_b . Par conséquent, il est possible de conclure que dans ce cas les contraintes internes générées par la croissance sous irradiation des grains peuvent être à l'origine de la dispersion grain à grain. Leur prise en compte conduit à une modification de la pente des régressions linéaires;
- **Cas 3** : Nous considérons pour ce cas de simulation une **élasticité anisotrope et une texture isotrope**. Comme pour les cas précédents, la simulation porte sur la croissance sous irradiation d'un polycristal soumis à un chargement en traction de 100 MPa suivant DT. La contrainte locale suivant DT dans le grain G_a est de 79,4 MPa et la composante suivant $\langle c \rangle$ du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ vaut -3,3 MPa. Pour le grain G_b , la contrainte suivant DT est égale à 152,4 MPa et $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ vaut 117,8 MPa. Afin de tenir compte de la croissance sous irradiation, $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est translatée de -30,1 MPa pour le grain G_a et de -51,2 MPa pour le grain G_b par rapport aux valeurs considérées expérimentalement sur la base de l'hypothèse de Reuss. Comme pour le cas précédent, l'écart entre la valeur $(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{réel}}$ obtenue à partir des simulations et $(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{exp}}$ varie selon l'orientation cristallographique du grain. En élasticité anisotrope et en texture isotrope, la prise en compte des contraintes internes induites par la croissance sous irradiation permet d'expliquer la dispersion grain à grain constatée expérimentalement ;
- **Cas 4** : La simulation, en **élasticité anisotrope et en texture anisotrope** permet de rendre compte du comportement « réel » de notre matériau d'étude. La contrainte locale suivant DT dans le grain G_a est de 61 MPa. Elle est de 130,4 MPa dans le grain G_b . Examinons maintenant la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales, $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. A partir du tenseur des contraintes locales obtenu par les simulations, nous calculons une valeur de $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ de -0,3 MPa pour le grain G_a et de 95,7 MPa pour le grain G_b . Or en considérant que la contrainte vue par le grain est celle appliquée macroscopiquement (hypothèse forte de l'étude expérimentale), $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ vaut $-\Sigma/3 = -33,4$ MPa pour le grain G_a et est égale à $2\Sigma/3 = 66,7$ MPa. Par conséquent, la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales est translatée de -33,1 MPa pour le grain G_a et

IV.4. DISCUSSION DES RESULTATS MICROSTRUCTURAUX : EFFET DE LA CONTRAINTE SUR LA MICROSTRUCTURE DES BOUCLES A COMPOSANTE $\langle c \rangle$

de -29,1 MPa pour le grain G_b . La présence des contraintes internes peut donc induire une faible dispersion grain à grain. Leur prise en compte dans le calcul de la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes ne modifie que faiblement la pente des régressions linéaires.

L'ensemble de ces résultats est résumé dans le Tableau IV.4.1 où σ_g représente la contrainte locale dans les grains d'intérêt G_a et G_b , $(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{réel}}$ la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales obtenue par les simulations et $(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{exp}}$ la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes locales déterminée à partir de l'hypothèse de Reuss.

Tableau IV.4.1: Résultats des simulations de la croissance sous irradiation d'un polycristal soumis à un chargement en traction de 100 MPa suivant DT.

Simulation	Conditions de simulation		σ_g suivant DT (MPa)		$(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{réel}}$ (MPa)		$(\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{réel}} - (\sigma_D^{\langle c \rangle})_{\text{exp}}$ (MPa)		Rend compte de la dispersion expérimentale
	Elasticité	Texture	G_a	G_b	G_a	G_b	G_a	G_b	
N° 1	isotrope	isotrope	84,7	130,2	-2,7	96,8	-30,7	-30,2	Non
N° 2	isotrope	anisotrope	72,3	117,7	-2,3	84,4	-31,1	-17,7	Oui
N° 3	anisotrope	isotrope	79,4	152,4	-3,3	117,8	-30,1	-51,2	Oui
N° 4	anisotrope	anisotrope	61,1	130,4	-0,3	95,7	-33,1	-29,1	Oui mais faible

Nous constatons que pour un système de simulation où l'élasticité ou de la texture est anisotrope (simulation n° 2 et 3), la présence des contraintes internes induites par la croissance sous irradiation permet de rendre compte de la dispersion grain à grain de façon plus significative que dans un système où à la fois la texture et l'élasticité sont anisotropes (simulation n° 4). La comparaison des résultats de chacune des simulations n° 2 et 3 avec le cas n° 1 pour lequel nous considérons une élasticité isotrope et une texture isotrope nous permet d'éclairer ce point. En effet, alors que l'introduction d'une texture anisotrope diminue les contraintes locales des grains, la prise en compte de l'élasticité anisotrope les augmente (Tableau IV.4.1). Pour la simulation du système « réel » (simulation n° 4), les deux effets de l'anisotropie d'élasticité et de l'anisotropie de la texture se compenseraient conduisant à un cas de simulation similaire à celui où l'élasticité et la texture sont isotropes (simulation n° 1).

Au terme de cette modélisation « simplifiée » du comportement en croissance libre, simulée par la dilatation thermique d'un polycristal de Zircaloy-4 TREX, nous aboutissons à une évaluation des contraintes internes générées dans des grains d'orientations cristallographiques différentes. Bien que la croissance sous irradiation soit à l'origine d'une hétérogénéité interphase, les contraintes internes induites dans un système « réel » ne contribuent que faiblement à la dispersion grain à grain.

Pour compléter cette étude de modélisation à l'échelle du polycristal, il serait intéressant d'introduire, dans le modèle les lois de comportement en croissance libre et en fluage sous irradiation (chapitre 6). Ceci nous permettra notamment d'inclure la relaxation de la contrainte sous irradiation qui dépend de l'orientation cristallographique du grain et qui peut donc être à l'origine des hétérogénéités interphases et de la dispersion grain à grain.

IV.4.2.2 Effet du voisinage

Des grains de même orientation cristallographique sont entourés de voisins d'orientations différentes et variables d'un grain à un autre. Cet effet de voisinage conduit à une hétérogénéité de la distribution de la déformation entre des grains de même orientation cristallographique mais de voisinage différent. L'interaction d'un grain donné avec ses grains voisins peut donc induire des incompatibilités de

déformation élastique et plastique entre grains. Des modèles polycristallins, fondés sur la modélisation numérique par éléments finis d'agrégats cristallins [47], [50]–[52] sont communément utilisés pour évaluer l'impact du voisinage d'un grain sur sa réponse à une sollicitation macroscopique.

Un chargement mécanique peut amener à un état de contraintes résiduelles dans un matériau anisotrope caractérisé par l'hétérogénéité du comportement de ses phases cristallines. Pour les alliages de zirconium, l'amplitude des contraintes résiduelles au sein d'une même phase cristallographique varie significativement, d'environ 100 MPa [53], suite à une sollicitation macroscopique. L'amplitude de la variation de ces contraintes résiduelles est de même ordre de grandeur que les niveaux de contrainte externe appliquée dans le cadre de notre étude expérimentale (§ IV.2.2.1). Cette hétérogénéité de distribution de la contrainte entre les grains de même orientation mais de voisinage différent peut être à l'origine de la dispersion grain à grain observée expérimentalement. Notons que l'existence et l'amplitude des contraintes résiduelles peut être mesurée par diffraction des neutrons et des rayons X.

IV.4.3 Confrontation avec une autre étude expérimentale

Une étude expérimentale portant sur l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été réalisée dans le cadre du travail de thèse de Hengstler-Eger [54]. Ce travail a été mené en collaboration avec AREVA NP GmbH. Dans cette partie, nous proposons de comparer « qualitativement » nos résultats expérimentaux à ceux de Hengstler-Eger [54]. La mise en commun des résultats de ces deux études a fait l'objet d'une présentation orale lors de la conférence internationale TMS 2015 (Orlando, Etats-Unis) [55].

Tout comme pour notre étude, le choix du matériau s'est porté sur le produit intermédiaire TREX en Zircaloy-4. Les échantillons sont également prélevés dans le plan (DT-DR), formé par la direction transverse et la direction radiale du tube. Les éprouvettes sont placées sur un porte-objet chauffant de traction dans un Microscope Electronique en Transmission. Le chargement mécanique est appliqué au début de l'irradiation aux ions Kr^{2+} de 1 MeV à une température de 300°C. Les échantillons de Zircaloy-4 TREX sont étirés suivant le sens radial (DR) jusqu'à l'apparition des premières bandes de glissement indiquant que l'amplitude de la contrainte atteinte est proche de la limite d'élasticité R_p du matériau. Pour avoir un niveau de contrainte plus faible, la charge peut être relâchée d'une quantité déterminée par la loi de Hooke. Trois niveaux de contrainte ont été examinés (R_p , 83% de R_p et 66 % de R_p). La dose finale atteinte, calculée par le logiciel *SRIM* en utilisant le mode « Detailed Calculation with Full Damage Cascades » est d'environ 25 à 27 dpa. Le suivi *in-situ* de l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ sous l'effet de ce chargement mécanique dans des grains de différentes orientations cristallographiques a permis de tirer les conclusions suivantes :

- L'augmentation de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation est plus faible pour les grains d'axe cristallographique $\langle c \rangle$ proche de la direction de traction. Cet effet est plus important pour un niveau de contrainte élevé, égal à la limite d'élasticité du matériau ;
- La densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans les grains d'un même échantillon est plus faible pour une composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $\frac{2}{3} \sigma$ (contrainte de traction parallèle à l'axe $\langle c \rangle$) que pour $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $-\frac{1}{3} \sigma$ (contrainte de traction perpendiculaire à l'axe $\langle c \rangle$). En combinant les résultats pour l'ensemble des échantillons contraints à différents niveaux, la pente de la régression linéaire reste quasiment la même mais une dispersion grain à grain a été reportée ;
- Le diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ ne dépend que légèrement de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes.

Tableau IV.4.2: Comparaison entre les deux études expérimentales.

Chargement en flexion 4 points ou en flambage sous flux d'ions Zr^{+} de 600 keV	Traction <i>in-situ</i> sous flux d'ions Kr^{2+} de 1 MeV
Observation après irradiation de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$	Suivi <i>in-situ</i> de l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$
Faible dose d'irradiation (7 dpa)	Dose d'irradiation élevée (jusqu'à 27 dpa)
Contrainte appliquée dans le domaine élastique	Contrainte appliquée dans le domaine plastique pour certains échantillons
Amplitude de la contrainte initiale déterminée précisément pour les 2 types de chargement	Imprécision portant sur la limite d'élasticité suivant la DR à 300°C
Contrainte appliquée à la dose seuil de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$ (Historique de chargement de type II)	Contrainte appliquée au début de l'irradiation
Analyse sur un grand nombre de grains dans deux alliages de zirconium (74 grains au total)	Analyse sur un nombre limité de grains

La comparaison des résultats microstructuraux des deux études montre leur complémentarité. A une dose d'irradiation élevée, l'analyse conduite sur quelques grains met en évidence un effet net de la contrainte sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cet effet est en accord avec le mécanisme SIPA. A faible dose, la caractérisation de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans un grand nombre de grains a permis de dégager la même tendance, prédite par le mécanisme SIPA, pour l'évolution de la densité linéique avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. Néanmoins, l'effet de la contrainte apparaît plus faible compte tenu de la dispersion grain à grain. La variation de l'amplitude de cet effet peut trouver son origine dans les différences entre ces deux études expérimentales (Tableau IV.4.2).

IV.5 Conclusions sur l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$

Dans le but d'étudier le couplage entre le fluage d'irradiation et l'accélération de croissance sous irradiation, des languettes de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX ont été sollicitées en flexion quatre points ou en flambage sous un flux d'ions Zr^{+} de 600 keV et à une température d'irradiation de 300°C. Le plan de prélèvement (DT-DR) nous a permis de conduire l'analyse sur un grand nombre de grains présentant différentes orientations cristallographiques par rapport à la direction d'application de la contrainte macroscopique. De plus, grâce à ce plan de prélèvement, les axes cristallographiques $\langle c \rangle$ de la majorité des grains sont contenus dans le plan de la lame mince, facilitant ainsi l'imagerie des boucles à composante $\langle c \rangle$ par Microscopie Electronique en Transmission. L'application de la contrainte externe s'est effectuée selon deux historiques de chargement :

- Pour l'historique de chargement de type I, la contrainte est appliquée avant l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$, à la dose de 2,9 dpa, et jusqu'à une dose finale de 4,1 dpa. Les observations microstructurales, menées sur les échantillons de M5[®] contraints suivant cet historique de chargement, ne montrent pas un effet perceptible de la contrainte sur la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$. En effet, les boucles ne sont pas clairement visibles à 4,1 dpa, ceci indépendamment de l'orientation cristallographique des grains par rapport à la direction d'application de la contrainte de traction ou de compression. Pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX, aucune conclusion ne peut être tirée, les boucles à composante $\langle c \rangle$ étant déjà présentes à la dose d'introduction du chargement mécanique (2,9 dpa) ;
- L'historique de chargement de type II vise à étudier l'effet d'application d'une contrainte macroscopique de traction ou de compression sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour cela, la contrainte externe a été appliquée à une dose où les premières boucles se sont déjà formées. La quantification des grandeurs caractéristiques

(densité volumique N_c , densité linéique L_c et diamètre moyen $\langle d \rangle$) des boucles à composante $\langle c \rangle$, imagées en MET sur un grand nombre de grains de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX (74 grains au total), a conféré un aspect statistique à cette étude quantitative. La tendance dégagée pour l'évolution des densités N_c et L_c des boucles avec la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes est en bon accord avec le mécanisme SIPA. Néanmoins, la dispersion grain à grain rend l'amplitude de cet effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ faible. En ce qui concerne leur taille, il apparaît que le diamètre moyen des boucles formées dans le Zircaloy-4 recristallisé TREX ne dépend que légèrement de la contrainte. Une faible tendance a été, néanmoins, identifiée pour le M5[®] TREX. A noter également que la dispersion grain à grain de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ est élevée alors que l'écart type intragranulaire est faible. Ce résultat atteste de l'existence des hétérogénéités intergranulaires. Deux conclusions peuvent être déduites des analyses microstructurales portant sur les échantillons contraints selon l'historique de chargement de type II. En premier lieu, il semble que le couplage entre le fluage d'irradiation et la croissance est faible à l'échelle du grain. Ce résultat valide l'approche additive adoptée jusqu'à présent dans les modèles de prédiction du comportement des alliages de zirconium sous irradiation. En second lieu, par l'effet plus important de la contrainte sur les densités des boucles que sur leur diamètre, nous pouvons postuler que le mécanisme SIPA agit sur la germination des boucles à composante $\langle c \rangle$. Par ailleurs, la dispersion grain à grain peut être attribuée aux hétérogénéités induites par l'effet du voisinage et aux contraintes internes générées par la croissance anisotrope des grains sous irradiation. Nous pouvons aussi évoquer la relaxation sous irradiation qui se produit différemment dans des grains d'orientations cristallographiques différentes. Elle pourrait constituer une source d'hétérogénéité interphase et être à l'origine de la dispersion grain à grain.

L'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ sera également traité dans le cadre d'une modélisation par la méthode de dynamique d'amas, présentée dans le chapitre 5.

IV.6 Références bibliographiques du chapitre 4

- [1] G. Martin and J. P. Poirier, "Considérations sur la relation entre le fluage sous irradiation et dommages créés par l'irradiation en l'absence de contrainte," *J. Nucl. Mater.*, vol. 39, pp. 93–101, 1971.
- [2] N. Christodoulou, A. R. Causey, R. A. Holt, C. N. Tomé, N. Badie, R. J. Klassen, R. Sauvé, and C. H. Woo, "Modeling in-reactor deformation of Zr-2.5Nb pressure tubes in CANDU power reactors," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium*, ASTM STP 1295, 1996, pp. 518–537.
- [3] R. A. Holt, "In-reactor deformation of cold-worked Zr-2.5Nb pressure tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 372, pp. 182–214, Jan. 2008.
- [4] R. A. Holt and E. F. Ibrahim, "Factors affecting the anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloys," *Acta Metall.*, vol. 27, pp. 1319–1328, 1979.
- [5] E. F. Ibrahim and R. A. Holt, "Anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloy pressure tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 91, pp. 311–321, 1980.
- [6] J. R. Parsons and C. W. Hoelke, "Ion simulation of neutron irradiation growth and creep in Zr and Zr-2.5 wt% Nb at 314 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 114, pp. 103–107, 1983.
- [7] R. A. Holt, "In-reactor deformation of zirconium alloy components," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fifth International Symposium*, ASTM STP 1505, 2007, pp. 3–18.

- [8] D. G. Franklin, G. E. Lucas, and A. L. Bement, *Creep of zirconium alloys in nuclear reactors*. ASTM Special Technical Publication 815, 1983.
- [9] R. V. Hesketh, "Application of the generalised theory of yielding creep to irradiation in zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 26, pp. 77–86, 1967.
- [10] G. R. Piercy, "Mechanisms for the in-reactor creep of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 26, pp. 18–50, 1968.
- [11] G. W. Lewthwaite, "Irradiation creep produced by the effect of stress on the nucleation of dislocation loops," *Philos. Mag.*, vol. 28, pp. 1287–1302, 1973.
- [12] K. Herschbach and W. Schneider, "Interconnection between irradiation creep and interstitial loop formation in fcc metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 51, pp. 215–220, 1974.
- [13] G. Xu and A. S. Argon, "Homogeneous nucleation of dislocation loops under stress in perfect crystals," *Philos. Mag. Lett.*, vol. 80, pp. 605–611, 2000.
- [14] P. T. Heald and M. V. Speight, "Steady-state irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 29, no. 1075–1080, 1974.
- [15] P. T. Heald and M. V. Speight, "Point defect behaviour in irradiated materials," *Acta Metall.*, vol. 23, pp. 1389–1399, 1975.
- [16] W. G. Wolfer and M. Ashkin, "Diffusion of vacancies and interstitials to edge dislocations," *J. Appl. Phys.*, vol. 47, pp. 791–800, 1976.
- [17] W. G. Wolfer and M. Ashkin, "Stress-induced diffusion of point defects to spherical sinks," *J. Appl. Phys.*, vol. 46, pp. 547–557, 1975.
- [18] R. Bullough and J. R. Willis, "The stress-induced point defect-dislocation interaction and its relevance to irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 31, pp. 855–861, 1975.
- [19] P. R. Okamoto and S. D. Harkness, "Stress-biased loop nucleation in irradiated type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 48, pp. 204–206, 1973.
- [20] H. R. Brager, F. A. Garner, and G. L. Guthrie, "The effect of stress on the microstructure of neutron irradiated type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, pp. 301–321, 1977.
- [21] D. Caillard, J. L. Martin, and B. Jouffrey, "Creep under irradiation of 316 steel in the high voltage electron microscope," *Acta Metall.*, vol. 28, pp. 1059–1067, 1980.
- [22] F. A. Garner, W. G. Wolfer, and H. R. Brager, "A reassessment of the role of stress in development of radiation-induced microstructure," in *Effects of Radiation on Structural Materials*, ASTM STP 683, 1979, pp. 160–183.
- [23] D. S. Gelles, F. A. Garner, and H. R. Brager, "Frank loop formation in irradiated metals in response to applied and internal stresses," in *Effects of Radiation on Materials: Tenth conference*, ASTM STP 725, American Society for Testing and Materials, 1981, pp. 735–753.
- [24] F. A. Garner and D. S. Gelles, "Irradiation creep mechanisms: an experimental perspective," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 286–309, 1988.
- [25] D. S. Gelles, "Effects of stress on microstructural evolution during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 205, pp. 146–161, 1993.

- [26] J. Garnier, "Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des Réacteurs à Eau Pressurisée," Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2007.
- [27] J. Garnier, Y. Bréchet, M. Delnondedieu, C. Pokor, P. Dubuisson, A. Renault, X. Averty, and J. P. Massoud, "Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels: Mechanical behaviour and microstructural aspects. Part I: Experimental results," *J. Nucl. Mater.*, vol. 413, no. 2, pp. 63–69, Jun. 2011.
- [28] C. Xu and G. S. Was, "Anisotropic dislocation loop distribution in alloy T91 during irradiation creep," *J. Nucl. Mater.*, vol. 454, pp. 255–264, 2014.
- [29] S. Jitsukawa, Y. Katano, and K. Shiraishi, "Effect of external stress on microstructural change during electron irradiation in nickel," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 21, pp. 671–677, Sep. 1984.
- [30] M. Griffiths and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - I. Defect structure and loop character," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 313–322, 1983.
- [31] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - II. Nucleation and growth of c-component loops," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 323–330, 1983.
- [32] Y. Idrees, Z. Yao, M. A. Kirk, and M. R. Daymond, "In situ study of defect accumulation in zirconium under heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 433, no. 1–3, pp. 95–107, Feb. 2013.
- [33] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "C-component dislocations in annealed zircaloy irradiated at about 570 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 137, pp. 185–189, 1986.
- [34] L. Tournadre, "Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium," Thèse de doctorat confidentielle, Université de la Rochelle, 2012.
- [35] L. Tournadre, F. Onimus, D. Gilbon, and X. Feaugas, "Impact of hydrogen pick-up and applied stress on c-component loops : Toward a better understanding of the radiation induced growth of recrystallized zirconium alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2014, pp. 853–893.
- [36] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, X. Feaugas, O. Toader, and C. Bachelet, "Experimental study of the nucleation and growth of c-component loops under charged particle irradiations of recrystallized Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 425, no. 1–3, pp. 76–82, Jun. 2012.
- [37] O. Caspari and F. Onimus, "Rapport de stage de fin d'étude: les mécanismes de déformation des alliages de zirconium sous et après irradiation aux ions DEN/DANS/DMN/SRMA/LA2M/NT/2015-3526/A," Note technique interne, CEA Saclay, 2015.
- [38] S. Carassou, C. Duguay, P. Yvon, F. Rozenblum, J. M. Cloué, V. Chabretou, C. Bernaudat, B. Levasseur, A. Maurice, P. Bouffieux, and K. Audic, "REFLET Experiment in OSIRIS: Relaxation under flux as a method for determining creep behavior of Zircaloy assembly components," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529*, 2010, pp. 899–927.
- [39] P. Morize, J. Baicry, and J.-P. Mardon, "Effect of irradiation at 588 K on mechanical properties and deformation behavior of zirconium alloy strip," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium, ASTM STP 939*, 1987, pp. 101–119.

- [40] T. A. Kenfield, H. J. Busboom, and W. K. Appleby, "In-reactor stress relaxation in bending of 20% cold-worked 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, pp. 238–243, 1977.
- [41] V. N. Shishov, M. M. Peregud, A. V. Nikulina, Y. V. Pimenov, G. P. Kobylansky, A. E. Novoselov, Z. E. Ostrovsky, and A. V. Obukhov, "Influence of structure-phase state of Nb containing Zr alloys on irradiation-induced growth," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 666–686.
- [42] R. A. Fisher and F. Yates, *Statistical tables for biological, agricultural and medical research*, 6th London. Longman Group, 1974.
- [43] W. G. Wolfer, "Correlation of irradiation creep with experimental evidence," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 175–192, 1980.
- [44] K. C. Russell, "The theory of void nucleation in metals," *Acta Metall.*, vol. 26, pp. 1615–1630, 1978.
- [45] K. C. Russell, "Vacancy cluster: helium synergy in void nucleation," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 39, pp. 956–963, Nov. 2007.
- [46] J. D. Eshelby, "The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems," in *The Royal Society, Proceedings A*, 1957.
- [47] M. Priser, M. Rautenberg, J.-M. Cloué, P. Pilvin, X. Feaugas, and D. Poquillon, "Multiscale analysis of viscoplastic behavior of recrystallized Zircaloy-4 at 400°C," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529*, 2010, pp. 269–297.
- [48] G. J. C. Carpenter, R. H. Zee, and A. Rogerson, "Irradiation growth of zirconium single crystals: a review," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 86–100, 1988.
- [49] R. Brenner, "Influence de la microstructure sur le comportement en fluage thermique d'alliages de zirconium: analyse expérimentale et mise en oeuvre des méthodes d'homogénéisation," Thèse de doctorat, Université Paris XIII, 2001.
- [50] F. Barbe, L. Decker, D. Jeulin, and G. Cailletaud, "Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. Part 1 : FE model," *Int. J. Plast.*, vol. 17, pp. 513–536, 2001.
- [51] F. Barbe, S. Forest, and G. Cailletaud, "Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. Part 2 : Results," *Int. J. Plast.*, vol. 17, pp. 537–563, 2001.
- [52] O. Diard, S. Leclercq, G. Rousselier, and G. Cailletaud, "Evaluation of finite element based analysis of 3D multicrystalline aggregates plasticity," *Int. J. Plast.*, vol. 21, no. 4, pp. 691–722, Apr. 2005.
- [53] N. Letouzé, R. Brenner, O. Castelneau, J.-L. Béchade, and M. H. Mathon, "Residual strain distribution in Zircaloy-4 measured by neutron diffraction and estimated by homogenization techniques," *Scr. Mater.*, vol. 47, pp. 595–599, 2002.
- [54] R. M. Hengstler-Eger, "Ion irradiation studies of the origins of Pressurized Water Reactor fuel assembly deformation," Thèse de doctorat, Université Technique de Munich, 2012.
- [55] N. Gharbi, R. M. Hengstler-Eger, X. Feaugas, D. Gilbon, P. B. Hoffmann, M. A. Kirk, J. P. Mardon, and F. Onimus, "The effect of applied stress on <c> component dislocation loops in Zr-based alloys," Présentation orale, TMS 2015, Orlando, 2015.

V. Chapitre 5

Modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4

Dans ce cinquième chapitre, nous nous intéressons à la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et de son alliage, le Zircaloy-4. Après une description du principe de cette technique et des équations différentielles permettant de suivre l'évolution au cours du temps de la distribution des amas de défauts, nous détaillons, plus particulièrement, les paramètres cinétiques régissant l'absorption et l'émission des défauts ponctuels par les boucles de dislocation. A cette occasion, nous présentons la nouvelle approche thermodynamique implémentée dans la version récente du code de dynamique d'amas pour le calcul de l'énergie de liaison des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et à composante $\langle c \rangle$. Par la suite, une démarche séquentielle d'identification des paramètres physiques et de calibration du modèle sur des données expérimentales portant sur la microstructure des boucles de dislocation formées par irradiation aux électrons et aux ions est mise en place. A l'issue de cette étape d'identification et de validation, le modèle de dynamique d'amas est appliqué à l'étude de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ et au calcul de la déformation de croissance sous irradiation du monocristal de zirconium pur et du zirconium polycristallin.

Sommaire

V.1 Présentation du modèle de dynamique d'amas.....	164
V.1.1 Hypothèses et équations du modèle.....	164
V.1.2 Paramètres physiques régissant l'évolution des défauts ponctuels	167
V.2 Identification des paramètres et validation du modèle sur les irradiations aux électrons	178
V.2.1 Démarche adoptée.....	178
V.2.2 Identification et validation du modèle sur la base des expériences d'irradiation aux électrons	180
V.3 Application du modèle aux irradiations aux ions	196
V.3.1 Modélisation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions sans contrainte	196
V.3.2 Modélisation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$	201
V.4 Application du modèle à la prédiction de la croissance sous irradiation du zirconium	210
V.4.1 Calcul de la déformation de croissance sous irradiation dans le modèle de dynamique d'amas	210
V.4.2 Simulation de la croissance sous irradiation et confrontation aux données expérimentales de la littérature.....	212
V.5 Conclusions sur la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4	220
V.6 Références bibliographiques du chapitre 5	222

V.1 Présentation du modèle de dynamique d'amas

La prédiction de la cinétique de formation et d'évolution d'amas de défauts ponctuels est d'importance majeure pour l'étude de l'endommagement des matériaux métalliques sous irradiation. Vers la fin des années 60, des approches de cinétique chimique, dites de « Rate Theory », [1], [2] ont été mises en place pour décrire l'évolution au cours du temps des défauts ponctuels créés sous irradiation en considérant des forces de puits constantes. Historiquement, ces approches ont été enrichies par l'introduction d'amas formés par agglomération de défauts ponctuels. C'est ainsi que la méthode de dynamique d'amas a vu le jour [3], [4]. Cette méthode s'appuie sur un ensemble d'équations cinétiques basées sur les taux de production, de recombinaison, d'absorption et d'émission d'amas de défauts ponctuels. Les premiers modèles de dynamique d'amas, comme le modèle développé par Hardouin Duparc *et al.* [5] pour les aciers ferritiques, ont considéré une diffusion purement isotrope des défauts ponctuels. Pour les métaux de structure hexagonale compacte, et plus particulièrement pour le zirconium et ses alliages, la diffusion des auto-interstitiels est anisotrope (§ 1.2.2.1). En s'appuyant sur le modèle de DAD (Différence d'Anisotropie de Diffusion) proposé par Woo [6] pour les métaux non cubiques, Christien et Barbu [7] ont étendu le modèle de dynamique d'amas décrit par Hardouin Duparc *et al.* [5] au cas du zirconium où la diffusion des SIAs est anisotrope.

Pour ce travail de thèse, nous utilisons le code de dynamique d'amas *CRESCENDO* développé par Jourdan [8]. Dans cette partie, nous présentons tout d'abord les hypothèses et les équations du modèle avant de détailler, plus spécifiquement, les coefficients cinétiques régissant l'absorption et l'émission des défauts par les boucles de dislocation. Un intérêt particulier sera porté à la nouvelle méthode de calcul des énergies de boucles de dislocation, implémentée dans la version récente du code de dynamique d'amas.

V.1.1 Hypothèses et équations du modèle

Le modèle de dynamique d'amas est un modèle physique de champ moyen qui permet de simuler l'évolution au cours du temps d'une population de défauts (boucles de dislocation, cavités). Le milieu réel est assimilé à un milieu homogène équivalent dans lequel les corrélations spatiales entre les défauts ne sont pas prises en compte (Figure V.1.1). Cette approximation en champ moyen permet de réduire les temps de calcul. Dans certains cas, il est nécessaire d'intégrer la dépendance spatiale des distributions d'amas de défauts, le système restant homogène localement. Nous citons, par exemple, le cas de la simulation des lames minces où la distribution spatiale des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ peut varier à proximité des surfaces libres (§ 1.2.3.2.4). Dans une version récente du code de dynamique d'amas *CRESCENDO*, Jourdan [8] a introduit la dépendance spatiale à une dimension dans les équations différentielles décrivant l'évolution des amas de défauts ponctuels. Dans la suite de ce chapitre, nous considérons une version antérieure dans laquelle la dépendance spatiale n'est pas prise en compte (Figure V.1.1).

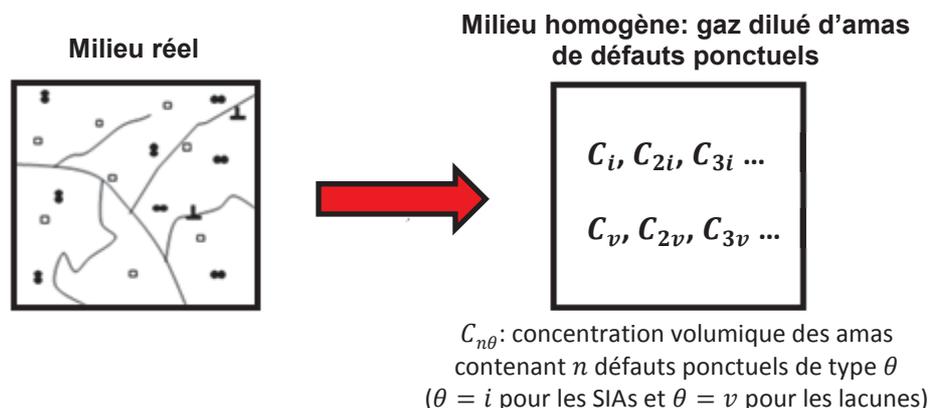


Figure V.1.1: Milieu réel assimilé à un milieu homogène équivalent dans le modèle de dynamique d'amas.

Dans le modèle, chaque amas formé par agglomération des défauts ponctuels est caractérisé par son type et ses propriétés (amas planaire ou tridimensionnel, plan d'habitat, vecteur de Burgers, etc.), son caractère interstitiel ou lacunaire et le nombre de monomères le constituant. Les amas constitués du même type et nombre de monomères sont considérés identiques et sont regroupés en une classe d'amas. Pour chaque classe d'amas est définie une équation différentielle permettant de suivre l'évolution au cours du temps de sa concentration. L'expression générale de cette équation différentielle est donnée ci-dessous pour une classe j d'amas de défauts créés sous irradiation :

$$\frac{dC_j}{dt} = G_j + \sum_k w(k, j) C_k - \sum_k w(j, k) C_j - L_j \quad \text{Eq. V.1.1}$$

avec C_j la concentration des amas de classe j , G_j le terme de production par irradiation des amas de classe j , $w(k, j)$ le taux de transition par unité de concentration d'un amas de classe k en un amas de classe j , $w(j, k)$ le taux de transition par unité de concentration d'un amas de classe j en un amas de classe k et L_j le taux net d'élimination des amas de classe j sur les puits de la microstructure (dislocations, surfaces libres, joints de grains).

Ce système d'équations couplées (Eq. V.1.1) est résolu numériquement, ce qui permet d'obtenir la distribution des concentrations des classes d'amas. Pour des temps d'irradiation assez longs, nous pouvons être amenés à résoudre un nombre très important d'équations. A titre indicatif, la détermination des concentrations de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ d'une taille allant jusqu'à 50 nm requiert la résolution d'environ 28000 équations différentielles. Dans le but de réduire ce nombre et d'alléger les simulations, l'équation maîtresse Eq. V.1.1 est approximée par une équation de Fokker-Planck pour les amas de grande taille (§ V.1.1.2). L'évolution de la distribution des classes d'amas est donc décrite par deux types d'équations, des équations discrètes pour les amas de petite taille et des équations continues de Fokker-Planck pour les amas de grande taille.

V.1.1.1 Equations maîtresses (région « discrète », petits amas)

Nous considérons dans la suite que seuls les monomères sont mobiles.

L'évolution de la distribution des amas interstitiels et lacunaires contenant $n > 2$ monomères est régie par le système d'équations différentielles couplées suivant :

$$\begin{aligned} \frac{dC_{ni}}{dt} = G_{ni} + & \left[\beta_{(n-1)i}^i C_{1i} + \alpha_{(n-1)i}^v \right] C_{(n-1)i} + \left[\beta_{(n+1)i}^v C_{1v} + \alpha_{(n+1)i}^i \right] C_{(n+1)i} \\ & - \left[\alpha_{ni}^i + \alpha_{ni}^v + \beta_{ni}^v C_{1v} + \beta_{ni}^i C_{1i} \right] C_{ni} \end{aligned} \quad \text{Eq. V.1.2}$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{nv}}{dt} = G_{nv} + & \left[\beta_{(n-1)v}^v C_{1v} + \alpha_{(n-1)v}^i \right] C_{(n-1)v} + \left[\beta_{(n+1)v}^i C_{1i} + \alpha_{(n+1)v}^v \right] C_{(n+1)v} \\ & - \left[\alpha_{nv}^v + \alpha_{nv}^i + \beta_{nv}^i C_{1i} + \beta_{nv}^v C_{1v} \right] C_{nv} \end{aligned} \quad \text{Eq. V.1.3}$$

$C_{n\theta}$ est la concentration volumique des amas contenant n défauts ponctuels de type θ ($\theta = i$ pour les auto-interstitiels et $\theta = v$ pour les lacunes), $G_{n\theta}$ est le taux de production des amas de classe $n\theta$, $\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{1\theta'}$ est le taux de capture d'un défaut ponctuel de type θ' par un amas de classe $n\theta$ et $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$ est le taux d'émission d'un défaut ponctuel de type θ' par un amas de classe $n\theta$.

Pour $n = 1$ et $n = 2$, les équations discrètes s'écrivent comme suit :

$$\frac{dC_{2i}}{dt} = \beta_{1i}^i C_{1i} C_{1i} - \alpha_{2i}^i C_{2i} - \alpha_{2i}^v C_{2i} - \beta_{2i}^i C_{1i} C_{2i} + \alpha_{3i}^i C_{3i} - \beta_{2i}^v C_{1v} C_{2i} + \beta_{3i}^v C_{1v} C_{3i} \quad \text{Eq. V.1.4}$$

$$\frac{dC_{2v}}{dt} = \beta_{1v}^v C_{1v} C_{1v} - \alpha_{2v}^v C_{2v} - \alpha_{2v}^i C_{2v} - \beta_{2v}^v C_{1v} C_{2v} + \alpha_{3v}^v C_{3v} - \beta_{2v}^i C_{1i} C_{2v} + \beta_{3v}^i C_{1i} C_{3v} \quad \text{Eq. V.1.5}$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1i}}{dt} = & G_{1i} - R_{iv} C_{1i} C_{1v} - K_d^i C_{1i} - K_s^i C_{1i} - 2\beta_{1i}^i C_{1i} C_{1i} + 2\alpha_{2i}^i C_{2i} + \beta_{2i}^v C_{1v} C_{2i} \\ & - C_{1i} \sum_{n \geq 2} \beta_{ni}^i C_{ni} - C_{1i} \sum_{n \geq 2} \beta_{nv}^i C_{nv} + \sum_{n \geq 3} \alpha_{ni}^i C_{ni} + \sum_{n \geq 3} \alpha_{nv}^i C_{nv} \end{aligned} \quad \text{Eq. V.1.6}$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1v}}{dt} = & G_{1v} - R_{iv} C_{1i} C_{1v} - K_d^v C_{1v} - K_s^v C_{1v} - 2\beta_{1v}^v C_{1v} C_{1v} + 2\alpha_{2v}^v C_{2v} + \beta_{2v}^i C_{1i} C_{2v} \\ & - C_{1v} \sum_{n \geq 2} \beta_{nv}^v C_{nv} - C_{1v} \sum_{n \geq 2} \beta_{ni}^v C_{ni} + \sum_{n \geq 3} \alpha_{nv}^v C_{nv} + \sum_{n \geq 3} \alpha_{ni}^v C_{ni} \end{aligned} \quad \text{Eq. V.1.7}$$

avec R_{iv} le taux de recombinaison d'un auto-interstitiel avec une lacune, $K_d^\theta C_{1\theta}$ le taux d'élimination d'un défaut ponctuel de type θ par les dislocations droites et $K_s^\theta C_{1\theta}$ le taux d'annihilation d'un défaut ponctuel de type θ sur les surfaces ou les joints de grains.

V.1.1.2 Equations de Fokker-Planck (région « continue », amas de grande taille)

Pour les amas ayant un nombre de défauts supérieur à une valeur critique N_c , l'évolution de leur concentration C_θ est traduite par l'équation suivante de Fokker-Planck avec x le nombre de monomères les constituant :

$$\frac{\partial C_\theta(x, t)}{\partial t} = - \frac{\partial [f_\theta(x) C_\theta(x, t)]}{\partial x} + \frac{\partial^2 [d_\theta(x) C_\theta(x, t)]}{\partial x^2} \quad \text{Eq. V.1.8}$$

Les fonctions f_θ et d_θ s'expriment en fonction des termes d'absorption et d'émission :

$$f_i(x) = \beta_{xi}^i C_{1i} - \beta_{xi}^v C_{1v} - \alpha_{xi}^i + \alpha_{xi}^v \quad \text{Eq. V.1.9}$$

$$f_v(x) = \beta_{xv}^v C_{1v} - \beta_{xv}^i C_{1i} - \alpha_{xv}^v + \alpha_{xv}^i \quad \text{Eq. V.1.10}$$

$$d_i(x) = \frac{1}{2} [\beta_{xi}^i C_{1i} + \beta_{xi}^v C_{1v} + \alpha_{xi}^i + \alpha_{xi}^v] \quad \text{Eq. V.1.11}$$

$$d_v(x) = \frac{1}{2} [\beta_{xv}^v C_{1v} + \beta_{xv}^i C_{1i} + \alpha_{xv}^v + \alpha_{xv}^i] \quad \text{Eq. V.1.12}$$

Pour simuler rapidement l'évolution des grandes boucles, la discrétisation de cette équation (Eq. V.1.8) dans l'espace des tailles x se fait avec un pas Δx variable. Le premier pas est pris égal à 1 afin d'assurer la continuité entre la région des équations discrètes et celle des équations continues. Puis, Δx suit une progression géométrique. Avec une telle « construction », le modèle peut traiter avec une durée de calcul raisonnable les échelles de temps explorées expérimentalement, à savoir des journées et des années d'irradiation.

Les principaux défauts d'irradiation rencontrés dans le zirconium et ses alliages sont les boucles de dislocation. Deux populations de boucles sont à distinguer : les boucles prismatiques $\langle a \rangle$ de nature interstitielle et lacunaire et les boucles à composante $\langle c \rangle$ exclusivement lacunaires et situées dans le plan basal de la maille hexagonale compacte du zirconium. Les équations sont dupliquées pour pouvoir simuler ces deux types de boucles de dislocation. A un instant t donné, la distribution des classes de boucles de dislocation, appartenant à ces deux populations, est représentée dans l'espace

des tailles à deux dimensions, schématisé dans la Figure V.1.2. Les paramètres w_a et w_c désignent les probabilités d'agglomération des lacunes en boucles de dislocation $\langle a \rangle$ lacunaires ou en boucles à composante $\langle c \rangle$, respectivement. Pour l'ensemble des simulations présentées dans le cadre de ce travail, nous considérons par souci de simplicité une équiprobabilité d'agglomération en boucles $\langle a \rangle$ lacunaires et en boucles à composante $\langle c \rangle$, w_a et w_c étant fixés à 0,5.

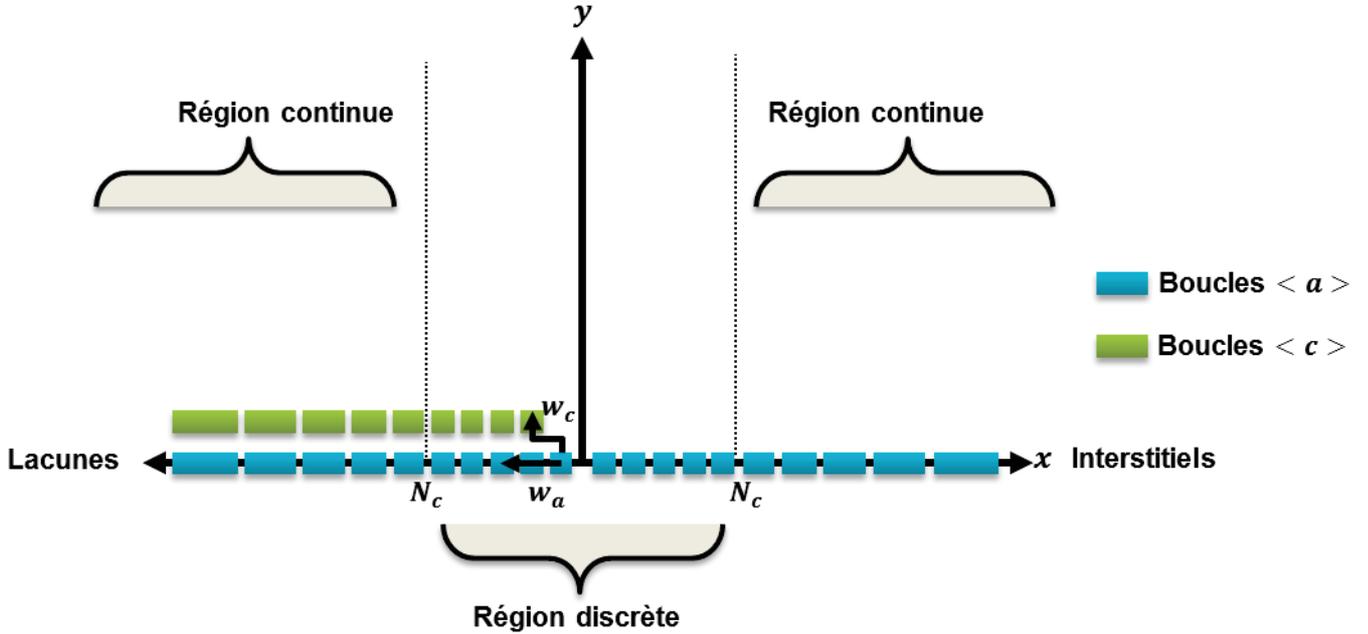


Figure V.1.2: Schématisation de l'espace des tailles à deux dimensions dans le modèle de dynamique d'amas.

V.1.2 Paramètres physiques régissant l'évolution des défauts ponctuels

En considérant que seuls les monomères sont mobiles, les boucles de dislocation échangent avec la matrice des défauts ponctuels, par émission ou absorption, conduisant ainsi à leur croissance ou à leur disparition. La physique du modèle de dynamique d'amas est contenue dans les paramètres régissant l'absorption et l'émission de ces défauts ponctuels par les boucles de dislocation. Plus particulièrement, la thermodynamique du modèle est contenue dans les énergies de liaison des boucles. Dans cette partie, nous nous intéresserons principalement à la définition des coefficients d'émission et d'absorption des défauts ponctuels par les boucles de dislocation. Les coefficients de production et de recombinaison des auto-interstitiels et des lacunes ainsi que les termes de puits autres que les boucles de dislocation (dislocations droites, surfaces libres et joints de grain) seront également explicités.

V.1.2.1 Absorption et émission des défauts ponctuels par les boucles de dislocation

V.1.2.1.1 Absorption des défauts ponctuels par les boucles de dislocation

Le taux d'absorption $\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{1\theta'}$, d'un défaut de type θ' par une boucle de dislocation de taille n et de type θ s'écrit sous la forme suivante [5], [7] :

$$\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{1\theta'} = 2\pi r_n Z_{n\theta}^{\theta'} D_{\theta'} C_{1\theta'} \quad \text{Eq. V.1.13}$$

Le rayon r_n de la boucle de dislocation peut être exprimé en fonction du nombre n de monomères la formant :

$$r_n = \sqrt{\frac{n V_{atm}}{\pi b_e}} \quad \text{Eq. V.1.14}$$

avec V_{atm} le volume atomique et b_e la norme de la composante coin du vecteur de Burgers, normale au plan d'habitat de la boucle. La famille des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ situées dans les plans prismatiques de type $\{11\bar{2}0\}$ sont purement coins. La composante b_e est égale à la norme de leur vecteur de Burgers correspondant au paramètre de maille a . Pour les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ mixtes se trouvant dans les plans prismatiques de type $\{10\bar{1}0\}$, b_e vaut $a\sqrt{3}/2$. Dans le modèle de dynamique d'amas, nous ne distinguons pas entre ces deux familles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et b_e est prise égale à a . Pour les boucles à composante $\langle c \rangle$, la composante du vecteur de Burgers normale au plan de base vaut $c/2$.

Dans l'expression Eq. V.1.13, $D_{\theta'}$ correspond au coefficient de diffusion du défaut ponctuel θ' donné par la relation suivante :

$$D_{\theta'} = D_{\theta'}^0 \exp\left(\frac{-E_{\theta'}^m}{kT}\right) \quad \text{Eq. V.1.15}$$

où $D_{\theta'}^0$ est le coefficient pré-exponentiel, k la constante de Boltzmann, T la température et $E_{\theta'}^m$ l'énergie de migration du défaut ponctuel θ' . Dans le modèle, nous considérons une diffusion isotrope des lacunes et une diffusion anisotrope des auto-interstitiels. Les énergies de migration des défauts ponctuels constituent des paramètres ajustables du modèle et seront décrites ultérieurement. Compte tenu de l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels, nous définissons un coefficient de diffusion moyen pour les SIAs. Ce coefficient \bar{D}_i s'exprime en fonction du coefficient de diffusion des auto-interstitiels suivant la direction cristallographique $\langle a \rangle$, D_i^a , et celui suivant l'axe $\langle c \rangle$, D_i^c , par la relation suivante [9] :

$$\bar{D}_i = ((D_i^a)^2 D_i^c)^{1/3} \quad \text{Eq. V.1.16}$$

Le terme $Z_{n\theta}^{\theta'}$ traduit l'efficacité d'absorption du défaut ponctuel de type θ' par la boucle de dislocation $n\theta$. Il permet de rendre compte à la fois de la différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les boucles de dislocation (§ I.3.1.2.1) via le terme $Z_{n\theta,EID}^{\theta'}$ et de la différence d'anisotropie de diffusion (DAD) entre les SIAs et les lacunes (§ I.3.1.2.2) à travers le terme $Z_{n\theta,DAD}^{\theta'}$:

$$Z_{n\theta}^{\theta'} = Z_{n\theta,EID}^{\theta'} \times Z_{n\theta,DAD}^{\theta'} \quad \text{Eq. V.1.17}$$

Plusieurs approches ont été proposées pour définir $Z_{n\theta,EID}^{\theta'}$ de manière à ce que son expression analytique soit validée pour toute valeur de n . Plus précisément, pour les boucles de grande taille ce terme doit correspondre à celui des dislocations droites (§ V.1.2.2.1). Une des approches adoptée dans *CRESCENDO* est celle permettant de prendre en compte la forme toroïdale d'une boucle de dislocation de rayon r_n (Figure V.1.3) [10], [11] :

$$Z_{n\theta,EID}^{\theta'} = Z_d^{\theta'} \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \quad \text{Eq. V.1.18}$$

Le rayon r_p est généralement pris égal à $2b$ [5], [7] avec b la norme du vecteur de Burgers de la dislocation. $Z_d^{\theta'}$ est le terme d'efficacité d'absorption d'un défaut ponctuel θ' par une dislocation droite (§ V.1.2.2.1). Ce terme traduit l'interaction élastique préférentielle d'une dislocation avec un auto-interstitiel.

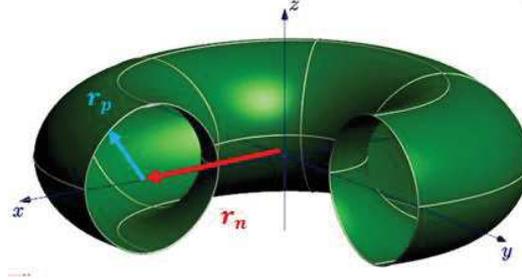


Figure V.1.3: Une boucle de dislocation de forme toroïdale.

La diffusion des lacunes étant considérée comme isotrope, leur efficacité d'absorption par les boucles de dislocation, $Z_{n\theta,DAD}^v$, vaut 1. Pour déterminer l'efficacité relative à la capture des auto-interstitiels par une boucle prismatique $\langle a \rangle$ et une boucle basale à composante $\langle c \rangle$, nous introduisons le facteur d'anisotropie de diffusion des SIAs noté p et la fonction $P(\delta)$.

Le facteur d'anisotropie de diffusion des SIAs s'écrit comme suit :

$$p = \left(\frac{D_i^c}{D_i^a} \right)^{1/6} \quad \text{Eq. V.1.19}$$

Comme les auto-interstitiels diffusent plus rapidement suivant l'axe $\langle a \rangle$ que suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$, le coefficient p est inférieur à 1.

La fonction $P(\delta)$ est définie par l'expression suivante où δ est l'angle entre l'axe $\langle c \rangle$ du cristal de zirconium et les lignes de dislocation [7] :

$$P(\delta) = \frac{\sqrt{(\cos\delta)^2 + p^6(\sin\delta)^2}}{p^2} \quad \text{Eq. V.1.20}$$

L'angle δ n'est pas constant pour une boucle de dislocation. Dans le but de simplifier les calculs, nous pouvons assimiler la boucle à un hexagone de même circonférence et de côté h [7]. A partir des équations Eq. V.1.13 et Eq. V.1.17, nous écrivons :

$$2\pi r_n Z_{n\theta}^i = 2\pi r_n Z_{n\theta,EID}^i \times Z_{n\theta,DAD}^i = 6h Z_{n\theta,EID}^i \times Z_{n\theta,DAD}^i \quad \text{Eq. V.1.21}$$

Or, pour une boucle de dislocation $\langle a \rangle$ située dans les plans prismatiques, deux des côtés de l'hexagone sont perpendiculaires à l'axe $\langle c \rangle$, les quatre autres faisant un angle δ de 30° . Nous avons donc :

$$2h Z_{n\theta,EID}^i P(\delta = 90^\circ) + 4h Z_{n\theta,EID}^i P(\delta = 30^\circ) = 2h Z_{n\theta,EID}^i \left(p + \frac{\sqrt{3 + p^6}}{p^2} \right) \quad \text{Eq. V.1.22}$$

De l'identification des deux équations Eq. V.1.21 et Eq. V.1.22, nous déduisons l'efficacité d'absorption des SIAs par une boucle de dislocation $\langle a \rangle$ induite par l'anisotropie de diffusion :

$$Z_{a,DAD}^i = \frac{1}{3} \left(p + \frac{\sqrt{3 + p^6}}{p^2} \right) \quad \text{Eq. V.1.23}$$

Au final, le coefficient d'absorption d'un SIA par une boucle de dislocation $\langle a \rangle$ s'écrit comme suit :

$$Z_a^i = \frac{1}{3} Z_d^i \left(p + \frac{\sqrt{3+p^6}}{p^2} \right) \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \quad \text{Eq. V.1.24}$$

Pour une boucle à composante $\langle c \rangle$ se trouvant dans le plan de base, tous les côtés de l'hexagone sont perpendiculaires à la direction $\langle c \rangle$ et la probabilité de capture d'un auto-interstitiel est contrôlée par le terme d'efficacité suivant :

$$Z_c^i = Z_d^i p \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \quad \text{Eq. V.1.25}$$

Il est à noter qu'à partir des coefficients d'efficacité d'absorption des lacunes et des auto-interstitiels par les boucles de dislocation, il est possible de déterminer le biais pour les SIAs induit par l'EID et le biais géométrique introduit par la DAD :

$$B_{n\theta,EID}^i = \frac{Z_{n\theta,EID}^i - Z_{n\theta,EID}^v}{Z_{n\theta,EID}^i} \quad \text{Eq. V.1.26}$$

$$B_{n\theta,DAD}^i = \frac{Z_{n\theta,DAD}^i - Z_{n\theta,DAD}^v}{Z_{n\theta,DAD}^i} \quad \text{Eq. V.1.27}$$

V.1.2.1.2 Emission des défauts ponctuels par les boucles de dislocation

Le taux d'émission $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$ d'un défaut ponctuel de type θ' par une boucle de dislocation $n\theta$ s'écrit sous la forme suivante [5], [7] :

$$\alpha_{n\theta}^{\theta'} = 2\pi r_{n-1} Z_{(n-1)\theta}^{\theta'} D_{\theta'} \frac{\exp\left(\frac{-E_{n\theta}^{B\theta'}}{kT}\right)}{V_{atm}} \quad \text{Eq. V.1.28}$$

$E_{n\theta}^{B\theta'}$ est l'énergie de liaison du défaut θ' à la boucle de dislocation de classe $n\theta$ qui se définit par l'expression suivante :

$$E_{n\theta}^{B\theta'} = E_{\theta'}^f - (E_{n\theta}^f - E_{(n-1)\theta}^f) \quad \text{Eq. V.1.29}$$

avec $E_{\theta'}^f$, l'énergie de formation du défaut ponctuel de type θ' , $E_{n\theta}^f$ l'énergie de formation de la boucle de dislocation de classe $n\theta$ et $E_{(n-1)\theta}^f$ l'énergie de formation de la boucle de classe $(n-1)\theta$.

L'obtention du coefficient d'émission des défauts ponctuels par les boucles de dislocation nécessite la détermination au préalable des énergies de formation de ces boucles. Ces énergies contrôlent la stabilité relative des boucles de dislocation et jouent donc sur leur cinétique d'évolution sous irradiation. Le calcul de ces énergies dans le modèle de dynamique d'amas devrait permettre de différencier les deux populations de boucle de dislocation : les boucles à composante $\langle c \rangle$ et les boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

Dans la littérature, les calculs en potentiels empiriques [12]–[15] donnent généralement les énergies de formation et de liaison de petits amas formés de quelques centaines de monomères au maximum.

Dans le cadre de l'étude des effets d'irradiation sur les aciers ferritiques, Soneda *et al.* [12] ont calculé l'énergie de formation et de liaison pour des tailles d'amas allant jusqu'à 140 monomères. Un ajustement par une loi analytique d'approximation capillaire a été ensuite réalisé pour obtenir les énergies des amas de plus grande taille. L'expression généralisée de l'énergie de liaison des défauts ponctuels à une boucle de dislocation de classe $n\theta$ fait intervenir l'énergie de formation du défaut ponctuel, E_θ^f , et l'énergie de liaison de la bi-lacune ou du di-interstitiel, $E_{2\theta}^B$, comme suit :

$$E_{n\theta}^{B\theta} = E_\theta^f + \frac{E_{2\theta}^B - E_\theta^f}{2^{2/3} - 1} [n^{2/3} - (n-1)^{2/3}] \quad \text{Eq. V.1.30}$$

Cette approximation a été adoptée par Hardouin Duparc *et al.* [5] pour décrire l'évolution de l'énergie de liaison des boucles de dislocation avec leur taille dans les aciers ferritiques et également par Christien et Barbu [7] pour leur modèle de dynamique d'amas appliqué au zirconium. En guise de première étape, la loi capillaire a été introduite dans une version antérieure de *CRESCENDO* et utilisée dans le cadre de ce travail de thèse. Nous avons, néanmoins, identifié un certain nombre de limites de cette approche, ce qui nous a permis de dégager des voies d'amélioration de la description énergétique des boucles de dislocation dans le modèle de dynamique d'amas. Pour commencer, nous expliciterons les principales limites de la loi capillaire. Nous présenterons, par la suite, le modèle choisi pour le calcul des énergies de liaison des boucles de dislocation et implémenté dans la nouvelle version du code de dynamique d'amas.

L'approche de Soneda *et al.* [12], communément adoptée dans les modèles de dynamique d'amas [5], [7], [16], comporte certaines limites. Nous citons par exemple :

- L'exposant $\frac{2}{3}$, déterminé par l'extrapolation des énergies des petits amas à celles des grandes boucles de dislocation, n'a en réalité de sens physique que pour des amas sphériques dont l'énergie de formation est équivalente à une énergie d'interface proportionnelle au carré de leur rayon r_n et donc à $n^{2/3}$ ($\frac{4}{3}\pi r_n^3 = nV_{atm}$) ;
- L'approche de Soneda *et al.* [12] prédit une énergie de formation différente selon le caractère interstitiel ou lacunaire de la boucle de dislocation. Ce résultat n'a pas de sens physique et vient contredire la théorie élastique qui définit une même énergie de formation pour les boucles interstitielles et lacunaires de grande taille ;
- La loi capillaire n'intègre pas dans son expression (Eq. V.1.30) les paramètres physiques spécifiques à chacune des populations de boucles de dislocation, comme le vecteur de Burgers ou l'énergie de faute d'empilement. Il apparaît donc difficile d'appliquer cette approche pour notre cas d'étude où nous distinguons deux populations de boucles de dislocation : les boucles prismatiques parfaites $\langle a \rangle$ et les boucles basales à composante $\langle c \rangle$ fautées intrinsèquement.

Récemment, Varvenne *et al.* [17] ont mis en place une méthode couplant calcul atomistique, en *ab-initio* et en potentiels empiriques, et théorie élastique pour l'étude de la stabilité des amas lacunaires dans le zirconium pur. Grâce à cette approche, les auteurs ont pu ajuster les paramètres (le facteur de forme f , le rayon de cœur r_c de la dislocation et le coefficient élastique \bar{K}) d'une loi continue qui définit l'énergie de formation d'une boucle de dislocation de classe $n\theta$ et de rayon r_n :

$$E_{n\theta}^f(r_n) = \pi\gamma r_n^2 + 2\pi f \bar{K} r_n \ln\left(\frac{r_n}{r_c}\right) \quad \text{Eq. V.1.31}$$

Avec cette méthode de calcul basée sur une loi élastique paramétrée avec des données issues des simulations atomistiques, il est possible de définir l'énergie de formation des boucles de dislocation de

grande taille. Les calculs effectués jusqu'à une taille de 4000 lacunes [17] montrent que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ situées dans les plans prismatiques de la maille hexagonale compacte du zirconium sont les plus stables énergétiquement. Pour les boucles lacunaires basales, il a été reporté que les germes de boucles fautés extrinsèquement (faute E) sont plus stables que ceux fautés intrinsèquement (faute I_1) jusqu'à une taille critique de 1,4 nm. Au-delà de cette taille, les boucles les plus stables sont fautées avec une faute d'empilement de type I_1 .

Dans notre modèle de dynamique d'amas, nous prenons le choix d'introduire l'énergie élastique de formation des boucles de dislocation déterminée par l'approche de Varvenne *et al.* [17] (Eq. V.1.31) en considérant les valeurs calculées en *ab-initio* pour le coefficient élastique \bar{K} et pour l'énergie de faute d'empilement γ des boucles à composante $\langle c \rangle$ (Tableau V.1.1). Ces valeurs présentent une meilleure précision par rapport à celles obtenues par les calculs en potentiels empiriques. Par souci de simplification, nous ne tenons pas compte de l'évolution des germes fautés E en boucles fautées I_1 , les boucles à composante $\langle c \rangle$ étant introduites directement comme étant des boucles fautées I_1 . Ce choix est justifié au regard des observations microscopiques de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. En effet, les défauts ne deviennent visibles au MET qu'à partir d'une taille d'environ 1 nm. De plus, nous avons établi un critère qui nous permet d'affirmer qu'un contraste aligné dans le plan basal correspond à une boucle à composante $\langle c \rangle$ (§ II.3.3). Selon ce critère, la taille minimale des boucles est de 9 nm. Cette valeur est supérieure à la taille critique de 1,4 nm pour la formation des germes fautés I_1 [17].

Afin d'avoir la dépendance de l'énergie de formation de la boucle de dislocation au nombre de monomères n la constituant, il suffit de considérer l'équation Eq. V.1.14 donnant le rayon r_n et de prendre b_e égal au paramètre de maille a pour les boucles de dislocation de type $\langle a \rangle$ et à $c/2$ pour les boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ V.1.2.1.1). Le calcul de l'énergie de liaison à partir de l'énergie de formation des boucles est déduit de l'équation Eq. V.1.29.

La nouvelle version du code de dynamique d'amas s'appuie sur un modèle « hybride » de calcul de l'énergie de liaison des deux populations de boucles de dislocation. Ce modèle s'appuie sur une loi élastique paramétrée par des données issues des simulations atomistiques en *ab-initio* et en potentiels empiriques avec un raccordement des énergies de liaison, calculées en *ab-initio*, aux petites tailles de boucles de dislocation. Dans une première étape, nous avons introduit dans le modèle de dynamique d'amas les énergies de liaison des petits amas lacunaires prismatiques et basaux de taille n de 2 à 7 lacunes. Les énergies de liaison des amas de taille supérieure ou égale à 8 lacunes sont obtenues par la loi élastique. Avec cette paramétrisation (notée T0 dans la Figure V.1.4), l'évolution de l'énergie de liaison des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec leur taille révèle un palier au niveau des énergies des amas de petite taille ($n = 3$, $n = 4$ et $n = 5$) (Figure V.1.4 (○) et Tableau V.1.1). Les premières simulations ont montré que ce palier n'est pas bien géré par le modèle de dynamique d'amas. En effet, les amas lacunaires de type $\langle a \rangle$ sont instables et se dissocient dès leur formation. Pour remédier à ce problème, nous avons choisi de ne considérer, parmi les valeurs calculées en *ab-initio* pour les amas de petite taille (de 2 à 7 lacunes dans [17]), que l'énergie de liaison de la bi-lacune $E_{2v,a}^{Bv}$ et de la tri-lacune $E_{3v,a}^{Bv}$ prismatiques (énergie référencée par T1 dans la Figure V.1.4). Ces valeurs des énergies de liaison, $E_{2v,a}^{Bv}$ et $E_{3v,a}^{Bv}$ assurent un bon raccord avec les énergies calculées par la loi élastique, à partir de $n \geq 4$ (●). Cette analyse atteste de l'importance de l'énergie des petits amas dans l'étude de la stabilité des boucles de dislocation et de l'évolution de leur microstructure sous irradiation.

Tout comme pour les amas lacunaires prismatiques $\langle a \rangle$, nous ne considérons parmi les valeurs calculées en *ab-initio* [17] que l'énergie de liaison de la bi-lacune $E_{2v,c}^{Bv}$ et de la tri-lacune $E_{3v,c}^{Bv}$ basales pour les amas lacunaires de type $\langle c \rangle$ (●). A une taille $n \geq 4$, l'énergie de liaison est définie par la loi élastique (Eq. V.1.31) paramétrée par les données atomistiques [17]. De la Figure V.1.4, il ressort que les valeurs des énergies de liaison des amas de type $\langle c \rangle$ de taille n comprise entre 4 et 7 lacunes calculées en *ab-initio* sont proches de celles déduites par l'approche élastique couplée aux

simulations atomistiques. Bien que le raccord avec les grandes tailles soit satisfaisant, nous notons une énergie de liaison de la tri-lacune $E_{3v,c}^{Bv}$ calculée en *ab-initio* [17], élevée par rapport à celle des amas de 4 et 5 lacunes (Figure V.1.4 et Tableau V.1.1).

En ce qui concerne les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles, la théorie élastique prédit la même énergie élastique que celle des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ lacunaires. Ne disposant pas de valeurs, calculées par approche atomistique, des énergies de liaison des amas interstitiels de petite taille, nous considérons dans le modèle de dynamique d'amas que les amas interstitiels de taille n supérieure ou égale à 3 vérifient la même loi élastique, déterminée précédemment pour les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ lacunaires. L'énergie de liaison du di-interstitiel E_{2i}^{Bi} est choisie de manière à ce que la valeur rejoigne correctement la courbe d'évolution de l'énergie de liaison des boucles de taille supérieure.

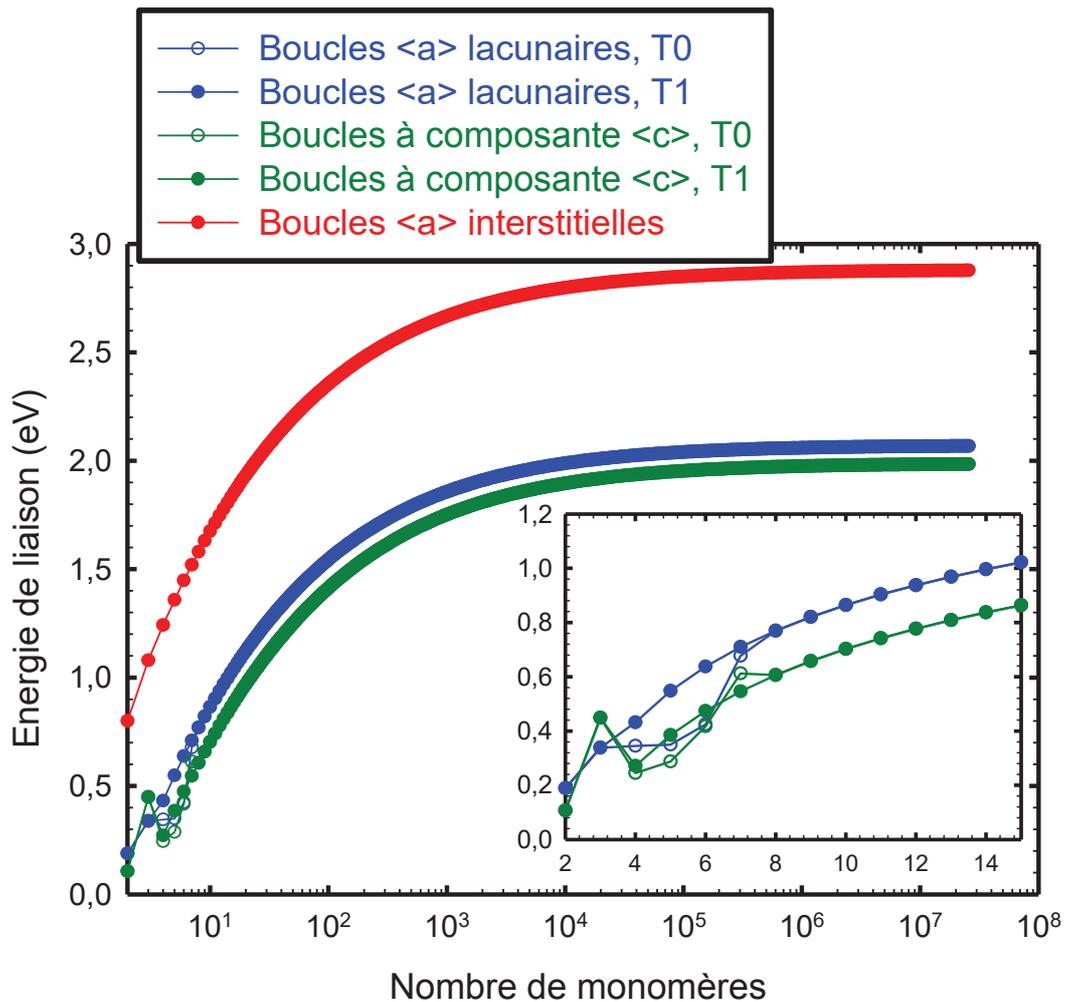


Figure V.1.4: Evolution de l'énergie de liaison des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires et des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec le nombre de monomères les constituant :
T0 : Energies de liaison des amas de taille 2 à 7 calculées en *ab-initio* [17] et calcul avec la loi élastique pour les amas de taille $n \geq 8$;
T1 : Energies de liaison des amas de taille 2 et 3 calculées en *ab-initio* [17] et calcul avec la loi élastique pour les amas de taille $n \geq 4$.

Un point important à souligner est que l'énergie de liaison des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est plus élevée que celle des boucles à composante $\langle c \rangle$, ce qui signifie que les boucles $\langle a \rangle$ sont énergétiquement plus stables que les boucles à composante $\langle c \rangle$. Ce résultat est en accord avec les observations expérimentales qui montrent une formation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dès le début de l'irradiation (§ I.2.3), les boucles à composante $\langle c \rangle$ n'apparaissant qu'à une dose élevée (§ I.2.4).

Par ailleurs, nous pouvons vérifier sur la Figure V.1.4 que l'énergie de liaison des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires de grande taille tend vers l'énergie de formation de la lacune. De la même façon, la valeur asymptotique de l'énergie de liaison des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles correspond à l'énergie de formation de l'auto-interstitiel. En effet, pour une boucle de dislocation de grande taille, l'énergie de liaison, définie par l'équation Eq. V.1.29, peut être approximée comme suit :

$$E_{n\theta}^{B\theta} \cong E_{\theta}^f - \frac{dE_{n\theta}^f}{dr_n} \frac{dr_n}{dn} \quad \text{Eq. V.1.32}$$

Pour une boucle de dislocation $\langle a \rangle$ parfaite de rayon r_n qui tend vers $+\infty$, le terme $\frac{dE_{n\theta}^f}{dr_n} \frac{dr_n}{dn}$ tend vers 0. Pour la boucle à composante $\langle c \rangle$ fautive I_1 et de rayon r_n qui tend vers $+\infty$, le terme prépondérant dans l'expression de l'énergie de formation (Eq. V.1.29) est le terme d'énergie de faute d'empilement $\pi\gamma r_n^2$. Ainsi, d'après l'équation Eq. V.1.32, l'énergie de liaison d'une boucle à composante $\langle c \rangle$ de grande taille tend vers la valeur asymptotique :

$$E_{nv,c}^{Bv}(r_n \rightarrow +\infty) = E_v^f - \gamma \frac{V_{atm}}{c/2} \quad \text{Eq. V.1.33}$$

Les valeurs de l'énergie de formation de la lacune et de l'auto-interstitiel, considérées dans la nouvelle description énergétique du modèle de dynamique d'amas, sont celles issues des calculs *ab-initio* [17], [18] (Tableau V.1.2). L'ensemble des paramètres définissant le modèle énergétique des boucles de dislocation est regroupé dans le Tableau V.1.1 et le Tableau V.1.2. **Mise à part l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ et l'énergie de migration des SIAs et des lacunes considérées comme paramètres ajustables par la suite, tous les autres paramètres énergétiques sont fixés une fois pour toutes dans le modèle de dynamique d'amas.** Comme il a été précisé précédemment, dans la nouvelle version du code de dynamique d'amas, les énergies de liaison de la bi-lacune et de la tri-lacune prismatiques et basales sont fixées aux valeurs issues des calculs *ab-initio*. Par souci d'exhaustivité, le Tableau V.1.1 regroupe également les valeurs des énergies de liaison pour les amas prismatiques et basaux formés de 4 jusqu'à 7 lacunes. A noter que cette paramétrisation, issue des simulations atomistiques, a été établie à 0 K.

Tableau V.1.1: Valeurs des paramètres du modèle de description énergétique des boucles de dislocation dans le zirconium (a est le paramètre de maille, les valeurs de E_{nv}^{Bv} correspondent à celles déterminées par les calculs *ab-initio* dans [17] et la valeur E_{2i}^{Bi} est ajustée pour avoir un bon raccord avec les énergies des boucles de grande taille).

Population de boucles	f	r_c	\bar{K} (eV/Å)	γ (mJ/m ²)	E_{2i}^{Bi} (eV)	E_{nv}^{Bv} (eV)					
						E_{2v}^{Bv}	E_{3v}^{Bv}	E_{4v}^{Bv}	E_{5v}^{Bv}	E_{6v}^{Bv}	E_{7v}^{Bv}
Boucles de dislocation $\langle a \rangle$	1,1	0,23 a	0,25	0	0,8	0,188	0,338	0,345	0,349	0,424	0,677
Boucles à composante $\langle c \rangle$	1,13	0,32 a	0,25	147	-	0,106	0,448	0,245	0,287	0,417	0,612

Tableau V.1.2: Propriétés des défauts ponctuels telles que définies dans le modèle de dynamique d'amas.

Défaut ponctuel	E_{θ}^f (eV)	E_{θ}^m (eV)		Références
		$\perp < c >$ $E_{\theta a}^m$	$\parallel < c >$ $E_{\theta c}^m$	
Auto-interstitiel	2,88	0,25	0,29	[18]
Lacune	2,07	0,65		[17]

V.1.2.2 Annihilation des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure autres que les boucles de dislocation

V.1.2.2.1 Capture des défauts ponctuels par les dislocations droites

Le taux d'absorption $K_d^{\theta} C_{1\theta}$ d'un défaut ponctuel θ par une densité ρ de dislocations rectilignes est donné par l'expression suivante [5], [7] :

$$K_d^{\theta} C_{1\theta} = \rho Z_d^{\theta} D_{\theta} C_{1\theta} \quad \text{Eq. V.1.34}$$

Nous rappelons que pour les auto-interstitiels, il convient de prendre le coefficient de diffusion moyen \bar{D}_i (Eq. V.1.16) [9]. Le terme d'efficacité d'absorption Z_d^{θ} permet de rendre compte de la différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les dislocations droites (§ 1.3.1.2.1) via le terme $Z_{d,EID}^{\theta}$ et de la différence d'anisotropie de diffusion (DAD) entre les SIAs et les lacunes (§ 1.3.1.2.2) par le coefficient $Z_{d,DAD}^{\theta}$:

$$Z_d^{\theta} = Z_{d,EID}^{\theta} \times Z_{d,DAD}^{\theta} \quad \text{Eq. V.1.35}$$

$Z_{d,EID}^{\theta}$ traduit l'interaction élastique préférentielle d'une dislocation droite avec un auto-interstitiel donnant lieu à $Z_d^i > Z_d^v$. Z_d^v est généralement pris égal à 1 et Z_d^i à 1,1 ou à 1,2 [7].

Pour une densité ρ de dislocations droites toutes parallèles entre elles et faisant un angle δ avec l'axe cristallographique $< c >$ du cristal, le coefficient $Z_{d,DAD}^i$ d'anisotropie de diffusion vaut la fonction $P(\delta)$ (Eq. V.1.20). Comme la diffusion des lacunes est considérée isotrope dans notre modèle, le coefficient $Z_{d,DAD}^v$ est égal à 1. Par conséquent, les efficacités de capture des SIAs et des lacunes par les dislocations droites s'écrivent comme suit :

$$Z_d^i = Z_{d,EID}^i \times P(\delta) \quad \text{Eq. V.1.36}$$

$$Z_d^v = 1 \quad \text{Eq. V.1.37}$$

V.1.2.2.2 Piégeage des défauts ponctuels par les surfaces libres

Le taux d'absorption $K_s^{\theta} C_{1\theta}$ d'un défaut ponctuel θ par deux surfaces parallèles entres elles, séparées par une distance de $2d$ et de normale orientée d'un angle λ par rapport à l'axe cristallographique $< c >$ du cristal s'exprime sous la forme suivante [19] :

$$K_s^{\theta} C_{1\theta} = \frac{\sqrt{S_m^{\theta}}}{d'} \frac{D_{\theta} C_{1\theta}}{\coth(\sqrt{S_m^{\theta}} d') - \frac{1}{\sqrt{S_m^{\theta}} d'}} \quad \text{Eq. V.1.38}$$

La prise en compte de l'anisotropie de diffusion des SIAs se fait à travers le coefficient de diffusion moyen \bar{D}_i (Eq. V.1.16) et du terme d' qui s'écrit en fonction de l'angle λ :

$$d'(\lambda) = d \frac{p}{\sqrt{\sin^2(\lambda) + p^6 \cos^2(\lambda)}} \quad \text{Eq. V.1.39}$$

Pour les lacunes migrant de manière isotrope dans la maille hexagonale compacte du zirconium, le coefficient p vaut 1 et le terme $d'(\lambda)$ est égal à la demi-distance d entre les surfaces. Le terme S_m^θ représente la force de puits du milieu microstructural constitué de dislocations droites et de boucles de dislocation sans les surfaces libres. Ainsi, S_m^θ s'écrit :

$$S_m^\theta = \rho Z_d^\theta + \frac{1}{D_\theta} \sum_{n=2}^{\infty} \beta_{ni}^\theta C_{ni} + \beta_{nv}^\theta C_{nv} \quad \text{Eq. V.1.40}$$

Prenons le cas où l'annihilation des défauts sur les surfaces libres est prépondérante par rapport à leur piégeage en volume par les dislocations droites et les boucles de dislocation, $\sqrt{S_m^\theta} d' \ll 1$ et l'équation Eq. V.1.38 peut être simplifiée comme suit :

$$K_s^\theta C_{1\theta} = \frac{3}{d'^2} D_\theta C_{1\theta} \quad \text{Eq. V.1.41}$$

Dans le cas inverse où le piégeage en volume est prépondérant par rapport à celui sur les surfaces libres, $\sqrt{S_m^\theta} d' \gg 1$ et :

$$K_s^\theta C_{1\theta} = \frac{\sqrt{S_m^\theta}}{d'} D_\theta C_{1\theta} \quad \text{Eq. V.1.42}$$

V.1.2.2.3 Piégeage des défauts ponctuels par les joints de grains

Un grain cubique de côté $2d$ peut être délimité en trois couples de surfaces parallèles entre elles et séparées d'une distance $2d$ (Figure V.1.5).

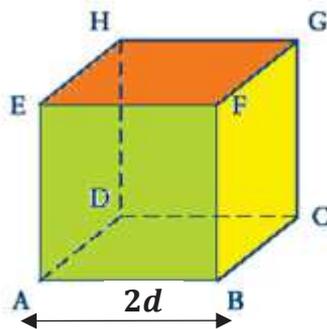


Figure V.1.5: Grain cubique de côté $2d$.

Lorsque le piégeage des défauts ponctuels par les lignes et les boucles de dislocation est plus important que leur élimination sur les surfaces, l'équation Eq. V.1.42 nous permet d'écrire le taux d'absorption des défauts par chaque couple de surfaces (Figure V.1.5). Le taux d'absorption des défauts ponctuels par les trois familles de joints de grains peut être obtenu par l'addition des contributions de chacun des trois couples de surfaces. Ainsi, le taux d'absorption $K_{JDC}^\theta C_{1\theta}$ d'un défaut ponctuel θ par les joints de grains s'écrit sous la forme :

$$K_{JDG}^{\theta} C_{1\theta} = \sqrt{S_m^{\theta}} \left(\frac{2}{d'_a} + \frac{1}{d'_c} \right) D_{\theta} C_{1\theta} = \frac{\sqrt{S_m^{\theta}}}{d} \left(\frac{2+p^3}{p} \right) D_{\theta} C_{1\theta} \quad \text{Eq. V.1.43}$$

avec d'_a et d'_c , les valeurs de la fonction $d'(\lambda)$ évaluée à 90° et 0° , respectivement (Eq. V.1.39).

Nous rappelons que pour les lacunes qui migrent de manière isotrope dans la maille hexagonale compacte, d' est égale à la distance d .

Dans le cas où le piégeage par les surfaces est plus important que l'élimination sur les autres puits, il suffit de considérer l'équation Eq. V.1.41. Le taux d'absorption du défaut ponctuel θ par les trois familles de joints de grains s'exprime alors comme suit :

$$K_{JDG}^{\theta} C_{1\theta} = 3 \left(\frac{2}{d'_a{}^2} + \frac{1}{d'_c{}^2} \right) D_{\theta} C_{1\theta} \quad \text{Eq. V.1.44}$$

V.1.2.3 Terme de production des défauts

Le taux de production par unité de volume $G_{n\theta}$ des amas de classe $n\theta$ s'écrit comme suit :

$$G_{n\theta} = \frac{f_n}{n V_{atm}} G_{PKA} \quad \text{Eq. V.1.45}$$

Avec G_{PKA} le taux de production total des auto-interstitiels et des lacunes et f_n la proportion des auto-interstitiels ou de lacunes créés sous la forme d'amas de taille n dans les cascades de déplacements. Les proportions f_n vérifient la condition suivante $\sum_n f_n = 1$ pour chaque type d'amas, interstitiel et lacunaire.

L'endommagement du matériau sous irradiation est quantifié par le taux de création de défauts dans la matrice. Norgett, Robinson et Torrens [20] ont proposé d'évaluer ce taux par le nombre de déplacements par atome par unité de temps (dpaNRT/s). Cette unité est communément utilisée pour déterminer le dommage effectif créé dans le matériau. Toutefois, le calcul en dpaNRT/s ne prend pas en compte la recombinaison des auto-interstitiels et des lacunes lors de la relaxation de la cascade. Pour cela, nous définissons le coefficient η' qui représente la proportion des défauts ponctuels « survivants » à l'effondrement des cascades de déplacements et à la recombinaison :

$$G \text{ (dpa/s)} = \eta' G \text{ (dpaNRT/s)} \quad \text{Eq. V.1.46}$$

Le facteur η' qui traduit l'efficacité de production des paires de Frenkel dépend de l'énergie de la cascade et de la température d'irradiation. Les simulations en Dynamique Moléculaire [21]–[23] permettent d'estimer ce facteur.

Compte tenu de l'approximation du milieu moyen équivalent (§ V.1.1), les corrélations spatiales entre les défauts ne sont pas prises en compte dans le modèle de dynamique d'amas. Or, la probabilité de recombinaison dépend de la distance entre les SIAs et les lacunes. Tous les défauts interstitiels et lacunaires créés ne participent pas en tant que tels aux mécanismes d'évolution de la microstructure sous irradiation. Seuls ceux qui survivent aux phénomènes de recombinaison corrélée, entre les défauts ponctuels proches, et de recombinaison non corrélée entre les défauts n'appartenant pas à la même paire de Frenkel, peuvent s'agglomérer et former des amas interstitiels ou lacunaires. Il est donc nécessaire d'introduire un coefficient correctif ϖ qui multiplie le facteur η' dans l'expression du taux de création de défauts définie dans le modèle de dynamique d'amas (Eq. V.1.47) :

$$G (dpa/s) = \eta' \varpi G (dpaNRT/s) = \eta G (dpaNRT/s) \quad \text{Eq. V.1.47}$$

Moyennant une étape d'homogénéisation par *OKMC* (*Object Kinetic Monte Carlo*), il est possible d'estimer un terme source effectif pour le modèle de dynamique d'amas qui prend en compte les corrélations spatiales entre les défauts [24]. Ainsi, il a été montré que le coefficient correctif ϖ qui intègre l'effet de la recombinaison « localisée » entre les auto-interstitiels et les lacunes situés à proximité les uns des autres est d'environ 0,3.

Les irradiations aux électrons ne générant que des paires de Frenkel et n'induisant pas de cascades de déplacements dans le matériau (§ I.2.1.2.1), le facteur η' (Eq. V.1.46) est égal à 1. Au final, pour les irradiations aux électrons, le taux de création de défauts $G (dpa/s)$ défini dans le modèle de dynamique d'amas est égal à $0,3 \times G (dpaNRT/s)$ (Eq. V.1.47).

Dans la suite du document, nous incluons le terme de correction du modèle de dynamique d'amas dans le facteur η (Eq. V.1.47). Ainsi, pour les irradiations aux électrons, le coefficient η du modèle de dynamique d'amas n'est pas égal à 1 mais à 0,3.

V.1.2.4 Terme de recombinaison des défauts ponctuels

Le taux de recombinaison R_{iv} des auto-interstitiels et des lacunes est donné par [5], [7] :

$$R_{iv} = 4\pi r_{iv} (\bar{D}_i + D_v) \quad \text{Eq. V.1.48}$$

avec r_{iv} le rayon de recombinaison, généralement pris égal à quelques distances interatomiques. Dans nos simulations, r_{iv} est fixé à 1 nm.

V.2 Identification des paramètres et validation du modèle sur les irradiations aux électrons

V.2.1 Démarche adoptée

Comme il a été présenté dans la partie V.1.2.1.2, le modèle de dynamique d'amas est alimenté par une nouvelle description énergétique couplant théorie élastique et calculs atomistiques. Les paramètres énergétiques, recensés dans le Tableau V.1.1 et le Tableau V.1.2, sont issus des simulations atomistiques [17], [18] conduites pour le zirconium pur. Comme nous disposons de ces données atomistiques pour les paramètres énergétiques d'entrée du modèle de dynamique d'amas, nous commençons tout d'abord par l'étude de la microstructure du zirconium pur. Le premier système de modélisation envisagé correspond au cas des irradiations aux électrons qui apparaît comme le système le plus simple de simulation de l'influence des déplacements d'atomes sur la microstructure du matériau irradié, sans avoir les effets des cascades. En considérant la nouvelle approche énergétique, tous les paramètres d'entrée du modèle, appliqué au premier cas d'étude du zirconium pur irradié aux électrons, sont bien connus à l'exception des coefficients pré-exponentiels de diffusion des défauts ponctuels (Eq. V.1.15). Ces coefficients sont considérés comme des paramètres ajustables lors de la procédure de calibration des résultats de simulation de l'évolution de la microstructure du zirconium pur irradié aux électrons sur les données expérimentales de Hellio *et al.* [25], [26]. Les valeurs des coefficients pré-exponentiels de diffusion des SIAs et des lacunes, obtenues en Dynamique Moléculaire par Osetsky *et al.* [27] et utilisées dans le modèle de Christien et Barbu [7], nous servent de point de départ. La sensibilité du modèle à ses coefficients et le travail de calibration sur les résultats expérimentaux seront présentés dans la partie V.2.2.1. Il est

V.2. IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET VALIDATION DU MODELE SUR LES IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

important de bien noter qu'aussi bien les simulations que les résultats expérimentaux de Hellio *et al.* [25], [26] ne caractérisent que la microstructure des boucles à composante $\langle a \rangle$, les irradiations étant simulées et conduites à des faibles doses inférieures à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$.

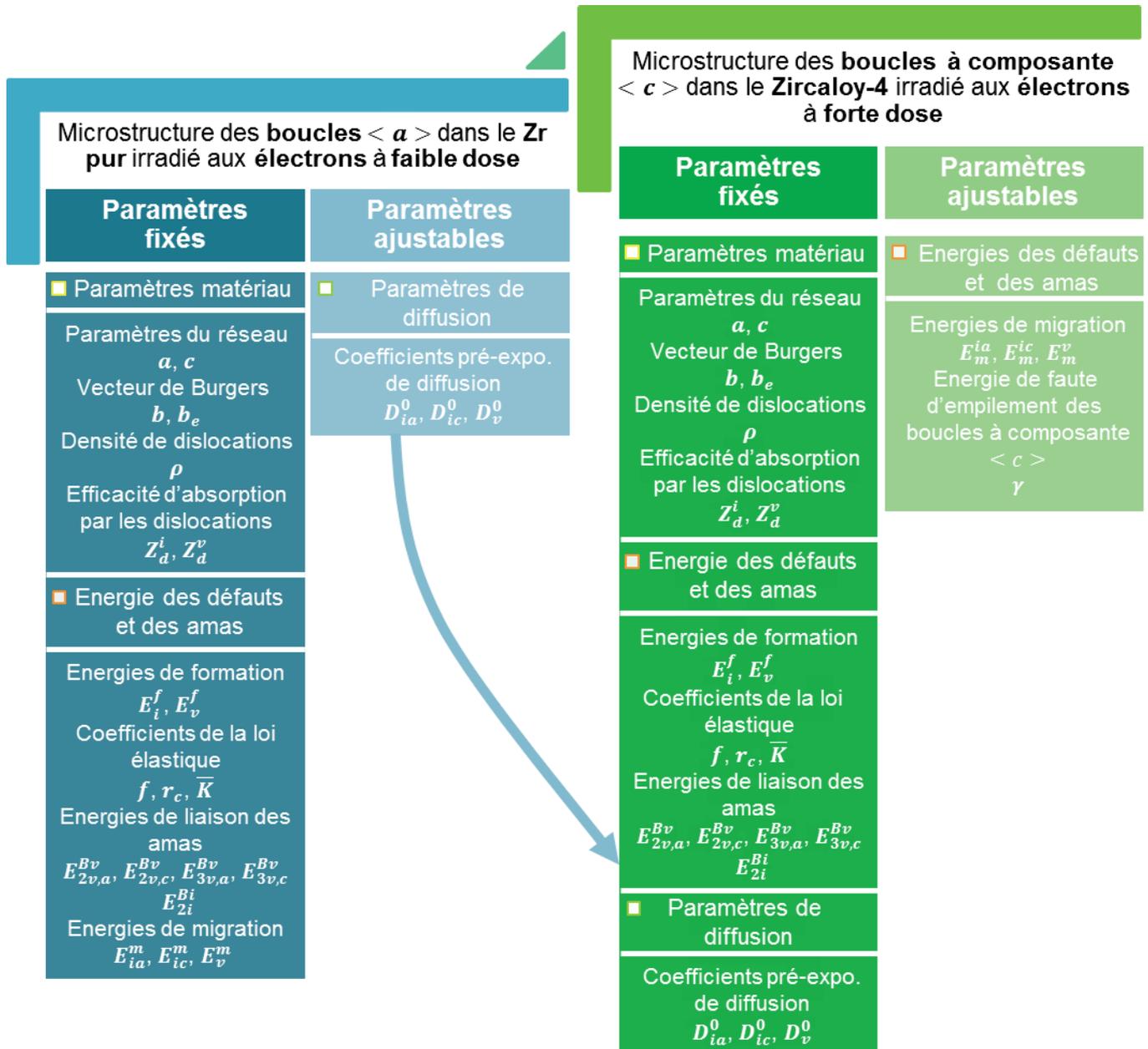


Figure V.2.1: Schématisation de la démarche adoptée pour la validation du modèle de dynamique d'amas sur la base des expériences d'irradiation aux électrons.

Pour pouvoir se rapprocher de la situation expérimentale traitée dans le chapitre 4, le modèle doit être progressivement étendu à des systèmes de simulation de plus en plus complexes. En commençant par le système relativement simple du zirconium pur irradié aux électrons à faible dose, le passage à des systèmes de simulation de complexité croissante porterait premièrement sur le zirconium pur irradié jusqu'à des doses supérieures à la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$, deuxièmement sur l'alliage, par exemple le Zircaloy-4, irradié aux électrons à faible dose puis à dose élevée et finalement sur le Zircaloy-4 irradié aux ions. A chacune de ces étapes, les paramètres connus verraient leur valeur imposée et ceux qui ne sont pas bien connus seraient identifiés par la confrontation des prédictions du modèle aux données expérimentales. Or, à notre connaissance, la littérature ne recense pas de données expérimentales quantitatives acquises sur l'évolution

microstructurale du zirconium pur irradié aux électrons à forte dose et du Zircaloy-4 irradié aux électrons à faible dose. Pour cette raison, nous nous trouvons dans l'obligation de passer directement au cas de la modélisation de la microstructure de l'alliage Zircaloy-4 irradié aux électrons à des doses supérieures à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ V.2.2.2). Une manière simple de prendre en compte ce changement de matériau (du zirconium pur au Zircaloy-4) sans modifier le modèle consiste à considérer de manière « approchée » l'effet de certains solutés sur la diffusion des défauts ponctuels, plus spécifiquement sur leur énergie de migration ainsi que leur influence sur l'énergie de faute d'empilement basale des boucles à composante $\langle c \rangle$. Par conséquent, les paramètres identifiés dans le système de simulation du Zircaloy-4 irradié aux électrons jusqu'à des doses élevées sont les énergies de migration des SIAs et des lacunes et l'énergie de faute d'empilement γ (§ V.2.2.2). Initialement, ces paramètres sont fixés aux valeurs déterminées par les simulations en *ab-initio* du zirconium pur (Tableau V.1.1 et Tableau V.1.2).

La démarche séquentielle adoptée pour l'identification de certains paramètres et la validation du modèle sur la base des expériences d'irradiation aux électrons est décrite par le schéma donné en Figure V.2.1. La dernière étape de validation du modèle concernant les irradiations aux ions de l'alliage Zircaloy-4 sera détaillée dans la partie V.3.1.

V.2.2 Identification et validation du modèle sur la base des expériences d'irradiation aux électrons

V.2.2.1 Modélisation de l'évolution de la microstructure du zirconium pur irradié aux électrons à des doses inférieures à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$

Afin d'établir une étude comparative avec les expériences d'irradiation aux électrons de Hellio *et al.* [25], [26], certains paramètres du système de simulation sont imposés de façon à se placer dans les mêmes conditions expérimentales. Ainsi, dans le cadre de ces simulations, nous considérons une lame mince de zirconium pur (purifié par la méthode de Van Arkel dans [25], [26]) de 500 nm d'épaisseur. L'angle λ , défini entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ des cristaux et la normale au plan de la lame mince, est fixé à 30°. La lame mince est irradiée aux électrons de 1 MeV avec un flux de $4,6 \times 10^{22}$ électrons/m²/s. En considérant une section efficace de capture de 30 barn pour les électrons d'énergie de 1 MeV, le taux de création de défauts calculé est de $1,38 \times 10^{-4}$ dpaNRT/s (Eq. I.2.4 avec $n_d = 1$, les irradiations aux électrons ne formant que des paires de Frenkel et n'induisant pas de cascades de déplacements). Comme il a été expliqué dans la partie V.1.2.3, pour les irradiations aux électrons, le facteur η est fixé à 0,3. Le taux de création de défauts G (dpa/s) vaut donc $4,14 \times 10^{-5}$ dpa/s.

Pour évaluer l'endommagement du matériau lors des expériences d'irradiation, la communauté scientifique utilise habituellement le logiciel *SRIM* (§ II.2) ou bien le calcul détaillé dans la partie I.2.1.1, tous deux établis par le modèle NRT de Norgett, Robinson et Torrens [20]. Afin d'assurer la cohérence de la comparaison expérience-simulation, il apparaît nécessaire de représenter les évolutions microstructurales simulées par le modèle de dynamique d'amas en fonction d'une échelle en dpaNRT pour le dommage d'irradiation.

Les temps d'irradiation simulés sont de 1000 et 1400 s, conduisant à un dommage d'irradiation de 0,14 et 0,19 dpaNRT, respectivement. Ces faibles doses d'irradiation correspondent au régime de croissance modérée, caractérisé par la formation uniquement de la population des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

Les irradiations des lames minces aux électrons de 1 MeV, menées dans le cadre des travaux de Hellio *et al.* [25], [26], ont été réalisées à différentes températures d'irradiation allant de 400 à 600°C. Nous choisissons la température de 450°C pour le travail d'identification des paramètres du modèle car il s'agit de la température d'irradiation la plus faible pour laquelle nous disposons de données

V.2. IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET VALIDATION DU MODELE SUR LES IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

expérimentales aussi bien sur la densité volumique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ que sur leur taille, ce qui n'est pas le cas à 400°C.

Nous considérons pour les simulations un matériau recristallisé avec une densité initiale de dislocations ρ de 10^8 cm^{-2} . Les paramètres fixés du modèle sont classés en trois catégories (système de simulation, paramètres matériau et paramètres énergétiques) et regroupés dans le Tableau V.2.1.

Tableau V.2.1: Paramètres fixés au cours des simulations du zirconium pur irradié aux électrons à faible dose – (a) paramètres définissant le système de simulation, (b) paramètres caractérisant le matériau et (c) paramètres énergétiques.

Système de simulation		Paramètres matériau	
Système	Lame mince	Paramètres du réseau (nm)	$a = 0,323$ $c = 0,515$
Epaisseur (nm)	500	Densité des dislocations ρ (cm^{-2})	10^8
Orientation cristalline λ (°)	30	Vecteur de Burgers des boucles $\langle a \rangle$ (nm)	$b = a = 0,323$
Particules incidentes	Electrons de 1 MeV	Efficacité d'absorption des lacunes par les dislocations droites Z_d^v	1
Taux de création de défauts (dpaNRT/s)	$1,38 \times 10^{-4}$	Efficacité d'absorption des SIAs par les dislocations droites Z_d^i	1,1
Facteur η	0,3		
Temps d'irradiation (s)	1000 et 1400		
Température d'irradiation (°C)	450		

(a)

(b)

Paramètres énergétiques	
Energie de formation des défauts ponctuels (eV)	$E_i^f = 2,88$ $E_v^f = 2,07$
Energie de migration des défauts ponctuels (eV)	$E_{ia}^m = 0,25$ et $E_{ic}^m = 0,29$ $E_v^m = 0,65$
Energie de liaison des petits amas (eV)	$E_{2i}^{Bi} = 0,8$ $E_{2v,a}^{Bv} = 0,188$ et $E_{3v,a}^{Bv} = 0,388$
Facteur de forme f	1,1
Rayon de cœur r_c	$0,23 a$
Coefficient élastique \bar{K} (eV/Å)	0,25

(c)

Dans leur modèle de dynamique d'amas, Christien et Barbu [7] ont attribué les valeurs issues des calculs en Dynamique Moléculaire de Osetsky *et al.* [27] aux paramètres de diffusion des défauts ponctuels (énergie de migration des SIAs suivant la direction $\langle a \rangle$ E_{ia}^m , énergie de migration des SIAs suivant la direction $\langle c \rangle$ E_{ic}^m , énergie de migration des lacunes E_v^m , coefficient pré-exponentiel de diffusion des SIAs dans le plan basal D_{ia}^0 , coefficient pré-exponentiel de diffusion des SIAs hors du plan basal D_{ic}^0 et coefficient pré-exponentiel de diffusion des lacunes D_v^0). Dans notre modèle, nous introduisons des énergies de migration obtenues par des simulations en *ab-initio* (Tableau V.2.1 (c)). Les coefficients pré-exponentiels de diffusion, associés à cette nouvelle énergétique, ne sont pas connus. Pour cette raison, nous partons des valeurs de Osetsky *et al.* [27] où $D_{ia}^0 = 3,5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$, $D_{ic}^0 = 4,7 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ et $D_v^0 = 2,2 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$. En considérant ces valeurs, le facteur d'anisotropie de diffusion p est égal à 0,94 à 450°C (Eq. V.1.19). L'étude de sensibilité du modèle à la diffusion des

auto-interstitiels est réalisée en conservant cette valeur de p . Le nombre de coefficients indépendants testés lors de cette étude de sensibilité est donc réduit à deux, D_{ia}^0 (ou D_{ic}^0) et D_v^0 .

Avant de présenter les résultats de l'étude de sensibilité, nous tenons à bien préciser que compte tenu de l'orientation cristalline définie par un angle λ de 30° dans le système de simulation du zirconium pur irradié aux électrons (Tableau V.2.1 (a)), seules les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles grandissent dans le modèle. Ce résultat est expliqué au regard des efficacités d'absorption des défauts ponctuels par les deux principaux puits de la microstructure, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (§ V.1.2.1.1) et les surfaces libres (§ V.1.2.2.2). L'efficacité d'absorption des défauts ponctuels par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est la même indépendamment du caractère interstitiel ou lacunaire des boucles. Par l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels, les probabilités d'élimination des défauts ponctuels sur ces puits dépend de l'orientation cristallographique des surfaces libres. Pour des faibles valeurs de λ , la probabilité d'élimination des auto-interstitiels, qui diffusent plus rapidement dans le plan basal que suivant l'axe $\langle c \rangle$, par les surfaces dites de type basal (§ 1.2.3.2.4) est réduite. Par conséquent, l'agglomération des SIAs sous la forme de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles est favorisée et la croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires est réduite. Inversement, pour des valeurs élevées de λ , les auto-interstitiels diffusent plus rapidement dans la direction perpendiculaire aux surfaces de la lame mince. Leur capture par les surfaces de type prismatique (§ 1.2.3.2.4) est augmentée par rapport à leur absorption par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$, qu'elles soient de nature interstitielle ou lacunaire. Cette configuration favorise donc la croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires. L'effet de l'orientation cristallographique des surfaces libres de la lame mince sur la répartition des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires sera explicité ultérieurement.

La variation des facteurs pré-exponentiels de diffusion D_{ia}^0 et D_{ic}^0 , le facteur d'anisotropie p restant constant, modifie significativement la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles. La Figure V.2.2 (a) et la Figure V.2.2 (b) attestent, respectivement, de la grande sensibilité de la densité volumique et de la taille moyenne des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles à la diffusion des auto-interstitiels. Une diminution du facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des SIAs et donc de leur coefficient de diffusion favorise la germination des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et réduit leur croissance. En ralentissant les auto-interstitiels, leur élimination sur les puits et plus particulièrement sur les germes de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles déjà formés est diminuée. La croissance de ces boucles se trouve donc réduite (taille plus petite, Figure V.2.2 (b)). La concentration importante des SIAs dans la matrice augmente la probabilité de leur agglomération en boucles $\langle a \rangle$ interstitielles (densité plus élevée, Figure V.2.2 (a)).

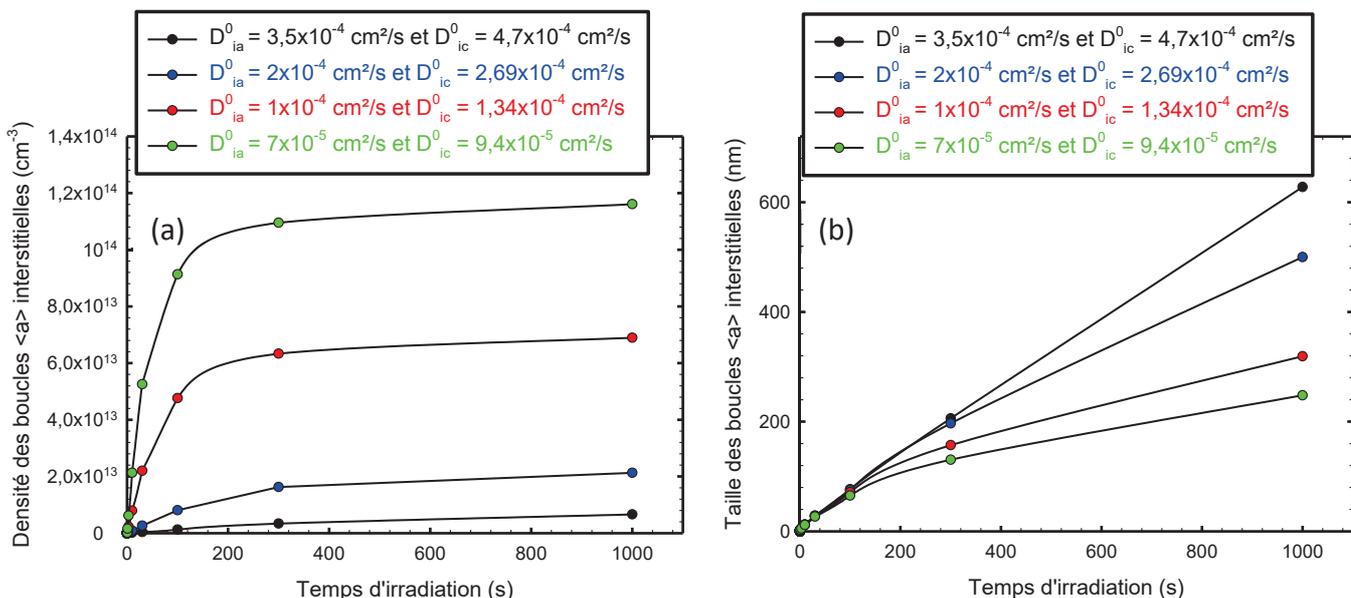


Figure V.2.2: Sensibilité de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles aux coefficients pré-exponentiels de diffusion des SIAs, D_v^0 fixé à $2,2 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$ – (a) évolution de la densité volumique et (b) évolution du diamètre moyen.

V.2. IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET VALIDATION DU MODELE SUR LES IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

La diminution de D_v^0 a pour effet de diminuer la densité volumique et la taille moyenne des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Toutefois, comme nous pouvons le constater sur la Figure V.2.3 (b), la taille des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles semble peu sensible au facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des lacunes. La diminution de la mobilité des lacunes entraînerait la diminution de la sursaturation en auto-interstitiels. Le taux de nucléation des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles est donc moins important. En réduisant la mobilité des lacunes, leur concentration augmente. Quelques lacunes sont alors capturées par les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles, conduisant à leur rétrécissement.

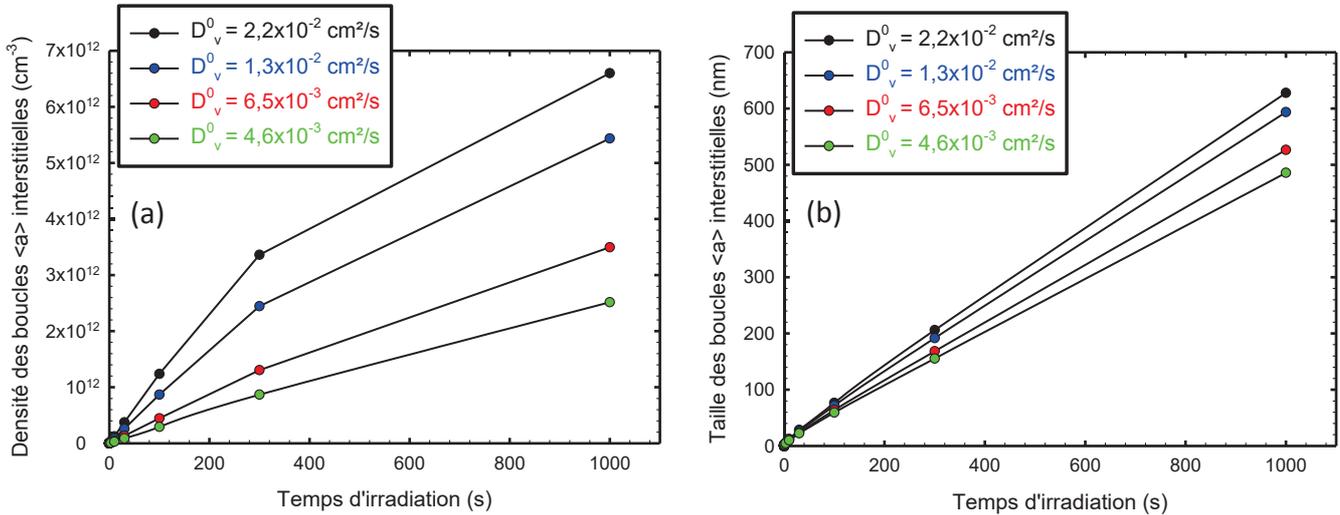


Figure V.2.3: Sensibilité de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles au coefficient pré-exponentiel de diffusion des lacunes, D_{ia}^0 fixé à $3,5 \times 10^{-4}$ cm²/s et D_{ic}^0 à $4,7 \times 10^{-4}$ cm²/s – (a) évolution de la densité volumique et (b) évolution du diamètre moyen.

La sensibilité aux coefficients pré-exponentiels de diffusion des SIAs et des lacunes est expliquée par le fait que les mécanismes de diffusion interstitielle et lacunaire contrôlent l'agrégation des défauts ponctuels en boucles de dislocation et leur cinétique de croissance sous irradiation (§ V.1.2.1).

En s'appuyant sur les résultats de cette étude de sensibilité, nous établissons notre démarche de calibration du modèle sur les données expérimentales de Hellio *et al.* [25], [26]. Celle-ci portera principalement sur le paramètre D_{ia}^0 , le coefficient D_v^0 servant pour l'affinement de l'ajustement de la densité volumique des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Au cours de la procédure d'identification, le facteur d'anisotropie de diffusion p est fixé à la valeur de 0,84, déterminée par les simulations *ab-initio* et en *KMC* (*Kinetic Monte Carlo*) à la température de 450°C [28]. Les valeurs des coefficients pré-exponentiels de diffusion ajustés sont regroupées dans le Tableau V.2.2.

Tableau V.2.2: Paramètres de diffusion ajustés lors de la calibration du modèle simulant la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le zirconium pur irradié aux électrons à 450°C (facteur d'anisotropie p fixé à 0,84).

Paramètres de diffusion	
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des SIAs (cm²/s)	$D_{ia}^0 = 1,57 \times 10^{-6}$ $D_{ic}^0 = 1 \times 10^{-6}$ (dédduit de la valeur de p , Eq. V.1.19)
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des lacunes (cm²/s)	$D_v^0 = 2,8 \times 10^{-6}$

Ces paramètres ainsi identifiés permettent d'obtenir un bon accord de la densité volumique et du diamètre moyen des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles, simulées par le modèle de dynamique d'amas à 450°C, avec les données expérimentales de Hellio *et al.* [25], [26] (Figure V.2.4). A titre de

comparaison, nous présentons également les résultats obtenus avec la description énergétique de Soneda *et al.* [12] (paramétrisation introduite dans le modèle de Christien et Barbu [7]). A partir de la Figure V.2.4, nous constatons la grande sensibilité de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ à la paramétrisation énergétique. Ce résultat montre l'importance du choix de la description énergétique des boucles de dislocation dans le modèle de dynamique d'amas.

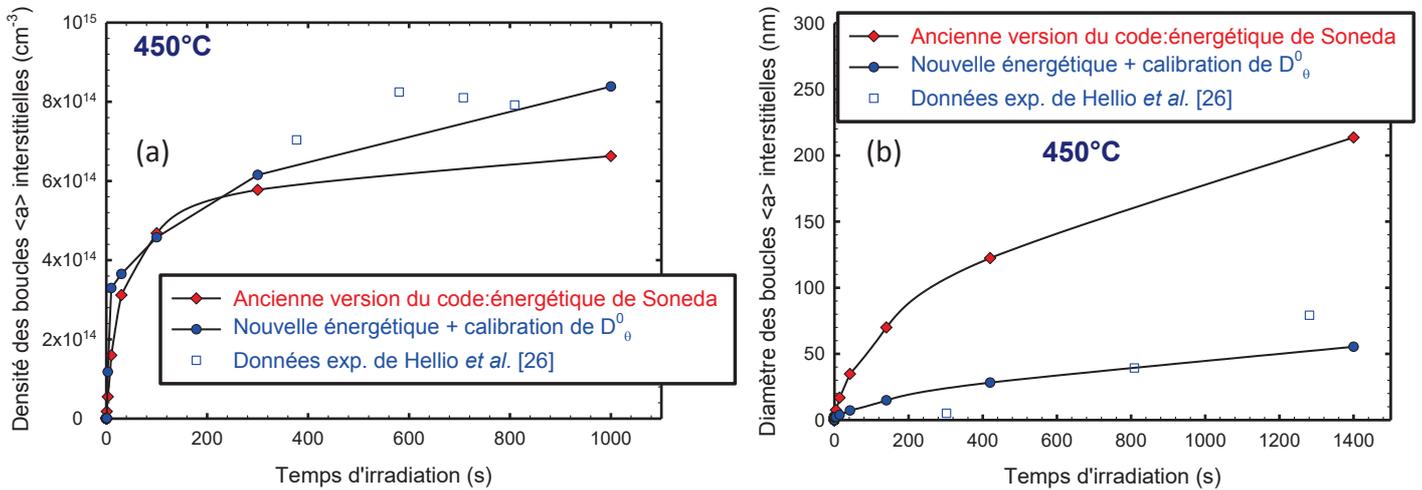


Figure V.2.4: Identification et validation du modèle sur la microstructure des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles obtenue expérimentalement dans le zirconium pur irradié aux électrons à 450°C – (a) évolution de la densité volumique et (b) évolution du diamètre moyen.

Du fait de la grande sensibilité de la microstructure des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles aux coefficients pré-exponentiels de diffusion des SIAs (Figure V.2.2), nous pouvons affirmer que l'identification de ces paramètres est obtenue avec une bonne précision. Dans le but d'évaluer la pertinence de l'ajustement du facteur pré-exponentiel de diffusion des lacunes, nous calculons le coefficient d'autodiffusion qui s'écrit comme suit :

$$D_{auto} = f D_v^0 \exp\left(\frac{-(E_v^m + E_v^f)}{kT}\right) \quad \text{Eq. V.2.1}$$

où f est le facteur de corrélation, égal à 0,78 en supposant que tous les sauts atomiques se font avec la même fréquence [29].

En prenant $E_v^m = 0,65$ eV, $E_v^f = 2,07$ eV (Tableau V.2.1 (c)) et $D_v^0 = 2,8 \times 10^{-6}$ cm²/s (Tableau V.2.2), le coefficient D_{auto} vaut $2,49 \times 10^{-25}$ cm²/s à 450°C. Dans la littérature, nous citons les travaux de Hood [30] qui donnent l'expression du coefficient d'autodiffusion décrivant au mieux les mesures expérimentales :

$$D_{auto} = 0,5 \exp\left(\frac{-3,31 \text{ eV}}{kT}\right) \text{ cm}^2/\text{s} \quad \text{Eq. V.2.2}$$

A la température de 450°C, le coefficient d'autodiffusion défini par Hood [30] (Eq. V.2.2) est égal à $4,43 \times 10^{-24}$ cm²/s. L'accord peut être jugé comme satisfaisant, ce qui valide notre valeur de D_v^0 obtenue à l'issue de la calibration du modèle de dynamique d'amas.

Une fois les facteurs pré-exponentiels des coefficients de diffusion des auto-interstitiels et des lacunes identifiés, le modèle de dynamique d'amas est utilisé pour étudier l'effet de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles. Les évolutions de la densité

volumique et du diamètre moyen de ces boucles, simulées à différentes températures par le modèle de dynamique d'amas, sont comparées à celles obtenues expérimentalement par un suivi *in-situ* lors des irradiations aux électrons de 1 MeV [25], [26]. La plage de température d'irradiation examinée par Hellio *et al.* [25], [26] s'étend de 400 à 600°C. Pour ce qui concerne nos simulations par le modèle de dynamique d'amas, nous nous limitons à une température maximale de 500°C. De la Figure V.2.5 (a) et la Figure V.2.5 (b), il ressort que la modélisation, à différentes températures d'irradiation, prédit des densités et des tailles de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles en accord satisfaisant avec les données expérimentales. Le modèle de dynamique d'amas reproduit correctement l'effet de la température d'irradiation sur l'évolution de la microstructure des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Il prévoit bien une augmentation de la taille des boucles avec la température, accompagnée d'une diminution de leur densité volumique. Comme il a été reporté dans la littérature (§ 1.2.3.2.1), la température favorise la croissance des boucles au détriment de leur germination.

A température constante, nous retrouvons l'évolution « typique » de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec le temps (ou la fluence) d'irradiation (§ 1.2.3.2.2). La densité volumique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ augmente rapidement jusqu'à atteindre une valeur de saturation au bout de quelques centaines de secondes (Figure V.2.5 (a)) alors que les tailles continuent à augmenter (Figure V.2.5 (b)). Toutefois, malgré l'accord satisfaisant entre les valeurs expérimentales et les valeurs numériques, il semble que le rayon des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ simulées par le modèle de dynamique d'amas suive une loi différente de celle obtenue expérimentalement par Hellio *et al.* [25], [26]. En effet, comme nous pouvons le constater sur la Figure V.2.5 (b), les mesures expérimentales révèlent une sorte de dose d'incubation pour la croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Expérimentalement, la taille des boucles évolue avec le temps d'irradiation en suivant une fonction de puissance avec un exposant strictement supérieur à 1. Le modèle de dynamique d'amas, quant à lui, donne une cinétique de croissance plus classique avec une taille des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles qui évolue en suivant une fonction de puissance d'exposant strictement inférieur à 1. Nous notons que le même type de loi d'évolution de la taille des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec le temps d'irradiation a été observé dans les alliages de zirconium irradiés aux neutrons à 300°C (Figure 1.2.7).

Afin d'expliquer la différence entre la cinétique de croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles simulée par le modèle et celle observée expérimentalement, nous nous référons aux travaux de Kiritani *et al.* [31] qui ont porté sur l'étude de la croissance des boucles interstitielles dans des matériaux (Fe, Al, Mo, Cu et Au) irradiés aux électrons. Les auteurs [31] montrent une dépendance de la cinétique de croissance des boucles au régime de température considéré (à faible température, la taille des boucles évolue selon une fonction de puissance d'exposant strictement inférieur à 1 et à température élevée, l'exposant devient strictement supérieur à 1) mais aussi à la mobilité des lacunes et à l'efficacité des puits microstructuraux comme les surfaces libres. Ces travaux nous amènent à penser que le modèle reproduit bien la cinétique de croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles à faible température, et plus précisément à des températures inférieures à 400°C (Figure V.2.5 (b)). En revanche, à température plus élevée, bien que le modèle soit en mesure de donner des valeurs de taille de boucles en accord avec les données expérimentales, il ne permet pas de reproduire la transition vers une cinétique de croissance décrite par une fonction de puissance d'exposant strictement supérieur à 1.

Par ailleurs, les faibles écarts entre les résultats expérimentaux et numériques peuvent être expliqués au regard des incertitudes liées à la validité des données expérimentales et à la calibration du modèle. Les analyses microscopiques conduites par Hellio *et al.* [25], [26] n'ont pas porté sur la nature interstitielle ou lacunaire des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Les auteurs considèrent que les boucles $\langle a \rangle$ sont exclusivement interstitielles. Or, si à faible température les boucles sont majoritairement interstitielles, à une température élevée la proportion des boucles lacunaires augmente (§ 1.2.3.2.1). Les densités et les tailles des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles annoncées par Hellio *et al.* [25], [26] pour des températures élevées seraient donc surestimées. Des valeurs expérimentales plus faibles iraient dans le sens d'une meilleure corrélation avec les résultats des simulations. Nous relevons une

deuxième source d'incertitude portant sur le facteur p d'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels, fixé à une valeur obtenue par les simulations atomistiques à la température de 450°C [28], lors de la procédure d'identification. Il est difficile d'évaluer la validité de la valeur retenue pour ce paramètre dans notre modèle de dynamique d'amas, d'autant plus que l'expression de p (Eq. V.1.15 et Eq. V.1.19) prédit une forte influence de la température sur l'anisotropie de diffusion des SIAs, ce qui l'est moins par les calculs atomistiques de Samolyuk *et al.* [28].

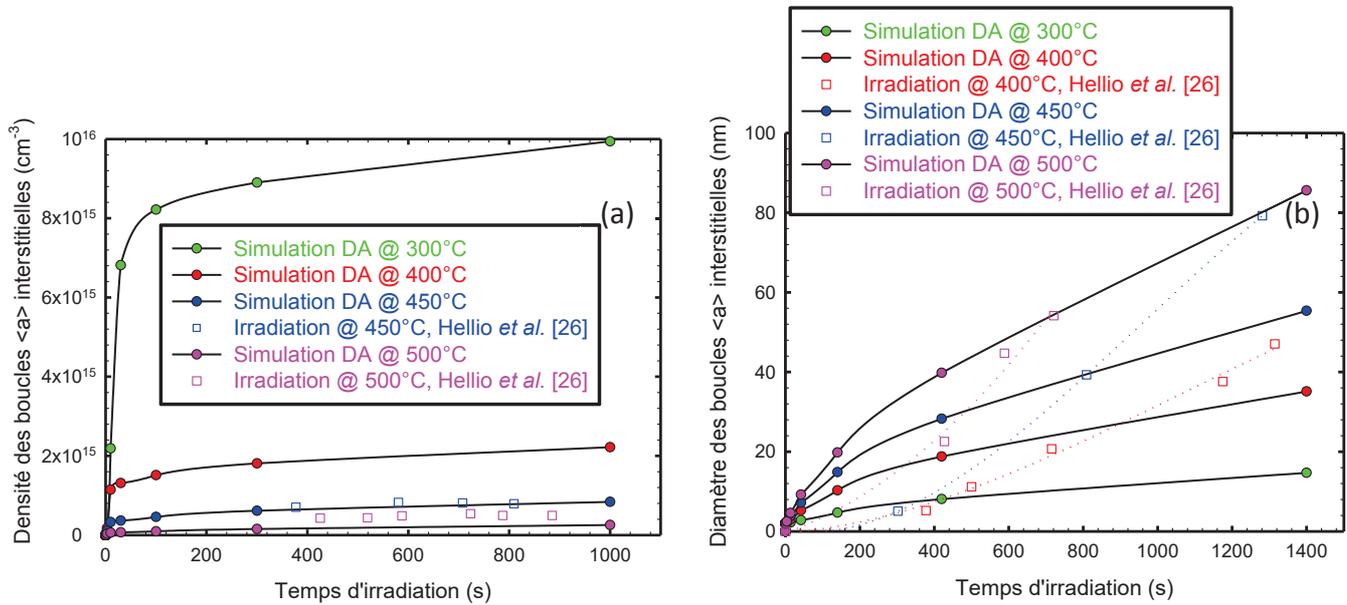


Figure V.2.5: Effet de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles <a> interstitielles dans le zirconium pur irradié aux électrons – (a) évolution de la densité volumique et (b) évolution du diamètre moyen.

L'effet de l'orientation cristallographique des surfaces libres de la lame mince sur la microstructure des boucles de dislocation <a> a été évoqué au début de cette partie. Pour simuler cet effet, l'angle λ entre l'axe cristallographique <c> et la normale au plan de la lame mince n'est plus considéré comme un paramètre figé du modèle mais varie entre 0 et 90°. La Figure V.2.6 (a) et la Figure V.2.6 (b) donnent, respectivement, la répartition en densité volumique et en taille moyenne des boucles de dislocation <a> interstitielles et lacunaires en fonction de l'angle λ .

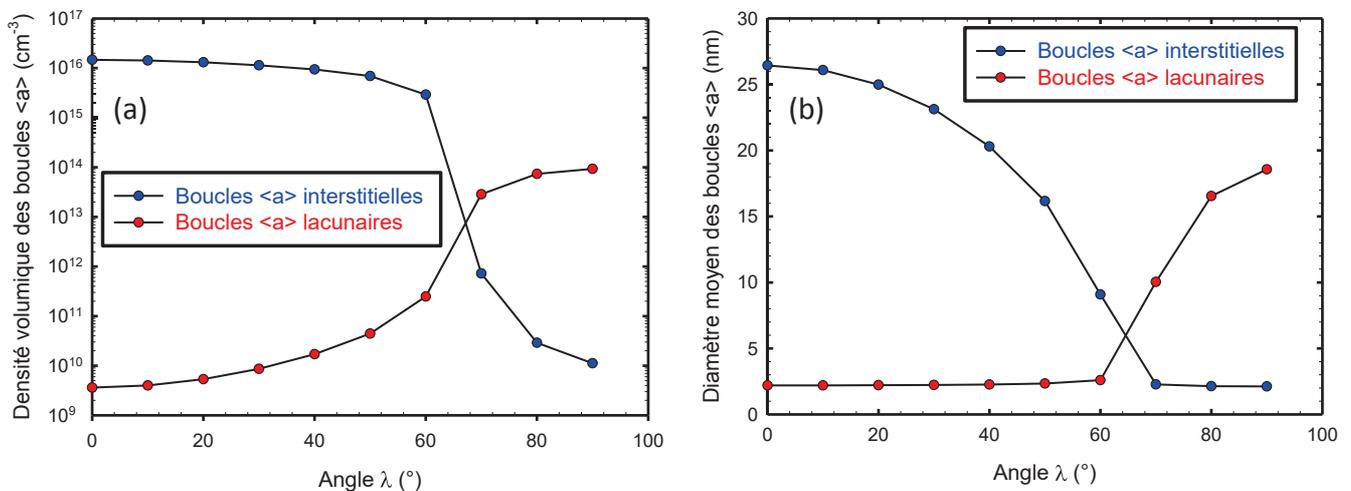


Figure V.2.6: Effet de l'orientation cristallographique des surfaces libres de la lame mince sur la répartition des boucles <a> interstitielles et lacunaires dans le zirconium pur irradié à 300°C et à une dose de 0,5 dpaNRT – (a) évolution de la densité volumique avec l'angle λ et (b) évolution du diamètre moyen avec l'angle λ .

Les simulations, réalisées à une température de 300°C et à une dose d'irradiation de 0,5 dpaNRT, montrent l'effet de l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels sur le taux d'absorption $K_s^\theta C_{1\theta}$ d'un défaut ponctuel θ par les surfaces libres (§ V.1.2.2.2). Pour des faibles valeurs de λ , les SIAs se déplacent plus rapidement dans le plan de la lame mince, leur probabilité de piégeage par les surfaces est donc réduite. Il s'ensuit une favorisation de la germination et de la croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Dans le cas des grands angles λ , les SIAs migrent plus rapidement dans la direction perpendiculaire aux surfaces libres des lames minces. Leur taux d'absorption par les surfaces libres est augmenté, et inversement leur taux d'absorption par les boucles $\langle a \rangle$, interstitielles et lacunaires, est diminué. Pour cette orientation cristalline, la germination et la croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires est favorisée. La densité des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires reste néanmoins dans ce dernier cas ($\lambda = 90^\circ$) deux ordres de grandeur inférieure à la densité des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles dans le cas précédent ($\lambda = 0^\circ$).

La valeur seuil λ_{seuil} , de basculement entre les deux configurations peut être déterminée en considérant les forces de puits relatives aux surfaces libres et aux boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Cette approche a déjà été développée par Christien et Barbu [7]. Aux deux puits considérés (les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et les surfaces libres), nous associons les biais d'absorption des SIAs suivants :

$$B_a^i = \frac{Z_a^i - Z_a^v}{Z_a^i} \quad \text{Eq. V.2.3}$$

$$B_s^i = \frac{\frac{K_s^i}{D_i} - \frac{K_s^v}{D_v}}{\frac{K_s^i}{D_i}} \quad \text{Eq. V.2.4}$$

B_a^i est le biais d'absorption des auto-interstitiels par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$, qu'elles soient interstitielles ou lacunaires. Ce terme englobe le biais induit par l'EID (Eq. V.1.26) et par la DAD (Eq. V.1.27) et s'écrit sous cette forme :

$$B_a^i = 1 - \frac{1}{Z_d^i Z_{a,DAD}^i} \quad \text{Eq. V.2.5}$$

A 300°C, le facteur d'anisotropie p est égal à 0,81 (Eq. V.1.19). Il en découle un biais B_a^i de 0,24.

En se plaçant dans le cas où l'absorption en volume des défauts ponctuels ne peut pas être négligée devant leur absorption par les surfaces de la lame mince (Eq. V.1.42), le biais des surfaces libres pour les SIAs, B_s^i est donné par l'expression suivante :

$$B_s^i = 1 - \frac{\sqrt{\frac{S_m^v}{S_m^i}} \frac{d'}{d}}{\sqrt{\frac{S_m^v}{S_m^i}} \frac{d'}{d}} = 1 - \frac{1}{\sqrt{Z_d^i Z_{a,DAD}^i}} \frac{d'}{d} = 1 - \frac{p}{\sqrt{Z_d^i Z_{a,DAD}^i [\sin^2(\lambda) + p^6 \cos^2(\lambda)]}} \quad \text{Eq. V.2.6}$$

Le biais des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est constant, celui des surfaces libres dépend de l'orientation de l'axe $\langle c \rangle$ par rapport à la normale à leur plan. La Figure V.2.7 montre que pour des angles $\lambda < \lambda_{seuil}$, les SIAs s'annihilent préférentiellement sur les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et que lorsque λ devient supérieur à λ_{seuil} , l'absorption des auto-interstitiels par les surfaces libres est favorisée par rapport aux boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Cette analyse en termes de force de puits explique les résultats de la simulation de la microstructure des boucles de dislocation, et plus particulièrement l'inversion de la répartition des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires à une valeur λ_{seuil} de 62° (Figure V.2.6 et Figure V.2.7).

Il est important de bien remarquer le caractère binaire de ce système de simulation : croissance des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles pour des faibles valeurs de λ et croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires

pour des angles λ élevés. Il apparait donc que le modèle de dynamique d'amas, ainsi « construit », ne reproduit pas la coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires, démontrée expérimentalement par Griffiths *et al.* [32] dans des lames minces de zirconium pur irradiées aux électrons de 1 MeV à 442°C. La question de la coexistence des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires est abordée d'un point de vue expérimental dans l'annexe D de ce mémoire. En vue de reproduire dans le modèle de dynamique d'amas la coexistence des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires, un travail de réflexion a porté sur les efficacités d'absorption Z_a^θ des défauts ponctuels par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (effet de l'anisotropie en position de col sur la diffusion des défauts ponctuels dans les champs de contrainte des boucles de dislocation [33], approche auto-cohérente selon laquelle les efficacités d'absorption évoluent avec la taille de la boucle et la force totale des puits de la microstructure [34], ...).

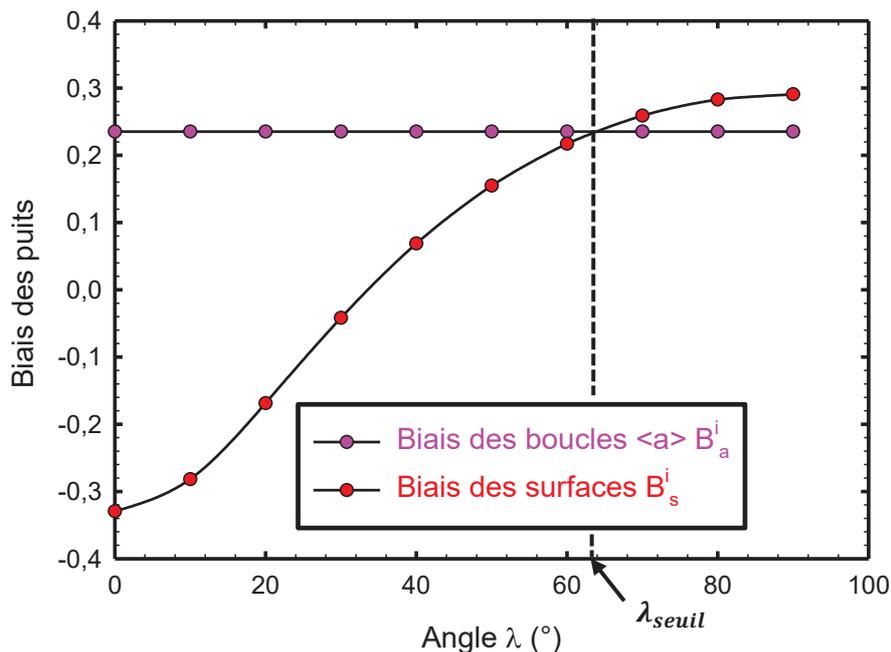


Figure V.2.7: Evolution des biais des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et des surfaces libres avec l'angle λ , à la température de 300°C.

V.2.2.2 Modélisation de l'évolution de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux électrons à des doses supérieures à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$

Forts des résultats de validation du modèle de dynamique d'amas sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ formées dans le zirconium pur irradié aux électrons à faibles doses, nous poursuivons notre démarche d'identification séquentielle des paramètres du modèle pour un système de simulation plus complexe : l'alliage Zircaloy-4 irradié aux électrons jusqu'à des doses élevées supérieures à la dose seuil d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$. Les données expérimentales, servant comme une base de validation du modèle, proviennent des irradiations aux électrons de 1 MeV des lames minces de Zircaloy-4 à 300°C [35], [36]. Les mêmes conditions d'irradiation ont été introduites dans le modèle de dynamique d'amas (Tableau V.2.3 (a)). En conservant les mêmes valeurs pour les paramètres matériau (Tableau V.2.3 (b)), nous introduisons une deuxième population de boucles de dislocation, les boucles à composante $\langle c \rangle$ à laquelle nous attribuons son vecteur de Burgers qui se décompose en une composante coin de norme $b_e = c/2$ et une composante vis de norme $a\sqrt{3}/3$. L'énergétique des boucles à composante $\langle c \rangle$ introduite dans la partie V.1.2.1.2 est spécifiée dans le Tableau V.2.3 (c). Pour cette étape de calibration du modèle, les facteurs pré-exponentiels de diffusion des auto-interstitiels et des lacunes sont fixés à leur valeur

V.2. IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET VALIDATION DU MODELE SUR LES IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

ajustée précédemment (§ V.2.2.1). Ces valeurs sont retenues du fait qu'elles reproduisent au mieux l'évolution de la microstructure du zirconium pur irradié aux électrons pour des faibles doses d'irradiation.

Tableau V.2.3: Paramètres fixés au cours des simulations du Zircaloy-4 irradié aux électrons à forte dose – (a) paramètres définissant le système de simulation, (b) paramètres caractérisant le matériau et (c) paramètres énergétiques et paramètres de diffusion.

Système de simulation		Paramètres matériau	
Système	Lame mince	Paramètres du réseau (nm)	$a = 0,323$ $c = 0,515$
Epaisseur (nm)	400	Densité des dislocations ρ (cm⁻²)	10^8
Orientation cristalline λ (°)	90	Vecteur de Burgers des boucles $\langle a \rangle$ (nm)	$b = a = 0,323$
Particules incidentes	Electrons de 1 MeV	Vecteur de Burgers des boucles à composante $\langle c \rangle$ (nm)	$b = \sqrt{(c/2)^2 + (a\sqrt{3}/3)^2}$ $= 0,318$
Taux de création de défauts (dpaNRT/s)	$6,3 \times 10^{-3}$	Efficacité d'absorption des lacunes par les dislocations droites Z_d^v	1
Facteur η	0,3	Efficacité d'absorption des SIAs par les dislocations droites Z_d^i	1,1
Temps d'irradiation (s)	$2,38 \times 10^3$		
Dose d'irradiation (dpaNRT)	15		
Température d'irradiation (°C)	300		

(a)

(b)

Paramètres énergétiques et paramètres de diffusion	
Energie de formation des défauts ponctuels (eV)	$E_i^f = 2,88$ $E_v^f = 2,07$
Energie de liaison des petits amas (eV)	$E_{2i}^{Bi} = 0,8$ $E_{2v,a}^{Bv} = 0,188$ et $E_{3v,a}^{Bv} = 0,388$ $E_{2v,c}^{Bv} = 0,106$ et $E_{3v,c}^{Bv} = 0,448$
Facteur de forme f des boucles $\langle a \rangle$	1,1
Facteur de forme f des boucles à composante $\langle c \rangle$	1,13
Rayon de cœur r_c pour les boucles $\langle a \rangle$	$0,23 a$
Rayon de cœur r_c pour les boucles à composante $\langle c \rangle$	$0,32 a$
Coefficient élastique \bar{K} (eV/Å)	0,25
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des SIAs (cm²/s)	$D_{ia}^0 = 1,57 \times 10^{-6}$ $D_{ic}^0 = 1 \times 10^{-6}$
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des lacunes (cm²/s)	$D_v^0 = 2,8 \times 10^{-6}$

(c)

Dans le modèle de dynamique d'amas, le passage du zirconium pur au Zircaloy-4 se fait à travers la prise en compte, de manière approchée, de l'effet des solutés sur la diffusion des défauts ponctuels et sur l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$. Les paramètres ajustés sont donc les énergies de migration des auto-interstitiels et des lacunes et l'énergie de faute d'empilement basale des boucles à composante $\langle c \rangle$. L'identification de ces paramètres énergétiques est réalisée sur la base des résultats de travaux atomistiques et expérimentaux portant sur l'interaction de l'étain,

du fer et de l'oxygène, éléments d'addition principaux du Zircaloy-4 (Tableau I.1.2), avec les défauts ponctuels et leur influence sur l'énergie de faute d'empilement basale. Comme valeurs de départ, il semble raisonnable de prendre les données atomistiques calculées en *ab-initio* pour le zirconium pur (Tableau V.1.1, Tableau V.1.2 et Tableau V.2.1).

Nous allons maintenant procéder à une analyse détaillée de l'effet de chacun de ces éléments chimiques, effet introduit d'une manière approchée dans le modèle de dynamique d'amas, et à une évaluation de la sensibilité du modèle aux paramètres ajustés :

- **Effet de l'étain sur l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels** : L'étain présente une grande solubilité dans le domaine α du zirconium. Aux teneurs considérées pour le Zircaloy-4, il est totalement dissous et forme une solution solide substitutionnelle avec la matrice Zr- α (§ I.1.2.1.2). Les calculs atomistiques [37] montrent une faible interaction de l'étain avec les lacunes. En revanche, la diffusion des auto-interstitiels semble être affectée par la présence de cet élément chimique suivant deux régimes d'évolution avec la température. A faible température, les atomes d'étain repoussent les auto-interstitiels qui, en tentant de vaincre cette répulsion, voient leur mobilité suivant les directions cristallographiques $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ se réduire [37]. A des températures élevées, les auto-interstitiels réussissent à vaincre la répulsion des atomes d'étain. Plus spécifiquement, à partir de 400°C, le coefficient de diffusion des SIAs suivant la direction $\langle a \rangle$ se rapproche de celui calculé dans le zirconium pur. Concernant leur diffusion suivant la direction $\langle c \rangle$, Christensen *et al.* [37] montrent qu'au-delà de 500°C, le coefficient D_{ic} dans le Zr + 2,5%Sn est quasi-identique à celui dans le zirconium pur. En s'appuyant sur ces résultats et moyennant l'hypothèse que la diffusion des auto-interstitiels suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$ ne varie pas en présence de l'étain, ce qui est le cas à température élevée, nous proposons d'augmenter l'énergie de migration E_{ia}^m des SIAs suivant l'axe $\langle a \rangle$. L'élévation de la barrière de migration des auto-interstitiels suivant la direction $\langle a \rangle$ conduit à une diminution de leur mobilité et à une augmentation du facteur d'anisotropie de diffusion p (Eq. V.1.19). L'efficacité de capture des SIAs par les boucles à composante $\langle c \rangle$ est alors augmentée (Eq. V.1.25), induisant ainsi une diminution de la densité volumique des boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$ (Figure V.2.8 (a)) et une réduction de leur taille moyenne (Figure V.2.8 (b)). A 15 dpa, une augmentation de 0,01 eV de E_{ia}^m induit une diminution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ d'environ 30% (Figure V.2.8 (c)). Nous constatons donc une forte sensibilité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ vis-à-vis de l'énergie de migration des auto-interstitiels suivant l'axe $\langle a \rangle$;
- **Effet du fer sur la diffusion des lacunes** : Plusieurs mécanismes peuvent être envisagés pour simuler l'effet du fer en solution dans la matrice de zirconium. Nous citons par exemple, le mécanisme de ségrégation du fer sur les germes de boucles à composante $\langle c \rangle$ ou la précipitation des atomes de fer dans le plan de base sous la forme d'une structure proche de celle de Zr_2Fe qui agit comme un site de germination des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ I.2.4.3.2). Pour envisager de tels mécanismes, il faut considérer au préalable la remise en solution du fer par l'amorphisation sous irradiation des phases de Laves. Des modèles traitant l'amorphisation sous irradiation aux neutrons des phases de Laves de type $Zr(Fe,Cr)_2$ dans le Zircaloy-4 existent dans la littérature [38]. L'introduction explicite de ce phénomène dans le modèle de dynamique d'amas ajouterait des paramètres ajustables supplémentaires. De surcroît, la complexité des mécanismes physiques à l'origine de la germination hétérogène des boucles à composante $\langle c \rangle$ ou de la ségrégation du fer sur les fautes d'empilement nécessite des développements conséquents du code de dynamique d'amas. Nous avons donc préféré prendre en compte de manière approchée et simplifiée l'effet du fer sur la diffusion des défauts ponctuels via les énergies de migration. Bien entendu, par souci de simplification, nous ne prenons pas en considération la phénoménologie de la remise en solution du fer dans la matrice de zirconium.

Plusieurs auteurs s'accordent sur le fait que le fer est un diffuseur « ultra-rapide » qui augmente le coefficient d'autodiffusion du zirconium [30], [39]. Les lacunes s'associent avec les atomes de fer pour former un couple fer-lacune dont la mobilité est contrôlée par celle de l'atome interstitiel « ultra-rapide » de fer. L'augmentation de la diffusion des lacunes est une des explications qui permet d'étayer la constatation d'une élévation du coefficient d'autodiffusion du zirconium avec la teneur en fer. D'autres justifications ont été avancées, comme par exemple l'effet du fer sur la stabilité thermodynamique des lacunes se traduisant par un abaissement de leur énergie de formation et donc de l'énergie d'activation de l'auto-diffusion [40]. Toutefois, jusqu'à présent, aucun consensus n'a été clairement dégagé quant à l'effet du fer sur les mécanismes de formation et de migration des lacunes. Pour cette raison, nous choisissons de nous appuyer sur les résultats expérimentaux [30], [39] et leur interprétation [41], [42] qui vont dans le sens d'une diffusion plus rapide des lacunes en présence des atomes de fer. Dans le modèle de dynamique d'amas, le paramètre ajusté est l'énergie de migration des lacunes E_v^m , dont la diminution favorise la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ au détriment de la germination. Ainsi, la densité volumique des boucles est diminuée (Figure V.2.8 (d)) et leur diamètre moyen est augmenté (Figure V.2.8 (e)).

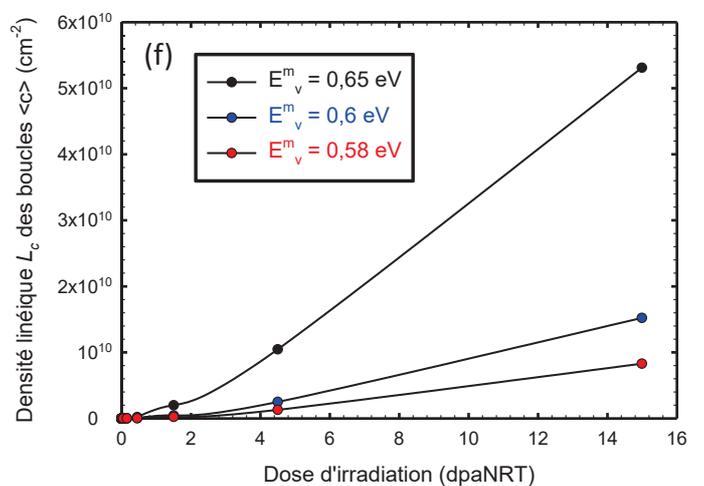
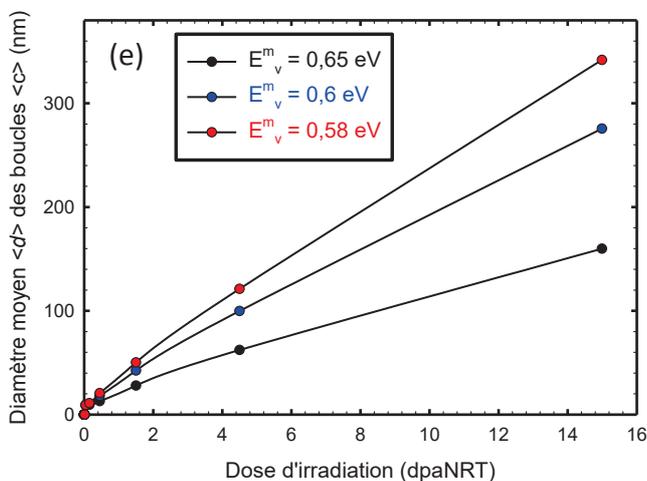
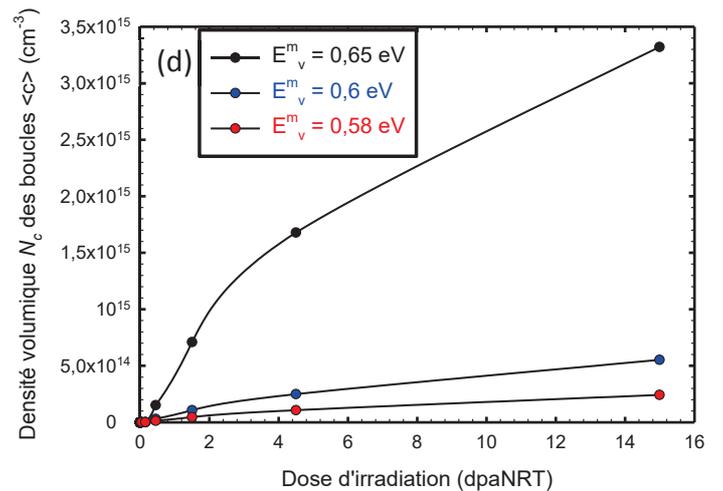
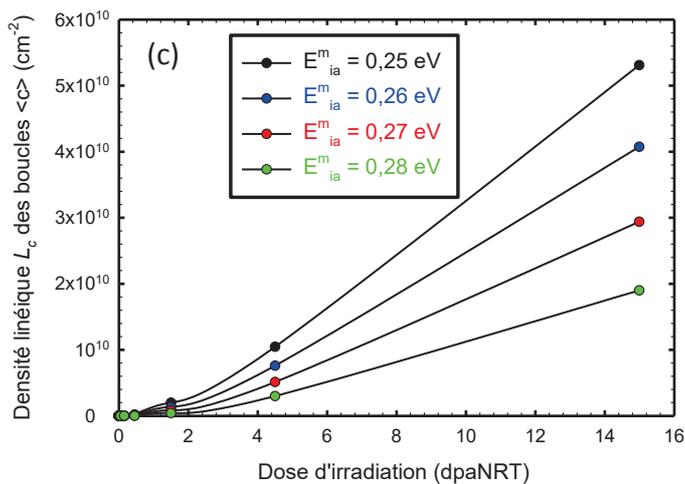
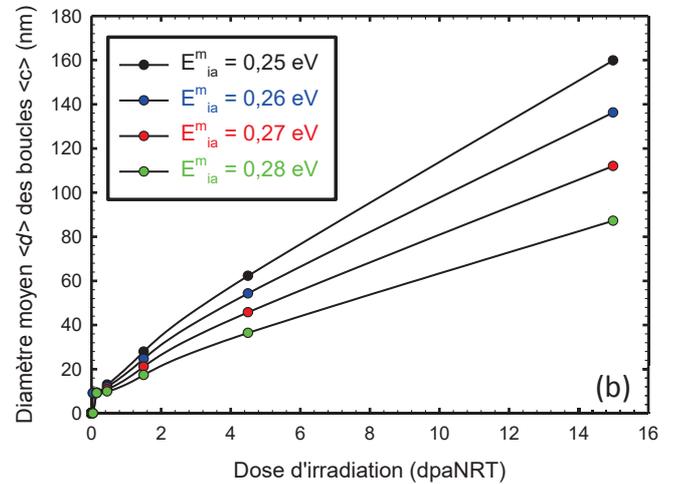
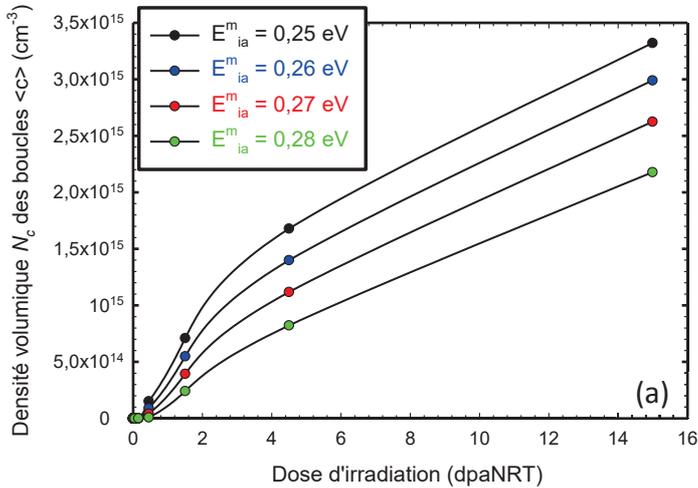
La Figure V.2.8 (d), la Figure V.2.8 (e) et la Figure V.2.8 (f) mettent en évidence la grande sensibilité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à E_m^v , où un abaissement de 0,05 eV conduit à une diminution de N_c d'environ 84%, une augmentation du diamètre moyen de 72% et une diminution de la densité linéique L_c de 71% ;

- **Effet de l'oxygène sur l'énergie de faute d'empilement basale** : Les simulations atomistiques [37], [43] montrent que les atomes d'oxygène n'interagissent pas avec les lacunes. Il en découle que l'oxygène n'a aucun effet sur la stabilité ni sur la diffusion des lacunes. Domain [43] met en évidence, via des calculs *ab-initio*, une augmentation de l'énergie de faute d'empilement basale en présence des atomes d'oxygène dans la matrice Zr- α . En prenant un taux de couverture des sites interstitiels par les atomes d'oxygène de 1, l'augmentation de l'énergie de faute d'empilement basale est évaluée à 30% [43]. L'élévation de l'énergie de faute d'empilement basale a pour effet de rendre la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ plus coûteuse en énergie. Leur stabilité se trouve donc réduite. Il en découle une diminution de la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$. Ces résultats atomistiques contredisent l'effet de l'oxygène reporté par les observations expérimentales, selon lesquelles la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ est plus élevée à forte teneur d'oxygène [44]. Néanmoins, il est important de bien signaler que l'effet observé peut être la manifestation de la présence de plusieurs éléments chimiques et de leurs affinités. Pour déterminer le rôle de l'oxygène sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, il conviendrait d'élaborer un alliage modèle dans lequel seule la teneur de cet élément varie.

Dans le modèle de dynamique d'amas, nous faisons le choix de nous appuyer sur les résultats des simulations de Domain [43]. Toutefois, nous tenons à bien préciser que l'augmentation de 30% de l'énergie de faute d'empilement basale concerne la faute d'empilement de type I_2 et un taux de couverture de 1. Pour cette raison, nous ne considérons ce résultat qu'à titre qualitatif. Le pourcentage d'augmentation de l'énergie de faute d'empilement γ des boucles à composante $\langle c \rangle$ sera déterminé par la calibration du modèle sur les données expérimentales de de Carlan [35], [36]. Comme nous pouvons le constater à partir de la Figure V.2.8 (g) et de la Figure V.2.8 (h), la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$ est beaucoup plus sensible à γ que ne l'est leur diamètre moyen. Une augmentation de l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ de 15 mJ/m² diminue de 23% leur densité volumique N_c , leur taille n'augmentant que de 1,5%.

En évaluant l'amplitude de l'effet de chacun de ces paramètres sur les grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$, nous avons pu établir une démarche de calibration du modèle de dynamique d'amas. Le paramètre γ n'influençant que très légèrement la taille moyenne des boucles,

celle-ci est obtenue au moyen d'un ajustement de deux paramètres : l'énergie de migration E_{ia}^m des auto-interstitiels suivant la direction $\langle a \rangle$ et l'énergie de migration E_v^m des lacunes. La diminution de la densité volumique et linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ résulte, quant à elle, d'un ajustement progressif des trois paramètres E_{ia}^m , E_v^m et γ .



V.2. IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET VALIDATION DU MODELE SUR LES IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

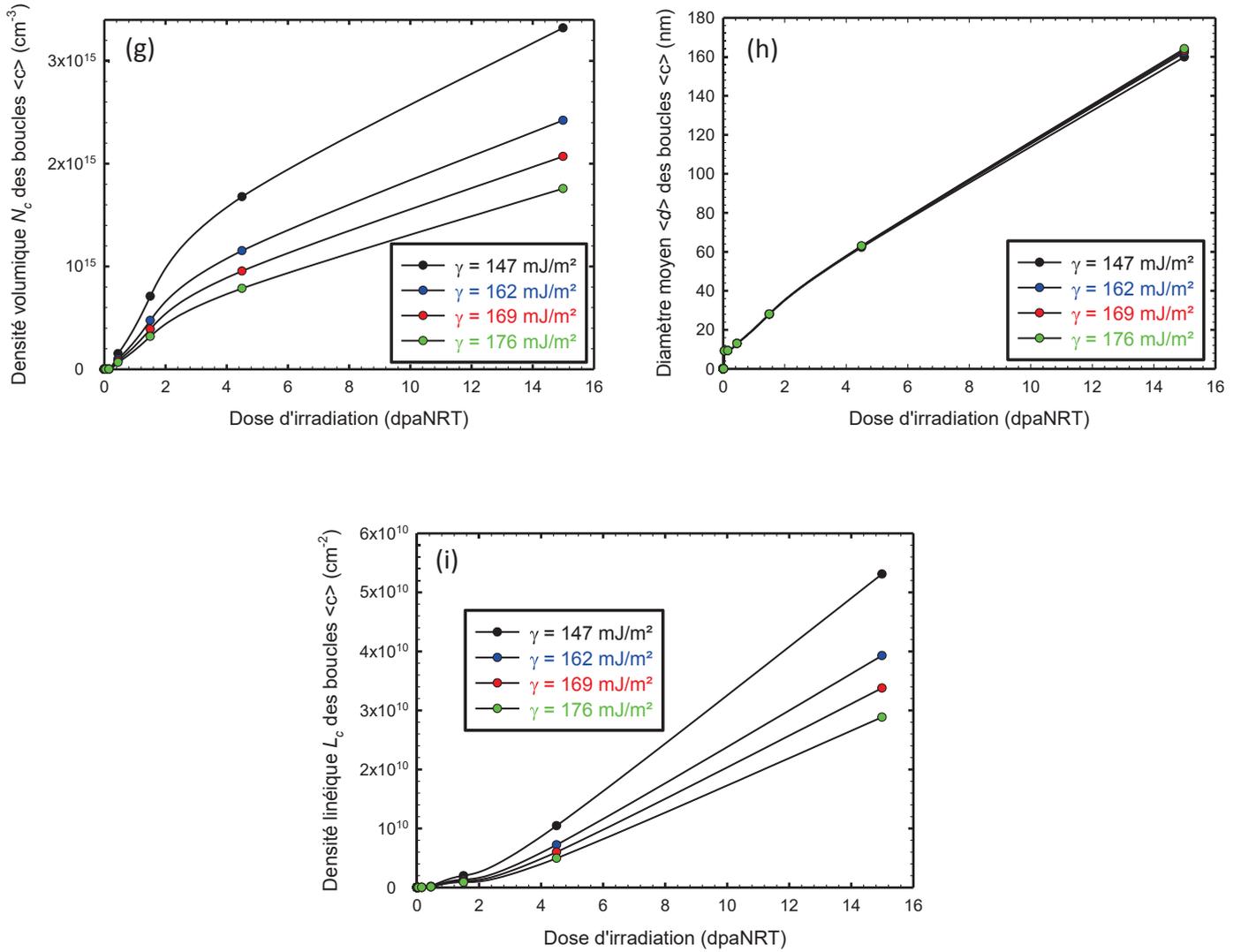


Figure V.2.8: Sensibilité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ aux trois paramètres ajustés dans le modèle de dynamique d'amas – (a), (b) et (c) variation de l'énergie de migration E_{ia}^m des auto-interstitiels suivant la direction cristallographique $\langle a \rangle$, (d), (e) et (f) variation de l'énergie de migration E_v^m des lacunes, E_{ia}^m étant fixée à 0,25 eV, (g), (h) et (i) variation de l'énergie de faute d'empilement γ des boucles à composante $\langle c \rangle$, E_{ia}^m étant fixée à 0,25 eV et E_v^m à 0,65 eV.

Par souci de cohérence, nous considérons dans le modèle de dynamique d'amas le même critère de comptage des boucles à composante $\langle c \rangle$ établi pour notre étude expérimentale (§ II.3.3). Selon ce critère, les boucles à composante $\langle c \rangle$ ont une taille minimum de 9 nm. Comme nous pouvons le constater sur les courbes de la Figure V.2.8, ce critère introduit, d'une manière artificielle, une dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$. A noter, toutefois, que la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'est pas réellement introduite dans la version actuelle du modèle de dynamique d'amas. Les pistes de réflexion portant sur l'origine du seuil de nucléation de ces boucles nous mènent, vraisemblablement, à considérer la remise en solution progressive du fer dans la matrice et une germination hétérogène des amas de boucles à composante $\langle c \rangle$ sur les précipités de fer dans le plan de base. Dans leur modèle, Christien et Barbu [16] ont défini une concentration constante d'amas bidimensionnels de fer de taille 1 nm. Ces amas, introduits avant irradiation, s'apparentent à des germes de boucles de dislocation lacunaires basales. Une fois le régime stationnaire atteint, ces amas reçoivent un flux net de lacunes et grandissent. Dans ce modèle, la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ correspond à la dose d'irradiation à laquelle le régime stationnaire s'établit ($\bar{D}_i C_i \approx D_v C_v$). Cette approche d'introduction de la dose d'incubation des boucles à

composante $\langle c \rangle$ dans le modèle de dynamique d'amas souffre de deux limites. Premièrement, le fait d'introduire une concentration constante d'amas de fer, précurseurs des boucles à composante $\langle c \rangle$, limite la germination de nouvelles boucles et impose une densité constante des boucles à composante $\langle c \rangle$ tout le long de l'irradiation. Deuxièmement, le problème de la remise en solution du fer n'est pas correctement traité, les amas de fer se formant dans le plan de base avant même le début de l'irradiation.

En guise de vérification, nous avons introduit dans le modèle de dynamique d'amas en plus des boucles basales lacunaires des boucles basales interstitielles. Les résultats de la simulation à forte dose d'irradiation montrent que, conformément aux observations expérimentales (§ 1.2.4), seules les boucles basales lacunaires grandissent. Compte tenu de l'anisotropie de diffusion (§ V.1.2.1.1), le biais des boucles basales interstitielles pour les auto-interstitiels est inférieur au biais moyen du milieu. Les boucles basales interstitielles reçoivent un flux net de lacunes et ne peuvent donc croître. Une fois ce point préliminaire vérifié, le modèle considère par la suite une population de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires et une population de boucles à composante $\langle c \rangle$ exclusivement lacunaires.

Les paramètres évalués par l'ajustement de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ sur les observations expérimentales de de Carlan [35], [36] sont regroupés dans le Tableau V.2.4. La valeur ajustée de l'énergie de migration E_{ia}^m des auto-interstitiels augmente le facteur d'anisotropie p à une valeur de 0,92. La variation de l'énergie de faute d'empilement γ correspond à une augmentation de 26,5% par rapport à la valeur calculée en *ab-initio* pour le zirconium pur.

Tableau V.2.4: Paramètres énergétiques ajustés lors de la calibration du modèle simulant la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux électrons à 300°C.

Paramètres énergétiques	
Energie de migration des SIAs suivant la direction $\langle a \rangle$ (eV)	$E_{ia}^m = 0,288$
Energie de migration des lacunes (eV)	$E_v^m = 0,57$
Energie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ (mJ/m ²)	$\gamma = 186$

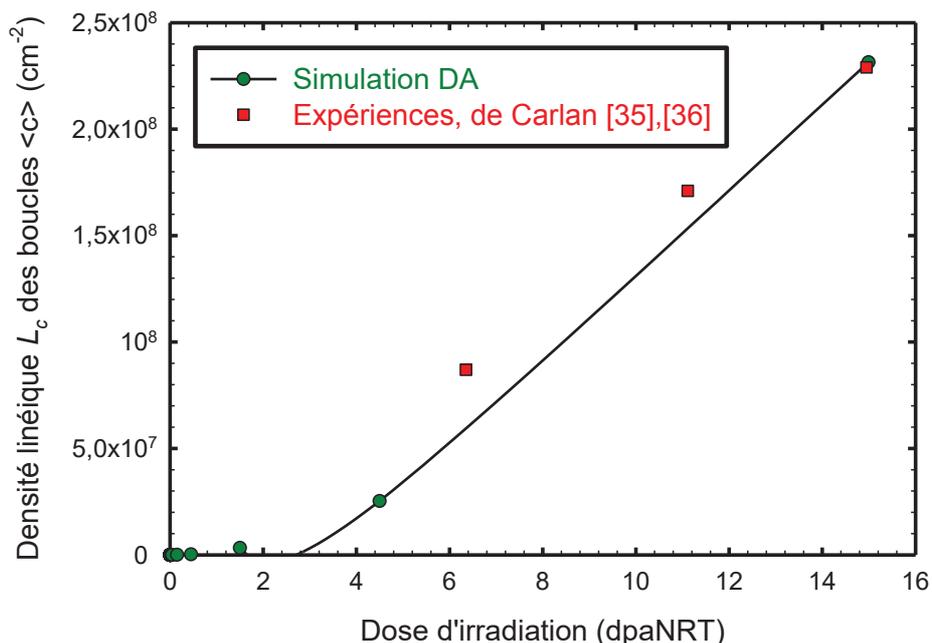


Figure V.2.9: Identification et calibration du modèle sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenue expérimentalement dans le Zircaloy-4 irradié aux électrons à 300°C.

La densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$, simulée par le modèle ainsi calibré et représentée dans la Figure V.2.9, est en très bon accord avec les points expérimentaux de de Carlan [35], [36].

A 300°C, nous ne disposons pas de valeurs expérimentales de la densité volumique et de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$. Néanmoins, de Carlan [35] a suivi *in-situ* l'évolution du diamètre de trois boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation à la température de 350°C. Comme l'illustre la Figure V.2.10, le modèle reproduit correctement la cinétique de croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$. Les tailles moyennes des boucles simulées sont en bon accord avec celles mesurées expérimentalement.

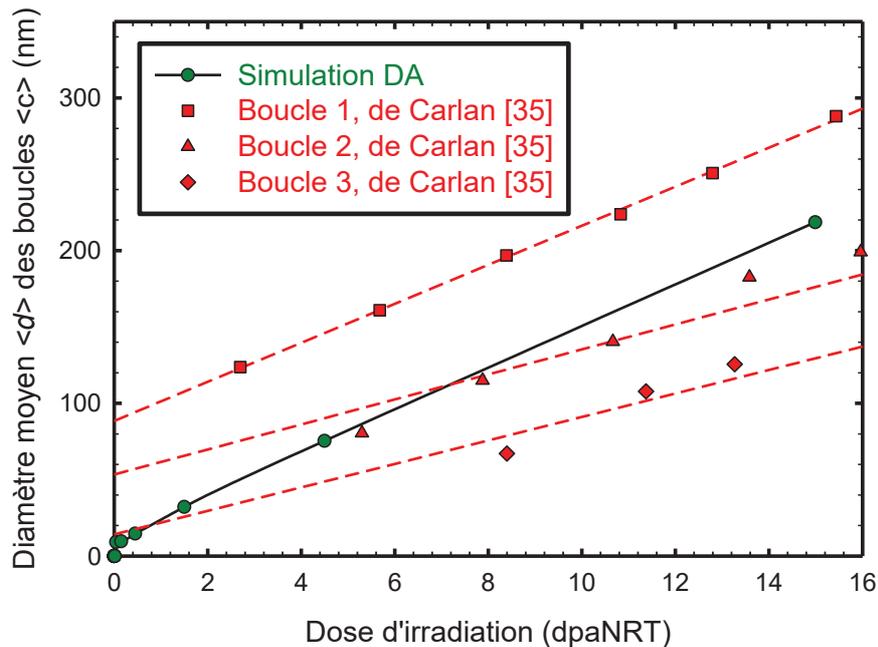


Figure V.2.10: Evolution de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la dose d'irradiation à 350°C.

Intéressons-nous maintenant à la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Pour cela, nous considérons le système de simulation défini dans le Tableau V.2.3, mais nous nous plaçons dans la configuration favorisant la formation des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles dans le modèle de dynamique d'amas, ce qui consiste à prendre une faible valeur pour l'angle λ , 30° dans cet exemple (§ V.2.2.1). Le modèle, calibré avec le jeu de paramètres du Tableau V.2.4, simule convenablement l'évolution de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Comme attendu, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sont principalement interstitielles. A une dose de 1 dpaNRT et pour une température d'irradiation de 300°C, la taille moyenne des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles est de 7 nm et leur densité volumique est de $9,4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Nous ne disposons pas de données expérimentales sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ formées dans ces conditions d'irradiation, mais nous pouvons affirmer que les simulations donnent un bon ordre des grandeurs caractéristiques de ces boucles (§ V.2.2.1 et I.2.3). Leur taille semble, néanmoins, un peu faible et leur densité volumique un peu élevée. Par ailleurs, d'après la Figure V.2.5, nous pouvons noter qu'à 300°C, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ formées dans le zirconium pur sont plus grandes (diamètre moyen d'environ 15 nm à 0,19 dpa) et moins nombreuses (densité volumique de 10^{16} cm^{-3} à 0,14 dpa, cette valeur est proche de la valeur de saturation) que celles obtenues dans le Zircaloy-4 irradié à la même température. Ce résultat est cohérent avec les observations microscopiques recensées dans la littérature (§ I.2.3.2.3).

V.3 Application du modèle aux irradiations aux ions

V.3.1 Modélisation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions sans contrainte

Dans cette partie, le modèle de dynamique d'amas est appliqué aux irradiations aux ions et est calibré sur la base de nos résultats expérimentaux acquis lors des irradiations des échantillons « témoins » de Zircaloy-4 aux ions Zr^+ de 600 keV (§ III.3). Les échantillons irradiés se présentent sous la forme de languettes polies une face. Pour prendre en compte l'effet de la surface libre, nous considérons comme système de simulation une lame mince dont l'épaisseur est fixée, tout comme pour l'étude précédente (§ V.2.2.2), à 400 nm. L'angle λ entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ et la normale au plan de la lame est pris égal à 90° . La température d'irradiation est de $300^\circ C$. Au cours des campagnes d'irradiation aux ions menées sur l'accélérateur ARAMIS, le flux des ions incidents et le taux de création de dommage résultant varient d'une expérience à une autre (Tableau III.2.1 et Tableau IV.2.1). Dans le cadre de cette étude, les simulations sont effectuées à un taux de création de dommage moyen de 2×10^{-4} dpaNRT/s. Le Tableau V.3.1 recense les paramètres fixés dans le modèle pour la simulation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions. Parmi ces paramètres, nous retrouvons ceux issus de la calibration du modèle sur les irradiations aux électrons. Ces paramètres correspondent aux facteurs pré-exponentiels de diffusion des défauts ponctuels (§ V.2.2.1), à l'énergie de migration des SIAs suivant la direction $\langle a \rangle$, à l'énergie de migration des lacunes et à l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ V.2.2.2).

L'application du modèle de dynamique d'amas aux irradiations aux ions revient à inclure l'effet des cascades de déplacements, absentes lors des irradiations aux électrons. Cet effet se traduit par deux aspects : la diminution de l'efficacité de production des paires de Frenkel et la formation des amas interstitiels et lacunaires dans les cascades. Les cascades de déplacements génèrent un dommage localisé dans la matrice. L'accumulation localisée des défauts ponctuels favorise leur recombinaison et donc leur annihilation mais aussi leur agrégation en petits amas bidimensionnels. Il s'ensuit une diminution de la fraction des paires de Frenkel « survivantes » à la recombinaison et à la formation des amas dans les cascades. Dans le modèle de dynamique d'amas, l'efficacité de production des paires de Frenkel est représentée par le facteur η , introduit dans la partie V.1.2.3. Nous rappelons que ce facteur inclut le coefficient de correction 0,3 qui prend en compte les corrélations spatiales entre les défauts dans le modèle de dynamique d'amas (§ V.1.2.3). Le facteur η constitue le premier paramètre ajustable du modèle appliqué aux irradiations aux ions. Il agit principalement sur la densité volumique (Figure V.3.1 (a)) et linéique (Figure V.3.1 (c)) des boucles à composante $\langle c \rangle$. En diminuant le facteur η , le nombre de lacunes libres « survivantes » à la relaxation de la cascade dans la matrice est abaissé. Il en découle une diminution de la probabilité de germination des boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$. Les tailles des boucles déjà formées sont également réduites (Figure V.3.1 (b)), mais dans une moindre mesure que les densités.

La taille moyenne des boucles à composante $\langle c \rangle$, simulées par le modèle de dynamique d'amas avant la prise en compte de l'effet des cascades de déplacements, est beaucoup trop grande par rapport aux valeurs expérimentales regroupées dans le Tableau III.3.1. Pour se rapprocher de ces données expérimentales, le travail d'ajustement a porté, en premier lieu, sur la diminution du coefficient η . La confrontation aux valeurs expérimentales conduit à un abaissement de ce paramètre d'un facteur 10 (Tableau V.3.2) dans le modèle de dynamique d'amas. Avec un tel ajustement, la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ est réduite d'un facteur 3 (diamètre moyen de 351 nm pour $\eta = 0,3$ et de 117 nm pour $\eta = 0,03$). Comme le prédit l'étude de sensibilité, les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont diminuées considérablement. Cette diminution est compensée ultérieurement par l'introduction de petits amas lacunaires formés dans les cascades de déplacements. La validité de l'identification du paramètre η peut être vérifiée au regard des résultats de simulation des cascades en Dynamique Moléculaire [22]. Gao *et al.* [22] trouvent une valeur η de

V.3. APPLICATION DU MODELE AUX IRRADIATIONS AUX IONS

0,2 pour des cascades de 20 keV et pour une température de 330°C. En incluant le coefficient de correction 0,3, la valeur de référence pour le coefficient η serait de 0,06.

Tableau V.3.1: Paramètres fixés au cours des simulations du Zircaloy-4 irradié aux ions – (a) paramètres définissant le système de simulation, (b) paramètres caractérisant le matériau et (c) paramètres énergétiques et paramètres de diffusion.

Système de simulation	
Système	Lame mince
Epaisseur (nm)	400
Orientation cristalline λ (°)	90
Particules incidentes	Ions de 600 keV
Taux de création de défauts (dpaNRT/s)	2×10^{-4}
Temps d'irradiation (s)	$3,5 \times 10^4$
Dose d'irradiation (dpaNRT)	7
Température d'irradiation (°C)	300

(a)

Paramètres matériau	
Paramètres du réseau (nm)	$a = 0,323$ $c = 0,515$
Densité des dislocations ρ (cm ⁻²)	10^8
Vecteur de Burgers des boucles $\langle a \rangle$ (nm)	$b = a = 0,323$
Vecteur de Burgers des boucles à composante $\langle c \rangle$ (nm)	$b = \sqrt{(c/2)^2 + (a\sqrt{3}/3)^2}$ $= 0,318$
Efficacité d'absorption des lacunes par les dislocations droites Z_d^v	1
Efficacité d'absorption des SIAs par les dislocations droites Z_d^i	1,1

(b)

Paramètres énergétiques et paramètres de diffusion	
Energie de formation des défauts ponctuels (eV)	$E_i^f = 2,88$ $E_v^f = 2,07$
Energie de migration des défauts ponctuels (eV)	$E_{ia}^m = 0,288$ et $E_{ic}^m = 0,29$ $E_v^m = 0,57$
Energie de liaison des petits amas (eV)	$E_{2i}^{Bi} = 0,8$ $E_{2v,a}^{Bv} = 0,188$ et $E_{3v,a}^{Bv} = 0,388$ $E_{2v,c}^{Bv} = 0,106$ et $E_{3v,c}^{Bv} = 0,448$
Facteur de forme f des boucles $\langle a \rangle$	1,1
Facteur de forme f des boucles à composante $\langle c \rangle$	1,13
Rayon de cœur r_c pour les boucles $\langle a \rangle$	$0,23 a$
Rayon de cœur r_c pour les boucles à composante $\langle c \rangle$	$0,32 a$
Energie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ (mJ/m ²)	$\gamma = 186$
Coefficient élastique \bar{K} (eV/Å)	0,25
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des SIAs (cm ² /s)	$D_{ia}^0 = 1,57 \times 10^{-6}$ $D_{ic}^0 = 1 \times 10^{-6}$
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des lacunes (cm ² /s)	$D_v^0 = 2,8 \times 10^{-6}$

(c)

Dans une deuxième étape, nous introduisons dans le modèle les amas formés dans les cascades de déplacements. L'objectif de cette étape d'identification est d'augmenter la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$, tout en réduisant leur taille moyenne. La voie qui nous semble la plus pertinente pour améliorer la prédiction de l'évolution de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions par le modèle est de considérer des petits amas lacunaires, précurseurs des boucles à composante $\langle c \rangle$ et des amas interstitiels, précurseurs des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles. Pour assurer une certaine cohérence interne du modèle, nous introduisons de manière équivalente aux amas lacunaires basaux, des amas lacunaires prismatiques, précurseurs des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ lacunaires. Une fois le type des amas bien défini, il reste à spécifier leur taille n et leur proportion f_n (§ V.1.2.3). Ces deux paramètres ont été déterminés de façon à reproduire au mieux les résultats expérimentaux.

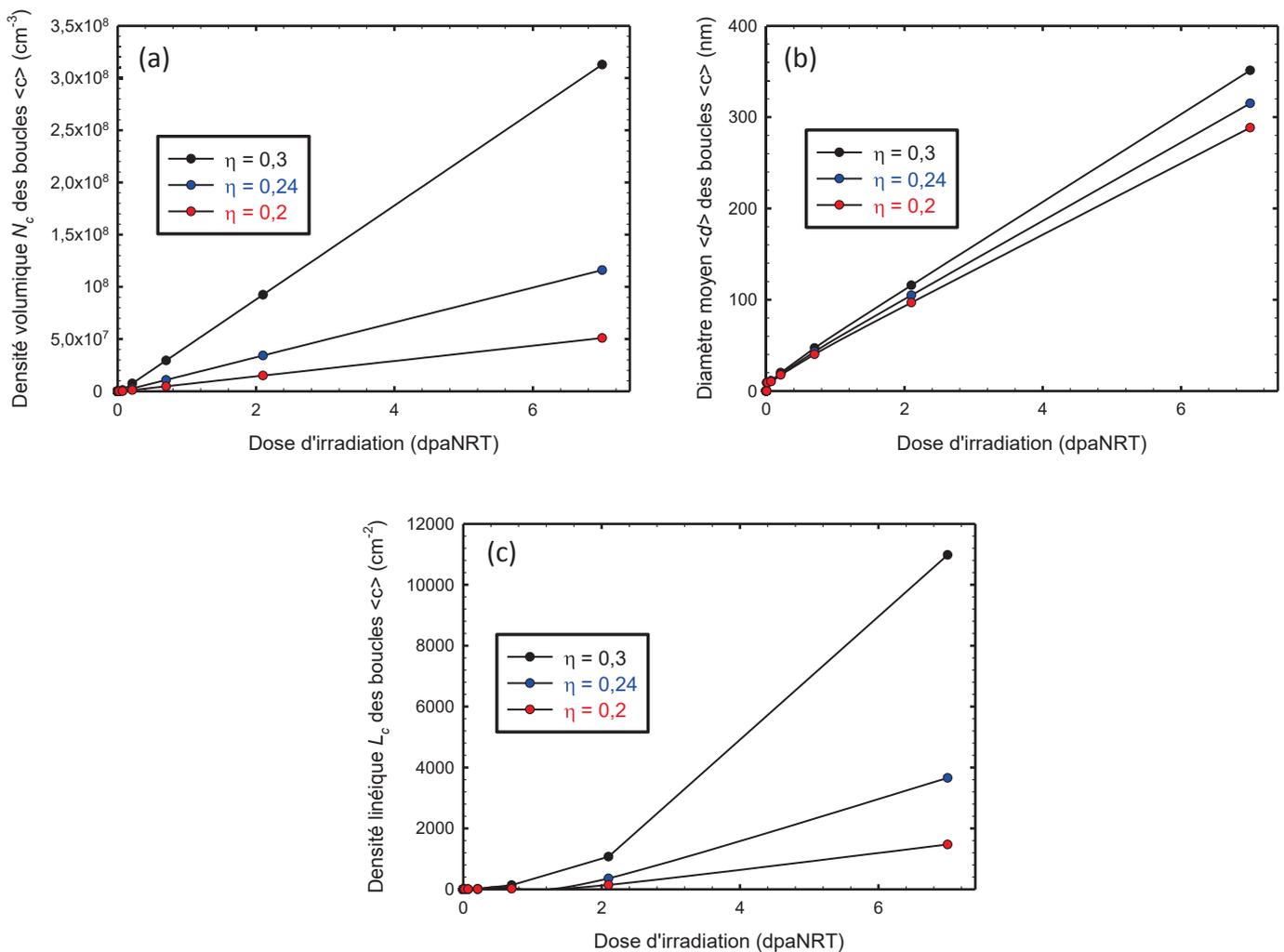


Figure V.3.1: Sensibilité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ au facteur η de production des paires de Frenkel – (a) évolution de la densité volumique, (b) évolution du diamètre moyen et (c) évolution de la densité linéique.

Le modèle de dynamique d'amas calibré avec le jeu de paramètres donné dans le Tableau V.3.2 reproduit de manière raisonnable la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Nous notons, à partir de la Figure V.3.2 (a), un accord satisfaisant de la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$ simulée par le modèle avec celle mesurée expérimentalement. Le modèle surévalue la taille moyenne et la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$, mais il

n'en demeure pas moins que les valeurs simulées sont du bon ordre de grandeur et relativement proches des points expérimentaux (Figure V.3.2 (b) et Figure V.3.2 (c)).

Tableau V.3.2: Paramètres ajustés lors de la calibration du modèle simulant la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux ions à 300°C.

Paramètres considérant l'effet des cascades de déplacements	
Facteur d'efficacité de production des paires de Frenkel	$\eta = 0,03$
Formation des amas lacunaires précurseurs des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les cascades	$n = 9$ $f_n = 1,3 \times 10^{-4}$
Formation des amas lacunaires précurseurs des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires dans les cascades	$n = 9$ $f_n = 1,3 \times 10^{-4}$
Formation des amas interstitiels précurseurs des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles dans les cascades	$n = 6$ $f_n = 0,1$

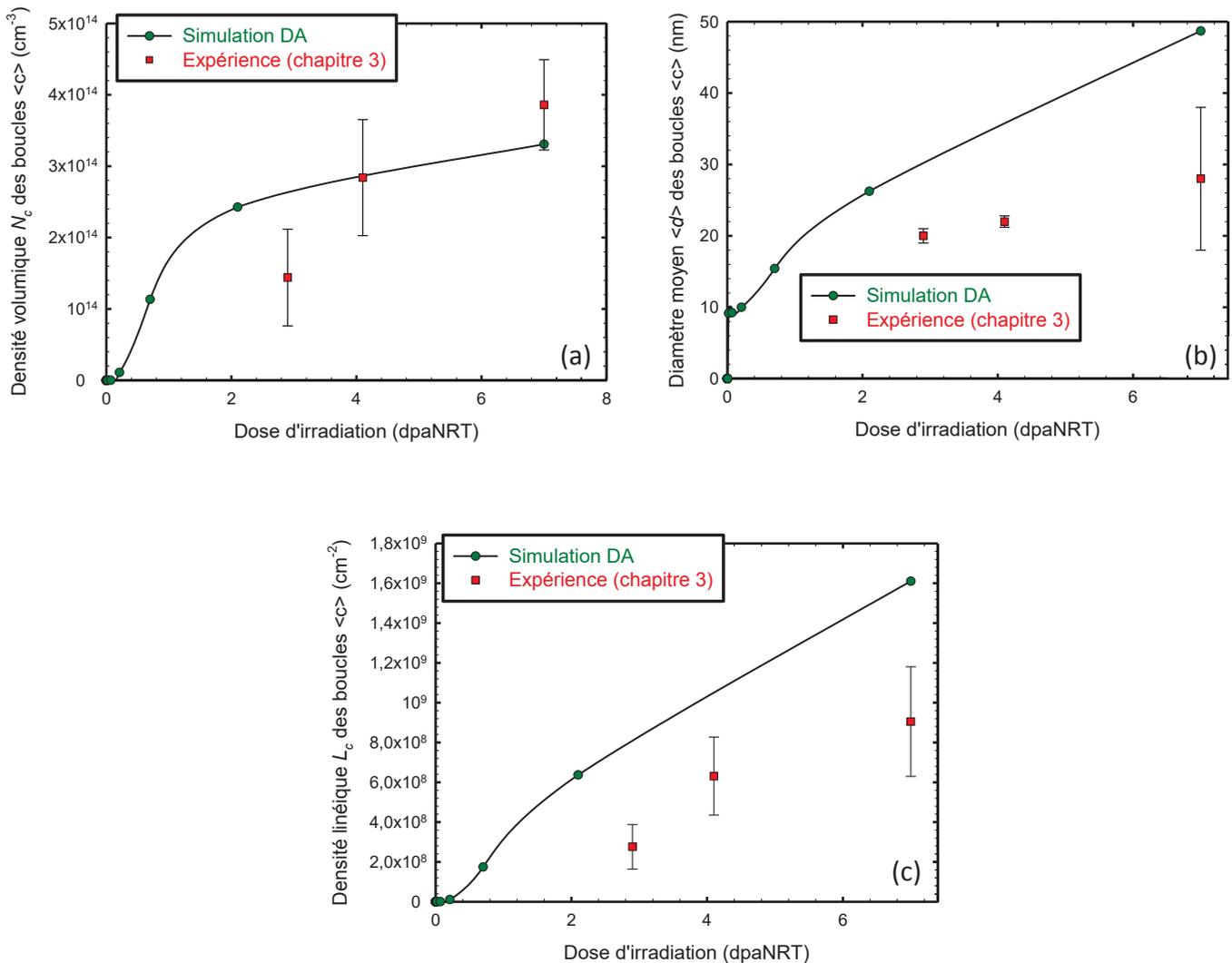


Figure V.3.2: Identification et validation du modèle sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenue expérimentalement dans le Zircaloy-4 irradié aux ions à 300°C – (a) évolution de la densité volumique, (b) évolution du diamètre moyen et (c) évolution de la densité linéique.

Le présent modèle nous permet de connaître avec une certaine précision la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions. Il serait toutefois nécessaire de déterminer plus précisément la distribution des amas formés dans les cascades de déplacements via des simulations de type Monte Carlo. Ces calculs viendraient étayer et compléter la procédure rudimentaire d'ajustement, utilisée à la dernière étape de calibration du modèle, correspondant à l'introduction des amas interstitiels et lacunaires bidimensionnels formés dans les cascades de déplacements. Ce couplage entre les calculs atomistiques et les simulations en dynamique d'amas permettrait, dans une certaine mesure, de s'affranchir des limites du modèle en termes de capacités prédictives. Ces limites commencent à se faire sentir lors de la modélisation de systèmes de plus en plus complexes, introduisant des composantes spatiales.

Une fois le modèle calibré, nous avons souhaité simuler la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux ions et confronter nos résultats aux données expérimentales de Hellio *et al.* [25], [26] et de Drouet [45]. Pour un taux de création de dommage de 4×10^{-4} dpaNRT/s et une température d'irradiation de 450°C , le modèle prédit une densité et une taille de boucles $\langle a \rangle$ cohérentes avec les résultats expérimentaux de Hellio *et al.* [25], [26]. A $0,7$ dpaNRT, la simulation prévoit une densité volumique de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ de $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et un diamètre moyen de $3,5$ nm. Hellio *et al.* [25], [26] reportent une densité volumique de $2,6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ avec un diamètre moyen égal à 7 nm. L'accord est donc relativement correct.

Les conditions d'irradiation des expériences de Drouet [45] sont similaires à celles définies pour notre système de simulation (Tableau V.3.1), à l'exception de la température d'irradiation égale à 340°C et non à 300°C . Les simulations donnent un bon ordre de grandeur des densités et des tailles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ comparées aux mesures expérimentales. Toutefois, les boucles sont plus nombreuses et plus petites que celles obtenues suite aux irradiations aux ions Zr^+ de 600keV . La différence entre les prédictions du modèle de dynamique d'amas et les expériences peut trouver son origine dans l'écart de température mais aussi dans l'incertitude sur la valeur de l'angle λ .

Examinons maintenant l'effet de la température sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ à travers la simulation par le modèle de dynamique d'amas de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions à 400°C . Les paramètres d'entrée du modèle sont fixés aux valeurs définies dans le Tableau V.3.1 (à l'exception de la température d'irradiation) et le Tableau V.3.2. Conformément aux résultats expérimentaux présentés dans la partie III.3.2, le modèle reproduit « qualitativement » le même effet de la température. Ainsi, à 400°C les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont plus grandes et moins nombreuses qu'à 300°C (Tableau V.3.3), la température favorisant leur croissance au détriment de leur germination.

Tableau V.3.3: Comparaison entre les prédictions du modèle et les résultats expérimentaux portant sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à 300 et 400°C .

Simulation/expérience	Diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm)		Densité volumique N_c (cm^{-3})		Densité linéique L_c (cm^{-2})	
	300°C	400°C	300°C	400°C	300°C	400°C
Simulation	48	100	$3,31 \times 10^{14}$	$4,57 \times 10^8$	$1,61 \times 10^9$	$4,59 \times 10^3$
Expérience	24	145	$3,86 \times 10^{14}$	$6,45 \times 10^{13}$	$9,05 \times 10^8$	$9,38 \times 10^8$

Dans le Tableau V.3.3, nous confrontons les densités volumiques, les densités linéiques et les diamètres moyens des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues par les simulations à 300 et 400°C à celles mesurées à l'issue des campagnes d'irradiation aux mêmes températures et à la dose de 7 dpa. Il apparaît qu'à 400°C , la taille moyenne des boucles simulées par le modèle est cohérente avec celle mesurée expérimentalement (Tableau V.3.3 et Figure V.3.3). En revanche, le modèle prédit un effet beaucoup plus important sur les densités des boucles. A 400°C , la densité volumique est

diminuée d'un facteur d'environ 10^6 par rapport à 300°C . Au vu des données expérimentales, la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ simulée par le modèle de dynamique d'amas à 400°C n'est que partiellement validée, les densités étant beaucoup trop faibles par rapport aux valeurs attendues. Un tel résultat peut être expliqué par le fait que la germination hétérogène des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 a été traitée de manière approchée en considérant l'effet du fer sur la diffusion des lacunes (§ V.2.2.2).

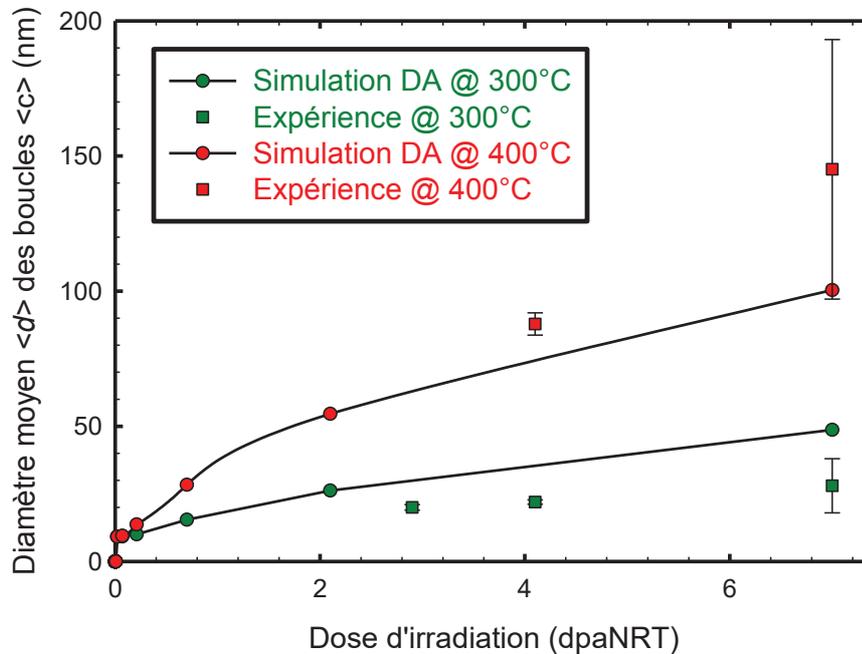


Figure V.3.3: Effet de la température sur la taille moyenne des boucles à composante $\langle c \rangle$, comparaison simulation – expérience.

V.3.2 Modélisation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$

L'effet d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ a été examiné au moyen d'une étude expérimentale conduite par des observations en Microscopie Electronique en Transmission d'un grand nombre de grains de Zircaloy-4. Cette étude a fait l'objet du chapitre 4 de ce mémoire. Les résultats microstructuraux ont été interprétés à la lumière du mécanisme SIPA (Stress Induced Preferential Absorption). Dans cette partie, nous proposons tout d'abord d'introduire ce mécanisme dans le code de dynamique d'amas, puis de simuler l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux ions à 300°C . Enfin, les résultats des simulations sont confrontés aux données microstructurales acquises lors des expériences de chargement mécanique sous flux d'ions.

V.3.2.1 Introduction du mécanisme SIPA dans le modèle de dynamique d'amas

Le code de dynamique d'amas est modifié pour prendre en compte l'effet d'une contrainte macroscopique sur l'efficacité d'absorption des défauts ponctuels par les boucles de dislocation. Plusieurs formalismes ont été proposés pour expliciter l'effet de la contrainte sur l'interaction des défauts ponctuels avec les dislocations ou les boucles de dislocation [46]–[55]. L'expression simplifiée de Wolfer [53] a été donnée, à titre d'exemple, dans la partie I.3.2.2.1 (Eq. I.3.7) pour montrer la dépendance de l'efficacité de capture des défauts ponctuels par les dislocations au déviateur du tenseur de contrainte externe et illustrer le mécanisme SIPA comme étant le mécanisme le plus communément adopté dans les modèles de fluage d'irradiation.

L'approche adoptée, ici, est celle développée par Woo [56] pour les dislocations droites. Ce choix est motivé par le fait que cette approche a l'avantage d'être généralisée et facilement applicable à notre cas d'étude. En effet, comme les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont assez grandes, une approche de type dislocation droite est plus adaptée que l'approche de Wolfer [53] (approche de type boucle infinitésimale). Le formalisme proposé par Woo [56] pour les dislocations coins a donc été adapté aux boucles de dislocation et implémenté dans le code de dynamique d'amas.

Considérons dans le repère macroscopique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$, une dislocation coin de vecteur de Burgers \vec{b} et de vecteur ligne \vec{n} . Comme indiqué sur le schéma de la Figure V.3.4, l'angle φ représente l'orientation de la direction d'application d'une contrainte externe uniaxiale σ par rapport au vecteur ligne \vec{n} et l'angle χ définit l'orientation du vecteur de Burgers \vec{b} de la dislocation par rapport à l'axe \vec{x} du repère.

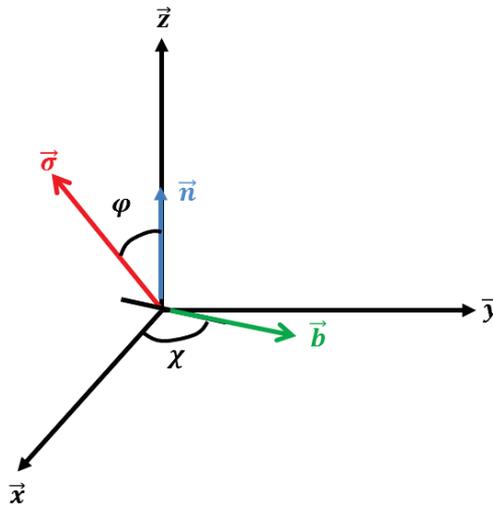


Figure V.3.4: Orientation de la dislocation droite dans le repère macroscopique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$.

Woo [56] s'appuie sur le modèle de Heald et Speight [47] pour déterminer l'efficacité de capture $Z_d^\theta(\sigma)$ d'un défaut ponctuel θ par une dislocation droite en présence d'un champ de contrainte macroscopique. Il généralise l'expression pour une orientation quelconque de la contrainte et obtient l'expression suivante :

$$Z_d^\theta(\sigma) = Z_d^\theta(0) \left[1 - \frac{3(1-\nu)V_\theta Z_{d,EID}^\theta}{2\pi\mu(1+\nu)\Delta V_\theta} \sigma (P_\theta(\varphi) + \Delta P_\theta \sin^2\varphi \cos^2\chi) \right] \quad \text{Eq. V.3.1}$$

Avec $Z_d^\theta(0)$ l'efficacité de capture d'un défaut ponctuel θ par une dislocation droite en l'absence de toute contrainte (§ V.1.2.2.1). $Z_{d,EID}^\theta$ est la composante de $Z_d^\theta(0)$ qui permet de rendre compte de la différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et la dislocation droite. Dans le modèle, le terme $Z_{d,EID}^i$ est égal à 1,1 pour les auto-interstitiels et $Z_{d,EID}^v$ à 1 pour les lacunes (Tableau V.3.1 (b)).

Dans l'équation Eq. V.3.1, ν est le coefficient de Poisson du matériau, μ son module de cisaillement, ΔV_θ le volume de relaxation du défaut ponctuel θ et V_θ le volume de la région affectée par la présence du défaut ponctuel θ dans la matrice (problème d'inclusion d'Eshelby). Les deux fonctions $P_\theta(\varphi)$ et ΔP_θ dépendent des propriétés élastiques du défaut ponctuel, considéré comme une inclusion d'Eshelby, et plus spécifiquement des deux coefficients $\Delta\mu_\theta/\mu$ et $\Delta K_\theta/K$ qui correspondent,

respectivement, à la variation du module de cisaillement et du module de compressibilité dans la région affectée par la présence du défaut ponctuel :

$$P_{\theta}(\varphi) = \frac{(1 - 2\nu)\Delta K_{\theta}}{6(1 - \nu)K + 2(1 + \nu)\Delta K_{\theta}} - \frac{5\Delta\mu_{\theta}[(1 + \nu) + 3\nu \cos^2\varphi]}{30(1 - \nu)\mu + 4(4 - 5\nu)\Delta\mu_{\theta}} \quad \text{Eq. V.3.2}$$

$$\Delta P_{\theta} = \frac{15\Delta\mu_{\theta}}{30(1 - \nu)\mu + 4(4 - 5\nu)\Delta\mu_{\theta}} \quad \text{Eq. V.3.3}$$

Nous considérons dans le modèle deux cas extrêmes d'orientation de la contrainte : le cas où la contrainte est parallèle à la normale au plan d'habitat de la boucle et le cas où elle lui est perpendiculaire. Nous appellerons, dans la suite du chapitre, orientation (1) l'orientation pour laquelle la contrainte est parallèle à la normale au plan d'habitat et orientation (2) celle où la contrainte est appliquée dans le plan d'habitat de la boucle de dislocation.

Pour obtenir l'efficacité d'absorption d'un défaut ponctuel par une boucle de dislocation soumise à une contrainte d'orientation de type (1) ou (2), il suffit d'intégrer $Z_d^{\theta}(\sigma)$ (Eq. V.3.1) le long de sa ligne. Nous obtenons ainsi les expressions suivantes de l'efficacité d'absorption des défauts ponctuels :

$$Z_{b,\theta}^{(1)}(\sigma) = Z_d^{\theta}\left(\sigma, \varphi = \frac{\pi}{2}, \chi = 0\right) \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \times Z_{n\theta,DAD}^{\theta} \quad \text{Eq. V.3.4}$$

$$Z_{b,\theta}^{(2)}(\sigma) = \left[\frac{1}{2\pi} \int_{\varphi=0}^{\varphi=2\pi} Z_d^{\theta}\left(\sigma, \varphi, \chi = \frac{\pi}{2}\right) d\varphi \right] \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \times Z_{n\theta,DAD}^{\theta} \quad \text{Eq. V.3.5}$$

Après intégration, nous montrons que l'efficacité d'absorption d'un défaut ponctuel θ par une boucle de dislocation soumise à une contrainte d'orientation de type (2) s'écrit simplement comme suit :

$$Z_{b,\theta}^{(2)}(\sigma) = Z_d^{\theta}\left(\sigma, \varphi = \frac{\pi}{4}, \chi = \frac{\pi}{2}\right) \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}; 1 \right] \times Z_{n\theta,DAD}^{\theta} \quad \text{Eq. V.3.6}$$

Dans les équations Eq. V.3.4, Eq. V.3.5 et Eq. V.3.6, $Z_{n\theta,DAD}^{\theta}$ représente la composante d'efficacité d'absorption des défauts par la boucle de dislocation induite par la différence d'anisotropie de diffusion (DAD) entre les SIAs et les lacunes. Ce terme d'efficacité a été défini dans la partie V.1.2.1.1. Selon le mécanisme SIPA, la contrainte externe ne modifie que l'interaction élastique entre les défauts ponctuels et la boucle de dislocation (ou la dislocation) (§ I.3.2.2.1). Le terme $Z_{n\theta,DAD}^{\theta}$ ne varie donc pas en présence d'un champ de contrainte macroscopique et est déterminé par l'équation Eq. V.1.24 pour une boucle prismatique $\langle a \rangle$ et par l'équation Eq. V.1.25 pour une boucle basale à composante $\langle c \rangle$.

Il serait possible d'envisager également un mécanisme où la contrainte modifie l'anisotropie de diffusion des défauts ponctuels. Ce phénomène, appelé élasto-diffusion [57], est à l'origine du modèle SIPA-DAD proposé par Woo. Cependant, les simulations en *ab-initio* (communication personnelle, C.Varvenne) tendent à montrer que l'amplitude de cet effet est faible pour des niveaux de contrainte de l'ordre de 100 MPa.

La simulation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles de dislocation dans le modèle de dynamique d'amas introduit de nouveaux paramètres d'entrée : amplitude de la contrainte

appliquée, type d'orientation de la contrainte ((1) ou (2)), paramètres élastiques du matériau, ν et μ et ceux des défauts ponctuels V_θ , ΔV_θ , $\Delta K_\theta/K$ et $\Delta\mu_\theta/\mu$.

V.3.2.2 Modélisation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions sous contrainte

La modélisation de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions sous contrainte requiert la connaissance des paramètres élastiques des défauts ponctuels, considérés comme des inclusions sphériques de propriétés élastiques différentes de celles de la matrice (problème d'inclusion d'Eshelby), dans le modèle de Heald et Speight [47] et dans l'approche de Woo [56].

Pour les volumes de relaxation des auto-interstitiels et des lacunes, nous disposons de valeurs expérimentales [58]. En revanche, les autres paramètres élastiques V_θ , $\Delta K_\theta/K$ et $\Delta\mu_\theta/\mu$ ne sont pas connus pour le zirconium. En vue de déterminer ces coefficients, des approximations ont été faites sur la base des données de Wolfer [59]. Celui-ci attribue un module de cisaillement et de compressibilité nul à la lacune, donnant ainsi la valeur de -1 aux coefficients $\Delta\mu_v/\mu$ et $\Delta K_v/K$. De plus, nous associons aux lacunes un volume V_v égal à V_{atm} . A partir de ces paramètres, il est possible de calculer les polarisabilités de cisaillement et de compressibilité de la lacune et de vérifier si elles sont du même ordre de grandeur que celles obtenues pour d'autres matériaux. La polarisabilité de cisaillement α_θ^μ et de compressibilité α_θ^K du défaut ponctuel θ s'écrivent sous la forme suivante [50], [59] :

$$\alpha_\theta^\mu = -\mu V_\theta \frac{15 \Delta\mu_\theta(1-\nu)}{15(1-\nu)\mu + 2(4-5\nu)\Delta\mu_\theta} \quad \text{Eq. V.3.7}$$

$$\alpha_\theta^K = -K V_\theta \frac{3 \Delta K_\theta(1-\nu)}{3(1-\nu)K + (1+\nu)\Delta K_\theta} \quad \text{Eq. V.3.8}$$

En prenant un module de Young du zirconium de 80 GPa à 300°C et un coefficient de Poisson de 0,41 [60], la polarisabilité de cisaillement de la lacune α_v^μ vaut 7,35 eV et la polarisabilité de compressibilité α_v^K 109 eV. La comparaison de ces valeurs à celles données par Wolfer [59] pour des matériaux comme l'aluminium, le cuivre ou le molybdène montre qu'un bon ordre de grandeur est obtenu pour α_v^μ et α_v^K . α_v^K apparaît, toutefois, un peu élevé par rapport aux valeurs « standards », par exemple pour le molybdène la polarisabilité de compressibilité n'est que de 65,2 eV.

Pour les auto-interstitiels, l'approche est un peu différente. Nous fixons les polarisabilités de cisaillement et de compressibilité à des valeurs d'ordre de grandeur commun à plusieurs matériaux [59] et nous déterminons, à partir des équations Eq. V.3.7 et Eq. V.3.8, le volume V_i et le coefficient $\Delta K_i/K$. Ainsi, une polarisabilité α_i^μ de 150 eV [59] donne au volume V_i de la région affectée par la présence de l'auto-interstitiel la valeur de 20,4 V_{atm} (Eq. V.3.7). En considérant une polarisabilité de compressibilité α_i^K de -15 eV [59], le coefficient $\Delta K_i/K$ vaut $3,45 \times 10^{-2}$ (Eq. V.3.8). Par ailleurs, comme pour la lacune, le module de cisaillement de l'auto-interstitiel est pris nul, d'où un coefficient $\Delta\mu_i/\mu$ de -1.

L'ensemble des paramètres d'entrée pour la simulation de l'effet de la contrainte dans le modèle de dynamique d'amas est regroupé dans le Tableau V.3.4. Nous discuterons par la suite la sensibilité des résultats aux coefficients élastiques $\Delta K_\theta/K$ et $\Delta\mu_\theta/\mu$ des défauts ponctuels.

Une fois ce jeu de paramètres introduit dans le modèle de dynamique d'amas, nous simulons l'effet d'application d'une contrainte de 100 ou de 150 MPa (niveaux de contrainte similaires à ceux appliqués expérimentalement, § IV.2.2.1) et d'orientation de type (1) ou (2) vis-à-vis des boucles à composante $\langle c \rangle$ sur la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux ions à 300°C (Tableau V.3.1 et Tableau V.3.2).

Tableau V.3.4: Valeurs fixées des paramètres d'entrée pour la simulation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Paramètres d'entrée pour la simulation de l'effet de la contrainte	
Coefficient de Poisson	$\nu = 0,41$
Module de cisaillement (GPa)	$\mu = 28$
Volume de relaxation des défauts ponctuels	$\Delta V_i = 0,6 V_{atm}$ $\Delta V_v = -0,1 V_{atm}$
Volume de la région affectée par la présence des défauts ponctuels	$V_i = 20,4 V_{atm}$ $V_v = V_{atm}$
Variation du module de cisaillement des défauts ponctuels / matrice	$\Delta\mu_i/\mu = -1$ $\Delta\mu_v/\mu = -1$
Variation du module de compressibilité des défauts ponctuels / matrice	$\Delta K_i/K = 3,45 \times 10^{-2}$ $\Delta K_v/K = -1$

Dans le modèle de dynamique d'amas, la contrainte externe agit sur les biais et la microstructure des deux populations de boucles de dislocation, à la fois les boucles prismatiques $\langle a \rangle$ et les boucles basales à composante $\langle c \rangle$. Une contrainte de type (1) pour les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est de type (2) pour les boucles à composante $\langle c \rangle$, et inversement. Dans la suite, nous nous intéresserons uniquement aux résultats relatifs à l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Les termes « type (1) » et « type (2) » se réfèrent donc à l'orientation de la contrainte σ par rapport au plan d'habitat des boucles à composante $\langle c \rangle$.

La Figure V.3.5 représente l'évolution du biais d'interaction des auto-interstitiels avec les boucles à composante $\langle c \rangle$ en fonction de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes, notée $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ (Eq. IV.3.1). Comme prédit par le mécanisme SIPA (§ 1.3.2.2.1), le biais d'interaction des SIAs avec les boucles à composante $\langle c \rangle$ est diminué pour une contrainte de traction appliquée dans le plan d'habitat des boucles (orientation (2) pour laquelle $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est égale à $-\frac{1}{3}\sigma$) et est augmenté pour une contrainte de traction parallèle à la normale au plan d'habitat (orientation (1) pour laquelle $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ est égale à $\frac{2}{3}\sigma$). L'effet de la contrainte sur les biais d'interaction des SIAs par les boucles à composante $\langle c \rangle$ est d'autant plus marqué que le niveau de contrainte est élevé.

L'effet de la contrainte sur le biais d'interaction des défauts ponctuels avec les boucles à composante $\langle c \rangle$ et donc sur le flux net des auto-interstitiels et des lacunes est à l'origine de l'évolution de la microstructure des boucles sous contrainte. La Figure V.3.6 donne la distribution en taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ à la fin de l'irradiation correspondant à la dose de 7 dpaNRT, pour trois conditions de simulation différentes : à contrainte nulle, pour une contrainte de 150 MPa d'orientation (1) et une contrainte de 150 MPa d'orientation (2). Pour une orientation de type (1), l'augmentation de l'efficacité de capture des auto-interstitiels par les boucles à composante $\langle c \rangle$, de caractère lacunaire, conduit à la diminution de leur vitesse de croissance, la distribution en taille des boucles se décalant vers des tailles plus petites (\circ) par rapport à la distribution à contrainte nulle (\blacksquare). Inversement, la diminution du biais d'absorption des SIAs par les boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$ soumises à une contrainte de type (2) conduit à une augmentation de la vitesse de croissance de ces boucles et donc à un décalage de leur distribution vers des tailles plus grandes (\circ). Nous pouvons noter à partir de la Figure V.3.6 que la densité volumique totale des boucles à composante $\langle c \rangle$ est peu sensible à l'orientation de la contrainte appliquée. Pour confirmer ces résultats, nous examinons l'évolution du diamètre moyen, de la densité linéique et de la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes, $\sigma_D^{\langle c \rangle}$.

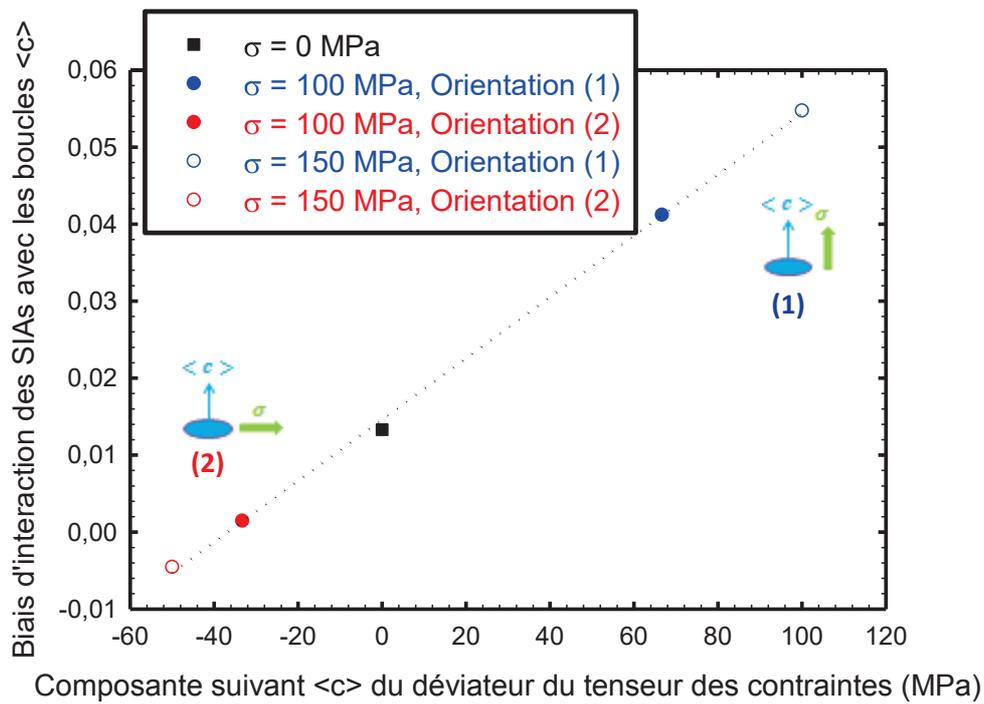


Figure V.3.5: Effet de la contrainte sur le biais d'interaction des auto-interstitiels avec les boucles à composante $\langle c \rangle$.

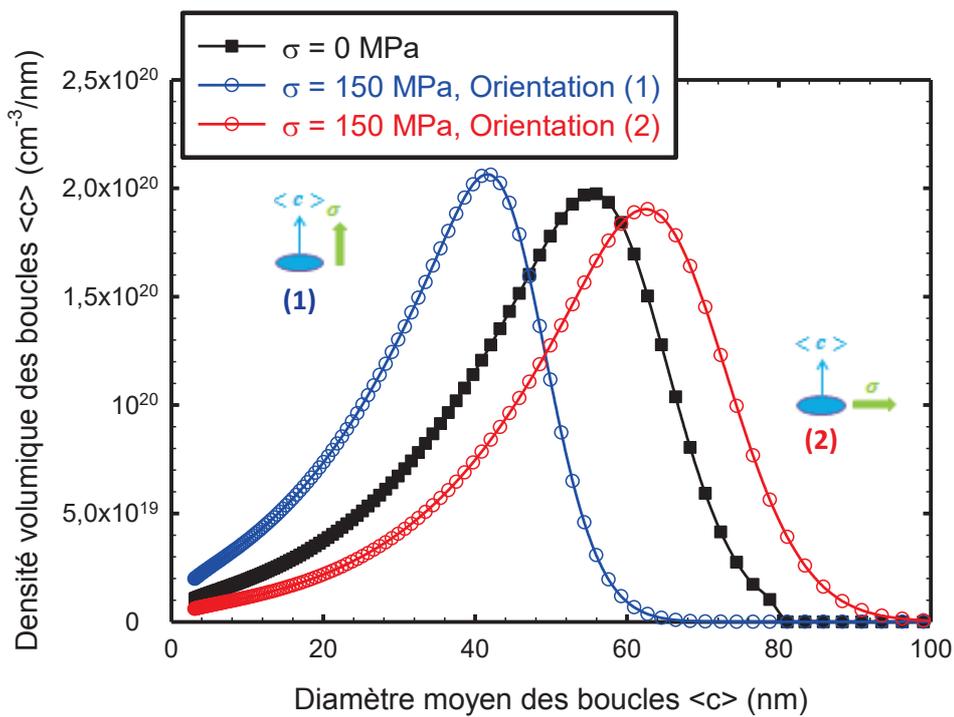


Figure V.3.6: Simulation en dynamique d'amas de l'effet de la contrainte sur la distribution en taille des boucles à composante $\langle c \rangle$.

V.3. APPLICATION DU MODELE AUX IRRADIATIONS AUX IONS

Ces évolutions sont données dans la Figure V.3.7. Comme nous l'avons constaté précédemment sur la courbe de distribution en taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ (Figure V.3.6), la taille diminue pour une contrainte de type (1) et augmente pour une contrainte de type (2) et la densité volumique n'est que légèrement influencée par l'application de la contrainte. La densité linéique, quant à elle, dépend de l'orientation de la contrainte par rapport à l'axe $\langle c \rangle$ et évolue linéairement avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Les coefficients des régressions linéaires du diamètre moyen $\langle d \rangle$, de la densité linéique L_c et la densité volumique N_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes sont consignés dans le Tableau V.3.5.

Tableau V.3.5: Coefficients des évolutions linéaires du diamètre moyen et des densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$.

	Pente	Ordonnée à l'origine	Coefficient de corrélation
Diamètre moyen $\langle d \rangle$ (nm)	-0,13	49,23	0,99
Densité linéique L_c (cm⁻²)	$-5,68 \times 10^6$	$1,58 \times 10^9$	0,99
Densité volumique N_c (cm⁻³)	$-3,57 \times 10^{11}$	$3,19 \times 10^{14}$	0,89

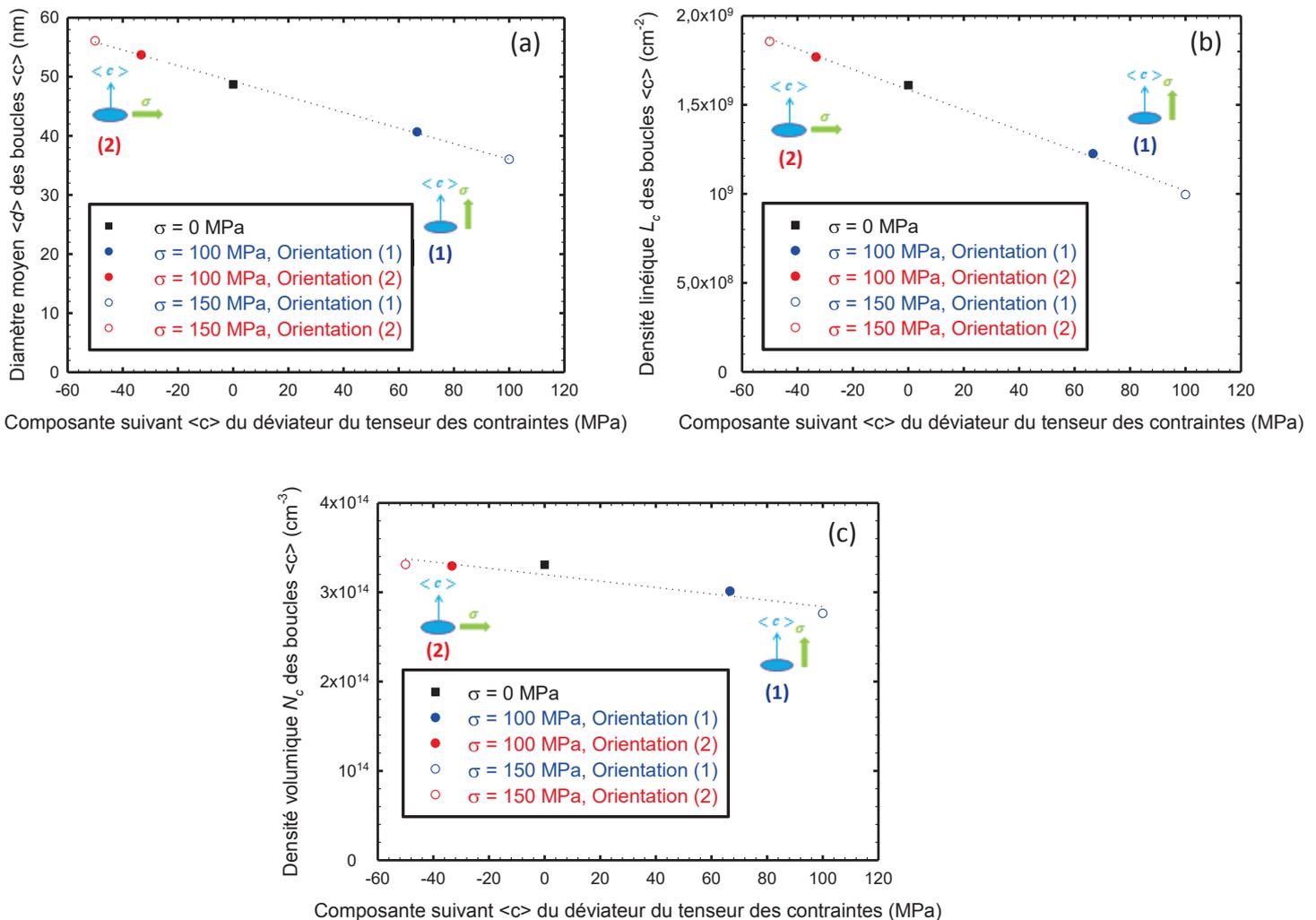


Figure V.3.7: Simulation en dynamique d'amas de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ – (a) évolution du diamètre moyen, (b) évolution de la densité linéique et (c) évolution de la densité volumique.

Nous avons adopté ici le même mode de représentation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ que celui utilisé pour l'étude expérimentale du chapitre 4 avec une évolution en fonction de la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. Ce mode de représentation est justifié par le mécanisme SIPA selon lequel la dépendance à l'orientation de la contrainte par rapport à la normale au plan d'habitat de la boucle de dislocation est donnée par la composante $Z_{b,\theta}(\sigma_D)$ définie en fonction de la contrainte déviatorique (σ_D). La composante $Z_{b,\theta}(\sigma_H)$ qui dépend de la contrainte hydrostatique (σ_D), quant à elle, ne varie pas avec l'orientation de la contrainte.

Il est possible d'évaluer, via des simulations du mécanisme SIPA introduit dans le modèle de dynamique d'amas, la contribution de chacune de ces deux composantes. D'après les équations Eq. V.3.1, Eq. V.3.2 et Eq. V.3.3, il suffit de prendre le coefficient $\Delta K_\theta/K$ nul pour annuler la composante $Z_{b,\theta}(\sigma_H)$. Le terme d'efficacité de capture des défauts ponctuels par la boucle de dislocation ne dépend plus que du déviateur du tenseur des contraintes et est égal à $Z_{b,\theta}(\sigma_D)$. La simulation par le modèle de dynamique d'amas du cas où $\Delta K_\theta/K$ est nul et la comparaison avec les efficacités de capture obtenues précédemment (jeu de paramètres du Tableau V.3.4) nous permet d'évaluer le rapport $Z_{b,\theta}(\sigma_H) / Z_{b,\theta}(\sigma_D)$ pour les deux orientations de contrainte (1) et (2) et pour une amplitude de 100 MPa. Les valeurs, regroupées dans le Tableau V.3.6, montrent que pour les deux types d'orientation de la contrainte par rapport à l'axe $\langle c \rangle$, nous avons $| Z_{b,\theta}(\sigma_H) / Z_{b,\theta}(\sigma_D) | < 1$. La contribution de la composante $Z_{b,\theta}(\sigma_H)$ est plus faible que celle de la composante $Z_{b,\theta}(\sigma_D)$. Pour les auto-interstitiels, $Z_{b,i}(\sigma_H) \ll Z_{b,i}(\sigma_D)$ et la composante dépendant de la contrainte hydrostatique peut être négligée. Pour les lacunes, $Z_{b,v}(\sigma_H) < Z_{b,v}(\sigma_D)$ mais la composante $Z_{b,v}(\sigma_H)$ ne peut être négligée devant $Z_{b,v}(\sigma_D)$. Par souci d'exactitude, nous conservons dans le modèle le formalisme dépendant de la contrainte totale, hydrostatique et déviatorique (Eq. V.3.1). Néanmoins, pour illustrer l'effet de l'orientation de la contrainte, nous représentons l'évolution de la microstructure avec la composante suivant la normale au plan d'habitat de la boucle de dislocation du déviateur du tenseur des contraintes.

Tableau V.3.6: Evaluation de la contribution de la composante $Z_{b,\theta}(\sigma_H)$ par rapport à $Z_{b,\theta}(\sigma_D)$ pour une contrainte de 100 MPa et d'orientation de type (1) ou (2).

$ Z_{b,\theta}(\sigma_H) / Z_{b,\theta}(\sigma_D) $	Valeur calculée en sortie du code CRESCENDO
$ Z_{b,i}^{(1)}(\sigma_H) / Z_{b,i}^{(1)}(\sigma_D) $	0,002
$ Z_{b,v}^{(1)}(\sigma_H) / Z_{b,v}^{(1)}(\sigma_D) $	0,31
$ Z_{b,i}^{(2)}(\sigma_H) / Z_{b,i}^{(2)}(\sigma_D) $	0,004
$ Z_{b,v}^{(2)}(\sigma_H) / Z_{b,v}^{(2)}(\sigma_D) $	0,62

Les polarisabilités de cisaillement et de compressibilité des défauts ponctuels ne sont pas connus pour le zirconium. Pour les auto-interstitiels, nous avons déterminé les paramètres d'entrée du modèle simulant l'effet de la contrainte à travers des valeurs standards de α_i^H et α_i^K . Nous proposons maintenant d'examiner la sensibilité de l'effet de la contrainte sur le diamètre et la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ à la polarisabilité de compressibilité et de cisaillement des auto-interstitiels.

Comme nous pouvons le constater sur la Figure V.3.8 (a) et la Figure V.3.8 (b), l'effet de la contrainte sur la taille et la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$, simulé par le modèle de dynamique d'amas, n'est pas sensible à la polarisabilité de compressibilité α_i^K des auto-interstitiels. Ce résultat vient confirmer le point souligné précédemment concernant la très faible contribution de la composante $Z_{b,i}(\sigma_H)$. En effet, la polarisabilité de compressibilité des SIAs n'intervient que dans le

terme d'efficacité de capture $Z_{b,i}(\sigma_H)$ ne dépendant pas de l'orientation de la contrainte, ceci via le coefficient $\Delta K_i/K$ (Eq. V.3.1 et Eq. V.3.2). Or, il a été montré que le terme $Z_{b,i}(\sigma_H)$ est négligeable par rapport à $Z_{b,i}(\sigma_D)$ (Tableau V.3.6). Il en découle un effet de contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ donné uniquement par la composante dépendant du déviateur du tenseur des contraintes et donc une insensibilité au terme $\Delta K_i/K$ et α_i^K . Au contraire, la modélisation de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ est sensible à la polarisabilité de cisaillement α_i^H qui intervient dans le terme $Z_{b,i}(\sigma_D)$ à travers les coefficients élastiques V_i et $\Delta\mu_i/\mu$. Il est important de bien noter que compte tenu de la démarche adoptée pour la détermination des paramètres d'entrée du modèle de dynamique d'amas, $\Delta\mu_i/\mu$ est fixé à -1 et le choix de α_i^H définit le coefficient V_i . L'étude de sensibilité du modèle à la polarisabilité α_i^H revient donc à une analyse de l'effet du paramètre V_i . Cette sensibilité est telle qu'une augmentation de α_i^H de 50 eV induit une diminution d'environ 30% de la pente d'évolution du diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ et de 25% pour l'évolution de la densité linéique.

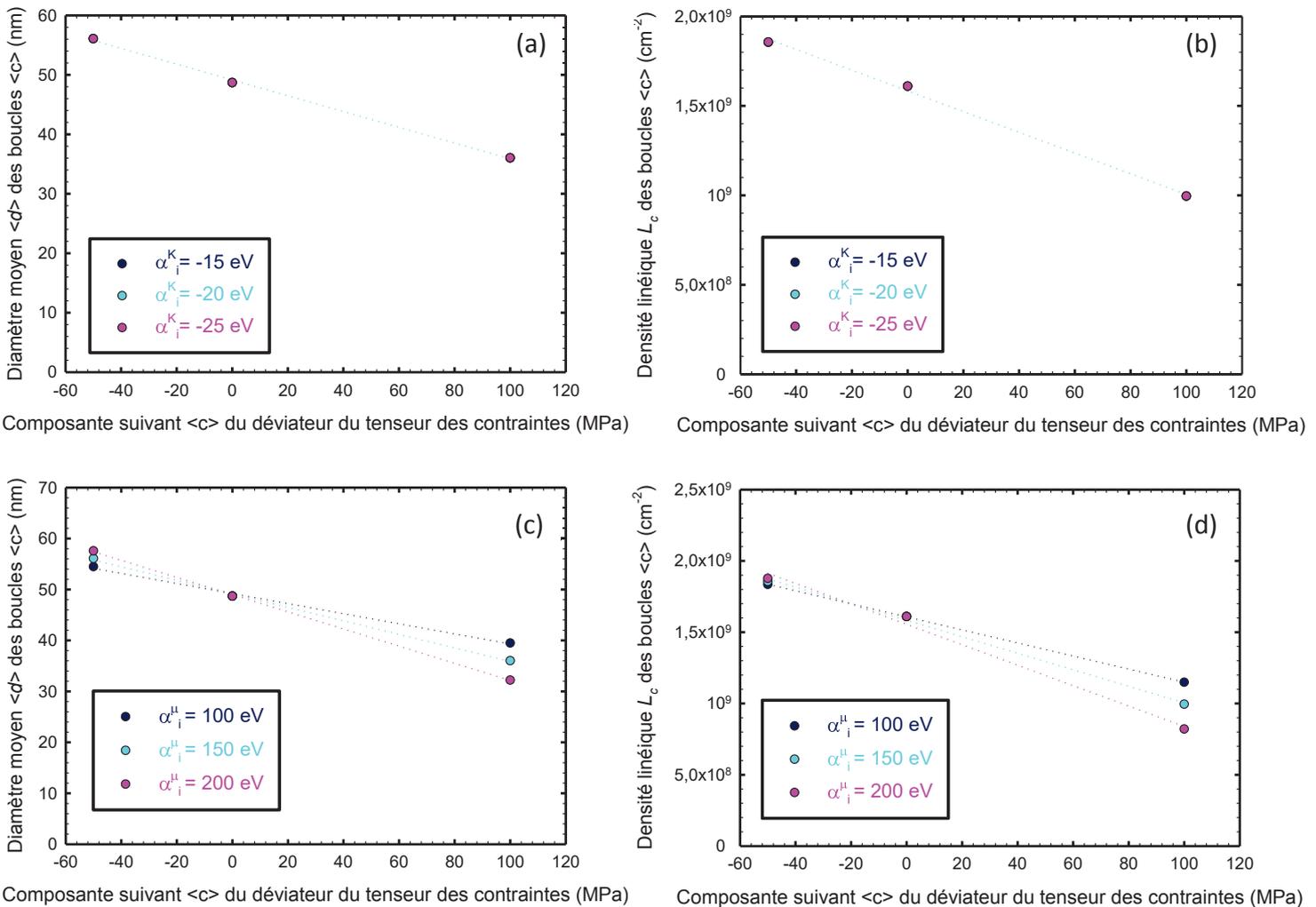


Figure V.3.8: Sensibilité de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à la polarisabilité de compressibilité α_i^K (a) et (b) et la polarisabilité de cisaillement α_i^H (c) et (d) des auto-interstitiels pour une contrainte de 150 MPa – (a) évolution du diamètre moyen, α_i^H fixé à 150 eV, (b) évolution de la densité linéique, α_i^H fixé à 150 eV, (c) évolution du diamètre moyen, α_i^K fixé à -15 eV et (d) évolution de la densité linéique, α_i^K fixé à -15 eV.

Intéressons-nous maintenant à la confrontation des prédictions du modèle de dynamique d'amas aux observations microscopiques portant sur l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4. Il ressort de la comparaison des courbes de la Figure V.3.7 et de la Figure IV.3.8 un accord des tendances expérimentales et simulées par le modèle de dynamique d'amas avec le mécanisme SIPA et une compatibilité des résultats des simulations avec ceux issus des expériences d'irradiation sous chargement mécanique. En ce qui concerne la densité volumique N_c des boucles à composante $\langle c \rangle$, modèle et expérience prédisent un faible effet de la contrainte avec des pentes d'évolution avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ très proches (Tableau V.3.5 et Tableau IV.3.2). Pour le diamètre et la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$, l'effet simulé par le modèle de dynamique d'amas est un peu plus élevé que celui reporté par les campagnes d'irradiation (Tableau V.3.5 et Tableau IV.3.2). L'effet plus faible de la contrainte, constaté expérimentalement, serait dû à la dispersion grain à grain qui peut trouver son origine dans les hétérogénéités intergranulaires induites par l'effet du voisinage ou les contraintes internes et la relaxation sous irradiation qui se produit différemment pour des grains d'orientations différentes. Les hétérogénéités de contrainte et la dispersion grain à grain ne sont pas intégrées dans le modèle de dynamique d'amas qui s'appuie sur une approximation homogène du milieu simulé avec absence de tout gradient de contrainte.

V.4 Application du modèle à la prédiction de la croissance sous irradiation du zirconium

L'essentiel de ce chapitre a été consacré à la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de l'évolution microstructurale du zirconium et de son alliage, le Zircaloy-4, sous irradiation aux électrons et aux ions. Moyennant une démarche d'identification des paramètres physiques et de calibration sur la base des calculs atomistiques et des données expérimentales, nous sommes parvenus à valider le modèle de dynamique d'amas et à l'appliquer par la suite à l'étude de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. A présent, il est intéressant d'évaluer la déformation sous irradiation prédite par le modèle, tel qu'il a été calibré précédemment. Ainsi, dans cette partie, nous nous intéressons, en particulier, à la croissance sous irradiation des monocristaux et des polycristaux de zirconium pur. Les résultats des simulations sont confrontés aux déformations de croissance sous irradiation aux neutrons des monocristaux et des polycristaux de zirconium Van Arkel (« iodide zirconium ») mesurées expérimentalement.

V.4.1 Calcul de la déformation de croissance sous irradiation dans le modèle de dynamique d'amas

La déformation sous irradiation des monocristaux et des polycristaux de zirconium est associée à l'élimination des défauts ponctuels sur les différents puits microstructuraux. Dans le but de comparer les déformations obtenues par le modèle de dynamique d'amas à celles recensées dans la littérature, nous considérons le cas des irradiations aux neutrons, pour lesquelles l'effet des surfaces comme puits de capture des défauts ponctuels est négligeable. L'élimination des auto-interstitiels et des lacunes s'effectuent principalement sur les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et les boucles à composante $\langle c \rangle$ ainsi que les dislocations droites de type $\langle a \rangle$. Pour les polycristaux, la déformation de croissance peut être également attribuée à l'absorption des défauts ponctuels par les joints de grains.

Nous proposons dans ce paragraphe de détailler les expressions des contributions de chaque puits (boucles de dislocations, dislocations droites et joints de grains) à la déformation de croissance suivant les axes cristallographiques $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ et de donner le calcul de la déformation de croissance totale suivant une direction macroscopique donnée.

Dans le modèle de dynamique d'amas, les boucles de dislocations $\langle a \rangle$ sont considérées toutes comme purement coins (§ V.1.2.1.1). Ces boucles prismatiques, de nature interstitielle ou lacunaire, induisent une déformation de croissance dans la direction de leur vecteur de Burgers et donc parallèlement aux axes cristallographiques $\langle a \rangle$. La déformation associée à l'élimination des défauts ponctuels par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ s'obtient à partir de la quantité totale par unité de volume $Q_i^{b\langle a \rangle}$ des auto-interstitiels et $Q_v^{b\langle a \rangle}$ des lacunes présentes dans les boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires, respectivement [61] :

$$\varepsilon_a^{b\langle a \rangle} = \frac{1}{2} (Q_i^{b\langle a \rangle} - Q_v^{b\langle a \rangle}) V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.1}$$

$Q_i^b - Q_v^b$ représente la quantité nette de SIAs contenus dans les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Le coefficient $\frac{1}{2}$ permet de prendre en compte les deux directions orthogonales dans le plan basal.

De manière analogue, la formation et la croissance des boucles basales lacunaires à composante $\langle c \rangle$ conduit à une déformation suivant la direction $\langle c \rangle$ qui s'écrit comme suit :

$$\varepsilon_c^{b\langle c \rangle} = -Q_v^{bc} V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.2}$$

avec Q_v^{bc} la quantité par unité de volume de lacunes contenues dans les boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$.

Les déformations induites par l'élimination des SIAs et des lacunes sur les lignes de dislocation et les joints de grains peuvent être calculées à partir des flux de ces défauts ponctuels vers ces puits.

Considérons une densité ρ de dislocations droites de type coin et de vecteur de Burgers $\langle a \rangle$, présentes dans les matériaux recristallisés. L'absorption des défauts ponctuels par ces dislocations conduit à leur montée et à une déformation suivant la direction cristallographique $\langle a \rangle$ qui s'exprime de la manière suivante :

$$\varepsilon_a^{d\langle a \rangle} = \frac{1}{2} (J_i^{d\langle a \rangle} - J_v^{d\langle a \rangle}) V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.3}$$

$J_i^{d\langle a \rangle}$ est le flux par unité de volume des auto-interstitiels allant aux dislocations $\langle a \rangle$ et $J_v^{d\langle a \rangle}$ le flux par unité de volume des lacunes allant à ces dislocations.

Deux types de joints de grains sont à distinguer suivant leur orientation cristallographique : les joints de grains prismatiques (parallèles aux plans prismatiques) et les joints de grains basaux (parallèles aux plans de base). L'anisotropie de diffusion des SIAs, qui migrent plus rapidement dans le plan basal que suivant la direction $\langle c \rangle$, est telle que les joints prismatiques sont des puits biaisés en faveur des auto-interstitiels et inversement les joints basaux constituent des puits préférentiels pour les lacunes. Le flux total d'un défaut ponctuel θ vers l'ensemble des joints de grains est défini à partir de l'équation Eq. V.1.43, avec la considération d'un piégeage en volume des auto-interstitiels et des lacunes prépondérant devant celui par les surfaces. De ce flux total, il est possible de distinguer le flux des défauts ponctuels aux joints de type prismatique ou basal et de déduire les déformations de croissance associées à ces puits. En effet, le piégeage des défauts ponctuels par les joints de grains prismatiques conduit à une déformation suivant les directions $\langle a \rangle$, alors que les joints de grains basaux contribuent à la déformation du monocristal dans le plan basal :

$$\varepsilon_a^{JDG,p} = \left(\frac{1}{2+p^3} J_i^{JDG} - \frac{1}{3} J_v^{JDG} \right) V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.4}$$

$$\varepsilon_c^{JDG,b} = \left(\frac{p^3}{2+p^3} J_i^{JDG} - \frac{1}{3} J_v^{JDG} \right) V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.5}$$

Dans les équations, Eq. V.4.4 et Eq. V.4.5, J_i^{JDG} est le flux total des auto-interstitiels vers tous les types de joints de grains et J_v^{JDG} celui des lacunes.

La déformation de croissance d'un monocristal de zirconium recristallisé suivant ses directions cristallographiques $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ s'obtient par la sommation des contributions des différents puits d'absorption des défauts ponctuels le constituant, à savoir les dislocations de type $\langle a \rangle$, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires, les boucles à composante $\langle c \rangle$ et les joints de grains. Ainsi, nous écrivons les déformations totales ε_a et ε_c :

$$\varepsilon_a = \left[\frac{1}{2} (Q_i^{b\langle a \rangle} - Q_v^{b\langle a \rangle}) + \frac{1}{2} (J_i^{d\langle a \rangle} - J_v^{d\langle a \rangle}) + \left(\frac{1}{2+p^3} J_i^{JDG} - \frac{1}{3} J_v^{JDG} \right) \right] V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.6}$$

$$\varepsilon_c = \left[-Q_v^{bc} + \left(\frac{p^3}{2+p^3} J_i^{JDG} - \frac{1}{3} J_v^{JDG} \right) \right] V_{atm} \quad \text{Eq. V.4.7}$$

Pour déduire la déformation suivant une direction macroscopique d d'un tube, nous introduisons l'angle φ défini comme étant l'angle entre cette direction d et l'axe $\langle c \rangle$ du monocristal. La déformation d'un monocristal de zirconium suivant la direction macroscopique d s'exprime alors comme suit :

$$\varepsilon_d^{crystal} = \varepsilon_a \sin^2 \varphi + \varepsilon_c \cos^2 \varphi \quad \text{Eq. V.4.8}$$

Un grain dont l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ est éloigné de la direction d (φ proche de 90°) est dit de type $\langle a \rangle$. Et, inversement, un monocristal dont l'axe $\langle c \rangle$ est proche de la direction d (φ proche de 0°) est dit de type $\langle c \rangle$.

La variation dimensionnelle suivant la direction macroscopique d induite par la croissance sous irradiation d'un polycristal de zirconium s'exprime à partir des déformations ε_a et ε_c et du facteur de Kearns f_d :

$$\varepsilon_d^{polycrystal} = f_d \varepsilon_c + (1 - f_d) \varepsilon_a \quad \text{Eq. V.4.9}$$

V.4.2 Simulation de la croissance sous irradiation et confrontation aux données expérimentales de la littérature

Nous présentons, dans ce qui suit, trois exemples d'application du modèle de dynamique d'amas à la prédiction de la déformation de croissance sous irradiation. Nous commençons, tout d'abord, par la simulation de la croissance sous irradiation aux neutrons d'un monocristal de zirconium d'orientation cristallographique de type $\langle a \rangle$ (φ proche de 90°) ou $\langle c \rangle$ (φ proche de 0°). Nous passons, ensuite au zirconium polycristallin avec une attention portée, plus particulièrement, à l'effet de la taille des grains et à la contribution de la déformation induite par l'absorption des défauts ponctuels par les joints de grains à la déformation totale de croissance libre.

V.4.2.1 Croissance sous irradiation du monocristal de zirconium : simulation par le modèle de dynamique d'amas – expérience

Considérons comme système de simulation un monocristal de zirconium pur de taille suffisamment grande ($2d = 1$ cm) pour négliger l'effet des surfaces comme puits de piégeage des défauts ponctuels. Dans le but d'établir une comparaison entre les déformations obtenues par les simulations

V.4. APPLICATION DU MODELE A LA PREDICTION DE LA CROISSANCE SOUS IRRADIATION DU ZIRCONIUM

et celles données par Rogerson *et al.* [62], [63] (Figure I.3.1), nous introduisons dans le modèle les mêmes conditions expérimentales, à savoir des irradiations neutroniques de monocristaux recuits d'orientation de type $\langle a \rangle$ ou $\langle c \rangle$, effectuées à une température de 280°C. Le taux de création de dommage est pris égal à 10^{-7} dpaNRT/s, la densité des dislocations droites à 10^8 cm⁻² et l'angle d'orientation φ à 79° pour un monocristal de zirconium Van Arkel de type $\langle a \rangle$ et à 26° pour celui de type $\langle c \rangle$ [16] avec comme direction macroscopique d la direction axiale d'un tube de zirconium. Pour la simulation de ce système de zirconium pur, les paramètres énergétiques et les facteurs pré-exponentiels de diffusion sont fixés aux valeurs définies dans le modèle identifié et calibré sur les irradiations aux électrons du zirconium pur (§ V.2.2.1). Concernant le facteur η d'efficacité de production des paires de Frenkel, le type et la proportion des amas interstitiels et lacunaires formés dans les cascades de déplacements, nous conservons, par souci de simplification, les mêmes données obtenues à l'issue de la calibration du modèle aux irradiations aux ions. Les valeurs de ces paramètres d'entrée sont rappelées dans le Tableau V.4.1.

Tableau V.4.1: Paramètres fixés au cours des simulations de la croissance sous irradiation du zirconium pur irradié aux neutrons – (a) paramètres définissant le système de simulation, (b) paramètres caractérisant le matériau, (c) paramètres énergétiques et paramètres de diffusion et (d) paramètres introduisant l'effet des cascades de déplacements.

Système de simulation		Paramètres matériau	
Système	Monocristal de zirconium pur	Paramètres du réseau (nm)	$a = 0,323$ $c = 0,515$
Taille (cm)	1	Densité des dislocations ρ (cm⁻²)	10^8
Orientation cristalline φ (°)	79 ou 26°	Vecteur de Burgers des boucles $\langle a \rangle$ (nm)	$b = a = 0,323$
Particules incidentes	Neutrons	Vecteur de Burgers des boucles à composante $\langle c \rangle$ (nm)	$b = \sqrt{(c/2)^2 + (a\sqrt{3}/3)^2}$ $= 0,318$
Taux de création de défauts (dpaNRT/s)	10^{-7}	Efficacité d'absorption des lacunes par les dislocations droites Z_d^v	1
Temps d'irradiation (s)	2×10^8	Efficacité d'absorption des SIAs par les dislocations droites Z_d^i	1,1
Dose d'irradiation (dpaNRT)	20		
Température d'irradiation (°C)	280		

(a)

(b)

Paramètres énergétiques et paramètres de diffusion	
Energie de formation des défauts ponctuels (eV)	$E_i^f = 2,88$ $E_v^f = 2,07$
Energie de migration des défauts ponctuels (eV)	$E_{ia}^m = 0,25$ et $E_{ic}^m = 0,29$ $E_v^m = 0,65$
Energie de liaison des petits amas (eV)	$E_{2i}^B = 0,8$ $E_{2v,a}^B = 0,188$ et $E_{3v,a}^B = 0,388$ $E_{2v,c}^B = 0,106$ et $E_{3v,c}^B = 0,448$
Facteur de forme f des boucles $\langle a \rangle$	1,1
Facteur de forme f des boucles à composante $\langle c \rangle$	1,13
Rayon de cœur de la dislocation r_c pour les boucles $\langle a \rangle$	$0,23 a$

Rayon de cœur de la dislocation r_c pour les boucles $\langle c \rangle$	$0,32 a$
Energie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$ (mJ/m ²)	$\gamma = 147$
Coefficient élastique \bar{K} (eV/Å)	$0,25$
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des SIAs (cm ² /s)	$D_{ia}^0 = 1,57 \times 10^{-6}$ $D_{ic}^0 = 1 \times 10^{-6}$
Facteur pré-exponentiel du coefficient de diffusion des lacunes (cm ² /s)	$D_v^0 = 2,8 \times 10^{-6}$

(c)

Paramètres considérant l'effet des cascades de déplacements	
Facteur d'efficacité de production des paires de Frenkel	$\eta = 0,03$
Formation des amas lacunaires précurseurs des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans les cascades	$n = 9$ $f_n = 1,3 \times 10^{-4}$
Formation des amas lacunaires précurseurs des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires dans les cascades	$n = 9$ $f_n = 1,3 \times 10^{-4}$
Formation des amas interstitiels précurseurs des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles dans les cascades	$n = 6$ $f_n = 0,1$

(d)

Les simulations par le modèle de dynamique d'amas mettent en évidence un allongement du monocristal de zirconium de type $\langle a \rangle$ et une contraction de celui de type $\langle c \rangle$ (Figure V.4.1). Le modèle permet donc de reproduire le comportement en croissance caractéristique des monocristaux de zirconium. En effet, pour une orientation cristalline de type $\langle a \rangle$, l'axe $\langle c \rangle$ est éloigné de la direction macroscopique d , le long de laquelle la déformation de croissance est calculée. Cette direction d relève donc principalement la déformation suivant l'axe $\langle a \rangle$ qui correspond à un allongement. En revanche, pour un monocristal d'orientation de type $\langle c \rangle$, l'angle φ est proche de 0° et la déformation suivant la direction d est principalement due au raccourcissement du monocristal le long de l'axe $\langle c \rangle$ (Eq. V.4.8). Bien qu'à des doses d'irradiation élevées, les résultats des simulations semblent sous-estimer la déformation du monocristal de zirconium de type $\langle a \rangle$, les prédictions du modèle restent cohérentes avec les points expérimentaux (Figure V.4.1). Toutefois, les trois stades d'évolution caractéristiques de la croissance du cristal de type $\langle a \rangle$ (§ I.3.1.1.1) ne sont pas clairement identifiés dans la courbe obtenue par le modèle de dynamique d'amas. Il n'en demeure pas moins que les résultats des simulations reproduisent de façon satisfaisante le comportement en croissance et les déformations associées des monocristaux de zirconium irradiés aux neutrons, ceci en dépit de l'approximation de l'effet des cascades générées par les neutrons (Tableau V.4.1 (d)). Nous tenons à bien préciser que pour l'étude du comportement en croissance libre, aucun paramètre du modèle n'a été identifié.

Il est important de signaler également que le modèle vérifie bien la conservation de volume, la déformation ε_c étant égale à $-2\varepsilon_a$. Ce point a été souligné par Rogerson et Carpenter [62]–[64] mais ne semble pas très évident à la vue de leurs données expérimentales reportées dans la Figure V.4.1 et la Figure I.3.1.

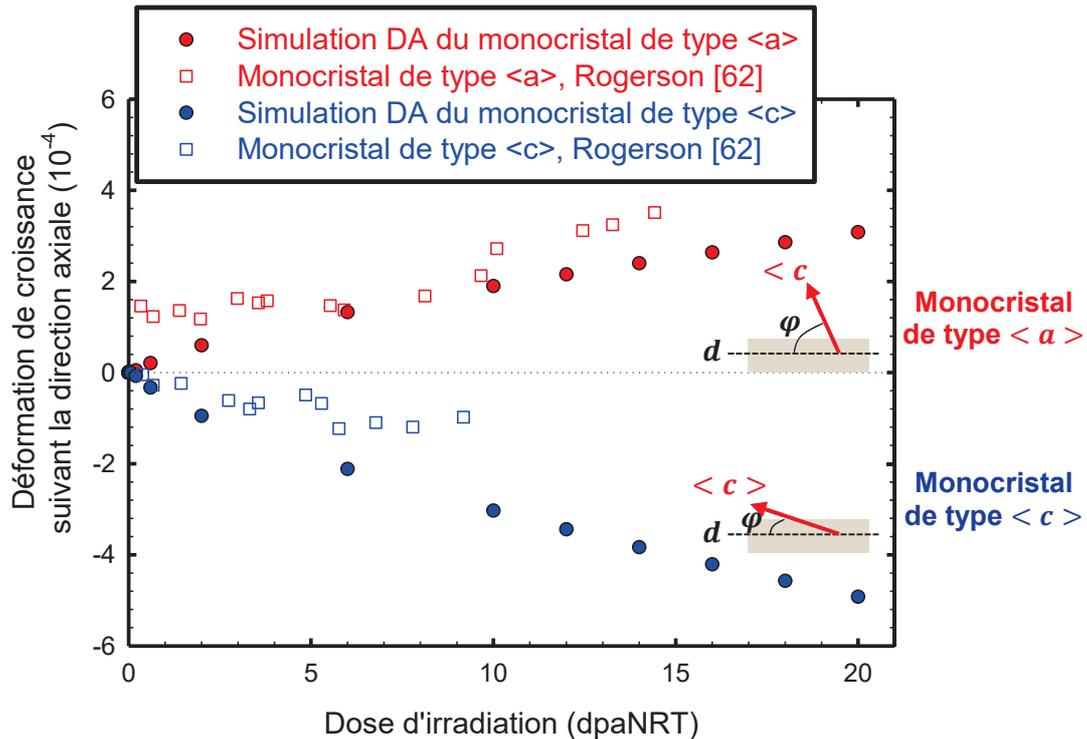


Figure V.4.1: Croissance sous irradiation aux neutrons à 280°C de monocristaux de zirconium pur d'orientation de type <a> ou <c> : simulation par le modèle de dynamique d'amas et expérience [62].

Le modèle de dynamique d'amas nous permet de connaître la contribution de chaque puits de capture des défauts ponctuels à la déformation de croissance suivant les axes cristallographiques <a> et <c> des grains (Figure V.4.2). Ainsi, nous constatons que l'allongement du monocristal suivant les directions <a> est dû principalement aux flux net des auto-interstitiels vers les boucles de dislocation <a>. Les dislocations droites <a>, de faible densité dans les monocristaux recuits, ne contribuent que faiblement à la déformation de croissance. Comme nous pouvons le noter sur la Figure V.4.2 (a), la déformation suivant <a> résultante de la montée des dislocations <a> est très faible par rapport à celle induite par les boucles de dislocation <a>. Par conservation de volume, l'allongement du cristal dans le plan basal est compensé par son raccourcissement suivant la direction <c> qui résulte de la formation et de la croissance des boucles lacunaires à composante <c>. Les deux puits dominants dans le monocristal de zirconium recuit, simulé par le modèle de dynamique d'amas, sont donc les boucles de dislocations <a> et les boucles à composante <c>, l'effet des joints de grains dans un système formé par un cristal de grande taille étant négligeable (Figure V.4.2). Nous rappelons que le modèle, dans sa version actuelle, n'est pas en mesure de reproduire la dose d'incubation des boucles à composante <c> (§ V.2.2.2). Celles-ci se forment dès le début de l'irradiation et constituent un puits dominant d'absorption des lacunes et conduisent à elle seules à la déformation du monocristal suivant <c>.

Les simulations attestent de l'importance de l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels dans le processus d'élimination des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure : les SIAs s'annihilent principalement sur les boucles prismatiques <a> interstitielles et dans une moindre mesure sur les dislocations coins de type <a> alors que les lacunes sont éliminées par les boucles basales à composante <c>.

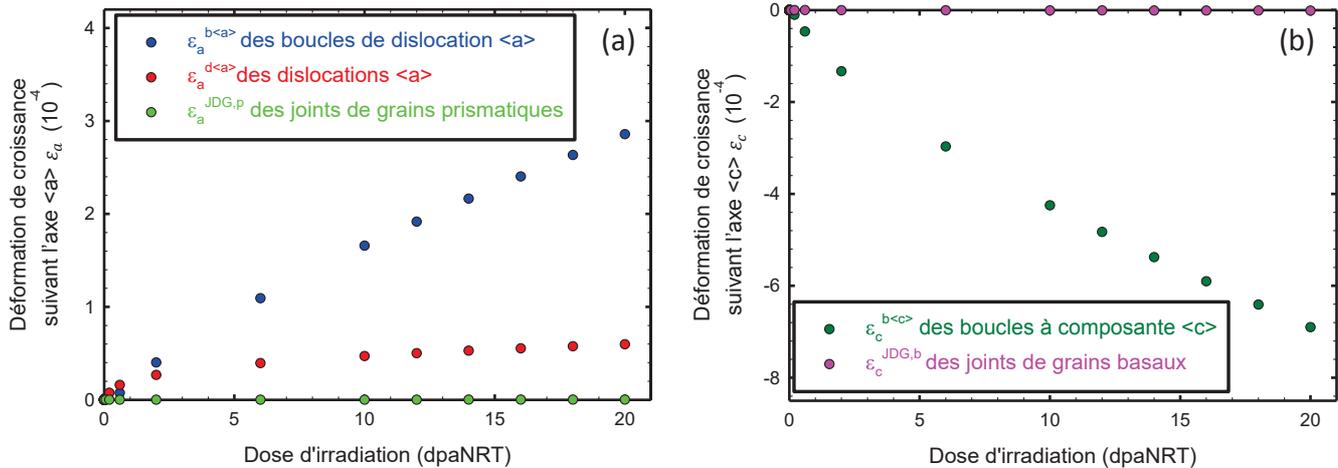


Figure V.4.2: Contribution des différents puits à la déformation de croissance sous irradiation aux neutrons à 280°C d'un monocristal de zirconium recuit – (a) suivant l'axe cristallographique < a > et (b) suivant l'axe cristallographique < c >.

V.4.2.2 Croissance sous irradiation du zirconium polycristallin : simulation par le modèle de dynamique d'amas - expérience

En vue d'étudier l'effet de la texture cristallographique et de la taille des grains, nous proposons de simuler dans un premier temps le comportement en croissance sous irradiation aux neutrons de trois polycristaux de zirconium pur recristallisé : le premier présente des grains de taille de 5 μm et un facteur de Kearns f_l suivant la direction longitudinale du tube de 0,16, le deuxième contient des grains de même taille mais avec une orientation cristallographique différente et un facteur de Kearns f_l de 0,4 et enfin le troisième polycristal se caractérise par des grains de 40 μm de diamètre et un f_l de 0,4. Le comportement en croissance de ces matériaux a été étudié expérimentalement par Rogerson [62]. Les principaux résultats et les conclusions tirées ont été décrits dans la partie I.3.1.1.2 et seront comparés aux simulations en dynamique d'amas. Pour ce faire, nous fixons les paramètres d'entrée du modèle aux valeurs données dans le Tableau V.4.1, à l'exception des deux paramètres définissant la taille et l'orientation cristallographique des grains. Pour le calcul de la déformation suivant la direction axiale du tube, nous nous appuyons sur l'équation Eq. V.4.9 introduite dans le modèle.

Le premier polycristal de facteur de Kearns $f_l = 0,16$ se caractérise par une faible proportion de grains avec leur axe < c > proche de la direction axiale du tube. Pour ce matériau, les cristaux sont orientés donc majoritairement avec les axes cristallographiques < a > suivant la direction axiale, induisant ainsi une déformation de croissance positive le long de cette direction. En revanche, comme le montre la Figure V.4.3, un polycristal avec des grains d'axes < c > orientés préférentiellement suivant la direction axiale (facteur de Kearns élevé, $f_l = 0,4$ pour le polycristal 2 et 3) présente une croissance négative. Grâce à l'introduction des facteurs de Kearns, le modèle de dynamique d'amas réussit donc à reproduire l'effet de la texture cristallographique sur le comportement en croissance des polycristaux de zirconium. De plus, les déformations de croissance simulées par le modèle sont cohérentes avec les données expérimentales de Rogerson [62]. Le bon ordre de grandeur est atteint mais le calcul donne une déformation de croissance plus faible que celle reportée expérimentalement pour le polycristal 1. Cet écart est probablement dû à une sous-estimation de la quantité nette $Q_i^{b<a>} - Q_v^{b<a>}$ d'auto-interstitiels dans les boucles de dislocations < a >, conduisant à une déformation $\varepsilon_a^{b<a>}$ et donc ε_a moins importante que prévue. Il se peut que la densité des boucles de dislocation < a > ne soit pas parfaitement reproduite par le modèle à cause des valeurs attribuées au coefficient η et aux types et proportions d'amas interstitiels et lacunaires formés dans les cascades de déplacements (Tableau V.4.1 (d)).

La comparaison du comportement du monocristal (Figure V.4.1) et des polycristaux de zirconium pur (Figure V.4.3) montre le rôle des joints de grains sur la déformation de croissance sous irradiation. La croissance du zirconium polycristallin est plus importante que celle du monocristal avec une amplitude qui augmente lorsque la taille des grains diminue (●) et (●). Pour apporter plus d'éléments de compréhension à cet effet, nous simulons à une dose d'irradiation fixée à 20 dpa (régime d'accélération de croissance) l'évolution avec la taille des grains de la déformation de croissance dans la direction axiale du tube de zirconium ainsi que des déformations suivant les axes cristallographiques $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ associées à chaque puits.

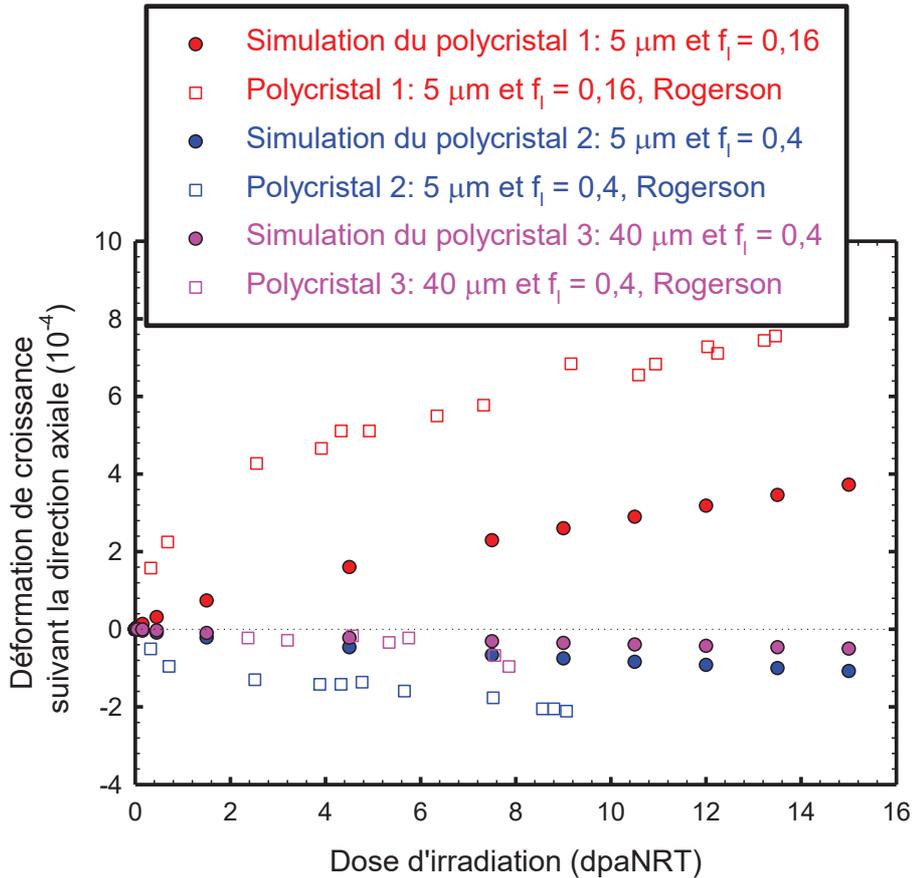
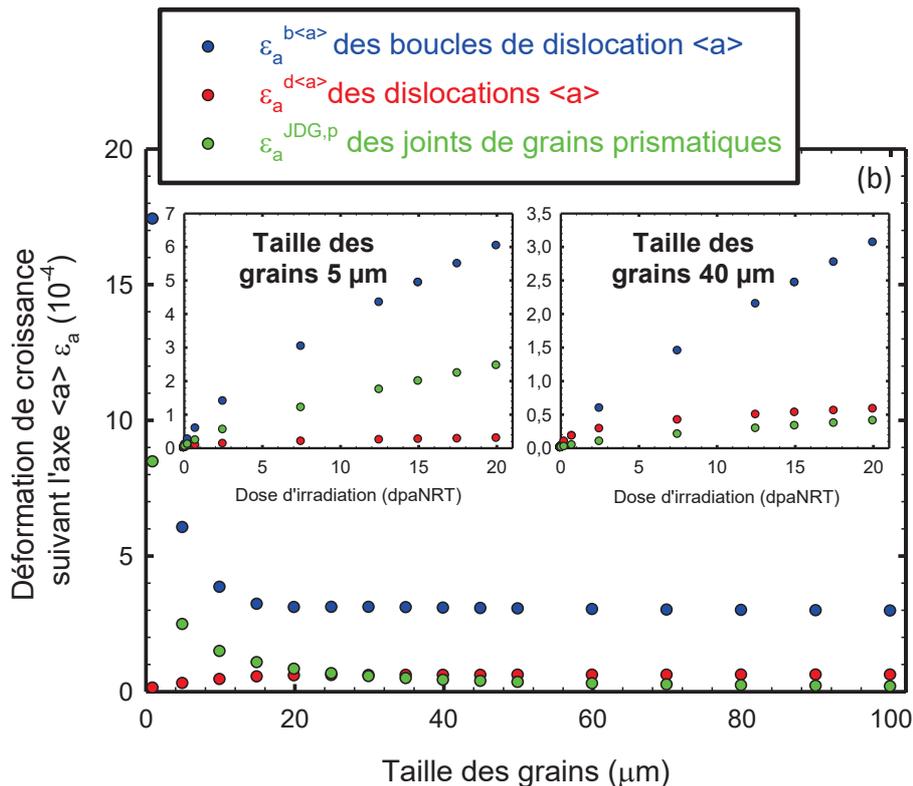
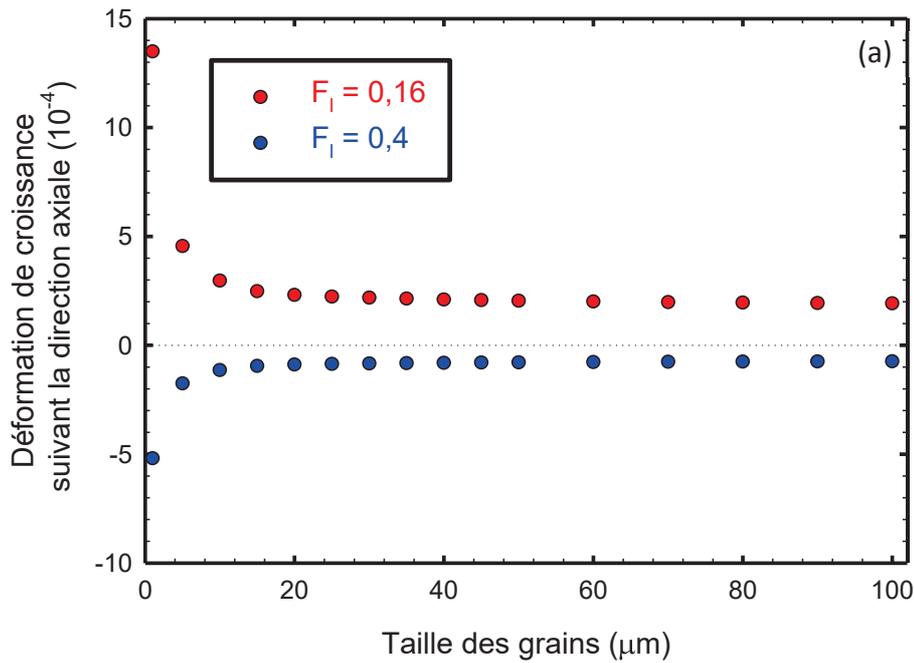


Figure V.4.3: Croissance sous irradiation aux neutrons à 280°C de polycristaux de zirconium pur de taille des grains et de texture cristallographique différentes : simulation par le modèle de dynamique d'amas et expérience [62].

D'après la Figure V.4.4 (a), la déformation de croissance suivant la direction axiale du tube de zirconium augmente de manière significative pour des grains de taille inférieure à environ 20 µm. Pour cette gamme de taille de cristaux, le rôle des joints de grains devient important. Ceux de type prismatique contribuent significativement à la déformation de croissance suivant l'axe $\langle a \rangle$ et conduisent à une déformation plus élevée que celle induite par la montée des dislocations $\langle a \rangle$ (Figure V.4.4 (b)). $\epsilon_a^{JDG,p}$ reste, néanmoins, inférieure à la part de déformation de croissance attribuée aux boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (Figure V.4.4 (b)). Jusqu'à une taille des grains d'environ 30 µm, le raccourcissement du monocristal suivant son axe $\langle c \rangle$ est dû intégralement à la déformation par l'élimination des lacunes sur les joints de grains basaux. Le flux des lacunes vers les joints de grains basaux est important et la concentration de lacunes dans la matrice de zirconium est amoindrie, réduisant la germination des boucles à composante $\langle c \rangle$ et donc leur contribution à la déformation de croissance. En revanche, pour des grains de taille plus grande, la croissance négative est attribuée principalement aux boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$ (Figure V.4.4 (c)).

Dans la Figure V.4.4 (b) et la Figure V.4.4 (c), nous donnons également l'évolution avec la dose d'irradiation des déformations suivant $\langle a \rangle$ induites par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$, les dislocations droites $\langle a \rangle$ et les joints de grains prismatiques et suivant $\langle c \rangle$ par les boucles à composante $\langle c \rangle$ et les joints de grains basaux, ceci pour les deux tailles de grain étudiées précédemment (5 et 40 μm). A la taille de 40 μm , l'effet des joints de grains prismatiques diminue et la déformation $\varepsilon_a^{JDG,p}$ devient inférieure à la déformation $\varepsilon_a^{d\langle a \rangle}$ de montée des dislocations. En ce qui concerne la déformation suivant l'axe $\langle c \rangle$ pour une taille des grains de 40 μm , l'effet des joints de grains basaux diminue également mais leur contribution n'est, toutefois, pas négligeable devant celle des boucles à composante $\langle c \rangle$.



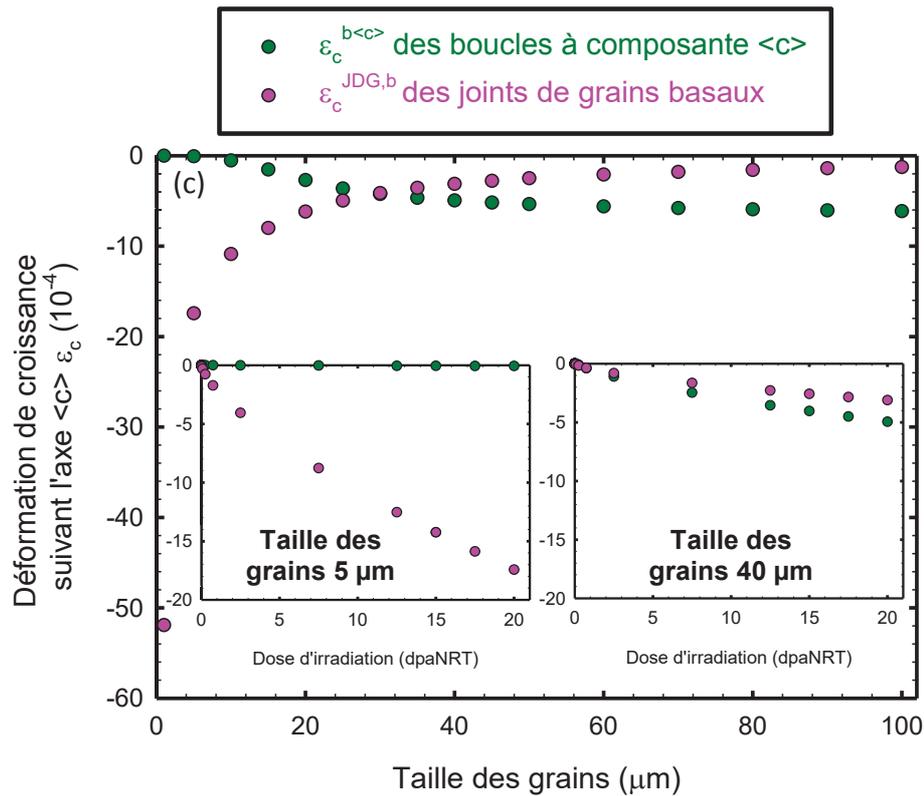


Figure V.4.4: Evolution avec la taille des grains de la croissance sous irradiation aux neutrons à 280°C et à la dose de 20 dpa du zirconium polycristallin – (a) déformation de croissance suivant la direction axiale du tube, (b) déformation de croissance suivant l'axe $\langle a \rangle$ et (c) déformation de croissance suivant l'axe $\langle c \rangle$

Grâce au modèle de dynamique d'amas, il nous est possible de conduire cette analyse de la contribution de chaque puits de la microstructure à la déformation de croissance sous irradiation des polycristaux de zirconium ainsi que son évolution avec la taille des grains. Cette étude est intéressante pour une meilleure compréhension des mécanismes responsables du phénomène de croissance libre du zirconium, d'autant plus qu'expérimentalement il est difficile de dissocier les déformations attribuées aux différents puits du milieu. Plus particulièrement, ces calculs montrent que contrairement à ce qui est généralement admis la déformation de croissance ne résulte pas exclusivement de la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ [65] mais également de la déformation induite par l'élimination des défauts ponctuels sur les joints de grains (Figure V.4.4) et cela même lorsque la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et à composante $\langle c \rangle$ est élevée. Ces résultats attestent donc de l'importance des joints de grains dans l'étude du comportement en croissance libre des alliages de zirconium. Dans ce même ordre d'idée, Griffiths *et al.* [65] ont montré que les déformations de croissance induites uniquement par la présence des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont inférieures aux déformations mesurées expérimentalement. Les auteurs [65] avaient mentionné la nécessité de prendre en compte la contribution des autres puits comme les joints de grains à la déformation de croissance.

Cependant, nous émettons des réserves quant à la valeur de basculement d'un régime où l'effet des joints de grains est fort sur la déformation de croissance à un régime où leur contribution devient plus faible. Cette valeur de basculement semble se situer entre 20 et 30 μm (Figure V.4.4) mais il est tout à fait envisageable qu'elle soit plus faible que ce que prédit le modèle de dynamique d'amas, l'approximation du champ moyen atteignant ses limites pour des systèmes de simulation de petite taille. En effet, le formalisme n'est valide que lorsque nous considérons des petits objets dans un grand espace. Or, pour des grains de 1 à 5 μm , les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont très grandes avec une taille de 200 à 500 nm. Dans ce cas, l'évaluation de la compétition entre les joints de grains

basaux et les boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le processus d'élimination des lacunes et de la génération de la déformation de croissance est assez délicate.

Pour conclure cette étude, nous avons simulé la croissance sous irradiation aux neutrons du Zircaloy-4. Les premières simulations montrent une très faible contribution de la déformation induite par les boucles à composante $\langle c \rangle$ ($\epsilon_c^{b\langle c \rangle}$) par rapport à celle due à l'élimination des lacunes sur les joints de grains basaux ($\epsilon_c^{JDG,b}$), ceci pour des tailles de grains allant de 1 à 100 μm . Ce résultat s'explique par la faible densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ simulée par le modèle de dynamique d'amas. Rappelons que dans le cadre de l'étude du comportement en croissance sous irradiation aux neutrons, nous appliquons le modèle tel qu'il a été calibré précédemment sur les irradiations aux ions (§ V.3.1). Au vu de ces résultats, il apparaît nécessaire d'identifier au préalable certains paramètres comme le facteur η ou la distribution des amas formés dans les cascades de déplacements pour mieux rendre compte de la microstructure du Zircaloy-4 irradié aux neutrons.

V.5 Conclusions sur la modélisation par la méthode de dynamique d'amas de la microstructure et de la croissance sous irradiation du zirconium et du Zircaloy-4

Ce chapitre décrit les étapes de construction du modèle de dynamique d'amas et donne quelques exemples d'application. En partant du code *CRESCENDO* développé par Jourdan [8], notre travail a porté, en premier lieu, sur la description énergétique des boucles de dislocation. L'objectif de ce travail est de déterminer les énergies de formation et de liaison de chacune des deux populations de boucles de dislocation : les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et les boucles à composante $\langle c \rangle$. Ces énergies permettent d'obtenir les coefficients d'émission des défauts par les boucles de dislocation qui contrôlent leur cinétique d'évolution sous irradiation. Notre choix s'est porté sur une approche couplant théorie élastique et calculs atomistiques en *ab-initio* et en potentiels empiriques. Cette approche, qui permet de rendre compte des propriétés spécifiques à chaque population de boucles de dislocation, a été implémentée dans la version récente de *CRESCENDO*. Le modèle « hybride » alimenté par cette nouvelle description énergétique reproduit bien la stabilité relative entre les boucles de dislocation, les boucles $\langle a \rangle$ étant énergétiquement plus stables que les boucles à composante $\langle c \rangle$. Ce résultat est en accord avec les observations expérimentales montrant la formation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dès le début des irradiations.

Suite à ce premier travail, nous avons mis en place une démarche séquentielle d'identification de certains paramètres physiques du modèle sur la base des données expérimentales recensées dans la littérature ouverte. Cette démarche consiste à étudier tout d'abord la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le zirconium pur irradié aux électrons à faible dose puis des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux électrons à forte dose. Le modèle est ensuite étendu aux irradiations aux ions. A la première étape d'identification, nous avons ajusté les facteurs pré-exponentiels de diffusion des auto-interstitiels et des lacunes de manière à reproduire au mieux l'évolution de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles dans le zirconium pur irradié aux électrons à faible dose. La validité et la précision des valeurs ajustées de ces paramètres peuvent être attestées, d'une part au vu de la grande sensibilité de la microstructure des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles à la diffusion des SIAs et d'autre part par l'obtention d'un coefficient d'autodiffusion proche de celui reporté expérimentalement par Hood [30]. Il est à souligner également que le modèle réussit à reproduire correctement l'effet de la température d'irradiation sur la densité et la taille des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, un bon accord étant obtenu avec les résultats microstructuraux de Hellio *et al.* [25], [26].

Le passage à l'alliage, le Zircaloy-4, a été abordé dans le modèle de dynamique d'amas à travers la prise en compte, de manière approchée, de l'effet de l'étain sur l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels, de l'effet du fer sur la diffusion des lacunes et de l'effet de l'oxygène sur l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$. Nous avons donc identifié trois paramètres du modèle : l'énergie de migration des SIAs suivant l'axe cristallographique $\langle a \rangle$, l'énergie de migration des lacunes et l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$. Grâce à l'étude de

sensibilité de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ à ces trois paramètres, nous sommes parvenus à valider les densités linéiques et les tailles de ces boucles simulées par le modèle sur la base des points expérimentaux de de Carlan [35], [36]. Néanmoins, la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'est obtenue que d'une manière « artificielle » dans le modèle par l'application d'un critère de comptage de boucles à partir d'une taille de 9 nm (même critère considéré pour les études expérimentales, § II.3.3). L'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ à partir d'une dose seuil d'incubation reste un verrou du modèle qu'il convient de traiter dans l'avenir. Les réflexions sur ce point nous mènent à considérer la germination hétérogène dans le plan basal des amas lacunaires sur les précipités de fer. Par ailleurs, le modèle calibré à cette étape semble simuler convenablement les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Ne disposant pas de données expérimentales auxquelles peuvent être confrontés nos résultats de simulation par le modèle de dynamique d'amas, nous pouvons uniquement affirmer qu'un bon ordre de grandeur est obtenu même si la densité volumique nous paraît un peu élevée et la taille un peu faible.

La simulation des irradiations aux ions s'est accompagnée de deux considérations importantes qui prennent en compte l'effet des cascades de déplacements, absentes lors des irradiations aux électrons. La première concerne la diminution de l'efficacité de production des paires de Frenkel et la deuxième traite de la formation des amas interstitiels et lacunaires de type $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ dans les cascades. Par l'ajustement des paramètres régissant ces deux effets induits par les cascades de déplacements, le modèle de dynamique d'amas réussit à reproduire de manière raisonnable la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenue lors de notre étude expérimentale (§ III.3.1). Par ailleurs, un bon ordre de grandeur des densités et des tailles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est obtenu par rapport aux mesures expérimentales de Hellio *et al.* [25], [26] et de Drouet [45]. Cependant, les limites prédictives du modèle commencent à se faire sentir lors du passage à ce système de simulation complexe. Plus précisément, la prise en compte des effets des cascades de déplacements requiert des simulations de type Monte Carlo qui permettraient d'améliorer la précision de cette dernière étape de validation du modèle.

En guise d'application du modèle de dynamique d'amas, nous avons introduit le mécanisme SIPA (Stress Induced Preferential Absorption) dans le but de simuler l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ et de comparer a posteriori les résultats des simulations aux observations microstructurales qui ont fait l'objet de la partie IV.3.3. La comparaison montre un accord des tendances expérimentales et simulées par le modèle de dynamique d'amas avec le mécanisme SIPA et une compatibilité des résultats des simulations avec ceux issus des expériences d'irradiation. Modèle et expérience mettent en évidence un faible effet de la contrainte sur la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$. En revanche, l'effet sur la taille et la densité linéique simulé par le modèle est un peu plus important que celui reporté par les expériences. A noter que la dispersion grain à grain qui est à l'origine du faible effet démontré expérimentalement n'est pas intégrée dans le modèle qui considère le milieu comme homogène.

Enfin, le modèle est employé pour évaluer la déformation de croissance sous irradiation aux neutrons du zirconium monocristallin et polycristallin. Il ressort des simulations que le modèle reproduit correctement le comportement en croissance sous irradiation des monocristaux et des polycristaux de zirconium pur et permet de mettre en évidence la contribution de chaque puits du milieu ainsi que l'effet de la texture cristallographique et de la taille des grains. Les déformations de croissance obtenues sont également cohérentes avec les données expérimentales de Rogerson [62].

Le modèle de dynamique d'amas développé est en mesure de prédire correctement l'évolution de la microstructure du zirconium pur et du Zircaloy-4 irradiés aux électrons et aux ions, et plus particulièrement la formation et la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$. Le modèle permet également d'évaluer les déformations de croissance sous irradiation d'un monocristal de zirconium pur et du zirconium polycristallin. Au terme de ces travaux, nous identifions quelques voies possibles d'amélioration du modèle. Parmi ces voies, nous citons par exemple : la prise en compte de la dépendance spatiale des distributions d'amas de défauts, la considération de données issues de simulations de type Monte Carlo pour inclure l'effet des cascades de déplacements, l'intégration de phénomènes physiques se produisant sous irradiation comme la remise en solution du fer dans la matrice de zirconium, l'effet de l'hydrogène, l'effet de la contrainte sur la diffusion des défauts ponctuels (SIPA-DAD), ...

V.6 Références bibliographiques du chapitre 5

- [1] R. Sizmann, "The effect of radiation upon diffusion in metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 69–70, pp. 386–412, 1968.
- [2] C. C. Dollins, "In-pile dimensional changes in neutron irradiated zirconium base alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 59, pp. 61–76, 1975.
- [3] M. Kiritani, "Analysis of the clustering process of supersaturated lattice vacancies," *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 35, pp. 95–107, 1973.
- [4] N. M. Ghoniem and S. Sharafat, "A numerical solution of the Fokker-Planck equation describing the evolution of the interstitial loop microstructure during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 92, pp. 121–135, 1980.
- [5] A. Hardouin Duparc, C. Moingeon, N. Smetniansky-de-Grande, and A. Barbu, "Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 302, pp. 143–155, 2002.
- [6] C. H. Woo, "Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: effects of anisotropic diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 237–256, 1988.
- [7] F. Christien and A. Barbu, "Effect of self-interstitial diffusion anisotropy in electron-irradiated zirconium: A cluster dynamics modeling," *J. Nucl. Mater.*, vol. 346, no. 2–3, pp. 272–281, Nov. 2005.
- [8] T. Jourdan, G. Bencteux, and G. Adjanor, "Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects: A cluster dynamics approach," *J. Nucl. Mater.*, vol. 444, pp. 298–313, Jan. 2014.
- [9] C. H. Woo and U. Gosele, "Dislocation bias in an anisotropic diffusive medium and irradiation growth," *J. Nucl. Mater.*, vol. 119, pp. 219–228, 1983.
- [10] W. G. Wolfer, "The dislocation bias," *J. Comput. Mater. Des.*, vol. 14, pp. 403–417, 2007.
- [11] A. Seeger and U. Gosele, "Steady-state diffusion of point defects to dislocation loops," *Phys. Lett. A*, vol. 61, pp. 423–425, 1977.
- [12] N. Soneda and T. Diaz de la Rubia, "Defect production, annealing kinetics and damage evolution in α -Fe: an atomic scale computer simulation," *Philos. Mag. A*, vol. 78, pp. 995–1019, 1998.
- [13] N. de Diego, Y. N. Osetsky, and D. J. Bacon, "Structure and properties of vacancy and interstitial clusters in α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 374, pp. 87–94, Feb. 2008.
- [14] N. de Diego, A. Serra, D. J. Bacon, and Y. N. Osetsky, "On the structure and mobility of point defect clusters in alpha-zirconium: a comparison for two interatomic potential models," *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 19, no. 3, Apr. 2011.
- [15] D. Kulikov and M. Hou, "Vacancy dislocation loops in zirconium and their interaction with self-interstitial atoms," *J. Nucl. Mater.*, vol. 342, pp. 131–140, Jun. 2005.
- [16] F. Christien and a. Barbu, "Cluster Dynamics modelling of irradiation growth of zirconium single crystals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 393, no. 1, pp. 153–161, Aug. 2009.

- [17] C. Varvenne, O. Mackain, and E. Clouet, "Vacancy clustering in zirconium: An atomic-scale study," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 65–77, Oct. 2014.
- [18] C. Varvenne, F. Bruneval, M. C. Marinica, and E. Clouet, "Point defect modeling in materials: Coupling ab initio and elasticity approaches," *Phys. Rev. B*, vol. 88, p. 134102, Oct. 2013.
- [19] R. Bullough, M. R. Hayns, and M. H. Wood, "Sink strengths for thin film surfaces and grain boundaries," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 44–59, 1980.
- [20] M. J. Norgett, M. T. Robinson, and I. M. Torrens, "A proposed method of calculating displacement dose rates," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 33, pp. 50–54, 1975.
- [21] S. J. Wooding, L. M. Howe, F. Gao, A. F. Calder, and D. J. Bacon, "A molecular dynamics study of high energy displacement cascades in α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 254, pp. 191–204, 1998.
- [22] F. Gao, D. J. Bacon, L. M. Howe, and C. B. So, "Temperature-dependence of defect creation and clustering by displacement cascades in α -zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 294, pp. 288–298, 2001.
- [23] D. J. Bacon, A. F. Calder, and F. Gao, "Computer simulation of displacement cascade effects in metals," *Radiat. Eff. Defects Solids*, vol. 141, pp. 283–310, 1997.
- [24] T. Jourdan and J.-P. Crocombette, "Rate theory cluster dynamics simulations including spatial correlations within displacement cascades," *Phys. Rev. B*, vol. 86, no. 5, p. 054113, Aug. 2012.
- [25] C. Hellio, "Etude par microscopie électronique à transmission des défauts induits par irradiation aux ions et aux électrons dans du zirconium pur et quatre de ces alliages," Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, 1988.
- [26] C. Hellio, C. H. Novion, and L. Boulanger, "Influence of alloying elements on the dislocation loops created by Zr ion or by electron irradiation in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 368–378, 1988.
- [27] Y. N. Osetsky, D. J. Bacon, and N. D. Diego, "Anisotropy of point defect diffusion in alpha-zirconium," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 33, pp. 777–782, 2002.
- [28] G. D. Samolyuk, A. V. Barashev, S. I. Golubov, Y. N. Osetsky, and R. E. Stoller, "Analysis of the anisotropy of point defect diffusion in hcp Zr," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 173–180, Oct. 2014.
- [29] M. Koiwa and S. Ishioka, "Random walk properties of lattices and correlation factors for diffusion via the vacancy mechanism in crystals," *J. Stat. Phys.*, vol. 30, pp. 477–485, 1983.
- [30] G. M. Hood, "Point defect diffusion in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 149–175, 1988.
- [31] M. Kiritani, N. Yoshida, H. Takata, and Y. Maehara, "Growth of interstitial type dislocation loops and vacancy mobility in electron irradiated metals," *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 38, no. 6, pp. 1677–1686, 1975.
- [32] M. Griffiths and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - I. Defect structure and loop character," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 313–322, 1983.
- [33] C. H. Woo, "Intrinsic bias differential between vacancy loops and interstitial loops," *J. Nucl. Mater.*, vol. 107, pp. 20–30, 1982.
- [34] V. I. Dubinko, A. S. Abyzov, and A. A. Turkin, "Numerical evaluation of the dislocation loop bias," *J. Nucl. Mater.*, vol. 336, pp. 11–21, Jan. 2005.

- [35] Y. De Carlan, "Contribution à l'étude des phénomènes d'accélération de la croissance en réacteur des alliages de zirconium - influence du fer sur la formation des boucles de dislocation de type $\langle c \rangle$," Thèse de doctorat, Institut Polytechnique de Grenoble, 1996.
- [36] Y. De Carlan, C. Regnard, M. Griffiths, D. Gilbon, and C. Lemaignan, "Influence of iron in the nucleation of c-component dislocation loops in irradiated Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 638–653.
- [37] M. Christensen, W. Wolf, C. M. Freeman, E. Wimmer, R. B. Adamson, L. Hallstadius, P. E. Cantonwine, and E. V. Mader, "Effect of alloying elements on the properties of Zr and the Zr–H system," *J. Nucl. Mater.*, vol. 445, pp. 241–250, Feb. 2014.
- [38] A. T. Motta and C. Lemaignan, "A ballistic mixing model for the amorphization in Zircaloy under neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 195, pp. 277–285, 1992.
- [39] W. Frank, "Rapid-pair enhanced diffusion in alpha-Zr and its integration into the point defect scenario in hcp metals," *Philos. Mag. A Phys. Condens. Matter Struct. Defects Mech. Prop.*, vol. 63, pp. 897–913, 1991.
- [40] R. C. Pasianot, R. A. Pérez, V. P. Ramunni, and M. Weissmann, "Ab initio approach to the effect of Fe on the diffusion in hcp Zr II: The energy barriers," *J. Nucl. Mater.*, vol. 392, pp. 100–104, Jul. 2009.
- [41] E. Forlerer and C. Rodriguez, "On the influence of iron on the Zr- α (hcp) self-diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 185, pp. 167–173, 1991.
- [42] A. D. King, G. M. Hood, and R. A. Holt, "Fe-enhancement of self-diffusion in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 185, pp. 174–181, 1991.
- [43] C. Domain, "Simulations atomistiques ab-initio des effets de l'hydrogène et de l'iode dans le zirconium," Thèse de doctorat, Université des Sciences et des Technologies de Lille, 2002.
- [44] M. Griffiths, R. W. Gilbert, V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, "Neutron damage in zirconium alloys irradiated at 644 to 710 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 159–168, 1987.
- [45] J. Drouet, "Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation," Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, 2014.
- [46] P. T. Heald and M. V. Speight, "Steady-state irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 29, no. 1075–1080, 1974.
- [47] P. T. Heald and M. V. Speight, "Point defect behaviour in irradiated materials," *Acta Metall.*, vol. 23, pp. 1389–1399, 1975.
- [48] W. G. Wolfer, M. Ashkin, and A. Boltax, "Creep and swelling deformation in structural materials during fast neutron irradiation," in *Properties of Reactor Structural Alloys After Neutron or Particle Irradiation, ASTM STP 570, American Society for Testing and Materials*, 1975, pp. 233–258.
- [49] W. G. Wolfer and M. Ashkin, "Diffusion of vacancies and interstitials to edge dislocations," *J. Appl. Phys.*, vol. 47, pp. 791–800, 1976.
- [50] W. G. Wolfer and M. Ashkin, "Stress-induced diffusion of point defects to spherical sinks," *J. Appl. Phys.*, vol. 46, pp. 547–557, 1975.

- [51] R. Bullough and J. R. Willis, "The stress-induced point defect-dislocation interaction and its relevance to irradiation creep," *Philos. Mag.*, vol. 31, pp. 855–861, 1975.
- [52] W. G. Wolfer, "Prediction of irradiation creep from microstructural data," *Scr. Metall.*, vol. 9, pp. 801–802, 1975.
- [53] W. G. Wolfer, "Correlation of irradiation creep with experimental evidence," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 175–192, 1980.
- [54] L. K. Mansur, "Irradiation creep by climb-enabled glide of dislocations resulting from preferred absorption of point defects," *Philos. Mag. A*, vol. 39, pp. 497–506, 1979.
- [55] F. A. Garner, W. G. Wolfer, and H. R. Brager, "A reassessment of the role of stress in development of radiation-induced microstructure," in *Effects of Radiation on Structural Materials*, ASTM STP 683, 1979, pp. 160–183.
- [56] C. H. Woo, "Effects of an anisotropic dislocation structure on irradiation creep due to stress induced preferred absorption of point defects," *J. Nucl. Mater.*, vol. 80, pp. 132–143, 1979.
- [57] C. H. Woo, "Irradiation creep due to elastodiffusion*," *J. Nucl. Mater.*, vol. 120, pp. 55–64, 1984.
- [58] H. Landolt and R. Börnstein, *Landolt-Börnstein - Atomic defects in metals : Series III/25*. .
- [59] W. G. Wolfer, "Fundamental properties of defects in metals," *Compr. Nucl. Mater.*, vol. 1, pp. 1–45, 2012.
- [60] D. O. Northwood, I. M. London, and L. E. Bahen, "Elastic constants of zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 55, pp. 299–310, 1975.
- [61] R. Bullough and M. H. Wood, "Mechanisms of radiation induced creep and growth," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, pp. 1–21, 1980.
- [62] A. Rogerson, "Irradiation growth in zirconium and its alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 43–61, 1988.
- [63] G. J. C. Carpenter, R. H. Zee, and A. Rogerson, "Irradiation growth of zirconium single crystals: a review," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 86–100, 1988.
- [64] G. J. C. Carpenter, R. A. Murgatroyd, A. Rogerson, and J. F. Watters, "Irradiation growth of zirconium single crystals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 101, pp. 28–37, 1981.
- [65] M. Griffiths, R. W. Gilbert, and V. Fidleris, "Accelerated irradiation growth of zirconium alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium*, ASTM STP 1023, 1989, pp. 658–677.

VI. Chapitre 6

Modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium

Ce chapitre est consacré au développement d'un modèle phénoménologique décrivant le comportement macroscopique sous irradiation des tubes des assemblages de combustible (tubes guides et tubes de gainage). Ce modèle, mis en œuvre dans le cadre du logiciel SiDoLo, se base sur des lois de comportement classiques de fluage et de croissance sous irradiation dont certains paramètres ont été identifiés sur des données expérimentales disponibles dans la littérature « ouverte ». La base bibliographique sur laquelle nous nous appuyons pour l'identification de ces paramètres physiques est présentée dans la première partie de ce chapitre. Une attention particulière est donnée, par la suite, à la définition des lois de comportement introduites dans le modèle et à l'application de la procédure de calibration sur le comportement en croissance libre et en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium. Une fois la validation du modèle effectuée, nous introduisons la loi d'évolution microstructurale de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. Cette loi empirique, déterminée pour le Zircaloy-4 et le M5[®] lors de l'étude expérimentale du chapitre 4, traduit l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. La considération de cette loi dans le modèle nous permet de rendre compte de l'effet d'une contrainte macroscopique sur la déformation axiale de croissance d'un tube guide et d'évaluer l'amplitude du couplage entre les deux phénomènes de fluage axial et d'accélération de croissance.

Sommaire

VI.1 Présentation de l'environnement du logiciel SiDoLo	228
VI.2 Base bibliographique de données expérimentales	228
VI.2.1 Comportement en croissance sous irradiation des tubes en alliages de zirconium	228
VI.2.2 Comportement en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium	230
VI.3 Hypothèses et lois de comportement introduites dans le modèle SiDoLo	232
VI.3.1 Hypothèses	232
VI.3.2 Lois de comportement en croissance des tubes de zirconium	232
VI.3.3 Lois de comportement en fluage sous irradiation des tubes de zirconium	237
VI.4 Identification des paramètres du modèle et modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium	241
VI.4.1 Identification des paramètres de comportement en croissance libre	241
VI.4.2 Identification des paramètres de comportement en fluage sous irradiation	244
VI.5 Modélisation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance	252
VI.5.1 Introduction de l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le modèle ..	253
VI.5.2 Simulation du mécanisme SIPA dans le modèle	254
VI.5.3 Simulation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance	256
VI.6 Conclusions de la modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des	

alliages de zirconium	257
VI.7 Références bibliographiques du chapitre 6	259

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'un partenariat stratégique entre le CEA et AREVA-NP. Pour des raisons de confidentialité, nous nous limiterons dans ce chapitre à la présentation de l'identification des paramètres du modèle pour le Zircaloy-4 recristallisé et détendu ainsi que des résultats de la modélisation du comportement de ces deux matériaux en croissance libre et en fluage sous irradiation. Le jeu de paramètres et les résultats de modélisation obtenus pour le M5[®] font l'objet d'une annexe confidentielle.

VI.1 Présentation de l'environnement du logiciel SiDoLo

Le logiciel SiDoLo est un outil de simulation et d'identification développé par Pilvin [1] dans le cadre de ses travaux de thèse au Laboratoire de Mécanique et de Technologie de l'ENS Cachan. Le langage utilisé est le Fortran77.

Cet outil peut être utilisé en deux modes :

- Le mode « utilisateur » où il suffit d'écrire les fichiers d'entrée (propriétés du matériau, caractéristiques des essais, ...) et d'utiliser un programme exécutable préalablement défini ;
- Le mode « développeur » pour lequel l'utilisateur est amené à développer un nouveau modèle en écrivant des sous-programmes comportant les équations et les variables nécessaires pour la simulation de la réponse du modèle à un essai mécanique donné. Il est possible également de confronter les prédictions du modèle à des résultats expérimentaux et de résoudre un problème d'identification de ses paramètres. Pour cela, il est nécessaire de générer un fichier regroupant les données expérimentales et de spécifier les variables observables sur lesquelles portera la procédure d'identification. Celle-ci consiste à minimiser les écarts entre les prévisions du modèle et les points expérimentaux, en utilisant des algorithmes classiques d'optimisation. Un jeu de paramètres est alors obtenu de manière à ce que la simulation s'accorde le mieux à l'expérience.

Dans le cadre de ce travail de thèse, le logiciel SiDoLo est utilisé en mode « développeur » avec une formulation de type différentiel où l'évaluation des variables observables nécessite la résolution numérique d'un système d'équations différentielles non linéaires de premier ordre.

VI.2 Base bibliographique de données expérimentales

Les gaines et les tubes guides des assemblages de combustible nucléaire sont soumis à de forts flux neutroniques et à des sollicitations thermomécaniques induisant leur variation dimensionnelle. Les déformations macroscopiques de ces tubes en alliages de zirconium sont liées au fluage thermique et aux deux phénomènes de croissance libre et de fluage d'irradiation qui trouvent leur origine dans l'élimination anisotrope des défauts ponctuels, créés sous irradiation neutronique, sur les puits de la microstructure.

La troisième partie du chapitre bibliographique décrit succinctement le comportement en croissance libre (§ 1.3.1.1.2) et en fluage sous irradiation (§ 1.3.2.1) des alliages de zirconium et analyse les principaux constats expérimentaux en vue de cerner l'effet des conditions d'irradiation et des propriétés du matériau sur ces deux phénomènes. Dans cette partie, il est question de constituer une base bibliographique spécifique portant sur des données quantitatives de déformation de croissance et de fluage sous irradiation de tubes en alliages de zirconium, irradiés en REP ou en réacteurs expérimentaux.

VI.2.1 Comportement en croissance sous irradiation des tubes en alliages de zirconium

Des mesures de déformation ont été effectuées sur des tronçons de tubes en Zircaloy-4 recristallisé et détendu, irradiés en REP, sur une période de dix ans, correspondant à une fluence neutronique de $2,35 \times 10^{26}$ n/m² ($E > 0,82$ MeV) [2]. Les irradiations ont été conduites avec un flux neutronique de 2×10^{17} n/m²/s. Comme nous l'avons précisé dans la partie 1.3.1.1.2, la croissance de l'alliage recristallisé, ici le Zircaloy-4, peut être décomposée en trois stades d'évolution avec la fluence neutronique (Figure VI.2.1) :

- Le stade primaire caractérisé par une vitesse de déformation élevée ;
- Le stade secondaire au cours duquel la vitesse de croissance diminue ;
- Le stade d'accélération de croissance qui débute à une fluence neutronique de 4×10^{25} n/m², correspondant à une dose de 5,8 dpa (conversion de Shishov *et al.* [3] pour les REP) pour le Zircaloy-4 recristallisé irradié en REP à la température de 295°C.

La déformation du Zircaloy-4 détendu évolue, quant à elle, quasi-linéairement avec la fluence neutronique et est élevée comparée à celle du Zircaloy-4 recristallisé (Figure VI.2.1).

La déformation axiale du M5[®] est moins importante que celle du Zircaloy-4 recristallisé. A 315°C, la croissance du M5[®] accélère aux alentours de 10×10^{25} n/m² ($E > 1$ MeV) [4] (14,5 dpa par [3]). Ce résultat est issu des irradiations en REP menées avec un flux neutronique de 9×10^{17} n/m²/s [4]. Bossis *et al.* [4] ont souligné que l'effet de l'hydruration et de l'oxydation sur les variations dimensionnelles des tubes en M5[®] peut être négligé, en raison de la faible teneur en hydrogène (100 ppm au maximum) et de la faible épaisseur de la couche d'oxyde (13 µm au maximum). L'évolution de la déformation axiale des tubes en M5[®], présentée dans la Figure VI.2.1, est donc essentiellement due au phénomène de croissance libre. En revanche, pour le Zircaloy-4 recristallisé, les auteurs [4] reportent un effet significatif de l'hydruration et de l'oxydation. Cet effet a été pris en compte dans les déformations axiales mesurées en [4], ce qui explique les vitesses de croissance de Zircaloy-4 recristallisé plus élevés (1,9% à une fluence neutronique de $2,1 \times 10^{26}$ n/m² [4]) que ceux reportés par Garzarolli *et al.* [2] (0,8% à une fluence neutronique de $2,3 \times 10^{26}$ n/m²).

Comme nous souhaitons obtenir des éléments bibliographiques sur le comportement en croissance sous irradiation des alliages de zirconium pour constituer notre base d'identification des paramètres des lois de croissance du modèle, il nous est paru plus pertinent de se référer, pour le Zircaloy-4 recristallisé, aux résultats de Garzarolli *et al.* [2]. Ces résultats ne prennent pas en compte l'effet de l'hydruration et de l'oxydation et ne portent que sur la déformation de croissance libre.

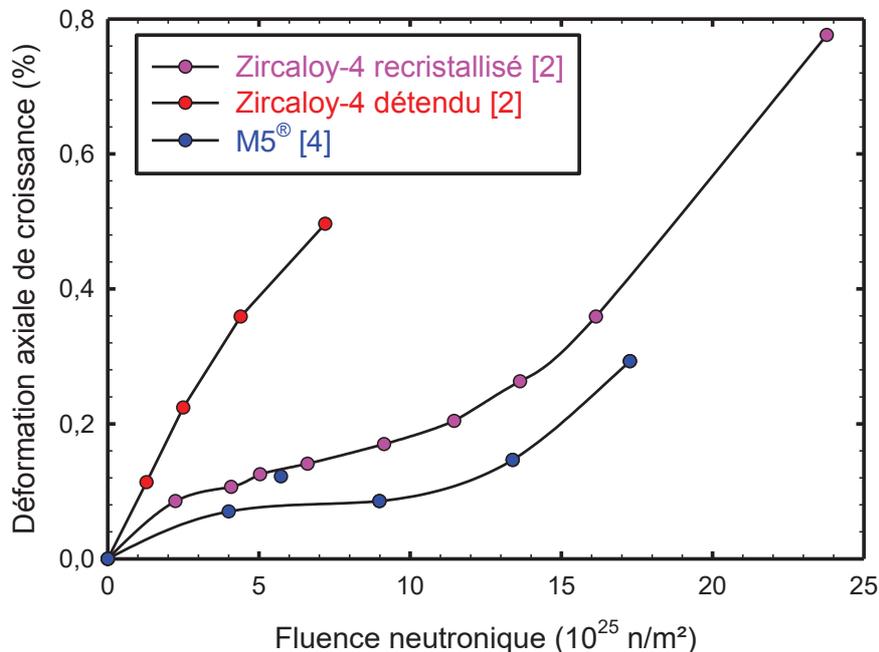


Figure VI.2.1: Evolution de la déformation axiale de croissance libre de tubes en Zircaloy-4 recristallisé et détendu [2] et en M5[®] [4] irradiés en REP.

VI.2.2 Comportement en fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium

Des tronçons de tubes de gainage en Zircaloy-4 et en M5[®] ont été irradiés dans les réacteurs expérimentaux, Siloé et Osiris, à une température de 350°C et soumis à des essais de fluage en pression interne [5], [6]. Des échantillons ont été également irradiés à contrainte nulle dans le but de déterminer la déformation qui résulte uniquement du phénomène de croissance libre.

A contrainte nulle, et à une fluence neutronique de 5×10^{25} n/m², la déformation axiale est égale à 0,07% pour le Zircaloy-4 recristallisé, à 0,03% pour le M5[®] et à 0,19% pour le Zircaloy-4 détendu [6]. Ces valeurs de déformation de croissance libre sont plus faibles que celles données précédemment pour des températures d'irradiation plus basses, 295°C pour le Zircaloy-4 [2] et 315°C pour le M5[®] [4] (§ VI.2.1). En augmentant la température, la croissance initiale est moins rapide et les déformations mesurées à faible fluence, ici à 5×10^{25} n/m², sont moins importantes [7]. Au stade d'accélération de croissance, la vitesse de déformation augmente rapidement avec la température [7]. Par ailleurs, Soniak *et al.* [5] ont reporté des déformations diamétrales en croissance libre nulles tout le long de l'irradiation. Compte tenu de la texture cristallographique radiale des tubes de gainage en alliages de zirconium (§ I.1.2.2.2), le phénomène de croissance se traduit par une déformation axiale positive et une déformation radiale négative. Un diamètre extérieur constant et donc une déformation diamétrale ε_{θ} nulle s'expliquent par un facteur de Kearns suivant la direction transverse f_{DT} proche de 0,3 (Tableau VI.3.1 et Eq. VI.3.5).

L'identification des paramètres du modèle macroscopique simulant le comportement en fluage sous irradiation des alliages de zirconium se base sur l'essai en pression interne, référencé dans [5], [6]. L'état de contrainte imposé dans les tubes pressurisés est le suivant :

$$\underline{\underline{\sigma}} (MPa) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 90 & 0 \\ 0 & 0 & 45 \end{pmatrix}_{(\vec{e}_r, \vec{e}_{\theta}, \vec{e}_z)} \quad \text{Eq. VI.2.1}$$

Avant de décrire le comportement en fluage sous irradiation du Zircaloy-4 et du M5[®], nous tenons à bien préciser que les déformations données dans la Figure VI.2.2 correspondent aux déformations totales mesurées expérimentalement [5]. Elles englobent donc les deux phénomènes de croissance libre et de fluage sous irradiation. Comme mentionné précédemment, à contrainte nulle, la déformation suivant \vec{e}_{θ} est nulle. Par conséquent, la Figure VI.2.2 (a) rend compte uniquement des déformations diamétrales de fluage sous flux neutronique, l'essai de fluage en pression interne induisant des déformations diamétrales positives.

Comme pour la croissance, le fluage sous irradiation peut se décomposer en plusieurs stades d'évolution avec la fluence neutronique. Pour le Zircaloy-4 recristallisé, la déformation diamétrale augmente lentement et reste à un niveau bas (0,5% à une fluence neutronique de 6×10^{25} n/m²). Le fluage est au stade stationnaire. Le M5[®] présente des déformations diamétrales de même amplitude que le Zircaloy-4 recristallisé, mais avec une cinétique un peu différente (Figure VI.2.2 (b)). Peu de points expérimentaux sont donnés pour le M5[®] [5]. Il apparaît, néanmoins, que le régime stationnaire est moins long et que la vitesse de fluage secondaire est légèrement plus élevée que celle du Zircaloy-4 recristallisé. En revanche, le Zircaloy-4 détendu se caractérise par une vitesse de fluage beaucoup plus importante et atteint un niveau de déformation diamétrale $\varepsilon_{\theta\theta}$ élevé, d'environ 2% à une fluence neutronique de 6×10^{25} n/m².

Les déformations axiales des deux alliages recristallisés sont négatives. En effet, compte tenu de l'anisotropie de fluage des alliages de zirconium et de la texture de ces matériaux, un essai en pression interne génère une déformation de fluage positive suivant \vec{e}_{θ} et négative suivant \vec{e}_z . A la déformation axiale négative de fluage, s'ajoute une composante de déformation axiale positive de croissance libre. Pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], la composante axiale de croissance est faible devant celle du fluage (§ VI.2.1), ce qui explique l'obtention d'une déformation axiale totale

négative. Pour le Zircaloy-4 détendu, la déformation axiale de croissance est élevée par rapport à celle de fluage, la somme des deux composantes conduisant à une déformation axiale totale positive (Figure VI.2.2 (b)).

Ces résultats mettent en évidence l'anisotropie plastique des tubes en alliages de zirconium dont la connaissance est indispensable pour prédire leur comportement macroscopique. Ils montrent également l'importance de l'état métallurgique sur l'amplitude et la cinétique de la déformation de fluage sous irradiation.

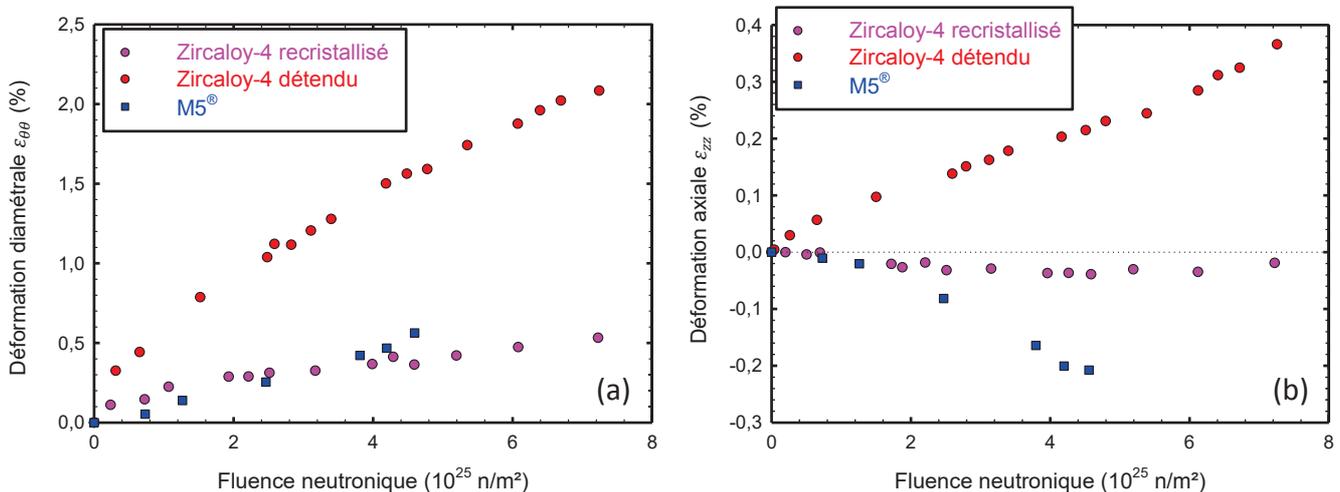


Figure VI.2.2: Déformation par fluage en pression interne sous flux des tubes en Zircaloy-4 et en M5® [5] – (a) déformation diamétrale $\epsilon_{\theta\theta}$ et (b) déformation axiale ϵ_{zz} .

Nous avons évoqué dans la partie I.3.2.1 et la partie IV.1.1, le fait que la déformation de fluage sous irradiation est liée à deux phénomènes, un thermiquement activé (le fluage thermique) et un qui résulte de l'action conjuguée de la contrainte et du flux (le fluage d'irradiation). A haute température (domaine de température atteint en fonctionnement normal des REP) et pour des niveaux de contrainte élevés, c'est le fluage thermique qui est prépondérant alors que le fluage d'irradiation prédomine à basse température et à faible niveau de contrainte. Expérimentalement, il est difficile de dé-corréler les contributions de ces deux phénomènes puisqu'il faut se placer dans des domaines de sollicitation thermomécaniques assez larges. En revanche, en termes de modélisation, une approche additive des deux composantes de fluage thermique et de fluage d'irradiation est souvent adoptée [8]–[10]. Dans le cadre de notre travail, nous considérons cette approche pour définir dans le modèle la vitesse de fluage sous irradiation des tubes en alliages de zirconium (§ VI.3.3). De plus, l'identification se fera sur l'ensemble des paramètres physiques de fluage thermique et de fluage d'irradiation dans le but de reproduire au mieux le comportement en fluage sous irradiation. Toutefois, afin de s'assurer de la validité du modèle, nous prenons le soin d'évaluer la déformation due au fluage thermique hors flux et de vérifier sa cohérence par rapport aux données expérimentales portant sur le comportement en fluage thermique post-irradiation du Zircaloy-4 détendu et du M5®. A notre connaissance, aucune donnée quantitative du fluage thermique du Zircaloy-4 recrystallisé irradié n'est disponible dans la littérature ouverte. Pour le Zircaloy-4 détendu et le M5®, il est possible de définir, à partir des données de la littérature, une borne supérieure de déformation à ne pas dépasser pour un essai donné de fluage thermique sur matériau irradié. La pertinence du jeu de paramètres de fluage thermique auquel aboutit la procédure d'identification sera jugée en vérifiant que la déformation de fluage thermique post-irradiation simulée reste inférieure à la borne supérieure établie à partir des éléments bibliographiques. Pour le Zircaloy-4 recrystallisé, nous prenons la même borne que le M5®.

VI.3 Hypothèses et lois de comportement introduites dans le modèle SiDoLo

VI.3.1 Hypothèses

Les hypothèses considérées dans le modèle de comportement macroscopique des tubes en alliages de zirconium sont les suivantes :

- La température ne constitue pas une variable d'entrée du modèle ;
- Comme il a été communément adopté jusqu'à présent dans les modèles prédictifs du comportement macroscopique sous flux des tubes en alliages de zirconium (§ IV.1.1), nous écrivons la déformation totale comme la somme de trois composantes liées aux trois phénomènes, le fluage thermique, le fluage d'irradiation et la croissance libre. Dans un premier temps, le modèle ne tient pas compte du possible couplage entre le fluage d'irradiation et la croissance. Ce point sera traité ultérieurement, une fois le modèle calibré et validé sur la base de données expérimentales ;
- Le tenseur de Hill, caractérisant l'anisotropie de plasticité du matériau, est défini pareillement pour le fluage thermique et le fluage d'irradiation.

VI.3.2 Lois de comportement en croissance des tubes de zirconium

Comme nous l'avons noté dans la partie VI.2.1, la croissance libre se décompose en trois stades : un stade primaire, un stade secondaire, et un stade d'accélération de croissance. Dans le modèle, nous définissons la vitesse de déformation de croissance sous irradiation comme étant la somme de deux composantes, la première (\dot{q}_1) correspond à la vitesse de croissance modérée regroupant les deux premiers stades de croissance et la deuxième (\dot{q}_2) à la vitesse d'accélération de croissance :

$$\underline{\dot{\varepsilon}}_{\text{croissance}} = -(\dot{q}_1 + \dot{q}_2) \underline{K} \quad \text{Eq. VI.3.1}$$

Les deux termes \dot{q}_1 et \dot{q}_2 donnent les vitesses de déformation de croissance d'un monocristal de zirconium. La matrice de Kearns \underline{K} , écrite en notation de Voigt dans le modèle, permet d'en déduire la vitesse de déformation macroscopique globale du tube de zirconium.

La déformation macroscopique du tube suivant une direction d est donnée par l'expression ci-dessous, introduite dans le modèle de dynamique d'amas (Eq. V.4.9) :

$$\varepsilon_d = f_d \varepsilon_c + (1 - f_d) \varepsilon_a \quad \text{Eq. VI.3.2}$$

Avec ε_a l'allongement du monocristal dans le plan basal, ε_c sa contraction suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ et f_d le facteur de Kearns dans la direction d (radiale, transverse ou axiale) du tube. Le phénomène de croissance ayant lieu sans variation de volume [11]–[13], les déformations ε_a et ε_c vérifient la condition suivante :

$$\varepsilon_a = -\frac{\varepsilon_c}{2} \quad \text{Eq. VI.3.3}$$

Des équations, Eq. VI.3.2 et Eq. VI.3.3, nous déduisons la déformation macroscopique induite par le phénomène de croissance sous irradiation :

$$\varepsilon_d = \frac{\varepsilon_c}{2} (3f_d - 1) \quad \text{Eq. VI.3.4}$$

Le terme multiplicatif $\frac{3f_d-1}{2}$ permet donc de relier la déformation macroscopique du tube à la déformation du monocristal. Ainsi, la matrice de Kearns $\underline{\underline{K}}$, caractérisant la texture du matériau, s'écrit de la manière suivante avec f_{DR} , f_{DT} et f_{DA} les facteurs de Kearns du matériau suivant la direction radiale, transverse et axiale, respectivement :

$$\underline{\underline{K}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 3f_{DR} - 1 & 0 & 0 \\ 0 & 3f_{DT} - 1 & 0 \\ 0 & 0 & 3f_{DA} - 1 \end{pmatrix}_{(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta, \vec{e}_z)} \quad \text{Eq. VI.3.5}$$

Les tubes de gainage et les tubes guides présentent une texture radiale (§ I.1.2.2.2). Les facteurs de Kearns de ces tubes en Zircaloy-4 détendu, en Zircaloy-4 recristallisé et en M5[®] sont regroupés dans le Tableau VI.3.1.

Tableau VI.3.1: Facteurs de Kearns des tubes de réacteur en Zircaloy-4 détendu, en Zircaloy-4 recristallisé et en M5[®] [14], [15].

	f_{DR}	f_{DT}	f_{DA}
Zircaloy-4 détendu	0,551	0,346	0,103
Zircaloy-4 recristallisé	0,62	0,29	0,09
M5[®]	0,6	0,33	0,07

Telle qu'a été définie la matrice de Kearns dans l'équation Eq. VI.3.5, les vitesses de déformation \dot{q}_1 et \dot{q}_2 correspondent aux vitesses de déformation du monocristal suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ à différents stades de la croissance libre. Cette déformation correspond à une contraction suivant l'axe $\langle c \rangle$, ce qui explique le signe moins dans l'équation Eq. VI.3.1.

La croissance modérée est représentée par une loi exponentielle saturante :

$$\dot{q}_1 = C_c \phi (D_c - q_1) \quad \text{Eq. VI.3.6}$$

Les coefficients C_c et D_c correspondent, respectivement, à l'inverse de la fluence à saturation et la déformation du cristal suivant l'axe $\langle c \rangle$ à la fluence de saturation. Ces deux coefficients seront ajustés au cours de l'étape d'identification du comportement des tubes de gainage et des tubes guides en croissance libre sur les données expérimentales [2], [4].

L'accélération de croissance des alliages de zirconium recristallisés est corrélée à la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ [16]–[18]. Comme nous l'avons définie dans le modèle de dynamique d'amas (Eq. V.4.2), la déformation associée à la formation des boucles à composante $\langle c \rangle$ s'exprime comme suit :

$$\varepsilon_c = - Q_v^{bc} V_{atm} \quad \text{Eq. VI.3.7}$$

Avec Q_v^{bc} la quantité de lacunes contenues dans les boucles à composante $\langle c \rangle$ et V_{atm} le volumique atomique.

Il est à noter que, dans ce modèle de comportement macroscopique, la déformation de croissance est attribuée uniquement à l'élimination des défauts ponctuels sur les boucles de dislocation. Le calcul de la déformation de croissance dans le modèle de dynamique d'amas inclut, quant à lui, les contributions des autres puits de la microstructure, plus précisément, les dislocations $\langle a \rangle$ et les joints de grains (§ V.4.1). Ceci est rendu possible par le fait que le modèle simule l'intégralité de la microstructure et calcule le flux des défauts ponctuels vers les différents types de puits d'absorption des défauts ponctuels. Par souci de simplification, nous proposons d'intégrer dans le modèle de

comportement macroscopique uniquement des paramètres physiques permettant de faire le lien entre la déformation sous irradiation et l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ et des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (§ VI.3.3.1, Eq. VI.3.29). Par conséquent, nous ne considérons pas ici les déformations dues à la capture des défauts ponctuels par les autres puits. De plus, par conservation de volume (Eq. VI.3.3), il suffit d'exprimer la déformation de croissance du monocristal suivant l'axe $\langle c \rangle$ pour obtenir ε_d . Ainsi, les lois de croissance n'intègrent que des données microstructurales portant sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ à l'origine de la déformation ε_c . Nous verrons dans la partie VI.3.3.1 que des paramètres associées aux boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sont introduits dans la loi de fluage thermique.

En supposant que les boucles ont toutes le même rayon r_c , le terme Q_v^{bc} peut être déterminé par l'expression suivante :

$$r_c = \sqrt{\frac{Q_v^{bc} S_{atm}}{\pi N_c}} \quad \text{Eq. VI.3.8}$$

S_{atm} est la surface atomique des boucles et N_c leur densité volumique. Ainsi, la déformation de croissance suivant l'axe $\langle c \rangle$ s'écrit :

$$\varepsilon_c = -\pi N_c \frac{V_{atm}}{S_{atm}} r_c^2 \quad \text{Eq. VI.3.9}$$

Le rapport $\frac{V_{atm}}{S_{atm}}$ représente la distance réticulaire entre deux plans d'habitat des boucles. Ce rapport est donné par la norme b_e de la composante coin du vecteur de Burgers des boucles (Eq. V.1.14). Pour les boucles à composante $\langle c \rangle$, la composante b_e est égale à $c/2$. L'expression établie pour la déformation de croissance suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ est donc la suivante :

$$\varepsilon_c = -\pi \frac{c}{2} N_c r_c^2 \quad \text{Eq. VI.3.10}$$

Cette relation peut être obtenue en raisonnant sur un Volume Élémentaire Représentatif (VER) du matériau étudié. L'approche micromécanique, détaillée dans cette partie, a été mise en place par Tournadre [19] dans le cadre de son travail de thèse.

Nous considérons comme VER un parallélépipède à base carrée défini dans le repère orthogonal $(\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{c})$ avec \vec{c} l'axe cristallographique de la maille hexagonale compacte et (\vec{e}_1, \vec{e}_2) le plan de base. La hauteur du parallélépipède est notée h et la largeur de sa base L . Les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont introduites dans le volume d'étude comme étant des disques lacunaires résultant de la suppression de plans atomiques d'épaisseur b_e (la norme de la composante coin du vecteur de Burgers des boucles à composante $\langle c \rangle$ qui vaut $c/2$). Les disques lacunaires sont répartis dans la hauteur h du parallélépipède. Leur présence conduit au raccourcissement du VER suivant la direction $\langle c \rangle$ (Figure VI.3.1 (d)). Cette contraction s'écrit sous la forme suivante :

$$\varepsilon_c = -\frac{\Delta h}{h} = -\frac{b_e}{h} A_c \quad \text{Eq. VI.3.11}$$

Le terme A_c donne la fraction d'aire de ces boucles par rapport à la surface d'étude L^2 formée de couches de lacunes (Figure VI.3.1 (b)) :

$$A_c = \frac{\text{Aire}_{\text{boucles } \langle c \rangle}}{S_{\text{étude}}} = \frac{\pi r_{\text{moy}}^2 n_c}{L^2} = \pi r_{\text{moy}}^2 N_c h \quad \text{Eq. VI.3.12}$$

où n_c est le nombre de boucles à composante $\langle c \rangle$ présentes dans la surface d'étude et r_{moy} leur rayon moyen.

Des deux équations Eq. VI.3.11 et Eq. VI.3.12, il ressort l'expression de la déformation de croissance suivant l'axe $\langle c \rangle$ suivante :

$$\varepsilon_c = -\pi \frac{c}{2} N_c r_{moy}^2 \quad \text{Eq. VI.3.13}$$

La relation établie par ce raisonnement sur un Volume Élémentaire Représentatif (Eq. VI.3.13) est équivalente à celle énoncée par Christien et Barbu [20] et introduite dans le modèle de dynamique d'amas (Eq. V.4.2).

Dans le cadre de nos observations en Microscopie Electronique en Transmission, les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont imagées sur la tranche et apparaissent comme des segments continus (Figure VI.3.1 (c), § II.3.1). Leur densité et leur taille sont mesurées et le terme A_c peut être déterminé expérimentalement à partir des clichés MET. Il est à préciser que ces boucles de dislocation peuvent atteindre de grandes tailles et être tronquées par la surface libre de la lame mince. Dans ce cas, le rayon moyen des boucles mesuré sur les micrographies MET sous-estime leur rayon réel et ne peut être pris comme paramètre représentatif de leur microstructure. Pour tenir compte de la présence de grandes boucles tronquées, nous choisissons la densité linéique L_c , qui représente la longueur totale des boucles ($\sum l_c$ dans l'équation Eq. VI.3.14) par unité de volume, comme paramètre microstructural caractéristique de la population de boucles à composante $\langle c \rangle$. La fraction d'aire A_c de ces boucles, calculée par rapport à la surface d'étude $S_{étude} = L \times e$, où e est l'épaisseur de la lame mince, s'écrit alors comme suit :

$$A_c = \frac{\sum l_c e}{L e} \quad \text{Eq. VI.3.14}$$

La déformation résultante suivant l'axe $\langle c \rangle$ est exprimée par :

$$\varepsilon_c = -\frac{b_e}{h} \frac{\sum l_c e}{L e} = -\frac{c}{2} L_c e \quad \text{Eq. VI.3.15}$$

Dans le modèle développé sous SiDoLo, la vitesse de déformation du cristal suivant l'axe $\langle c \rangle$ est directement liée à l'évolution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$. En considérant la formule donnée par l'équation Eq. VI.3.15, \dot{q}_2 s'écrit :

$$\dot{q}_2 = \frac{c e}{2} \frac{dL_c}{dt} \quad \text{Eq. VI.3.16}$$

Le terme $\frac{c e}{2}$ est pris comme constant dans le modèle pour les alliages recristallisés, à savoir le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®]. Pour une épaisseur moyenne de lame mince de 150 nm, cette constante est égale à $3,86 \times 10^{-17} \text{ m}^2$.

Pour le Zircaloy-4 détendu, la déformation de croissance est due principalement aux dislocations $\langle c + a \rangle$ (§ I.3.1). La loi développée pour les alliages recristallisés et décrivant la déformation de croissance induite par l'évolution des boucles à composante $\langle c \rangle$ (Eq. VI.3.15 et Eq. VI.3.16) est néanmoins utilisée pour le cas du Zircaloy-4 détendu afin de simplifier la démarche. Bien que l'introduction de la variable L_c dans le calcul de la déformation de croissance du Zircaloy-4 détendu n'ait pas de sens physique, nous conservons le même formalisme développé pour les alliages recristallisés, et plus particulièrement le coefficient $\frac{c e}{2}$ est fixé, tout comme pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], à la valeur de $3,86 \times 10^{-17} \text{ m}^2$.

Une loi logistique est introduite dans le modèle pour reproduire l'évolution progressive de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$:

$$\frac{dL_c}{dt} = C_{acc} \phi \frac{1}{1 + ae^{-r\phi t}} \quad \text{Eq. VI.3.17}$$

Le coefficient C_{acc} et les paramètres a et $r > 0$ de la loi logistique sont laissés libres dans le modèle et seront déterminés à l'issue de la procédure d'identification du comportement en croissance sous irradiation des tubes en alliages de zirconium.

Les boucles à composante $\langle c \rangle$ ne se forment qu'à partir d'une dose seuil d'incubation. Il faut donc s'assurer que la vitesse de déformation \dot{q}_2 reste faible au tout début de l'irradiation.

Pour cela, le coefficient a de la loi logistique doit être pris assez élevé pour que le terme $\frac{1}{1+ae^{-r\phi t}}$ tende vers 0 quant $t \rightarrow 0$.

La croissance du Zircaloy-4 détendu évolue quasi-linéairement au cours de l'irradiation (Figure VI.2.1). Pour simuler ce comportement, nous gardons les mêmes expressions introduites pour les alliages recristallisés (Eq. VI.3.1, Eq. VI.3.6, Eq. VI.3.16 et Eq. VI.3.17) tout en fixant les coefficients C_c , D_c , a et r à la valeur nulle et en laissant libre le coefficient C_{acc} qui constitue avec le terme constant $\frac{c_e}{2}$ la pente d'évolution de la déformation de croissance avec la fluence neutronique.

En conclusion, pour le Zircaloy-4 détendu, le seul paramètre ajustable lors de la procédure d'identification sur les points expérimentaux de Garzarolli *et al.* [2] est le coefficient C_{acc} .

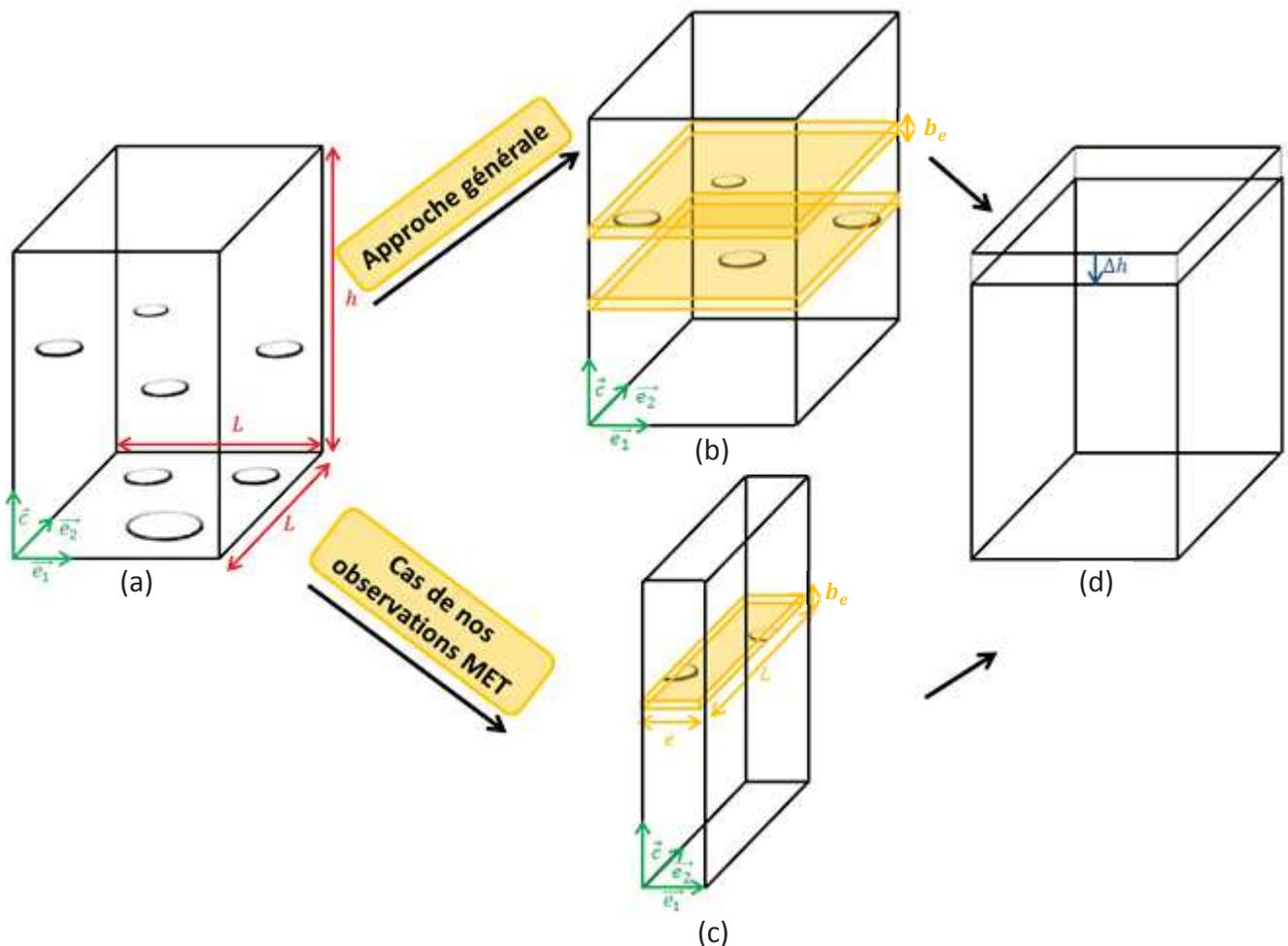


Figure VI.3.1: Schématisation du principe de calcul de la déformation induite par la présence des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le plan de base d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER) – (a) boucles introduites dans les plans atomiques de normale \vec{c} , (b) représentation de la surface d'étude L^2 et de la suppression de plans atomiques d'épaisseur b_e , (c) représentation de la surface d'étude $L \times e$ dans le cas de nos observations MET (boucles à composante $\langle c \rangle$ visualisées sur la tranche et imagées par des segments continus) et (d) contraction du VER suivant l'axe $\langle c \rangle$.

VI.3.3 Lois de comportement en fluage sous irradiation des tubes de zirconium

La loi de fluage introduite dans le modèle est une loi classique de normalité selon laquelle la vitesse de déformation plastique lors d'un écoulement est normale à la surface de charge. L'évolution de la déformation viscoplastique de fluage avec le temps s'écrit comme suit :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_{\text{fluage}} = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{\underline{\underline{M}} \cdot \underline{\underline{s}}}{\sigma_{Hill}} \quad \text{Eq. VI.3.18}$$

Avec $\underline{\underline{s}}$ le déviateur du tenseur de contrainte exprimé en notation de Voigt, $\underline{\underline{M}}$ la matrice de comportement anisotrope du matériau, σ_{Hill} la contrainte équivalente définie par le critère de Hill et \dot{p} la vitesse de déformation de fluage.

Le déviateur du tenseur de contrainte $\underline{\underline{s}}$ est défini par :

$$\underline{\underline{s}} = \underline{\underline{\sigma}} - \frac{1}{3} \text{trace}(\underline{\underline{\sigma}}) \underline{\underline{I}} \quad \text{Eq. VI.3.19}$$

Pour les tubes des assemblages de combustible REP, le critère d'écoulement plastique le plus souvent utilisé est celui de Hill qui suppose une symétrie orthotrope [21]. Selon ce critère, la contrainte équivalente est donnée par l'expression suivante :

$$\sigma_{Hill} = \sqrt{F(\sigma_{11} - \sigma_{22})^2 + G(\sigma_{22} - \sigma_{33})^2 + H(\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + 2L\sigma_{12}^2 + 2M\sigma_{23}^2 + 2N\sigma_{13}^2} \quad \text{Eq. VI.3.20}$$

Dans l'équation Eq. VI.3.20, les termes F , G , H , L , M et N représentent les coefficients d'anisotropie de Hill. En choisissant comme référence un chargement en traction axiale, la contrainte équivalente de Hill devient égale à $\sigma_{33}\sqrt{G+H}$. Or, en traction axiale, la contrainte équivalente doit valoir σ_{33} . Ainsi, les coefficients d'anisotropie G et H sont liés par la relation suivante :

$$G + H = 1 \quad \text{Eq. VI.3.21}$$

La contrainte équivalente de Hill est donc complètement définie par cinq coefficients indépendants et par les contraintes suivant les axes d'orthotropie du matériau.

L'anisotropie de comportement plastique est également introduite par un tenseur de quatrième ordre $\underline{\underline{M}}$ (Eq. VI.3.18) qui apparaît dans l'expression généralisée du critère de Von Mises. Nous rappelons que dans le cadre de notre modèle, nous considérons pour simplifier une anisotropie identique pour le comportement en fluage thermique et en fluage d'irradiation (Eq. VI.3.18).

Avec l'hypothèse d'indépendance du comportement du matériau à la pression hydrostatique (hypothèse d'incompressibilité plastique), le critère généralisé de Von Mises ne fait pas intervenir le tenseur de contrainte lui-même mais sa composante déviatorique $\underline{\underline{s}}$:

$$J_M(\underline{\underline{s}}) = \sqrt{\underline{\underline{s}} \cdot \underline{\underline{M}} \cdot \underline{\underline{s}}} \quad \text{Eq. VI.3.22}$$

Le nombre de composantes libres du tenseur $\underline{\underline{M}}$ peut être réduit par des considérations de symétrie.

Les termes non nuls sont déterminés à partir de la contrainte équivalente de Hill (Eq. VI.3.20) et de

l'expression du critère de Von Mises généralisé (Eq. VI.3.22). Le tenseur de comportement anisotrope $\underline{\underline{M}}$ s'écrit alors en notation de Voigt modifiée de la manière suivante :

$$\underline{\underline{M}} = \begin{pmatrix} F+H & -F & -H & 0 & 0 & 0 \\ -F & G+F & -G & 0 & 0 & 0 \\ -H & -G & H+G & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & L & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & M & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & N \end{pmatrix} \quad \text{Eq. VI.3.23}$$

L'essai simulé en vue de l'identification des paramètres de fluage du matériau est un essai en pression interne dont l'état de contrainte a été défini précédemment (tenseur $\underline{\underline{\sigma}}$ donné en Eq. VI.2.1). En l'absence de contraintes de cisaillement, il reste à déterminer les deux coefficients indépendants F et G ou F et H . Ces coefficients d'anisotropie plastique ont fait l'objet de plusieurs études expérimentales. Des essais d'érouissage en traction et en pression interne, réalisés sur des tronçons de tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé, ont abouti à la détermination des coefficients de Hill ainsi qu'à la caractérisation de leur évolution avec la température [21]. Récemment, des essais d'érouissage – relaxation ont été effectués sur des gaines en M5[®] irradiées 3 cycles et 5 cycles en REP dans le but d'obtenir les coefficients de Hill à ces temps d'irradiation, de les comparer à ceux obtenus pour le M5[®] non irradié et d'en déduire l'effet de l'irradiation sur l'anisotropie plastique du M5[®] (Annexe B confidentielle).

Suite à l'identification des deux coefficients F et G , il nous semble intéressant de comparer les valeurs issues de la calibration du modèle à celles obtenues expérimentalement [21].

La vitesse de déformation de fluage \dot{p} se décompose en une vitesse de fluage thermique \dot{p}_{th} et une vitesse de fluage d'irradiation \dot{p}_{irr} :

$$\dot{p} = \dot{p}_{th} + \dot{p}_{irr} \quad \text{Eq. VI.3.24}$$

VI.3.3.1 Lois de comportement en fluage thermique

La loi d'écoulement adoptée pour le fluage thermique est une loi de puissance qui fait intervenir la contrainte équivalente $J_M(\underline{\underline{s}})$ et une contrainte critique σ_c qui représente le durcissement du matériau irradié par la présence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans la microstructure :

$$\dot{p}_{th} = A \exp\left(\frac{-Q_{th}}{T}\right) \left(\frac{J_M(\underline{\underline{s}})}{\sigma_c}\right)^m \quad \text{Eq. VI.3.25}$$

Avec Q_{th} la température d'activation et A une constante. En considérant la température comme constante, il est possible de regrouper $A \exp\left(\frac{-Q_{th}}{T}\right)$ en une seule constante notée C_{th} . Le paramètre m traduit la sensibilité de la vitesse de fluage thermique à la contrainte. Cet exposant est généralement pris égal à 4 pour les alliages de zirconium à des températures intermédiaires [22], [23]. Ainsi, la vitesse de déformation de fluage thermique s'écrit pour une température donnée:

$$\dot{p}_{th} = C_{th} \left(\frac{J_M(\underline{\underline{s}})}{\sigma_c}\right)^4 \quad \text{Eq. VI.3.26}$$

La contrainte σ_c est donnée par la loi de durcissement [24] suivante où σ_e est la limite d'élasticité du matériau non irradié :

$$\sigma_c = \sigma_e + M\alpha\mu b\sqrt{L_a} \quad \text{Eq. VI.3.27}$$

Dans le modèle, la limite d'élasticité σ_e à 350°C du Zircaloy-4 détendu non irradié est fixée à 220 MPa [25]. Elle est prise égale à 150 MPa pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] non irradiés.

Les termes μ , b et L_a correspondent respectivement, au module de cisaillement (égal à $2,85 \times 10^4$ MPa aux températures considérées : 295, 315 et 350°C), à la norme du vecteur de Burgers des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (b égal au paramètre de maille $a = 0,323$ nm) et à la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

Le facteur de Taylor M est pris égal à 4 [26]. Le coefficient α caractéristique de la force des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ comme obstacles au glissement des dislocations (mécanisme de contournement d'Orowan) varie généralement entre 0,2 et 0,8 [24], [27]. Dans le modèle, nous fixons α à une valeur calculée à partir d'une évaluation de la limite d'élasticité σ_c du matériau irradié (Eq. VI.3.27). En effet, en prenant une valeur de référence de 430 MPa [28] pour σ_c et un ordre de grandeur de la densité linéique L_a des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ de $4 \times 10^{17} \text{ m}^{-2}$ pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], nous obtenons un coefficient α de 0,287. Cette valeur est en accord avec le domaine de variation de α , énoncé dans la littérature [24], [27]. Dans ce qui suit, α est fixée à cette valeur pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], mais aussi pour le Zircaloy-4 détendu.

Les observations MET ont montré que la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ évolue rapidement avec la fluence neutronique jusqu'à atteindre une valeur de saturation (§ 1.2.3.2.2). L'évolution de la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ peut donc être simulée par une loi exponentielle saturante qui s'écrit sous la forme suivante :

$$L_a = L_a^\infty(1 - \exp(-C_a\phi t)) \quad \text{Eq. VI.3.28}$$

Comme le mode utilisé pour le développement du modèle avec le logiciel SiDoLo est de type différentiel (§ VI.1), l'évolution de la population des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est introduite comme suit :

$$\frac{dL_a}{dt} = C_a\phi(L_a^\infty - L_a) \quad \text{Eq. VI.3.29}$$

Avec L_a^∞ la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ à saturation, ϕ le flux neutronique et C_a une constante correspondant à l'inverse de la fluence à saturation. Les deux coefficients C_a et L_a^∞ constituent des paramètres ajustables du modèle lors de sa calibration sur le comportement en fluage sous irradiation des alliages de zirconium. Toutefois, nous vérifions, ultérieurement, la cohérence de l'évolution de la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ simulée par le modèle à l'issue de sa calibration avec des données microscopiques recensées dans la littérature et présentées dans la partie 1.2.3.

Au stade primaire du fluage sous irradiation, la vitesse de déformation est relativement élevée, puis, elle diminue jusqu'à atteindre une valeur stationnaire. Cette diminution de la vitesse de déformation peut être attribuée au durcissement du fluage thermique, représenté ici par l'évolution de la contrainte critique σ_c (Eq. VI.3.27). La loi introduite pour le comportement en fluage thermique permettra au modèle de reproduire la cinétique d'évolution du stade primaire du fluage sous irradiation (§ VI.2.2).

VI.3.3.2 Lois de comportement en fluage d'irradiation

Le comportement en fluage d'irradiation est simulé par une loi de puissance où $J_M(\underline{\sigma})$ est la contrainte équivalente, ϕ est le flux neutronique et B un facteur de proportionnalité (§ 1.3.2.1 et Eq. 1.3.1) :

$$\dot{p}_{irr} = B \exp\left(\frac{-Q_{irr}}{T}\right) J_M(\underline{\sigma})^n \phi^p \tag{Eq. VI.3.30}$$

La température étant constante dans le modèle, il est possible de regrouper le terme $B \exp\left(\frac{-Q_{irr}}{T}\right)$ en une seule constante, notée C_{irr} . Comme nous l'avons précisé dans la partie 1.3.2.1, l'exposant n est égal à 1 dans le domaine des faibles contraintes ($\sigma < \sigma_e/2$) et l'exposant p varie entre 0,25 et 1. Dans notre modèle, nous fixons n à la valeur de 1 et p également. Le seul paramètre ajustable est donc C_{irr} , la vitesse de fluage d'irradiation \dot{p}_{irr} s'exprimant comme suit :

$$\dot{p}_{irr} = C_{irr} J_M(\underline{\sigma}) \phi \tag{Eq. VI.3.31}$$

La représentation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium par un modèle physique dépend d'un certain nombre de paramètres dont les valeurs ne sont pas bien connues. En considérant que les bonnes valeurs seront celles pour lesquelles les prévisions du modèle sont proches des données expérimentales, il est possible de définir, à l'aide du logiciel SiDoLo, un problème d'identification basé sur la méthode de minimisation des erreurs de prédiction (Figure VI.3.2). La méthode itérative de correction des paramètres ajustables consiste à évaluer l'écart entre la réponse du modèle et la base expérimentale et à le minimiser en appliquant un algorithme d'optimisation. Cet algorithme utilise une procédure récursive qui permet de calculer, à chaque itération et à partir d'un nouveau jeu de paramètres, une solution aux équations du modèle jusqu'à ce que le critère d'évaluation ou le critère de convergence soit atteint. Une bonne adéquation entre le modèle et la réalité physique est alors obtenue.

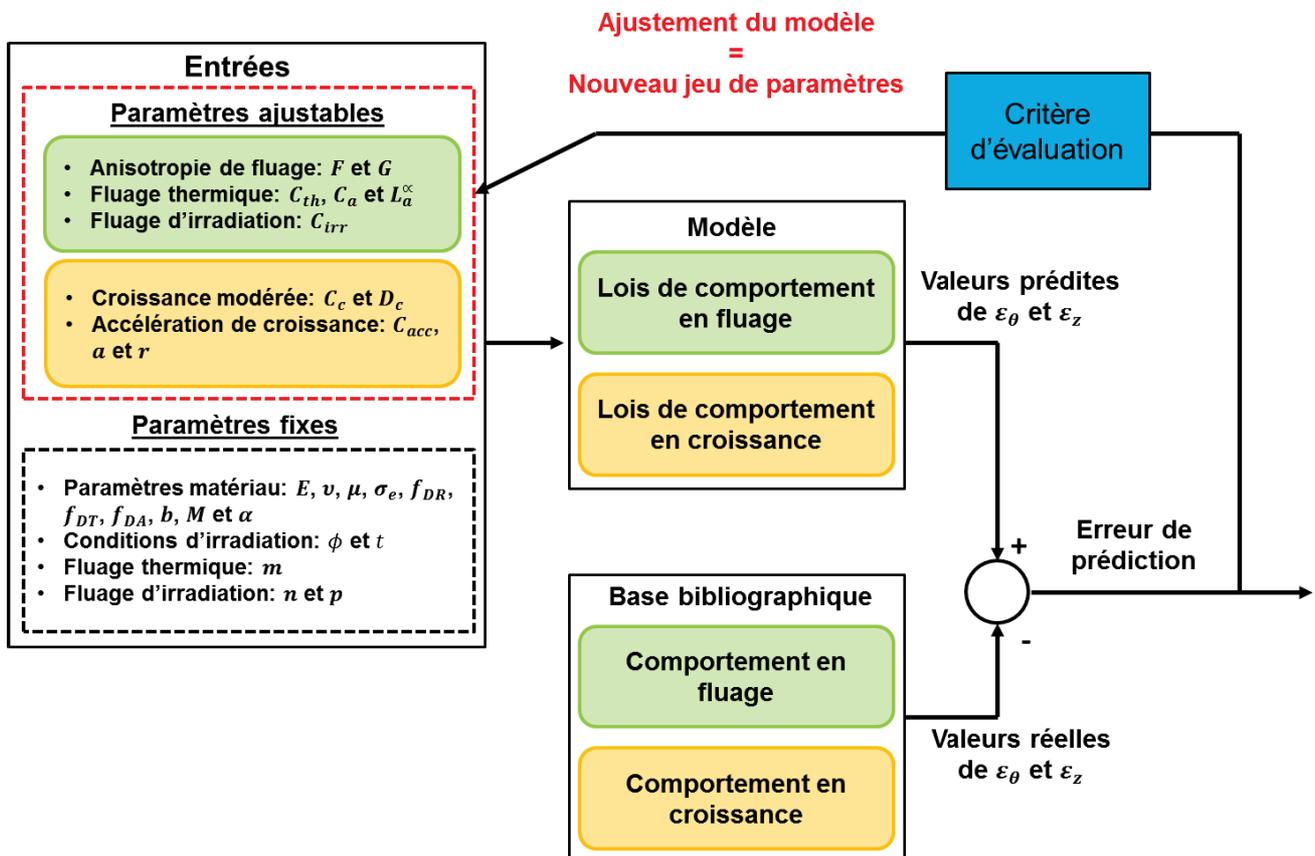


Figure VI.3.2: Schéma représentatif de la procédure d'identification des paramètres ajustables du modèle de comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium.

VI.4 Identification des paramètres du modèle et modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium

Moyennant l'hypothèse de sommation des différentes composantes de déformation sous irradiation, énoncée dans la partie VI.3.1, il nous est possible de simuler dans un premier temps un essai de croissance libre et d'identifier les paramètres physiques intervenant dans les lois de comportement décrivant ce phénomène. Une fois ces paramètres ajustés de façon à reproduire au mieux le comportement en croissance sous irradiation décrit en VI.2.1, la simulation portera sur un essai de fluage en pression interne sous irradiation et la procédure d'identification s'appliquera sur les paramètres de fluage sous irradiation dans le but d'obtenir un bon accord entre les déformations simulées et celles mesurées expérimentalement. En guise de validation, nous simulons, suite aux étapes d'identification de l'ensemble des paramètres du modèle, le comportement des tubes de gainage et des tubes guides en fluage thermique post-irradiation. A l'étape de calibration du modèle sur le comportement en fluage sous irradiation, l'identification se fait sur tous les paramètres de fluage sans isoler ceux associés au fluage thermique hors flux de ceux intervenant dans le phénomène de fluage d'irradiation. Il nous semble donc judicieux de vérifier la pertinence du jeu de paramètres trouvé en simulant la réponse du modèle à un essai de fluage en pression interne hors flux sur matériau irradié. Ainsi, nous évaluons l'amplitude de la composante de fluage thermique dans le phénomène de fluage sous irradiation.

Nous rappelons que pour des raisons de confidentialité, nous présentons dans ce qui suit uniquement les résultats obtenus pour le Zircaloy-4 détendu et recristallisé. La modélisation du comportement en croissance libre et en fluage sous irradiation du M5[®] fait l'objet d'une annexe confidentielle de ce mémoire.

VI.4.1 Identification des paramètres de comportement en croissance libre

Les paramètres des lois de comportement en croissance libre du Zircaloy-4 recristallisé et détendu sont identifiés sur la base des données expérimentales de Garzarolli *et al.* [2]. Plus précisément, l'ajustement porte sur la déformation axiale des tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé.

La procédure d'identification des paramètres de croissance du Zircaloy-4 recristallisé se déroule en trois étapes :

- Simulation des premiers stades de croissance modérée et première identification des deux coefficients C_c et D_c ;
- Simulation du début du stade d'accélération de croissance et première identification des deux coefficients a et r de la loi logistique qui contrôlent, respectivement, la fluence seuil d'apparition de ce stade de croissance et la valeur de la déformation à cette fluence neutronique. A cette étape, il faut s'assurer que le coefficient a reste élevé pour vérifier la condition précisée dans la partie VI.3.2 ($\frac{1}{1+ae^{-r\phi t}}$ tend vers 0 quant $t \rightarrow 0$). Plus spécifiquement, pour le Zircaloy-4 recristallisé, ce coefficient a ne peut être laissé libre et est imposé à 10000, autrement l'identification aboutit à une valeur faible qui ne vérifie pas la condition citée ci-dessus,
- Simulation de l'ensemble de l'évolution de la déformation axiale de croissance avec la fluence neutronique et identification du coefficient C_{acc} qui détermine la pente au stade d'accélération de croissance. A cette dernière étape d'identification, l'ajustement des autres coefficients r , C_c et D_c est affiné.

Pour le Zircaloy-4 détendu, l'identification se fait en une seule étape et consiste à déterminer la pente d'évolution de la déformation axiale de croissance avec la fluence neutronique donnée par le paramètre ajustable C_{acc} .

Les valeurs des paramètres des lois de comportement en croissance libre, ajustés sur les données expérimentales, sont regroupées dans le Tableau VI.4.1. La Figure VI.4.1 souligne le très bon accord des déformations axiales de croissance sous irradiation simulées par le modèle avec celles relevées expérimentalement [2], [4], ceci pour les deux alliages de zirconium étudiés.

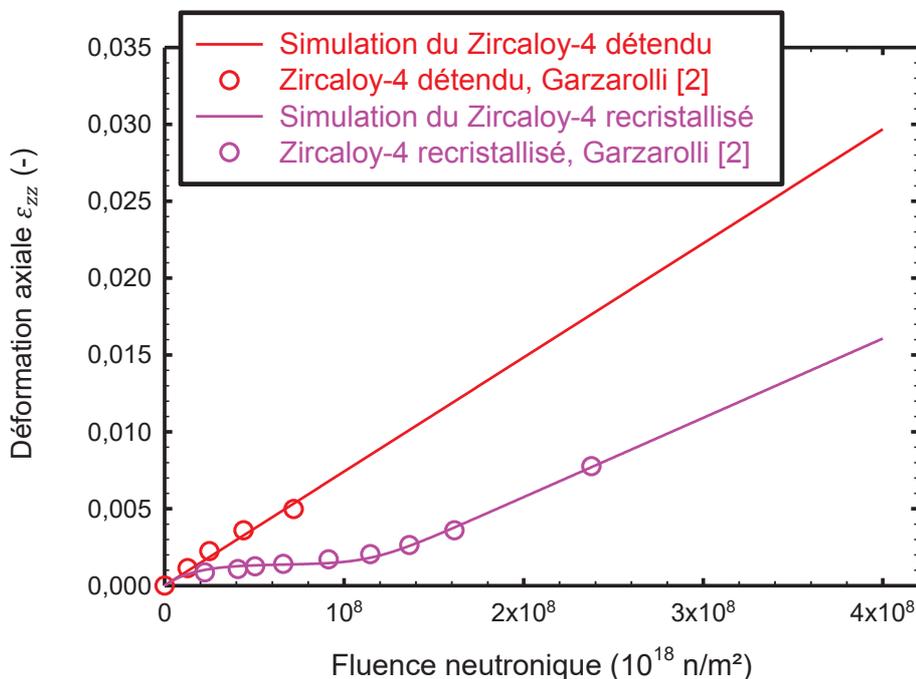


Figure VI.4.1: Evolution de la déformation axiale de croissance libre de tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé avec la fluence neutronique.

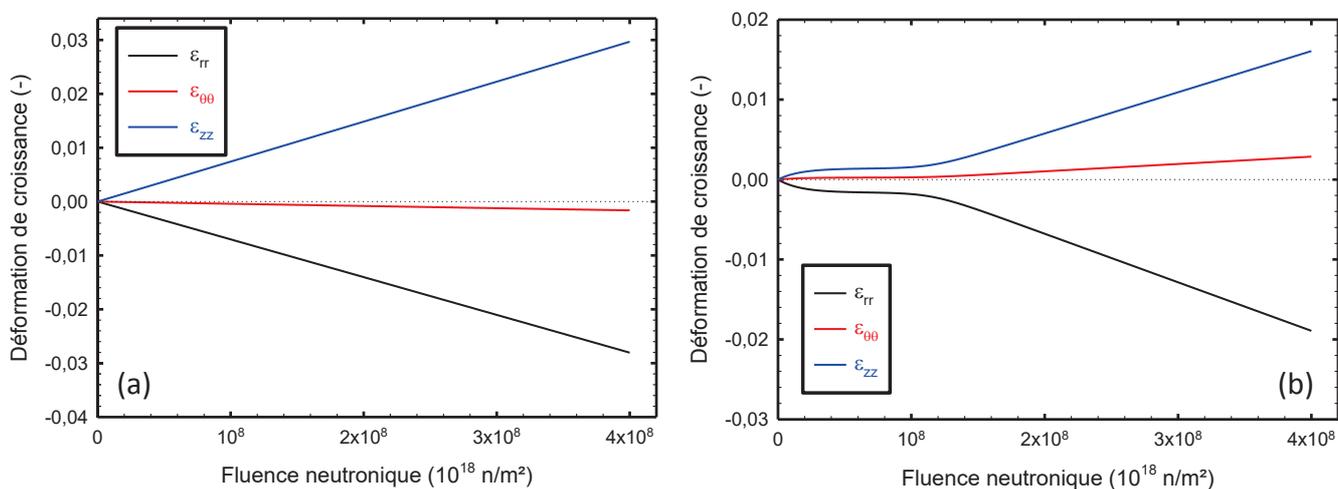


Figure VI.4.2: Evolution des trois composantes, radiale, diamétrale et axiale de la déformation de croissance sous irradiation avec la fluence neutronique – (a) Zircaloy-4 détendu et (b) Zircaloy-4 recristallisé.

Le modèle, ainsi calibré, reproduit le comportement typique de croissance sous irradiation des alliages de zirconium de texture radiale (Tableau VI.3.1). En effet, en croissance libre, ces matériaux présentent une déformation radiale ϵ_{rr} négative et une déformation axiale ϵ_{zz} positive (Figure VI.4.2). Les résultats de simulation sont donc cohérents avec les résultats expérimentaux [5], [6] obtenus sur des tronçons de tubes de gainage en Zircaloy-4 irradiés sans contrainte dans les réacteurs expérimentaux, Siloé et Osiris (§ VI.2.2). De plus, il a été constaté, lors des campagnes de mesure [5] que la déformation diamétrale reste nulle tout le long de l'irradiation. Ce résultat s'explique par le fait

que le facteur de Kearns f_{DT} suivant la direction transverse de ces tubes est proche de 0,3 (Tableau VI.3.1 et Eq. VI.3.4). Le modèle vient confirmer ce résultat expérimental. En effet, les simulations donnent des déformations diamétrales faibles aux fluences neutroniques étudiées (Figure VI.4.2). A une fluence de 4×10^{26} n/m², $\varepsilon_{\theta\theta}$ vaut $-1,5 \times 10^{-3}$ pour le Zircaloy-4 détendu (Figure VI.4.2 (a)) et $2,7 \times 10^{-3}$ pour le Zircaloy-4 recristallisé (Figure VI.4.2 (b)). Ainsi, la variation diamétrale sous irradiation d'un tube de diamètre extérieur initial de 1 cm n'est que de quelques dizaines de micromètres. Il est possible que la précision de la mesure de $\varepsilon_{\theta\theta}$, donnée en [5], ne soit pas suffisante. La déformation expérimentale très faible est alors reportée comme étant nulle.

Tableau VI.4.1: Valeurs des paramètres de croissance libre ajustés dans le modèle.

	C_c (n ⁻¹ m ²)	D_c (-)	a (-)	r (n ⁻¹ m ²)	C_{acc} (n ⁻¹)
Zircaloy-4 détendu	0	0	0	0	$5,55 \times 10^6$
Zircaloy-4 recristallisé	6×10^{-8}	$3,79 \times 10^{-3}$	10000	$7,99 \times 10^{-8}$	$3,66 \times 10^6$

Examinons maintenant l'évolution avec la fluence neutronique du paramètre microscopique, L_c pour le Zircaloy-4 recristallisé irradié avec un flux neutronique de 2×10^{17} n/m²/s. Ce paramètre, représentant la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$, est obtenu en sortie du modèle par la résolution de l'équation Eq. VI.3.17. Dans le but de vérifier la validité de l'évolution de ce paramètre microstructural dans notre modèle physique de comportement macroscopique, nous proposons de comparer les résultats des simulations avec les données expérimentales disponibles dans la littérature et résumées dans le Tableau I.2.4. Nous citons trois sources bibliographiques portant sur la mesure de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$. Simonot [14] a mesuré une densité linéique L_c de $2,1 \times 10^{14}$ m⁻² dans des tubes guides de Zircaloy-4 recristallisé irradiés 5 cycles en REP (fluence neutronique de $9,5 \times 10^{25}$ n/m²) à 320°C. Régnard [29] a reporté une densité volumique entre $1,5$ et 3×10^{20} m⁻³ et une taille de 100 nm de boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé irradié à une fluence neutronique de $3,9 \times 10^{25}$ n/m² et à la température de 300°C. Nous déduisons une densité linéique moyenne de $2,25 \times 10^{13}$ m⁻² à cette fluence neutronique. A $5,4 \times 10^{25}$ n/m², la densité volumique des boucles à composante $\langle c \rangle$ varie entre 3 et 6×10^{20} m⁻³ et leur taille est de 120 nm, conduisant à une densité linéique moyenne de $5,4 \times 10^{13}$ m⁻². Récemment, Doriot *et al.* [30] ont mesuré la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans des tubes de Zircaloy-4 recristallisé irradiés en REP ($E > 1$ MeV) à des températures allant de 305 à 350°C.

Bien que les densités linéiques de boucles à composante $\langle c \rangle$ obtenues en sortie de notre modèle de comportement macroscopique soient un peu faibles par rapport aux valeurs de Simonot [14], de Régnard [29] et de Doriot *et al.* [30] (mise à part le dernier point expérimental) issues des observations microstructurales en MET, la Figure VI.4.3 montre une cohérence satisfaisante entre les simulations et les expériences. A noter que la température d'irradiation ne constitue pas un paramètre d'entrée du modèle. Or, il est avéré que ce paramètre agit sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ III.1). Son augmentation a pour effet de diminuer la dose seuil du début du stade d'accélération de croissance et d'augmenter la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ III.3.2). Pour la modélisation du comportement en croissance libre du Zircaloy-4 recristallisé, le modèle a été calibré à une température d'irradiation fixée à 295°C [2]. Les expériences de Simonot [14], de Simonot [14] et de Doriot *et al.* [30] ayant été menées à des températures plus élevées, il semble plausible d'obtenir des densités linéiques de boucles à composante $\langle c \rangle$ plus élevées (mise à part le dernier point expérimental de Doriot *et al.* [30]) que celles simulées par le modèle.

En conclusion, l'identification des paramètres physiques du modèle a permis, non seulement de reproduire le comportement macroscopique en croissance libre des alliages de zirconium (Figure VI.4.1), mais également de simuler une évolution microstructurale des boucles à composante $\langle c \rangle$ en cohérence avec les observations réalisées en Microscopie Electronique en Transmission (Figure VI.4.3).

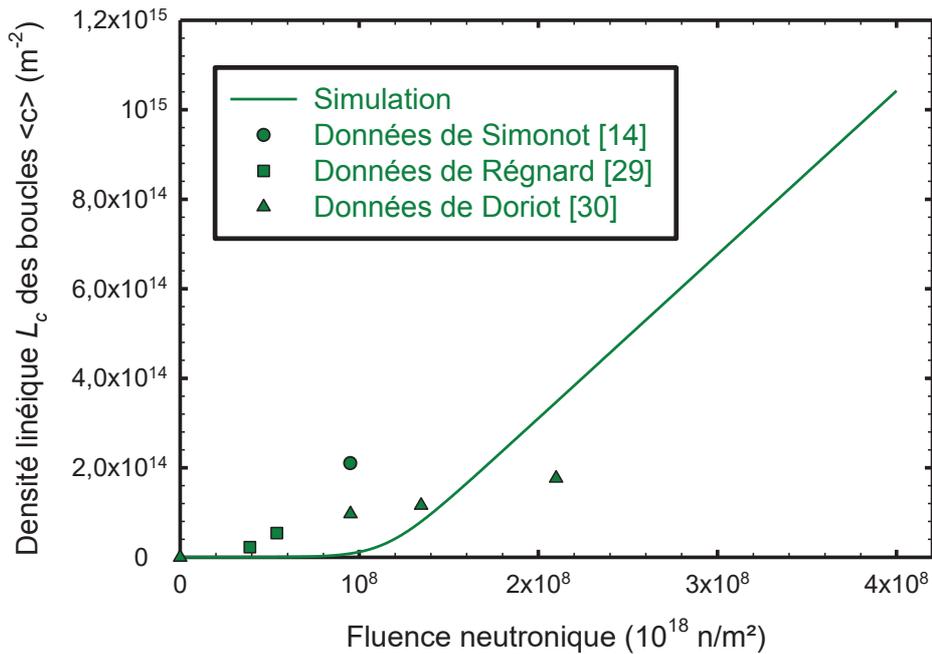


Figure VI.4.3: Evolution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la fluence neutronique pour le Zircaloy-4 recristallisé : comparaison simulation par le modèle de comportement macroscopique et expérience.

VI.4.2 Identification des paramètres de comportement en fluage sous irradiation

Dans cette étape de « construction » du modèle, nous simulons un essai de fluage en pression interne sous un flux neutronique de 2×10^{18} n/m²/s [5], [6]. L'état de contrainte imposé aux tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé est donné par l'équation Eq. VI.2.1, l'essai correspondant à celui décrit dans la partie VI.2.2. La déformation totale simulée intègre les deux phénomènes de croissance libre et de fluage sous irradiation. Les paramètres permettant de simuler la croissance ayant été déterminés dans la partie précédente (Tableau VI.4.1), il reste à ajuster les coefficients intervenant dans les lois de comportement en fluage sous irradiation du Zircaloy-4 détendu et recristallisé. Comme nous l'avons mentionné précédemment, la démarche d'identification mise en œuvre consiste à ajuster l'ensemble des paramètres de fluage sans dissocier ceux contrôlant le fluage thermique hors flux de ceux permettant de simuler le fluage d'irradiation. Toutefois, afin de valider le jeu de paramètres trouvé, le modèle sera appliqué à des essais de fluage thermique post-irradiation sur des matériaux irradiés et confronté aux données expérimentales disponibles dans la littérature ouverte.

L'identification des paramètres de comportement en fluage sous irradiation porte sur l'évolution de deux grandeurs, la déformation diamétrale $\varepsilon_{\theta\theta}$ et la déformation axiale ε_{zz} .

Le travail d'ajustement des six paramètres de fluage sur la base des résultats expérimentaux [5] aboutit aux valeurs consignées dans le Tableau VI.4.2.

Tableau VI.4.2: Valeurs des paramètres de fluage sous irradiation ajustés dans le modèle.

	F	G	C_{th} (s ⁻¹)	C_a (n ⁻¹ m ²)	L_a^∞ (m ⁻²)	C_{irr} (n ⁻¹ m ² MPa ⁻¹)
Zircaloy-4 détendu	0,375	0,543	$1,10 \times 10^{-7}$	$3,00 \times 10^{-9}$	$1,50 \times 10^{-4}$	$1,60 \times 10^{-12}$
Zircaloy-4 recristallisé	0,173	0,735	$3,74 \times 10^{-8}$	$1,37 \times 10^{-8}$	$7,45 \times 10^{-5}$	$3,92 \times 10^{-13}$

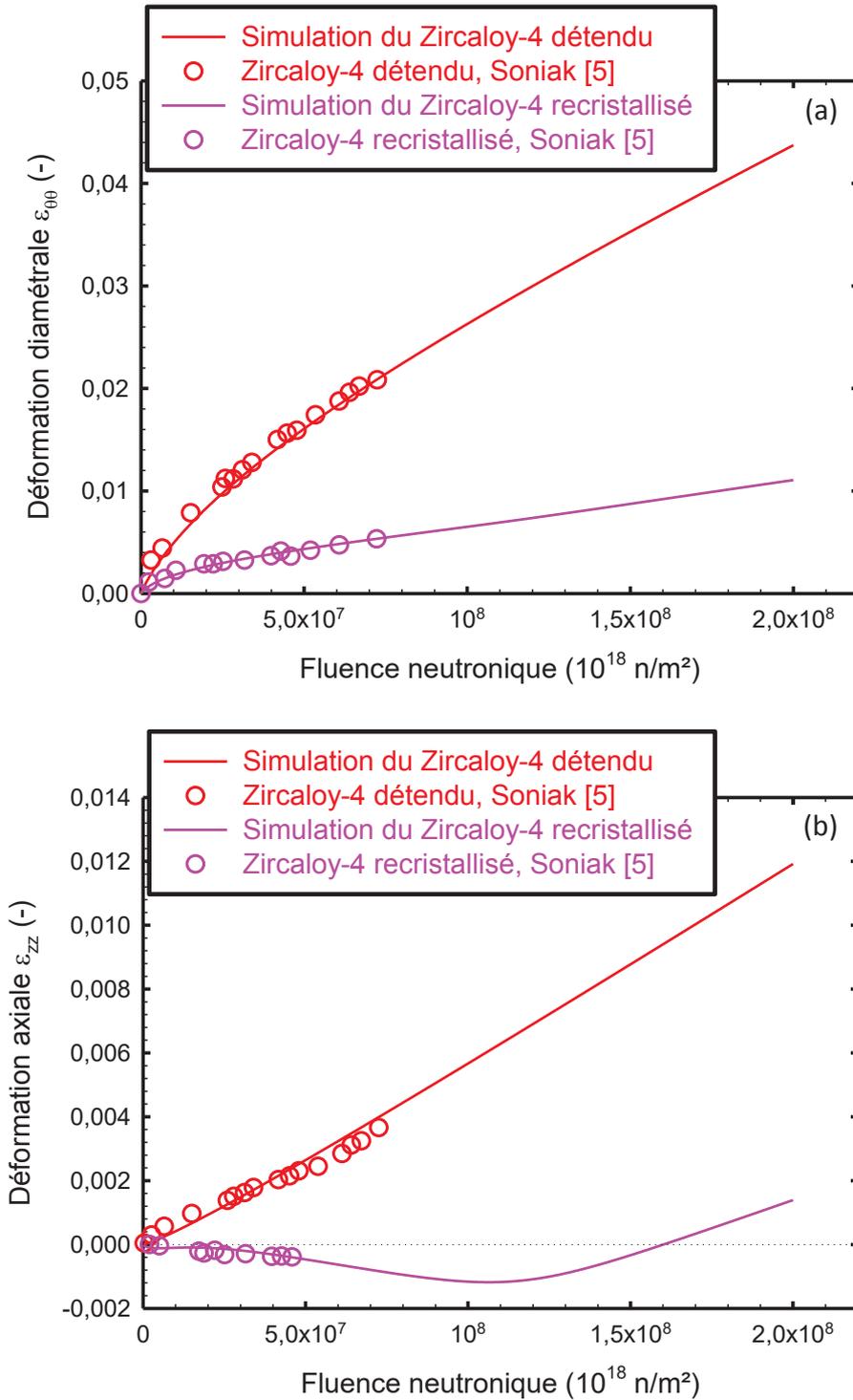


Figure VI.4.4: Comportement en fluage en pression interne sous irradiation des tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé – (a) évolution de la déformation diamétrale $\varepsilon_{\theta\theta}$ avec la fluence neutronique et (b) évolution de la déformation axiale ε_{zz} avec la fluence neutronique.

Le modèle, ainsi calibré, reproduit correctement le comportement en fluage sous irradiation des tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé. Les déformations diamétrales (Figure VI.4.4 (a)) et axiales (Figure VI.4.4 (b)) simulées sont en bon accord avec celles mesurées lors des campagnes d'irradiation [5].

La déformation axiale du Zircaloy-4 détendu est positive (Figure VI.4.4 (b)) du fait de la faible contribution de la composante négative de fluage sous irradiation et de l'amplitude élevée de la déformation de croissance libre (Figure VI.4.1). Ce point est attesté par la Figure VI.4.5 (a) qui illustre la contribution de chacun des phénomènes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance sous irradiation à la déformation axiale totale. A une fluence neutronique de 10×10^{25} n/m², la déformation axiale de croissance libre du Zircaloy-4 détendu est plus que quatre fois supérieure à sa déformation axiale de fluage sous irradiation (Figure VI.4.5 (a)). Ce comportement est expliqué par le taux d'écroissage élevé de ce matériau. En effet, le fort taux de croissance du Zircaloy-4 détendu peut être corrélé à la forte densité initiale de dislocations introduites lors de son traitement thermomécanique (§ 1.3.1.1.2). A une température donnée, la déformation de croissance évolue quasi-linéairement avec la densité initiale de dislocations [7]. Ces dislocations, de type $\langle c + a \rangle$ ou $\langle a \rangle$, présentes dans la microstructure avant irradiation, constituent les puits dominants d'absorption des défauts ponctuels. Compte tenu de la migration plus rapide des auto-interstitiels dans le plan basal que suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$, les SIAs s'annihilent préférentiellement sur le réseau de dislocations $\langle a \rangle$ alors que les lacunes sont capturées par les dislocations $\langle c + a \rangle$ (§ 1.3.1.2.2). Cette élimination préférentielle des défauts ponctuels sur les dislocations conduit à leur montée différentielle qui est à l'origine de la déformation de croissance. La Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) entre les auto-interstitiels et les lacunes permet ainsi de rendre compte du comportement en croissance sous irradiation du Zircaloy-4 détendu.

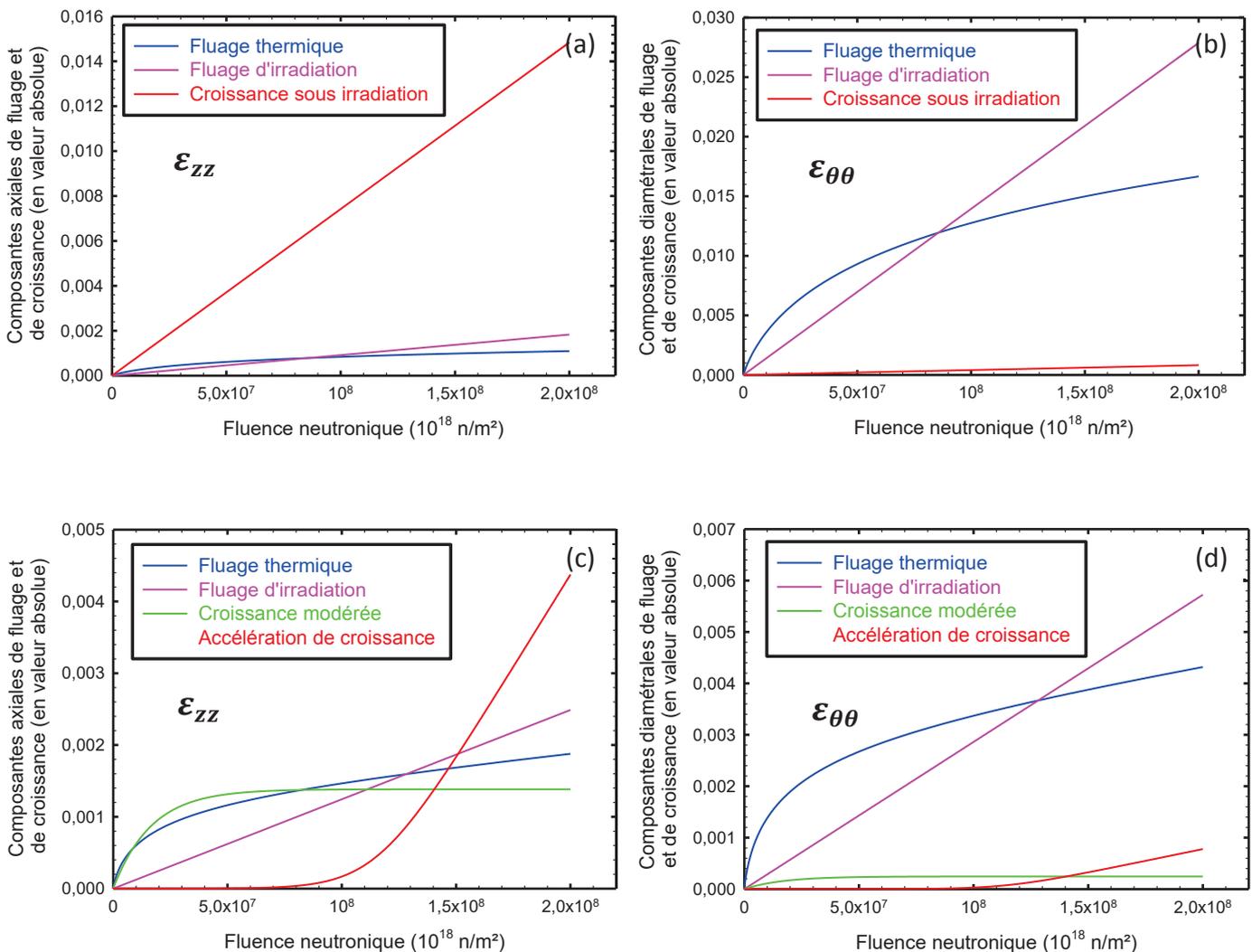


Figure VI.4.5: Contribution de chacun des phénomènes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance sous irradiation à la – (a) déformation axiale totale du Zircaloy-4 détendu, (b) déformation diamétrale totale du Zircaloy-4 détendu, (c) déformation axiale totale du Zircaloy-4 recristallisé et (d) déformation diamétrale totale du Zircaloy-4 recristallisé.

Il a été signalé dans la partie VI.4.1 que la croissance ne génère qu'une très faible déformation diamétrale (Figure VI.4.2 (a)). La déformation diamétrale du Zircaloy-4 détendu, représentée dans la Figure VI.4.4 (a), est donc due principalement au phénomène de fluage sous irradiation. Pour confirmer ce fait, la Figure VI.4.5 (b) donne l'évolution avec la fluence neutronique de la contribution du fluage et de la croissance à la déformation diamétrale totale $\varepsilon_{\theta\theta}$. De la Figure VI.4.5 (b), il ressort également qu'au début de l'irradiation la déformation de fluage sous irradiation est donnée principalement par le fluage thermique. Puis, au fur et à mesure de l'irradiation, la contribution du fluage d'irradiation à la déformation totale de fluage devient prépondérante. Ce comportement est prédictible au regard des lois de fluage introduites dans le modèle (§ VI.3.3). En effet, le fluage thermique durci par les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ représente le stade primaire du fluage sous irradiation. L'accélération de la vitesse de fluage au stade secondaire est donnée par le fluage d'irradiation.

La déformation axiale du Zircaloy-4 recristallisé est négative au début de l'irradiation puis devient positive à des fluences neutroniques élevées (Figure VI.4.4 (b)). Compte tenu de l'anisotropie de fluage, la déformation axiale de fluage, générée lors d'un essai en pression interne, est négative. Au début de l'irradiation, la composante axiale négative de fluage thermique est prépondérante devant la composante axiale positive induite par les premiers stades de croissance modérée (Figure VI.4.5 (c)). A des doses d'irradiation élevées, le comportement du Zircaloy-4 recristallisé est dicté par le phénomène d'accélération de croissance sous irradiation (Figure VI.4.5 (c)). La composante axiale positive d'accélération de croissance est nettement plus élevée que la composante négative de fluage. Il en découle une déformation axiale totale positive aux fluences neutroniques élevées. L'évolution de la déformation axiale des tubes pressurisés en Zircaloy-4 recristallisé est donc le résultat d'une compétition entre les deux phénomènes de croissance et de fluage axial.

Comme pour le Zircaloy-4 détendu, la déformation diamétrale de croissance du Zircaloy-4 recristallisé est faible (Figure VI.4.2 (b)). Pour un essai en pression interne, la déformation diamétrale est quasi-intégralement expliquée par la déformation de fluage sous irradiation avec une contribution importante du fluage thermique au début de l'irradiation et une prépondérance croissante du fluage d'irradiation (Figure VI.4.5 (d)).

Pour un essai de fluage en pression interne, le Zircaloy-4 détendu et le Zircaloy-4 recristallisé montrent une déformation diamétrale de fluage positive et une déformation axiale de fluage négative. Un tel comportement est expliqué par l'anisotropie de fluage qui peut être vérifiée en considérant la normale à la surface de charge. Nous détaillons, ici, la méthode poursuivie pour tracer les surfaces de charge isotrope de Von Mises et anisotrope de Hill. La loi d'écoulement, généralement utilisée pour les tubes des assemblages de combustible REP est celle définie par le critère de Hill, explicitée par l'équation Eq. VI.3.20. A la frontière de la surface de charge, la fonction de charge $f(\underline{\sigma})$ s'annule et le seuil d'écoulement plastique σ_e est dit franchi :

$$f(\underline{\sigma}) = \sqrt{F(\sigma_{11} - \sigma_{22})^2 + G(\sigma_{22} - \sigma_{33})^2 + H(\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + 2L\sigma_{12}^2 + 2M\sigma_{23}^2 + 2N\sigma_{13}^2} - \sigma_e \quad \text{Eq. VI.4.1}$$

Considérons un point M appartenant à la frontière de la surface de charge et de coordonnées polaires $(r\cos\theta, r\sin\theta)$ définies dans le repère $(\sigma_{22}, \sigma_{33})$. En prenant $\sigma_{11} = 0$, $\sigma_{22} = r\cos\theta$ et $\sigma_{33} = r\sin\theta$ dans l'expression $f(\underline{\sigma}) = 0$ (Eq. VI.4.1), le domaine d'élasticité se définit comme suit :

$$\sigma_{22} = \frac{\sigma_e \cos\theta}{\sqrt{F\cos^2\theta + H\sin^2\theta + G(1 - \sin 2\theta)}} \quad \text{Eq. VI.4.2}$$

$$\sigma_{33} = \frac{\sigma_e \sin\theta}{\sqrt{F\cos^2\theta + H\sin^2\theta + G(1 - \sin 2\theta)}} \quad \text{Eq. VI.4.3}$$

Pour les matériaux isotropes, le domaine d'élasticité est déterminé par les deux expressions suivantes :

$$\sigma_{22} = \frac{\sigma_e \cos\theta}{\sqrt{(1 - 1/2 \sin 2\theta)}} \quad \text{Eq. VI.4.4}$$

$$\sigma_{33} = \frac{\sigma_e \sin\theta}{\sqrt{(1 - 1/2 \sin 2\theta)}} \quad \text{Eq. VI.4.5}$$

En ce qui concerne la limite d'élasticité de ces alliages, nous considérons, pour simplifier, que σ_e est la même suivant la direction axiale et la direction diamétrale. A 350°C, la limite d'élasticité est prise égale à 220 MPa pour le Zircaloy-4 détendu non irradié et à 150 MPa pour le Zircaloy-4 recristallisé non irradié [25] (§ VI.3.3.1). Sous irradiation, le matériau se durcit et la limite d'élasticité augmente selon la loi donnée dans la partie VI.3.3.1 (Eq. VI.3.27). Le modèle permet d'obtenir l'évolution de la limite d'élasticité σ_c du matériau étudié avec la fluence neutronique (Figure VI.4.6). Ainsi, d'après le modèle, sous irradiation, la valeur de σ_c du Zircaloy-4 détendu tend vers 490 MPa et celle du Zircaloy-4 recristallisé vers 424 MPa (Figure VI.4.6). Ces valeurs sont en bon accord avec les données trouvées dans la littérature [31].

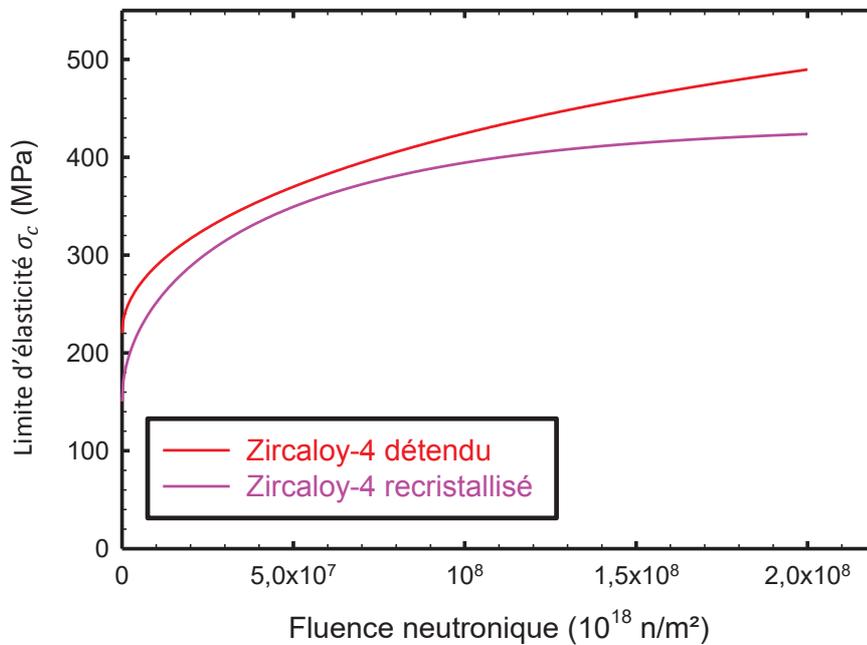


Figure VI.4.6: Evolution de la limite d'élasticité σ_c du Zircaloy-4 détendu et recristallisé avec la fluence neutronique.

Les surfaces de charge isotrope et anisotrope sont données dans la Figure VI.4.7. Deux surfaces de charge anisotropes sont représentées pour chaque matériau : la première (\rightarrow) est obtenue à partir des coefficients de Hill déterminés expérimentalement par Limon *et al.* [21] par des essais d'écroutissage en traction et en pression interne sur du Zircaloy-4 détendu et recristallisé non irradiés et la deuxième (\leftarrow) correspond à la surface de charge du Zircaloy-4 détendu et recristallisé irradiés définie grâce aux valeurs des coefficients d'anisotropie de Hill ajustés dans le modèle (Tableau VI.4.2).

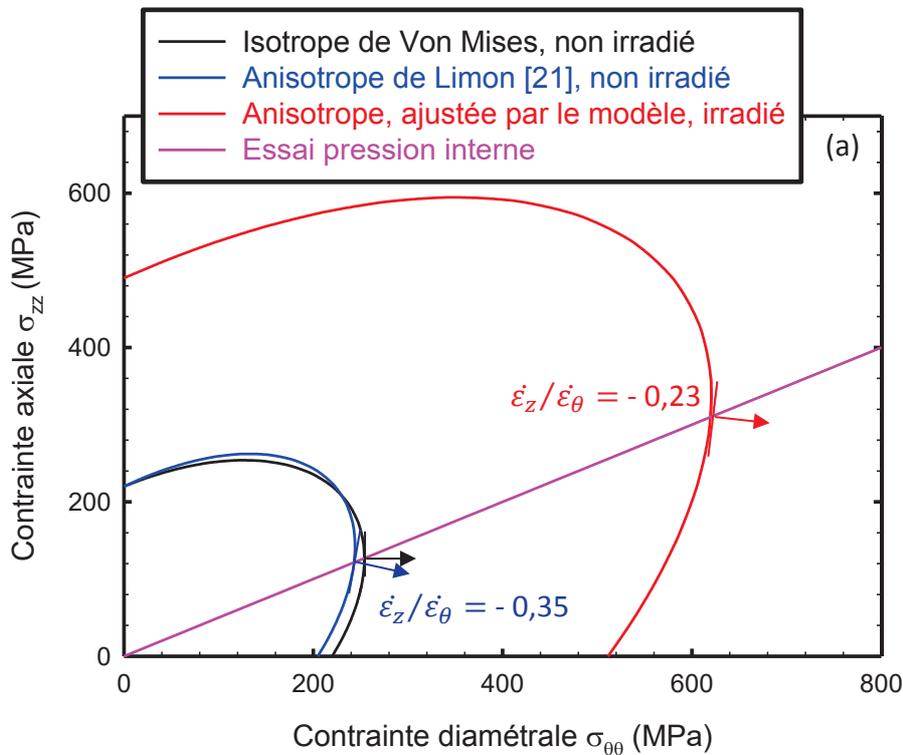
En supposant que le matériau est isotrope, la normale à la surface de charge de Von Mises ne présente pas de composante axiale de déformation et la déformation de fluage pour un essai en pression interne n'est que diamétrale (Figure VI.4.7). En considérant la surface de charge anisotrope de Limon *et al.* [21] et celle obtenue à partir des coefficients d'anisotropie ajustés dans le modèle (Tableau VI.4.2), nous constatons que la normale à ces surfaces de charge présente une composante

VI.4. IDENTIFICATION DES PARAMETRES DU MODELE ET MODELISATION DU COMPORTEMENT MACROSCOPIQUE SOUS IRRADIATION DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

de déformation axiale négative et une composante de déformation diamétrale positive (Figure VI.4.7). La texture prononcée des tubes en alliages de zirconium leur confère donc un comportement anisotrope. Cette anisotropie plastique ne semble évoluer que légèrement d'un matériau vierge à un matériau irradié. En effet, la comparaison des surfaces de charge anisotropes pour un matériau irradié (—) et non irradié (—) met principalement en évidence le durcissement du matériau sous irradiation. La forme et la symétrie des surfaces de charge anisotropes n'évoluent que modérément sous l'effet de l'irradiation. Le Zircaloy-4 détendu irradié présente même une surface de charge de forme proche de celle de Von Mises (surface de charge isotrope). Ce résultat est expliqué par la faible évolution des coefficients d'anisotropie de Hill sous irradiation. L'effet de l'irradiation sur le comportement anisotrope du Zircaloy-4 détendu et du Zircaloy-4 recristallisé est illustré par le Tableau VI.4.3 qui recense les valeurs des deux coefficients d'anisotropie indépendants, F et G , obtenues expérimentalement par Limon *et al.* [21] pour les matériaux non irradiés et trouvées par le modèle pour les matériaux irradiés (Tableau VI.4.2). A noter que la faible variation des coefficients d'anisotropie avec l'irradiation a été également soulignée expérimentalement pour des gaines en M5[®] irradiées 3 et 5 cycles en REP (Annexe B confidentielle).

Tableau VI.4.3: Coefficients d'anisotropie de Hill, F et G , du Zircaloy-4 détendu et recristallisé non irradiés [21] et irradiés.

	Zircaloy-4 détendu non irradié [21]	Zircaloy-4 détendu irradié (modèle)	Zircaloy-4 recristallisé non irradié [21]	Zircaloy-4 recristallisé irradié (modèle)
F	0,568	0,375	0,238	0,173
G	0,585	0,543	0,697	0,735



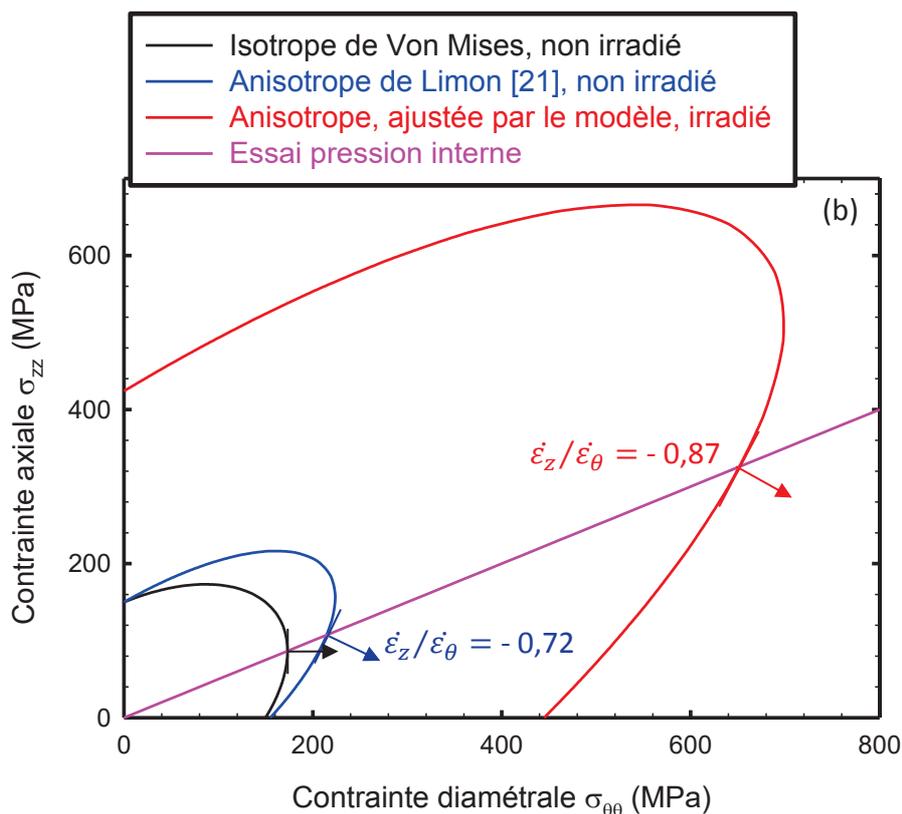


Figure VI.4.7: Surfaces de charge isotropes (Von Mises) et anisotropes pour matériaux non irradiés (Limon et al. [21]) et irradiés (ajustés par le modèle) – (a) Zircaloy-4 détendu et (b) Zircaloy-4 recristallisé.

Par ailleurs, il est important de souligner que la procédure d'identification du modèle sur le comportement en fluage sous irradiation du Zircaloy-4 recristallisé permet d'obtenir un bon ordre de grandeur du paramètre microstructural L_a . L'évolution de ce paramètre qui représente la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ est donnée dans la Figure VI.4.8.

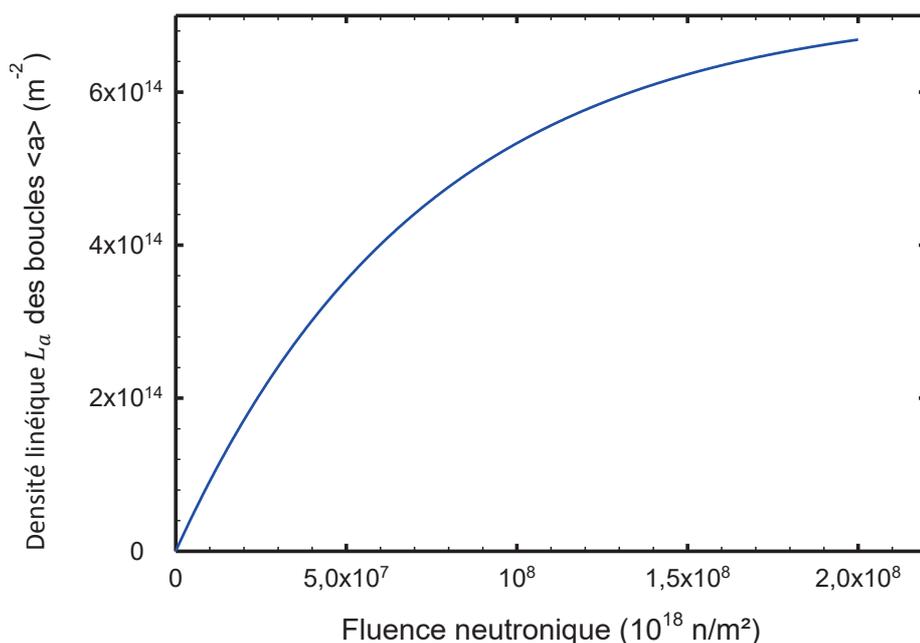


Figure VI.4.8: Evolution de la densité linéique L_a des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ avec la fluence neutronique dans le Zircaloy-4 recristallisé (en sortie du modèle).

A une fluence neutronique de 10^{25} n/m², le modèle attribue la valeur de 9×10^{13} m⁻² au paramètre L_a pour le Zircaloy-4 recristallisé (Figure VI.4.8). Cette valeur est cohérente avec les données expérimentales. En effet, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ se caractérisent par leur petite taille de quelques dizaines de nanomètres et leur grande densité volumique de l'ordre de 10^{22} m⁻³ à une fluence neutronique d'environ 10^{25} n/m² (§ 1.2.3). Il s'ensuit une valeur expérimentale de densité linéique de l'ordre de 10^{14} m⁻².

Une fois le modèle entièrement calibré, nous simulons, à titre de vérification, un essai de fluage thermique post-irradiation dans le but d'évaluer la déformation induite par le fluage thermique hors flux des matériaux irradiés (le Zircaloy-4 détendu de limite d'élasticité de 490 MPa et le Zircaloy-4 recristallisé de limite d'élasticité de 424 MPa (Figure VI.4.6)) au regard des données disponibles dans la littérature ouverte.

Pour le Zircaloy-4 détendu, l'essai simulé correspond à celui réalisé par Cappelaere *et al.* [32]. Il s'agit d'un essai en pression interne conduit à 350°C et jusqu'à des temps très longs. L'état de contrainte imposé lors de cet essai est le suivant :

$$\underline{\underline{\sigma}} \text{ (MPa)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 108 & 0 \\ 0 & 0 & 54 \end{pmatrix}_{(\overline{e_r}, \overline{e_\theta}, \overline{e_z})} \quad \text{Eq. VI.4.6}$$

A 7×10^7 s (~ 20000 heures), la simulation de cet essai de fluage thermique post-irradiation par le modèle conduit à une déformation diamétrale $\varepsilon_{\theta\theta}$ de $8,6 \times 10^{-3}$. La déformation reportée par Cappelaere *et al.* [32] vaut, quant à elle, $2,3 \times 10^{-3}$. Bien que la déformation de fluage thermique prédite par le modèle soit plus élevée que celle issue des expériences, la valeur trouvée n'est pas absurde et reste raisonnable vu les temps très longs considérés.

A notre connaissance, la littérature ouverte ne recense pas d'éléments bibliographiques publics portant sur le fluage thermique post-irradiation du Zircaloy-4 recristallisé. Nous nous basons donc sur l'essai de fluage en pression interne réalisé sur des échantillons de M5® à une température de 400°C et avec un niveau de contrainte circonférentielle de 130 MPa [28]. Au bout de 240 heures, le modèle donne une déformation diamétrale $\varepsilon_{\theta\theta}$ de $6,4 \times 10^{-5}$. Cette déformation est faible par rapport à la valeur expérimentale de 5×10^{-3} [28]. Ainsi, nous vérifions que la déformation de fluage thermique simulée par le modèle reste inférieure à une borne supérieure définie à partir des données de la littérature. A noter que même à des temps plus longs, la déformation de fluage thermique reste faible devant cette borne expérimentale. En effet, à 900 heures, la déformation $\varepsilon_{\theta\theta}$ simulée par le modèle de comportement macroscopique vaut $2,4 \times 10^{-4}$. L'amplitude de la contribution du fluage thermique au phénomène de fluage sous irradiation semble correcte ce qui valide, dans une certaine mesure, le jeu de paramètres du fluage thermique auquel aboutit l'étape d'identification du modèle.

Une fois la procédure d'identification des paramètres de fluage sous irradiation bien aboutie, nous avons souhaité appliquer notre modèle aux essais de Morize [33]. Au cours de ces essais, des tubes de Zircaloy-4 détendu ont été soumis à différentes pressions internes sous un flux neutronique de $1,8 \times 10^{18}$ n/m²/s et à une température d'irradiation de 300°C. Les durées d'irradiation sont de 950 et 2500 heures correspondant à des fluences neutroniques de $6,16 \times 10^{24}$ n/m² et $1,62 \times 10^{25}$ n/m², respectivement. Les simulations ont porté sur les mêmes conditions d'irradiation, mise à part la température qui ne constitue pas un paramètre d'entrée du modèle (§ VI.3.1). La Figure VI.4.9 représente l'évolution de la déformation axiale ε_{zz} des tubes de Zircaloy-4 détendu en fonction de la contrainte diamétrale $\sigma_{\theta\theta}$ imposée. Le modèle nous permet de retrouver qualitativement le même résultat que celui donné par Morize [33], à savoir un allongement du tube d'autant plus faible que la contrainte appliquée est plus élevée. Ce résultat atteste de la compétition entre les deux phénomènes de croissance libre et de fluage axial. Ce point a été détaillé au début de cette partie. Compte tenu de la texture radiale des tubes de Zircaloy-4 détendu, le phénomène de croissance induit une déformation axiale positive alors que du fait de l'anisotropie de fluage, le phénomène de fluage sous

irradiation conduit pour un essai en pression interne à une déformation axiale négative. D'après la Figure VI.4.9, la déformation axiale devient négative pour une contrainte supérieure à environ 110 MPa pour une fluence neutronique de $6,16 \times 10^{24}$ n/m² (950 heures) et à environ 120 MPa pour une fluence neutronique de $1,62 \times 10^{25}$ n/m² (2500 heures). Au-delà de ces niveaux de contrainte, le phénomène de fluage axial devient donc prépondérant par rapport au phénomène de la croissance libre.

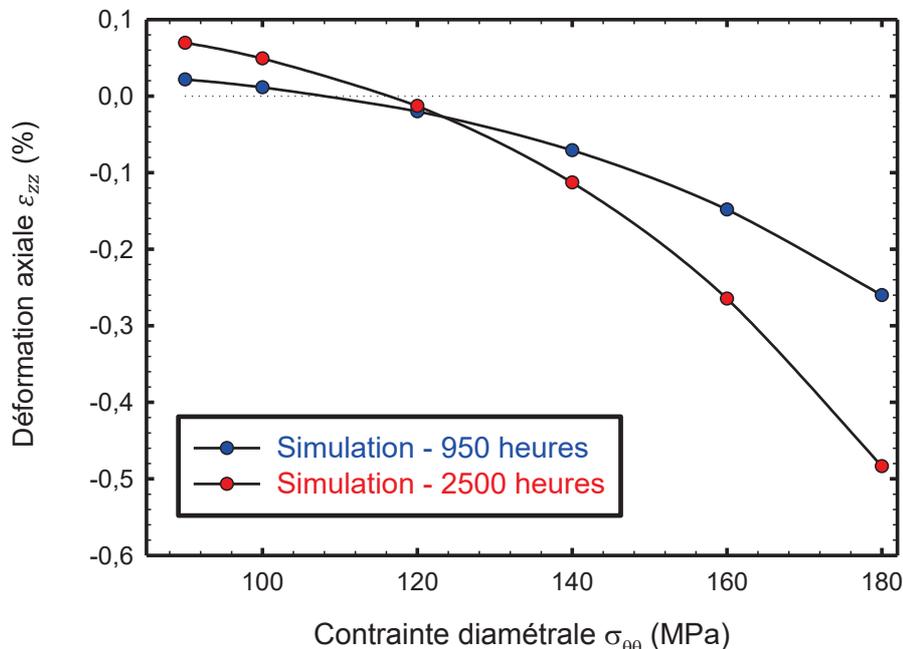


Figure VI.4.9: Evolution de la déformation axiale ε_{zz} en fonction de la contrainte diamétrale $\sigma_{\theta\theta}$ pour le Zircaloy-4 détendu irradié avec un flux neutronique de $1,8 \times 10^{18}$ n/m²/s

VI.5 Modélisation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance

A la vue des résultats de l'étude expérimentale de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ (§ Chapitre 4), il apparaît que le mécanisme SIPA est en mesure de décrire l'évolution de la densité de ces défauts d'irradiation avec la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. En s'appuyant sur les données acquises lors de cette étude analytique menée par des irradiations aux ions (§ Chapitre 4), nous proposons d'intégrer dans le modèle physique de comportement macroscopique, la loi microstructurale décrivant cet effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$. Toutefois, il est important d'avoir conscience du fait que cette loi ne peut être utilisée que sous réserve d'un ensemble d'hypothèses qui seront énoncées par la suite.

Cette partie du chapitre détaille, dans un premier temps, la démarche mise en place pour introduire l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le modèle physique développé sous SiDoLo. Par la suite, la simulation du mécanisme SIPA permettra à la fois de vérifier l'évolution de la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ en fonction de l'orientation de la contrainte par rapport à l'axe $\langle c \rangle$ et de rendre compte de l'impact de cet effet sur la déformation axiale résultante des tubes des assemblages REP. Dans un second temps, l'amplitude de la composante de déformation due au couplage entre le fluage axial et l'accélération de croissance est évaluée pour deux scénarii possibles de chargement en contrainte dans le réacteur.

VI.5.1 Introduction de l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le modèle

Les observations en Microscopie Electronique en Transmission et la quantification des boucles à composante $\langle c \rangle$ sur un grand nombre de grains de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] ont montré qu'une contrainte macroscopique influence la microstructure de ces défauts d'irradiation (§ Chapitre 4). Compte tenu de la dispersion grain à grain, cet effet paraît faible. Toutefois, une tendance, en accord avec le mécanisme SIPA, a pu être dégagée.

Moyennant l'hypothèse que la contrainte appliquée à chaque grain correspond à la contrainte macroscopique (hypothèse de Reuss), il est possible de démontrer que la moyenne de la composante suivant $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes dans le polycristal, notée $\langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal}$, est égale au produit du déviateur du tenseur de la contrainte macroscopique \underline{s} par la matrice \underline{F} définie à partir des facteurs de Kearns comme suit :

$$\underline{F} = \begin{pmatrix} f_{DR} & 0 & 0 \\ 0 & f_{DT} & 0 \\ 0 & 0 & f_{DA} \end{pmatrix}_{(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta, \vec{e}_z)} \quad \text{Eq. VI.5.1}$$

$$\langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal} = \underline{s} : \underline{F} \quad \text{Eq. VI.5.2}$$

Afin d'intégrer l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$, le paramètre C_{acc} qui gouverne l'évolution de la densité linéique de ces boucles avec la fluence neutronique n'est plus considéré comme constant dans l'équation Eq. VI.3.17 mais évolue linéairement avec $\langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal}$:

$$C_{acc} = C_{acc}^0 + C_s \langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal} \quad \text{Eq. VI.5.3}$$

Ainsi, en présence d'une contrainte macroscopique, la loi d'évolution des boucles à composante $\langle c \rangle$ s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{dL_c}{dt} = [C_{acc}^0 + C_s \langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal}] \phi \frac{1}{1 + ae^{-r\phi t}} \quad \text{Eq. VI.5.4}$$

Le paramètre C_{acc}^0 définit la pente d'évolution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la fluence neutronique à contrainte nulle. Ce terme est connu et a été déterminé lors de la calibration du modèle sur le comportement en croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium (Tableau VI.4.1).

Le coefficient C_s peut être obtenu en transposant la pente de la loi d'évolution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. Cette loi est issue de l'étude expérimentale du chapitre 4 (Tableau IV.3.2) et s'écrit comme suit pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], respectivement :

$$L_c = -2,37 \times 10^{10} \sigma_d^{\langle c \rangle} + 8,11 \times 10^{12} \quad \text{Eq. VI.5.5}$$

$$L_c = -2,38 \times 10^{10} \sigma_s^{\langle c \rangle} + 9,88 \times 10^{12} \quad \text{Eq. VI.5.6}$$

Avant de donner les valeurs de C_s pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®] introduites dans le modèle, il est important de bien préciser les hypothèses qui conditionnent l'exploitation de ces résultats expérimentaux :

- Le dommage créé en dpa par les neutrons thermiques est équivalent à celui généré par les ions zirconium ;
- La dépendance de la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ à $\langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal}$ dans le modèle physique de comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium est la même que sa dépendance à $\sigma_d^{\langle c \rangle}$ dans chaque grain ;
- La loi d'évolution de la densité linéique L_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la contrainte ($\sigma_d^{\langle c \rangle}$ pour l'étude expérimentale et $\langle \sigma_d^{\langle c \rangle} \rangle_{polycrystal}$ dans le modèle) ne dépend pas du type de l'irradiation (irradiation aux ions zirconium pour l'étude expérimentale et irradiation neutronique en REP ou dans les réacteurs expérimentaux Siloé et Osiris dans le modèle). Par conséquent, cette loi dépend seulement de la dose et non du flux ou du taux de création de dommage dans le matériau.

En considérant ces hypothèses et en prenant en compte le fait qu'expérimentalement la contrainte a été appliquée à partir de la dose d'irradiation de 4,1 dpa jusqu'à la dose totale de 7 dpa (§ IV.2.2), la valeur du paramètre d'entrée C_s du modèle pour le Zircaloy-4 recristallisé et le M5[®], respectivement, s'obtient comme suit :

$$C_s = \frac{-2,37 \times 10^{10}}{2,9 \times 6,9 \times 10^{24}} = -1184 (10^{18} n^{-1} \text{MPa}^{-1}) \quad \text{Eq. VI.5.7}$$

$$C_s = \frac{-2,38 \times 10^{10}}{2,9 \times 6,9 \times 10^{24}} = -1189 (10^{18} n^{-1} \text{MPa}^{-1}) \quad \text{Eq. VI.5.8}$$

A noter que dans les équations, Eq. VI.5.7 et Eq. VI.5.8, nous prenons le facteur de conversion de Shishov *et al.* [3] pour les REP (1 dpa est équivalent à une fluence neutronique de $6,9 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$). Pour la simulation des irradiations dans les réacteurs expérimentaux, il convient de considérer la conversion correspondante aux MTR (Materials Testing Reactors) pour laquelle 1 dpa est équivalent à $4 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ [3].

VI.5.2 Simulation du mécanisme SIPA dans le modèle

Des simulations sont entreprises dans le but de mettre en évidence l'effet d'une contrainte macroscopique sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ et d'évaluer par la suite l'amplitude de cet effet sur la déformation axiale de croissance. Pour cela, nous considérons trois essais simulés avec un flux neutronique de $2 \times 10^{17} \text{ n/m}^2/\text{s}$. Le premier essai consiste à simuler le comportement en croissance libre des tubes en alliages de zirconium. Pour le deuxième essai, une contrainte externe de traction de 100 MPa est appliquée suivant la direction radiale du tube. Dans le troisième essai, la direction d'application de la contrainte macroscopique est la direction axiale du tube. Le deuxième essai, où la contrainte de traction est appliquée suivant la direction radiale du tube, ne correspond pas à un scénario « réel » de chargement en contrainte dans le réacteur mais est considéré dans le but de mettre en évidence le mécanisme SIPA introduit dans le modèle. En revanche, la sollicitation axiale des tubes guides peut avoir lieu pour certaines conceptions d'assemblages, en début de vie, mais avec des niveaux de contrainte moindres.

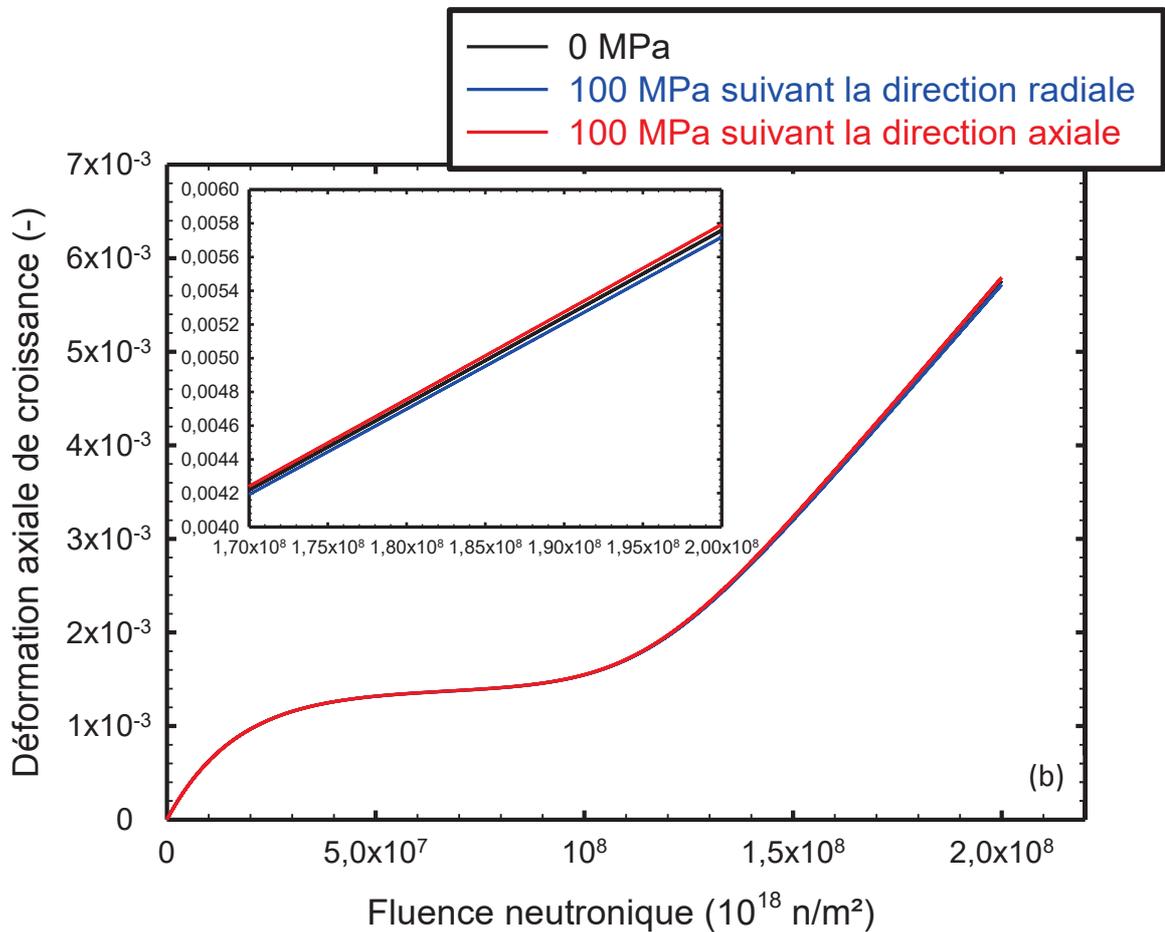
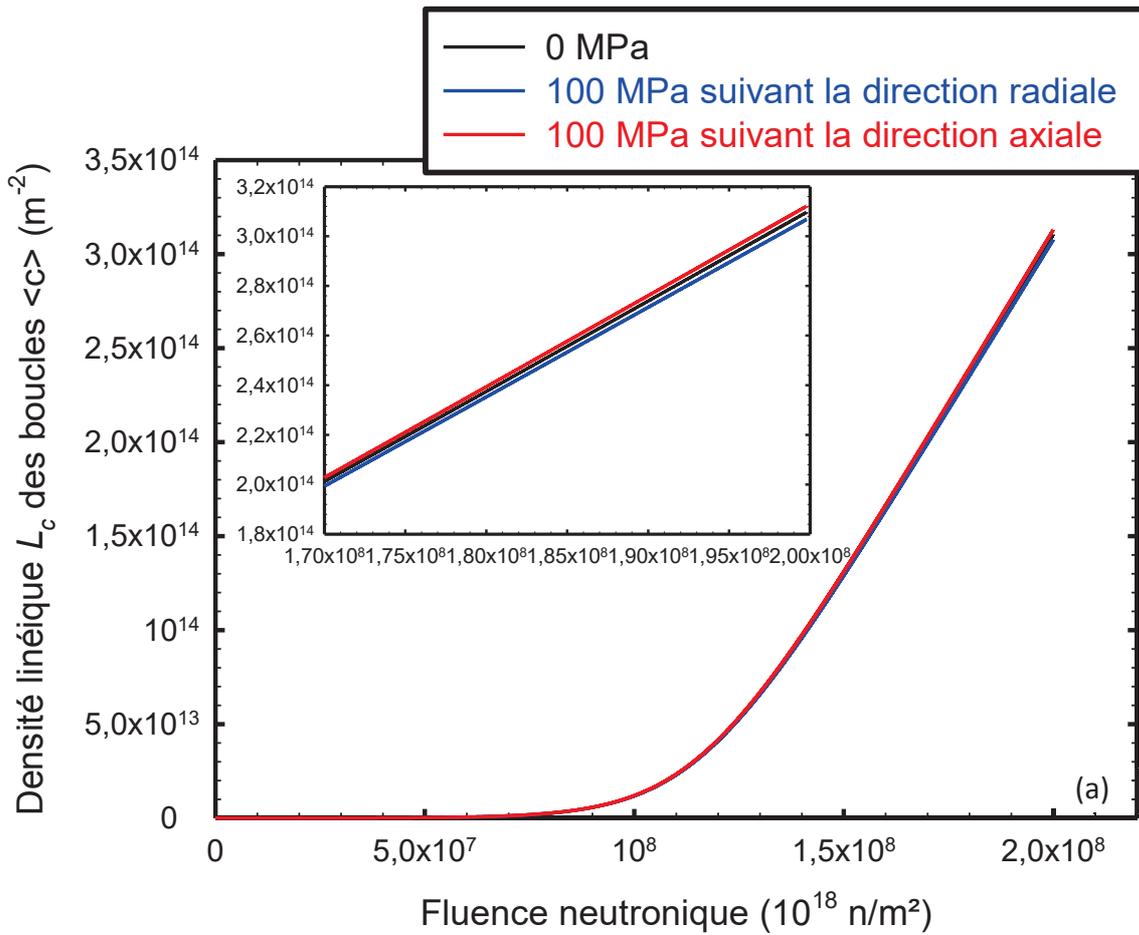


Figure VI.5.1: Mécanisme SIPA simulé par le modèle : effet d'une contrainte sur – (a) la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ et (b) la déformation axiale de croissance.

Compte tenu de la texture radiale des tubes des assemblages REP, une contrainte appliquée suivant la direction radiale (essai 2), correspond au cas où la direction de la contrainte est proche des axes cristallographiques $\langle c \rangle$ des grains. Pour le troisième essai, la contrainte est majoritairement appliquée suivant les axes cristallographiques $\langle a \rangle$ des grains. Comme attendu, l'effet de la contrainte sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 recristallisé est faible (Figure VI.5.1 (a)). La tendance obtenue est conforme à celle prédite par le mécanisme SIPA (Figure VI.5.1 (a) et Figure VI.5.1 (b)). En effet, la densité des boucles à composante $\langle c \rangle$ est plus faible pour une contrainte de traction parallèle à l'axe $\langle c \rangle$ (essai 2 : contrainte suivant la direction radiale du tube) et est plus élevée lorsque la traction a lieu majoritairement perpendiculairement aux axes $\langle c \rangle$ (essai 3 : contrainte suivant la direction axiale du tube). Les variations relatives des densités linéiques par rapport au cas où aucune contrainte n'est appliquée restent néanmoins faibles, et n'excèdent pas les 1% à une fluence neutronique de 2×10^{26} n/m². De même, la contrainte de traction affecte légèrement la déformation axiale de croissance libre du Zircaloy-4 recristallisé (Figure VI.5.1 (b)).

VI.5.3 Simulation du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance

Deux scénarii de chargement en contrainte sont simulés dans le but d'évaluer l'amplitude du couplage entre les deux phénomènes de fluage d'irradiation et de l'accélération de croissance :

- **Scénario 1** : Une contrainte axiale de traction de 100 MPa est appliquée tout le long de l'irradiation ;
- **Scénario 2** : Une contrainte axiale de traction de 60 MPa est appliquée au début de l'irradiation, puis elle devient nulle à l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$ (à une fluence neutronique de 4×10^{25} n/m²).

En comparant la déformation axiale totale obtenue sans la prise en compte du couplage entre le fluage d'irradiation et l'accélération de croissance avec celle intégrant le couplage entre ces deux phénomènes, il apparaît que la composante de déformation de croissance, impactée par la présence de la contrainte macroscopique, $\delta \varepsilon_{croissance} (\sigma \neq 0)$ est négligeable (Figure VI.5.2).

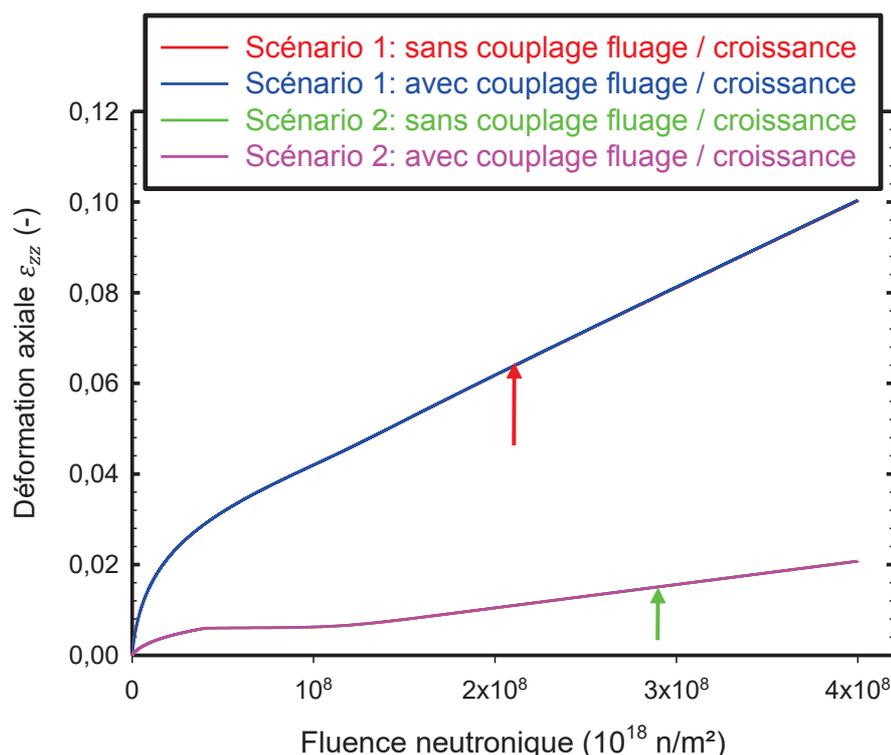


Figure VI.5.2: Evolution de la déformation axiale totale d'un tube en Zircaloy-4 recristallisé pour les deux scénarii de chargement en contrainte, avec ou sans la considération du couplage du fluage axial et de l'accélération de croissance.

Cette constatation est valable pour les deux scénarii de chargement en contrainte et est expliquée par le faible effet d'une contrainte macroscopique externe sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ et sur la déformation axiale de croissance résultante. La sommation des deux composantes axiales de fluage d'irradiation et de croissance libre pour obtenir la déformation axiale totale sous irradiation est donc justifiable.

VI.6 Conclusions de la modélisation du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium

Dans ce chapitre, nous avons mis en place un modèle phénoménologique qui décrit le comportement macroscopique sous irradiation des tubes en alliages de zirconium (tubes guides et tubes de gainage). Les trois phénomènes à l'origine de la déformation de ces tubes, à savoir le fluage thermique, le fluage d'irradiation et la croissance sous irradiation sont introduits via des lois classiques dont certains paramètres sont identifiés sur la base de données bibliographiques recensées dans la littérature ouverte. Ce modèle de comportement macroscopique intègre également des éléments microstructuraux, notamment via les deux paramètres L_a et L_c , représentant, respectivement, la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Dans une première approche, la déformation totale est calculée comme étant la somme de trois composantes indépendantes liées aux trois phénomènes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance libre. Le couplage entre le fluage d'irradiation et la croissance n'est considéré et évalué qu'une fois le modèle calibré et validé sur les données expérimentales.

Le travail d'identification s'est fait en deux étapes. Une première étape qui a porté sur le comportement en croissance libre sous irradiation des tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé. A cette étape, seuls les paramètres intervenant dans les lois de croissance sont identifiés dans le but de reproduire au mieux les résultats issus des irradiations de Garzarolli *et al.* [2]. A l'issue de cette étape, le modèle reproduit correctement le comportement en croissance du Zircaloy-4 détendu et recristallisé. L'évolution avec la fluence neutronique de la déformation axiale simulée par le modèle est en bon accord avec celle reportée expérimentalement. Le modèle de comportement macroscopique permet également d'obtenir un bon ordre de grandeur du paramètre microstructural L_c . Cette première étape d'identification nous a donc amené à un jeu de paramètres pertinent pour décrire le comportement en croissance sous irradiation des tubes en Zircaloy-4.

Par la suite, le modèle est employé pour la simulation d'un essai de fluage en pression interne sous irradiation. Dans le but d'améliorer le caractère prédictif du modèle, les paramètres intervenant dans les lois de fluage thermique et de fluage d'irradiation sont ajustés sur des données expérimentales portant sur les déformations axiales et diamétrales des tubes pressurisés sous irradiation. L'ajustement de ces paramètres conduit à des résultats satisfaisants en termes de prédiction des déformations diamétrales et axiales du Zircaloy-4 détendu et recristallisé mais aussi en ce qui concerne l'évolution de la densité des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. En effet, le modèle permet d'obtenir un bon ordre de grandeur du paramètre microstructural L_a , introduit pour la simulation du durcissement du fluage thermique par la population des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

A cette étape de modélisation, nous avons identifié l'ensemble des paramètres de fluage sous irradiation, sans dissocier ceux qui interviennent dans les lois de fluage thermique de ceux qui contrôlent le fluage d'irradiation. Pour nous assurer de la validité du jeu de paramètres trouvé, le modèle est confronté à des essais de fluage thermique hors flux sur des matériaux irradiés. Pour le Zircaloy-4 détendu, l'essai simulé correspond à celui réalisé par Cappelaere *et al.* [32]. Pour le Zircaloy-4 recristallisé, la littérature ouverte recense peu de données expérimentales portant sur les déformations en fluage thermique post-irradiation. Nous nous sommes donc basés sur un essai de fluage thermique réalisé sur des échantillons de M5[®] irradiés [28] pour vérifier que la réponse du modèle à ce type d'essai respecte l'ordre de grandeur annoncé dans la littérature.

Le dernier volet de ce chapitre concerne la modélisation du couplage entre le fluage axial et l'accélération de croissance. Pour ce faire, nous introduisons dans le modèle de comportement macroscopique, moyennant un ensemble d'hypothèses, la loi microstructurale déterminée dans le chapitre 4 pour le Zircaloy-4 recristallisé. Cette loi traduit l'effet de la contrainte sur la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ et permet de rendre en compte de son influence sur la déformation axiale de croissance. La simulation de deux scénarii possibles de chargement en contrainte dans le

réacteur montre que la déformation axiale totale des tubes est insensible au couplage entre le fluage sous irradiation et l'accélération de croissance. Ces résultats viennent justifier l'approche additive considérée dans la plupart des modèles prédictifs du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium.

Tableau VI.6.1: Tableau récapitulant les variables internes (a) et les paramètres physiques (b) du modèle de description du comportement macroscopique des tubes guides et des tubes de gainage en alliages de zirconium.

Variables internes du modèle	
$\dot{\epsilon}_{croissance}$	Vitesse de déformation macroscopique induite par le phénomène de croissance sous irradiation
\dot{q}_1	Vitesse de déformation de croissance modérée du cristal suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ (variable interne scalaire)
\dot{q}_2	Vitesse de déformation de croissance accélérée du cristal suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ (variable interne scalaire)
$\dot{\epsilon}_{fluage}$	Vitesse de déformation plastique induite par le phénomène de fluage sous irradiation
\dot{p}	Vitesse de déformation de fluage sous irradiation (variable interne scalaire)
\dot{p}_{th}	Vitesse de déformation de fluage thermique (variable interne scalaire)
\dot{p}_{irr}	Vitesse de déformation de fluage d'irradiation (variable interne scalaire)
L_c	Densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$
L_a	Densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$
σ_c	Limite d'élasticité du matériau irradié (loi de durcissement)

(a)

Paramètre physique du modèle	Désignation	Valeur	
		Zircaloy-4 détendu	Zircaloy-4 recristallisé
f_{DR}	Facteur de Kearns suivant la direction radiale du tube [Exp]	0,551	0,62
f_{DT}	Facteur de Kearns suivant la direction transverse du tube [Exp]	0,346	0,29
f_{DA}	Facteur de Kearns suivant la direction axiale du tube [Exp]	0,103	0,09
C_c	Coefficient de la loi de croissance modérée représentant l'inverse de la fluence à saturation [Id]	0	6×10^{-8} (n ⁻¹ m ²)
D_c	Coefficient de la loi de croissance modérée représentant la déformation du cristal suivant l'axe $\langle c \rangle$ à la fluence de saturation [Id]	0	$3,79 \times 10^{-3}$ (-)
$\frac{c e}{2}$	Coefficient constant de la loi de croissance accélérée [Exp]	$3,86 \times 10^{-17}$ (m ²)	$3,86 \times 10^{-17}$ (m ²)
C_{acc}	Coefficient de la loi logistique contrôlant la pente d'évolution de la déformation avec la fluence neutronique au stade d'accélération de croissance [Id]	$5,55 \times 10^6$ (n ⁻¹)	$3,66 \times 10^6$ (n ⁻¹)

VI.7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 6

a	Coefficient de la loi logistique contrôlant la fluence seuil d'apparition du stade d'accélération de croissance [Id]	0	10000 (-)
r	Coefficient de la loi logistique contrôlant la valeur de la déformation à la fluence seuil d'apparition du stade d'accélération de croissance [Id]	0	$7,99 \times 10^{-8}$ ($n^{-1}m^2$)
F	Coefficient d'anisotropie de Hill [Id]	0,375	0,543
G	Coefficient d'anisotropie de Hill [Id]	0,173	0,735
σ_e	Limite d'élasticité du matériau non irradié [Exp]	220 (MPa)	150 (MPa)
C_{th}	Coefficient de la loi de fluage thermique [Id]	$1,10 \times 10^{-7}$ (s^{-1})	$3,74 \times 10^{-8}$ (s^{-1})
m	Exposant traduisant la sensibilité de la vitesse de fluage thermique à la contrainte [Exp]	4	4
$M\alpha$	Le produit du facteur de Taylor M et du coefficient α caractéristique de la force des boucles de dislocation $< a >$ comme obstacles au glissement des dislocations [Exp]	1,147	1,147
L_a^∞	Coefficient de la loi d'évolution de L_a représentant la densité linéique des boucles de dislocation $< a >$ à la fluence de saturation [Id]	$1,50 \times 10^{-4}$ (m^{-2})	$7,45 \times 10^{-5}$ (m^{-2})
C_a	Coefficient de la loi d'évolution de L_a représentant l'inverse de la fluence à saturation [Id]	$3,00 \times 10^{-9}$ ($n^{-1}m^2$)	$1,37 \times 10^{-8}$ ($n^{-1}m^2$)
C_{irr}	Coefficient de la loi de fluage d'irradiation [Id]	$1,60 \times 10^{-12}$ ($n^{-1}m^2 MPa^{-1}$)	$3,92 \times 10^{-13}$ ($n^{-1}m^2 MPa^{-1}$)
n	Exposant traduisant la sensibilité de la vitesse de fluage d'irradiation à la contrainte [Exp]	1	1
p	Exposant traduisant la sensibilité de la vitesse de fluage d'irradiation au flux [Exp]	1	1
C_s	Coefficient introduit pour l'étude du couplage entre le fluage axial et l'accélération de croissance pente de la loi d'évolution de L_c avec la composante suivant $< c >$ du déviateur du tenseur des contraintes [Exp]	-	-1184 ($10^{18} n^{-1} MPa^{-1}$)

[Exp] : valeur du paramètre issue des expériences et **[Id]** : valeur du paramètre issue d'une étape d'identification et de calibration du modèle sur des données expérimentales

(b)

VI.7 Références bibliographiques du chapitre 6

- [1] P. Pilvin, "SiDoLo Version 2.4495 Notice d'utilisation," 2003.
- [2] F. Garzarolli, P. Dewes, G. Maussner, and H.-H. Basso, "Effects of high neutron fluences on microstructure and growth of Zircaloy-4," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023*, 1989, pp. 641–657.
- [3] V. N. Shishov, M. M. Peregud, A. V. Nikulina, Y. V. Pimenov, G. P. Kobylansky, A. E. Novoselov, Z. E. Ostrovsky, and A. V. Obukhov, "Influence of structure-phase state of Nb containing Zr alloys on irradiation-induced growth," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 666–686.
- [4] P. Bossis, B. Verhaeghe, S. Doriot, D. Gilbon, V. Chabretou, A. Dalmais, J.-P. Mardon, M. Blat, and A. Miquet, "In PWR comprehensive study of high burn-up corrosion and growth behaviour

- of M5[®] and recrystallized low-tin Zircaloy-4,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fifteenth International Symposium, ASTM STP 1505*, 2009, pp. 430–456.
- [5] A. Soniak, N. L'Hullier, J.-P. Mardon, V. Rebeyrolle, P. Bouffieux, and C. Bernaudat, “Irradiation creep behavior of Zr-base alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 837–862.
- [6] D. Gilbon, A. Soniak, S. Doriot, and J.-P. Mardon, “Irradiation creep and growth behavior and microstructural evolution of advanced Zr-base alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354*, 2000, pp. 51–73.
- [7] V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, “An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behavior of zirconium alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium, ASTM STP 939*, 1987, pp. 49–85.
- [8] G. Martin and J. P. Poirier, “Considérations sur la relation entre le fluage sous irradiation et dommages créés par l'irradiation en l'absence de contrainte,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 39, pp. 93–101, 1971.
- [9] N. Christodoulou, A. R. Causey, R. A. Holt, C. N. Tomé, N. Badie, R. J. Klassen, R. Sauvé, and C. H. Woo, “Modeling in-reactor deformation of Zr-2.5Nb pressure tubes in CANDU power reactors,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, 1996, pp. 518–537.
- [10] R. A. Holt, “In-reactor deformation of cold-worked Zr-2.5Nb pressure tubes,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 372, pp. 182–214, Jan. 2008.
- [11] G. J. C. Carpenter, R. A. Murgatroyd, A. Rogerson, and J. F. Watters, “Irradiation growth of zirconium single crystals,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 101, pp. 28–37, 1981.
- [12] G. J. C. Carpenter, R. H. Zee, and A. Rogerson, “Irradiation growth of zirconium single crystals: a review,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 86–100, 1988.
- [13] A. Rogerson, “Irradiation growth in zirconium and its alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 43–61, 1988.
- [14] C. Simonot, “Evolutions microstructurales des alliages de zirconium sous irradiation, liens avec le phénomène de croissance,” Thèse de doctorat, Université de Paris Sud, 1996.
- [15] J. L. Baron, C. Esling, J. L. Feron, D. Gex, J. L. Glimois, R. Guillen, M. Humbert, P. Lemoine, J. Lepape, J.-P. Mardon, A. Thil, and G. Uny, “Interlaboratories tests of textures of Zircaloy-4 tubes. Part 1: Pole figure measurements and calculation of Kearns coefficients,” *Textures Microstruct.*, vol. 12, pp. 125–140, 1990.
- [16] R. A. Holt and R. W. Gilbert, “C-component dislocations in neutron irradiated Zircaloy-2,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 16, pp. 127–130, 1983.
- [17] R. A. Holt and R. W. Gilbert, “C-component dislocations in annealed zircaloy irradiated at about 570 K,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 137, pp. 185–189, 1986.
- [18] M. Griffiths, R. W. Gilbert, V. Fidleris, R. P. Tucker, and R. B. Adamson, “Neutron damage in zirconium alloys irradiated at 644 to 710 K,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, pp. 159–168, 1987.
- [19] L. Tournadre, “Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium,” Thèse de doctorat confidentielle, Université de la Rochelle, 2012.

- [20] F. Christien and a. Barbu, "Cluster Dynamics modelling of irradiation growth of zirconium single crystals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 393, no. 1, pp. 153–161, Aug. 2009.
- [21] R. Limon, S. Lehmann, R. Maury, and J. Pelchat, "Mesure des coefficients d'élasticité et d'anisotropie plastique des tubes de gainage en Zircaloy-4 X1 Première phase DEN/DANS/DMN/SRMA/NT/95-2135," Note technique confidentielle, CEA Saclay, 1995.
- [22] F. Ferrer, A. Barbu, T. Bretheau, J. Crepin, F. Willaime, and D. Charquet, "The effect of small concentrations of sulfur on the plasticity of zirconium alloys at intermediate temperatures," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423*, 2002, pp. 863–885.
- [23] S. Carassou, C. Duguay, P. Yvon, F. Rozenblum, J. M. Cloué, V. Chabretou, C. Bernaudat, B. Levasseur, A. Maurice, P. Bouffieux, and K. Audic, "REFLET Experiment in OSIRIS: Relaxation under flux as a method for determining creep behavior of Zircaloy assembly components," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529*, 2010, pp. 899–927.
- [24] G. S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science Metals and Alloys*, Springer. 2007, pp. 192–200.
- [25] P. Delobelle, P. Robinet, P. Geyer, and P. Bouffieux, "A model to describe the anisotropic viscoplastic behaviour of Zircaloy-4 tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 238, pp. 135–162, 1996.
- [26] J. L. Derep, S. Ibrahim, R. Rouby, and C. Fantozzi, "Deformation behaviour of Zircaloy-4 between 77 and 900 K," *Acta Metall.*, vol. 28, pp. 607–619, 1979.
- [27] J. Henry and A. Barbu, "Etude bibliographique: Durcissement des aciers inoxydables austénitiques par les amas de défauts ponctuels créés par irradiation DEN/DANS/DMN/SRMA/LA2M/NT/96-2162," Note technique interne, CEA Saclay, 1996.
- [28] J. Ribis, F. Onimus, J.-L. Béchade, S. Doriot, C. Cappelaere, C. Lemaignan, A. Barbu, and O. Rabouille, "Experimental and modeling approach of irradiation defects recovery in zirconium alloys: impact of an applied stress," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fifteenth International Symposium, ASTM STP 1505*, 2008, vol. 5, no. 3, pp. 674–695.
- [29] C. Régnard, "Etude de la microstructure d'un tube de Zircaloy-4 irradié aux neutrons à 300°C, DTP/SECC n° 11/93," Note technique confidentielle, CEA Grenoble, 1993.
- [30] S. Doriot, B. Verhaeghe, J.-L. Béchade, D. Menut, D. Gilbon, and J.-P. Mardon, "Microstructural evolution of M5TM alloy irradiated in PWRs up to high fluences - Comparison with other Zr base alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventeenth International Symposium, ASTM STP 1543*, 2015, pp. 759–799.
- [31] F. Onimus, J.-L. Béchade, C. Prioul, P. Pilvin, I. Monnet, S. Doriot, B. Verhaeghe, D. Gilbon, L. Robert, L. Legras, and J.-P. Mardon, "Plastic deformation of irradiated zirconium alloys : TEM investigations and micro-mechanical modeling," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467*, 2005, pp. 53–78.
- [32] C. Cappelaere, R. Limon, C. Duguay, G. Pinte, M. Le Breton, P. Bouffieux, V. Chabretou, and A. Miquet, "Thermal creep model for CWSR Zircaloy-4 cladding taking into account the annealing of the irradiation hardening," *Mater. Nucl. Syst.*, vol. 177, pp. 257–272, 2012.
- [33] P. Morize, "Effets de l'irradiation sur le Zircaloy," *Ann. Chim. Fr.*, vol. 9, pp. 411–421, 1984.

Conclusions et perspectives

Conclusions

Le grandissement sous flux des assemblages de combustible REP est un phénomène qui survient suite aux diverses sollicitations neutroniques et thermomécaniques auxquelles sont soumis les tubes guides de l'assemblage. Le grandissement de ces tubes se traduit par un allongement suivant la direction axiale. Cette déformation macroscopique est le résultat de deux phénomènes principaux :

- Le **fluage d'irradiation** : ce phénomène a lieu sous l'action conjuguée du flux et de la contrainte. La déformation de fluage d'irradiation résulte vraisemblablement de la montée des dislocations par l'absorption différentielle des défauts ponctuels créés sous irradiation;
- La croissance **sous irradiation** : ce phénomène a lieu sous flux en l'absence de toute contrainte et sans variation de volume. Pour les alliages de zirconium recristallisés, la croissance reste modérée puis s'accélère à forte dose d'irradiation. Cette accélération de croissance est corrélée à l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$. Le mécanisme de déformation le plus pertinent qui permet de rendre compte du comportement en croissance sous irradiation des alliages de zirconium est le mécanisme basé sur la Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) des défauts ponctuels.

Ces phénomènes de fluage d'irradiation et de croissance libre sont tous deux régis par des mécanismes microscopiques faisant intervenir la diffusion et l'élimination anisotrope des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure (dislocations, boucles de dislocation et joints de grains). Or, jusqu'à présent les modèles de description du comportement macroscopique sous irradiation des alliages de zirconium s'appuient sur une approche simplifiée qui consiste à décorréliser ces deux phénomènes. Avec cette approche, les deux composantes de déformation liées au fluage d'irradiation et à la croissance sous irradiation sont considérées comme indépendantes et additives. Au regard des mécanismes microscopiques responsables du fluage d'irradiation et de la croissance libre, cette approche peut être remise en question en raison d'un éventuel couplage entre ces deux phénomènes. Comme les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont responsables du phénomène d'accélération de croissance des alliages de zirconium recristallisés, l'analyse du couplage entre le fluage d'irradiation et le phénomène de croissance à forte dose passe en particulier par l'examen de l'effet d'application d'une contrainte macroscopique sous irradiation sur la microstructure de ces boucles de dislocation. Dans ce contexte, notre travail de thèse visait à étudier l'influence d'un chargement mécanique sur l'évolution de la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans deux alliages de zirconium recristallisés, le Zircaloy-4 et le M5[®] TREX, ceci au moyen d'une étude expérimentale couplée à une modélisation par la méthode de dynamique d'amas.

En premier lieu, à travers des analyses soigneuses conduites en Microscopie Electronique en Transmission (MET), l'étude expérimentale a permis à la fois d'apporter des éléments de réponse à la question de l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ et d'identifier le mécanisme à l'origine de l'effet observé. Pour ce faire, des échantillons de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX ont été soumis à un chargement en flexion quatre points ou en flambage sous un flux d'ions Zr^+ de 600 keV et à la température d'irradiation de 300°C. Avec ces deux types de chargement mécanique, la zone irradiée des échantillons se trouve dans un état de contrainte de traction (chargement en flexion quatre points) ou de compression (chargement en flambage). De plus, plusieurs niveaux de contrainte ont été appliqués. Les examens en MET ont été conduits sur un grand nombre de grains présentant différentes orientations cristallographiques par rapport à la direction d'application de la contrainte macroscopique et divers niveaux de contrainte de traction ou de compression. Ainsi, cette étude expérimentale revêt une grande valeur par son aspect statistique. L'application de la contrainte

externe s'est effectuée selon deux historiques de chargement. Le premier historique consistait à appliquer la contrainte avant l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$. Dans ce cas, les observations en MET ont montré que la contrainte n'a pas un effet perceptible sur la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ pour le M5[®] TREX. En revanche, pour le Zircaloy-4 TREX, les boucles à composante $\langle c \rangle$ sont déjà présentes à la dose d'application de la contrainte macroscopique. Nous ne pouvons donc pas conclure sur l'effet de la contrainte sur la période de germination des boucles à composante $\langle c \rangle$ pour le Zircaloy-4 TREX.

Les principaux résultats ont été tirés du deuxième historique de chargement pour lequel la contrainte macroscopique de traction ou de compression a été appliquée à une dose où les premières boucles à composante $\langle c \rangle$ apparaissent. Cet historique de chargement visait à instruire la question de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour cela, nous avons pris le soin de quantifier l'évolution avec la contrainte des grandeurs caractéristiques des boucles à composante $\langle c \rangle$ (densité volumique N_c , densité linéique L_c et diamètre moyen $\langle d \rangle$) formées dans un grand nombre de grains (74 au total). Une tendance a été dégagée pour l'évolution des densités N_c et L_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes, notée $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Cette tendance est telle que les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont plus faibles dans les grains d'axe $\langle c \rangle$ proche de la direction de traction ($\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $\frac{2}{3}\sigma$ où σ correspond à la valeur de contrainte de traction) que dans les grains d'axe $\langle c \rangle$ éloigné de la direction de traction ($\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $-\frac{1}{3}\sigma$). Inversement, pour un chargement en compression, nous avons noté que les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ sont plus faibles dans les grains d'axe $\langle c \rangle$ éloigné de la direction de compression ($\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $\frac{1}{3}\sigma$) que dans les grains d'axe $\langle c \rangle$ proche de la direction de compression ($\sigma_D^{\langle c \rangle}$ proche de $-\frac{2}{3}\sigma$). Ces tendances sont en bon accord avec les prédictions du mécanisme SIPA (Stress Induced Preferential Absorption) qui postule un effet de la contrainte sur l'énergie d'interaction élastique des défauts ponctuels avec les boucles de dislocation. Cet effet aurait pour conséquence de modifier l'efficacité d'absorption des défauts ponctuels selon l'orientation de la direction d'application de la contrainte par rapport à la normale au plan d'habitat des boucles de dislocation. Ainsi, une contrainte de traction appliquée perpendiculairement à l'axe $\langle c \rangle$ du grain ou une contrainte de compression appliquée parallèlement à l'axe $\langle c \rangle$ diminue le flux net d'auto-interstitiels allant vers les boucles à composante $\langle c \rangle$ et augmente le flux net de lacunes par rapport aux flux reçus dans un grain non contraint. Pour ces deux orientations cristallographiques, la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ lacunaires est accélérée. Inversement, une contrainte de traction appliquée parallèlement à l'axe $\langle c \rangle$ ou une contrainte de compression appliquée perpendiculairement à l'axe $\langle c \rangle$ réduit la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$. Par ailleurs, il est important de bien noter que sous irradiation, la taille critique de germination des boucles de dislocation ne dépend pas uniquement de la barrière énergétique « purement » thermodynamique mais fait intervenir les efficacités d'absorption des défauts ponctuels par les germes de boucles de dislocation qui se trouvent modifiées en présence d'une contrainte. A travers la modification des efficacités d'absorption des défauts ponctuels par les germes de boucles, la contrainte appliquée n'est donc pas sans conséquence sur la germination des boucles de dislocation. Ainsi, le mécanisme SIPA agit non seulement sur la croissance des boucles de dislocation mais également sur leur germination. Nous pouvons donc affirmer que ce mécanisme est à l'origine de l'effet de la contrainte sur les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ observé expérimentalement. Concernant l'effet de la contrainte sur la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$, nous avons montré que le diamètre moyen $\langle d \rangle$ n'est que légèrement affecté par $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Une faible dépendance à $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ a été notée dans le M5[®] TREX. Pour le Zircaloy-4 TREX, la dispersion grain à grain est telle qu'il est difficile de déceler une évolution claire du diamètre moyen des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. En revanche, il est intéressant de mentionner que la distribution en taille des boucles est homogène au sein du même grain, ce qui suggère que les hétérogénéités intergranulaires sont à l'origine de la dispersion grain à grain constatée. Par ailleurs, la faible dépendance du diamètre des boucles de dislocation à la contrainte appliquée a déjà été reportée pour les boucles interstitielles de Frank dans les aciers austénitiques [1]–[3]. Avec un effet de contrainte plus important sur les densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ que sur leur diamètre, nous pouvons

donc conclure que le mécanisme SIPA agit principalement sur la germination (ou la croissance des germes) des boucles à composante $\langle c \rangle$.

La dispersion grain à grain a été également relevée dans les évolutions des densités des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$, amoindrissant ainsi l'amplitude de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cette dispersion atteste de la présence d'hétérogénéités intergranulaires et conduit à un faible couplage entre le fluage axial et l'accélération de croissance à l'échelle des grains. Des réflexions et des calculs ont été menés dans l'objectif de clarifier les origines possibles de ces hétérogénéités qui peuvent être classées en deux types selon qu'elles sont d'ordre mécanique ou chimique. Les hétérogénéités chimiques seraient associées à la variation de la distribution des précipités intermétalliques d'un grain à un autre. Ces précipités, comme les phases de Laves de type $Zr(Fe,Cr)_2$ dans le Zircaloy-4, contribuent à la stabilisation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Leur effet, variant d'un grain à un autre, pourrait éventuellement masquer l'influence de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ mais serait néanmoins de second ordre devant les hétérogénéités d'origine mécanique. Ces dernières peuvent être induites par l'effet du voisinage (hétérogénéités intraphases entre des grains de même orientation cristallographique mais de voisinage différent), par les incompatibilités de déformation élastique et plastique entre des grains d'orientations cristallographiques différentes ou par la relaxation sous irradiation. Des calculs analytiques simplifiés basés sur la théorie d'Eshelby [4] et des simulations à l'aide d'un modèle polycristallin auto-cohérent [5] ont été entrepris dans le but d'évaluer les contraintes internes générées par la croissance anisotrope des grains. La modélisation du comportement en croissance libre, simulée par la dilatation thermique, d'un polycristal de Zircaloy-4 TREX de texture et d'élasticité anisotropes a mis en évidence une hétérogénéité interphase induite par les contraintes internes entre des grains d'orientations cristallographiques différentes. Toutefois, l'analyse des composantes $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ obtenues par le modèle montre que ces hétérogénéités ne rendent compte que faiblement de la dispersion grain à grain.

Par ailleurs, une étude expérimentale a été menée dans le but d'examiner l'effet de la température d'irradiation sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$. Des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV ont été conduites sur des échantillons de Zircaloy-4 recristallisé et de M5[®] TREX à deux températures d'irradiation : 300 et 400°C. Pour des raisons de confidentialité, les résultats pour le M5[®] sont présentés dans une annexe confidentielle. Pour le Zircaloy-4 recristallisé TREX, les analyses en Microscopie Electronique en Transmission ont mis en évidence un effet significatif de la température d'irradiation sur la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$, leur taille moyenne à 400°C se trouvant multipliée par un facteur 5 environ comparée à celle à 300°C. Cette augmentation de la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ est accompagnée d'une diminution de leur densité volumique. Il apparaît donc que la température d'irradiation favorise la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ au détriment de leur germination. Le mécanisme qui semble le plus plausible pour expliquer cet effet est le mécanisme de diffusion thermiquement activée des lacunes. Selon ce mécanisme, l'élévation de la température conduit à une augmentation de la mobilité des lacunes. Leur libre parcours moyen plus important leur permet de s'annihiler plus rapidement sur les puits de la microstructure, et notamment sur les germes de boucles à composante $\langle c \rangle$ déjà formés. La croissance de ces boucles s'en trouve donc favorisée. De plus, à haute température, la sursaturation en lacunes diminue réduisant ainsi le taux de nucléation des boucles à composante $\langle c \rangle$. De cette étude expérimentale, il ressort également qu'en termes de taille et de densité de boucles à composante $\langle c \rangle$, les irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV à 400°C sont plus représentatives des irradiations aux neutrons en REP que les irradiations aux ions zirconium de même énergie à 300°C. Ainsi, il apparaît que l'augmentation de la température d'irradiation a permis de compenser le fort taux de création de dommage par les ions Zr^+ de 600 keV, se rapprochant ainsi des conditions d'irradiation aux neutrons.

Parallèlement à ces études expérimentales, le travail de thèse a porté sur un modèle basé sur la méthode de dynamique d'amas. Dans une première étape, nous nous sommes intéressés à la description énergétique des boucles de dislocation, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et les boucles à composante $\langle c \rangle$. Nous avons introduit dans le modèle les énergies de ces deux populations de

boucles de dislocation en s'appuyant sur une approche couplant théorie élastique et calculs atomistiques. L'intérêt de cette approche est qu'elle permet de rendre compte des propriétés spécifiques (vecteur de Burgers, rayon de cœur, énergie de faute d'empilement, ...) à chaque population de boucle de dislocation. Par la suite, nous avons mis en place une démarche séquentielle d'identification de certains paramètres physiques du modèle sur la base des données expérimentales portant sur la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et des boucles à composante $\langle c \rangle$. Cette démarche consiste tout d'abord à calibrer le modèle sur les irradiations aux électrons puis sur les irradiations aux ions. Commencer par les irradiations aux électrons nous semble un choix pertinent étant donné la simplicité du système de simulation qui, contrairement aux irradiations aux ions, n'intègre pas les effets des cascades de déplacements. De plus, la calibration du modèle de dynamique d'amas a porté dans une première étape sur le zirconium pur puis a été étendue au cas du Zircaloy-4. Ainsi, l'identification des paramètres du modèle a été réalisée en trois étapes :

1. L'ajustement des facteurs pré-exponentiels de diffusion des auto-interstitiels et des lacunes permet de reproduire la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le zirconium pur irradié aux électrons à faible dose. Le modèle réussit également à reproduire l'effet de la température sur la germination et la croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$;
2. Avec la prise en compte, de manière effective, de l'effet de l'étain sur l'énergie de migration des auto-interstitiels, de l'effet du fer sur l'énergie de migration des lacunes et de l'effet de l'oxygène sur l'énergie de faute d'empilement des boucles à composante $\langle c \rangle$, le modèle donne des densités linéiques et des tailles de boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux électrons à forte dose en accord avec les valeurs expérimentales ;
3. Enfin, l'introduction dans le modèle de l'effet des cascades de déplacements à travers la diminution de l'efficacité de production de paires de Frenkel et la formation des amas interstitiels et lacunaires de type $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$ dans les cascades nous permet de valider la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 irradié aux ions simulée par le modèle sur la base de nos résultats expérimentaux (issus des lames non contraintes irradiées aux ions Zr^+ à 300°C dans le cadre de l'étude expérimentale de l'effet de la contrainte).

Le modèle, ainsi calibré, est en mesure de prédire convenablement l'évolution de la microstructure du zirconium pur et du Zircaloy-4 irradiés aux électrons et aux ions. Nous avons donc souhaité l'appliquer à deux études : la première porte sur l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ et la deuxième sur la modélisation du comportement en croissance sous irradiation.

Nous avons introduit le mécanisme SIPA et nous avons simulé l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$ formées dans le Zircaloy-4 irradié aux ions à 300°C. Les résultats obtenus mettent en évidence un accord des tendances obtenues avec les prédictions du mécanisme SIPA et une cohérence des simulations avec nos données expérimentales. En effet, les lois d'évolution des densités N_c et L_c des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ obtenues par le modèle sont cohérentes avec celles issues de nos expériences d'irradiation. En revanche, l'effet de la contrainte sur la taille des boucles simulé par le modèle est un peu plus significatif que celui constaté expérimentalement. Ceci peut être dû au fait que les hétérogénéités intergranulaires ne sont pas prises en compte dans le modèle.

Pour terminer, nous avons utilisé le modèle pour la simulation du comportement en croissance sous irradiation aux neutrons d'un monocristal de zirconium et du zirconium pur polycristallin. Les déformations obtenues sont en accord satisfaisant avec les données expérimentales. L'effet de la taille des grains est notamment bien reproduit. Le modèle nous permet également de rendre compte de la contribution de chaque puits de la microstructure à la déformation de croissance. Ainsi, sur la base des résultats obtenus, nous démontrons que contrairement à ce qui est généralement admis, la déformation de croissance ne résulte pas intégralement de la présence des boucles à composante $\langle c \rangle$ mais également de l'élimination des défauts ponctuels sur les joints de grains.

Outre le modèle de dynamique d'amas, un modèle physique a été développé en vue de prédire le comportement macroscopique sous irradiation des tubes d'assemblages (gainés et tubes guides). Ce modèle se base d'une part sur des lois classiques décrivant chacun des phénomènes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance sous irradiation, mais celui-ci intègre également des variables internes qui caractérisent l'état de la microstructure, et plus spécifiquement l'évolution de la densité linéique des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Dans une première étape, certains paramètres ont été identifiés sur la base des données bibliographiques recensées dans la littérature ouverte. Lors de cette étape, nous considérons l'approche communément adoptée pour le calcul de la déformation, à savoir que les trois composantes liées aux phénomènes de fluage thermique, de fluage d'irradiation et de croissance libre sont indépendantes et additives. A l'issue de cette étape de calibration, le modèle reproduit non seulement le comportement en croissance et en fluage sous irradiation (essai en pression interne) des tubes en Zircaloy-4 détendu, en Zircaloy-4 recristallisé et en M5[®] mais aussi les évolutions des densités linéiques des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ et des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Une fois le modèle calibré et validé, nous avons introduit une loi microstructurale déterminée expérimentalement. Cette loi donne l'évolution de la densité linéique des boucles à composante $\langle c \rangle$ avec $\sigma_D^{\langle c \rangle}$ et traduit le couplage à l'échelle du grain des deux phénomènes de fluage d'irradiation et de croissance libre. Sur la base des simulations de deux scénarii de chargement en contrainte, nous avons démontré que la déformation axiale totale des tubes guides n'est pas affectée par le couplage entre le fluage axial et l'accélération de croissance.

Perspectives

Ce travail de thèse ouvre sur un bon nombre de perspectives tant sur le plan expérimental que sur le plan de la modélisation multi-échelle.

Concernant l'étude expérimentale de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$, il serait intéressant de conduire le même type d'analyses microscopiques sur des échantillons irradiés selon des historiques de chargement complémentaires. Nous pensons par exemple à un historique de chargement où la contrainte est introduite à 4,1 dpa, comme pour l'historique de chargement de type II, mais qui sera maintenue à une dose finale d'irradiation supérieure à 7 dpa. Avec cet historique de chargement, nous pourrions vérifier si la taille des boucles à composante $\langle c \rangle$ n'est que légèrement affectée par la composante $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Nous pouvons imaginer qu'à plus forte dose d'irradiation la contrainte agit également sur la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ suivant le mécanisme SIPA. Toutefois, lors de cet historique de chargement, il faut tenir compte de la relaxation sous irradiation de la contrainte appliquée initialement. Ce phénomène peut être contraignant quant à l'application d'un chargement mécanique jusqu'à des doses plus élevées. Pour remédier à cette limitation, une solution pourrait être d'envisager cet historique à travers des cycles successifs de chargement.

Afin d'approfondir l'analyse de l'effet de la contrainte sur la dose d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$ dans le Zircaloy-4 TREX, il faudrait introduire la contrainte à une dose d'irradiation plus faible que 2,9 dpa. En effet, pour cette étude, il est nécessaire d'appliquer la contrainte juste avant la dose seuil d'incubation des boucles à composante $\langle c \rangle$. Pour cela, nous proposons de réaliser au départ des irradiations *in-situ* aux mêmes conditions expérimentales (ions Zr⁺ de 600 keV et 300°C) pour déterminer précisément la dose d'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Il serait aussi intéressant d'examiner l'effet de la contrainte sur les boucles à composante $\langle c \rangle$ via d'autres types d'expériences de chargement mécanique sous flux. A ce titre, un dispositif de mise en traction sous flux de protons a été développé par l'équipe du LA2M. Récemment, des campagnes d'application de contrainte de traction sous flux de protons H⁺ de 2 MeV ont été menées à la température de 350°C dans l'accélérateur de protons Tandetron de l'Université de Michigan. Il serait opportun de comparer nos résultats à ceux obtenus par ces irradiations.

En vue d'étayer la réflexion sur les origines de la dispersion grain à grain constatée expérimentalement, il serait pertinent d'améliorer la modélisation, à l'échelle du polycristal, du comportement en croissance libre du Zircaloy-4 TREX. Pour simplifier, nous avons simulé, dans le cadre de la discussion engagée dans le chapitre 4, la croissance sous irradiation par la dilatation thermique. Dans l'avenir, il serait intéressant d'introduire dans le modèle polycristallin de Brenner [5] les lois de comportement en croissance mais aussi en fluage sous irradiation. Ainsi, nous pourrions approfondir la discussion du rôle des hétérogénéités mécaniques et plus précisément, des contraintes internes générées par la croissance sous irradiation et de la relaxation de la contrainte sous irradiation. A terme, nous pouvons également employer ce modèle polycristallin pour simuler le comportement sous irradiation des tubes guides.

Enfin, sur le plan expérimental, nous proposons une étude portant sur l'effet de certains éléments d'alliage, notamment l'étain, le fer, le niobium et l'oxygène, sur la microstructure des boucles à composante $< c >$. En effet, l'analyse des données bibliographiques nous ont amené au fait que bien que certaines tendances aient pu être dégagées quant à l'effet de certains éléments chimiques sur la microstructure des boucles à composante $< c >$, les mécanismes à l'origine de ces observations ne sont pas à ce jour clairement identifiés. Il convient alors de mener des études plus approfondies sur des alliages modèles afin de décorréliser les rôles joués par chacun des éléments chimiques.

En ce qui concerne le modèle de dynamique d'amas, nous identifions deux problèmes qu'il convient de résoudre dans l'avenir. Premièrement, il faudrait que le modèle puisse reproduire la coexistence des boucles $< a >$ interstitielles et lacunaires. Pour cela, nous pouvons envisager l'introduction des efficacités d'absorption des défauts ponctuels plus complexes que celles utilisées jusqu'à présent (effet de l'anisotropie en position de col sur la diffusion des défauts ponctuels, approche auto-cohérente qui prend en compte l'évolution des efficacités d'absorption des défauts ponctuels par les boucles de dislocation avec la force totale des puits, ...). Deuxièmement, il serait nécessaire d'examiner la possibilité de considérer dans le modèle la germination hétérogène des boucles à composante $< c >$ dans le but de reproduire l'apparition de ces boucles à partir d'une dose seuil d'incubation. Des améliorations peuvent également être apportées à ce modèle, comme par exemple : la prise en compte de la dépendance spatiale des distributions d'amas de défauts, l'introduction de données issues de simulations de type Monte Carlo pour la description des cascades de déplacements, la considération de l'effet des éléments chimiques,...

Pour ce qui est du modèle phénoménologique de comportement macroscopique sous irradiation des tubes en alliages de zirconium (tubes guides et tubes de gainage), nous avons repéré quelques pistes d'amélioration comme par exemple la prise en compte de l'effet de la température et la considération d'une anisotropie spécifique pour le comportement en fluage thermique et en fluage d'irradiation. Il serait aussi intéressant de continuer à enrichir la base de données du comportement en fluage sous irradiation (essais de pression interne à différents niveaux de contrainte).

Références bibliographiques des conclusions et des perspectives

- [1] J. Garnier, "Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des Réacteurs à Eau Pressurisée," Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2007.
- [2] J. Garnier, Y. Bréchet, M. Delnondedieu, C. Pokor, P. Dubuisson, A. Renault, X. Averty, and J. P. Massoud, "Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels: Mechanical behaviour and microstructural aspects. Part I: Experimental results," *J. Nucl. Mater.*, vol. 413, no. 2, pp. 63–69, Jun. 2011.
- [3] C. Xu and G. S. Was, "Anisotropic dislocation loop distribution in alloy T91 during irradiation creep," *J. Nucl. Mater.*, vol. 454, pp. 255–264, 2014.
- [4] J. D. Eshelby, "The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems," in *The Royal Society, Proceedings A*, 1957.
- [5] R. Brenner, "Influence de la microstructure sur le comportement en fluage thermique d'alliages de zirconium: analyse expérimentale et mise en oeuvre des méthodes d'homogénéisation," Thèse de doctorat, Université Paris XIII, 2001.

C. Annexe C

Compléments du chapitre 4

Cette annexe détaille certains aspects mentionnés dans le chapitre 4 consacré à l'étude expérimentale de l'effet de la contrainte sur la microstructure des boucles à composante $\langle c \rangle$.

Sommaire

C.1 Calcul de la contrainte maximale dans la zone irradiée des languettes	270
C.1.1 Chargement en flexion quatre points.....	270
C.1.2 Chargement en flambage	272
C.2 Calcul de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes	273
C.3 Mesure de la déflexion résiduelle des languettes au microscope numérique 3D	275

C.1 Calcul de la contrainte maximale dans la zone irradiée des languettes

C.1.1 Chargement en flexion quatre points

Le calcul de la contrainte maximale en peau des languettes se base sur la théorie des poutres. Pour simplifier, la languette est schématisée par sa ligne moyenne (Figure C.1.1 (a)). Une force notée F est appliquée au niveau des appuis extérieurs A et D (Figure IV.2.3)

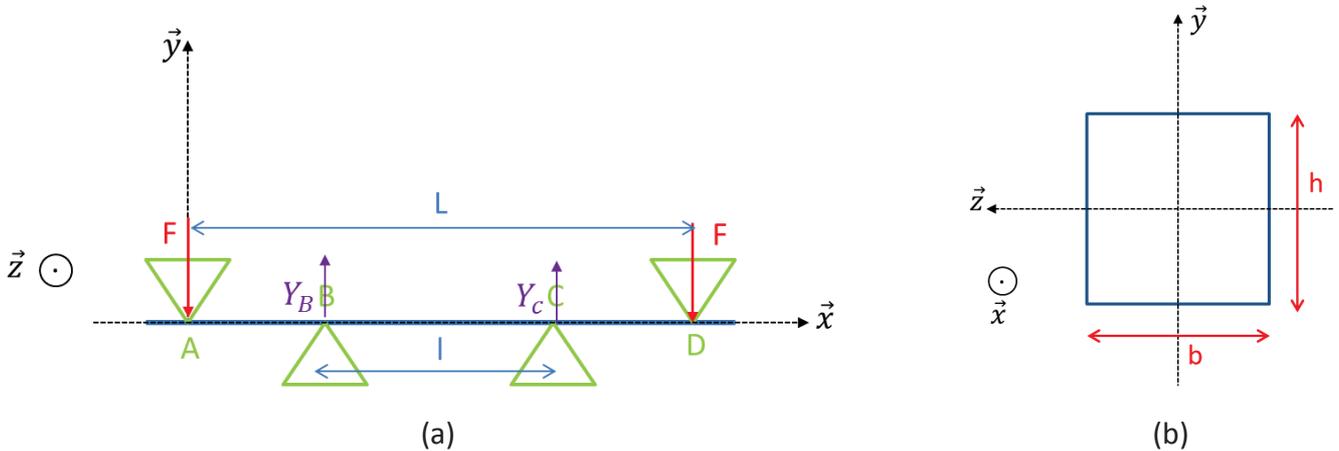


Figure C.1.1 – (a) Schématisation d'une languette en flexion quatre points et (b) section droite de la languette.

En appliquant le principe fondamental de la statique à la languette, l'équilibre des résultantes en projection sur l'axe \vec{y} donne la relation suivante :

$$Y_B + Y_C = 2F \quad \text{Eq. C.1.1}$$

Le moment en B suivant l'axe \vec{z} permet de déterminer la résultante en C à partir de l'expression donnée ci-dessous :

$$F \left(\frac{L-l}{2} \right) + Y_C L - F \left(l + \frac{L-l}{2} \right) = 0 \quad \text{Eq. C.1.2}$$

Ainsi, nous écrivons :

$$Y_B = Y_C = F \quad \text{Eq. C.1.3}$$

La résolution des équations d'équilibre dans chacun des tronçons AB, BC et CD de la languette permet d'obtenir les efforts intérieurs. Sur le tronçon BC, la flexion est pure (pas de composante de cisaillement) et le moment de flexion s'exprime comme suit :

$$M_f = F \left(\frac{L-l}{2} \right) \quad \text{Eq. C.1.4}$$

En considérant la section droite de la languette présentée dans la Figure C.1.1 (b), le moment de flexion M_f s'écrit de la manière suivante :

$$M_f = \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{-\frac{b}{2}}^{\frac{b}{2}} y \sigma_{xx} dy dz \quad \text{Eq. C.1.5}$$

En élasticité, le profil de la contrainte dans une poutre en flexion pure, donné dans la Figure C.1.2, permet de déterminer la contrainte maximale σ_{max} en peau de la languette. Celle-ci est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{\sigma_{max}}{\sigma_{xx}} = \frac{h/2}{y} \quad \text{Eq. C.1.6}$$

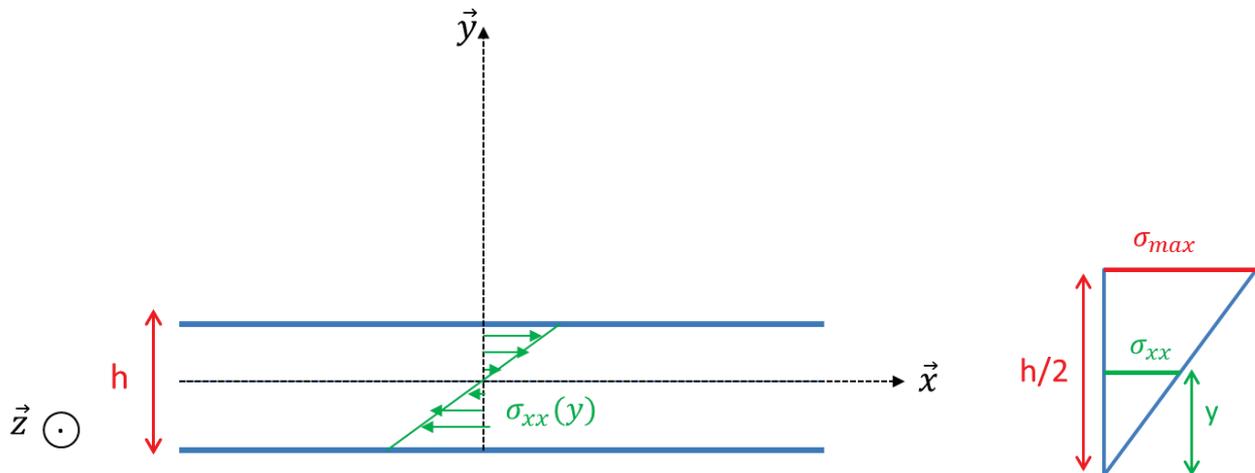


Figure C.1.2: Profil de la contrainte $\sigma_{xx}(y)$.

A partir des équations Eq. C.1.5 et Eq. C.1.6, nous écrivons :

$$M_f = \frac{h^2}{6} b \sigma_{max} \quad \text{Eq. C.1.7}$$

L'identification des deux équations Eq. C.1.4 et Eq. C.1.7 nous permet de déduire l'expression de la force F en fonction de la contrainte maximale en peau :

$$F = \frac{bh^2}{3(L-l)} \sigma_{max} \quad \text{Eq. C.1.8}$$

En élasticité isotrope, l'application du théorème de Bernoulli pour une poutre en flexion pure se ramène à la résolution de l'équation suivante :

$$M_f = EI_{Gz} \frac{d^2 u_A}{dx^2} \quad \text{Eq. C.1.9}$$

avec I_{Gz} le moment quadratique suivant \vec{z} , u_A la flèche au point A et E le module de Young.

La résolution de l'équation Eq. C.1.9 ne sera pas détaillé ici. Nous noterons l'expression suivante de la flèche u_A en fonction de la force F :

$$u_A = -F \frac{\left(\frac{L-l}{2}\right)^2}{6 E I_{Gz}} \left(3l + 2 \left(\frac{L-l}{2}\right) \right) \quad \text{Eq. C.1.10}$$

Le moment quadratique d'une section rectangulaire telle que celle représentée dans la Figure C.1.1 (b) est égale à :

$$I_{Gz} = \frac{bh^3}{12} \tag{Eq. C.1.11}$$

Il est donc possible de déduire à partir des équations Eq. C.1.8, Eq. C.1.10 et Eq. C.1.11, l'expression de la contrainte maximale en peau de la languette en fonction de la flèche u_A :

$$\sigma_{max} = -6 \frac{E h u_A}{(L - l)(L + 2l)} \tag{Eq. C.1.12}$$

Cette expression est employée dans le chapitre 4 (Eq. IV.2.1) pour déterminer la contrainte maximale de traction dans la zone centrale irradiée des languettes sollicitées en flexion quatre points.

C.1.2 Chargement en flambage

Une languette de longueur initiale l_0 est mise en flambage par l'application d'une charge P (Figure C.1.3).

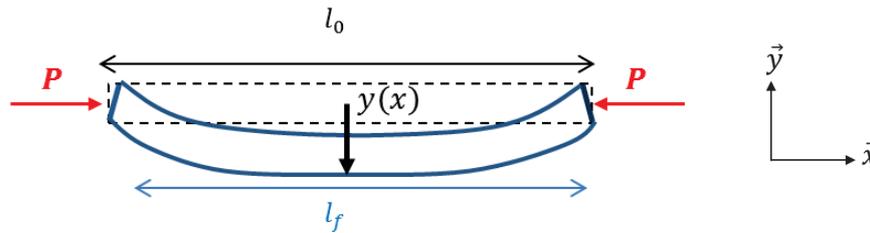


Figure C.1.3: Schématisation d'une languette en flambage par l'application d'une charge P .

La loi de flexion en petits déplacements donne l'équation suivante :

$$\frac{d^2y}{dx^2} + \frac{P}{EI_{Gz}} y(x) = 0 \tag{Eq. C.1.13}$$

En considérant un déplacement nul pour $x = 0$, la résolution de l'équation Eq. C.1.13 aboutit à l'expression suivante du déplacement $y(x)$:

$$y(x) = C \sin\left(\sqrt{\frac{P}{EI}} x\right) \tag{Eq. C.1.14}$$

Au centre de la languette, la flèche $y(x)$ est maximale. La constante C dans l'équation Eq. C.1.14 est donc égale à la flèche maximale au centre de la languette notée B .

Le moment M_f pour une languette soumise à une charge P s'exprime comme suit :

$$M_f = -P y(x) = -PB \sin\left(\sqrt{\frac{P}{EI}} x\right) \tag{Eq. C.1.15}$$

C.2. CALCUL DE LA COMPOSANTE SUIVANT L'AXE $\langle c \rangle$ DU DEVIATEUR DU TENSEUR DES CONTRAINTES

La section centrale de la languette est la plus fortement sollicitée en flexion et le moment de flexion maximal défini à partir de l'équation Eq. C.1.15 est donné par l'expression suivante :

$$M_f = -PB \quad \text{Eq. C.1.16}$$

L'identification des équations Eq. C.1.7 et Eq. C.1.16 nous permet de déduire l'expression de la contrainte maximale en peau de la languette sollicitée en flambage :

$$\sigma_{max} = -6 \frac{PB}{bh^2} \quad \text{Eq. C.1.17}$$

La longueur de la languette en flambage est donnée par l_f (Figure C.1.3). Le déplacement $y(l_f)$ étant nul, nous écrivons à partir de l'équation Eq. C.1.14 :

$$\sqrt{\frac{P}{EI}} l_f = n\pi \quad \text{Eq. C.1.18}$$

Le premier mode de flambage de la languette (Figure C.1.3) est obtenu pour une charge de compression égale à la charge critique d'Euler P_c qui vérifie la relation suivante ($n = 1$ dans l'équation Eq. C.1.18) :

$$P_c = \frac{\pi^2 EI}{l_f^2} \quad \text{Eq. C.1.19}$$

C.2 Calcul de la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes

Le mécanisme SIPA est décrit à travers la composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes notée $\sigma_D^{\langle c \rangle}$. Nous proposons ici de détailler le calcul à l'origine de l'équation Eq. IV.3.1 explicitant cette composante.

Considérons le repère macroscopique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ tel que la direction macroscopique \vec{z} coïncide avec la direction d'application de la contrainte qui correspond à la direction transverse DT du tube (§ IV.2.1). Le repère du cristal est défini par les directions $\langle a \rangle$ et $\langle c \rangle$. L'orientation du repère cristallographique dans le repère macroscopique est donnée par les angles α et θ avec θ l'angle entre l'axe $\langle c \rangle$ et la direction d'application de la contrainte (Figure C.2.1).

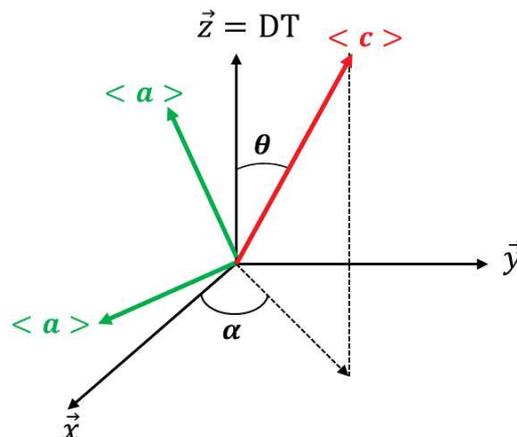


Figure C.2.1: Orientation du repère cristallographique dans le repère macroscopique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ tel que l'axe \vec{z} coïncide avec la direction d'application de la contrainte DT.

Dans le repère macroscopique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$, le tenseur des contraintes s'écrit comme suit :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{pmatrix} \quad \text{Eq. C.2.1}$$

Le déviateur du tenseur des contraintes décrit dans l'équation Eq. C.2.1 est donné par l'expression suivante :

$$\underline{\underline{s}} = \underline{\underline{\sigma}} - \frac{1}{3} \text{trace}(\underline{\underline{\sigma}}) \underline{\underline{I}} = \sigma_0 \begin{pmatrix} -\frac{1}{3} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{3} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{2}{3} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. C.2.2}$$

La composante suivant l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes s'exprime alors de la manière suivante avec $\underline{\underline{c}}$ le vecteur unité suivant la direction cristallographique $\langle c \rangle$ (perpendiculaire au plan d'habitat des boucles à composante $\langle c \rangle$) :

$$\sigma_D^{\langle c \rangle} = \underline{\underline{c}} \underline{\underline{s}} \underline{\underline{c}} = \sigma_0 \underline{\underline{c}} \begin{pmatrix} -\frac{1}{3} \cos \alpha \sin \theta \\ -\frac{1}{3} \sin \alpha \sin \theta \\ \frac{2}{3} \cos \theta \end{pmatrix} = \sigma_0 \left(\frac{2}{3} \cos^2 \theta - \frac{1}{3} \sin^2 \theta \right) \quad \text{Eq. C.2.3}$$

C.3 Mesure de la déflexion résiduelle des languettes au microscope numérique 3D

Après irradiation et déchargement du montage de mise en contrainte sous flux d'ions, les languettes contraintes présentent une déflexion résiduelle. Comme l'épaisseur irradiée des languettes n'est que de quelques centaines de nanomètres (pour une fluence de $11,5 \times 10^{14}$ ions Zr^{+}/cm^2 , l'épaisseur irradiée est d'environ 300 nm), la déflexion résiduelle observée est due principalement au fluage thermique qui a lieu dans la couche non irradiée plus épaisse. La mesure de cette déflexion est nécessaire pour le calcul du taux de relaxation thermique des languettes (§ IV.2.3.2.1). Pour ce faire, nous avons utilisé le microscope numérique 3D. A travers la reconstruction d'image, il est possible d'obtenir le profil de la languette et de déduire sa déflexion résiduelle.

La Figure C.3.1 illustre deux exemples de mesure de la déflexion résiduelle à partir de la reconstruction du profil de deux languettes : la première a été sollicitée en flexion quatre points (Figure C.3.1 (a) et Figure C.3.1 (c)) et la deuxième en flambage (Figure C.3.1 (b) et Figure C.3.1 (d)).

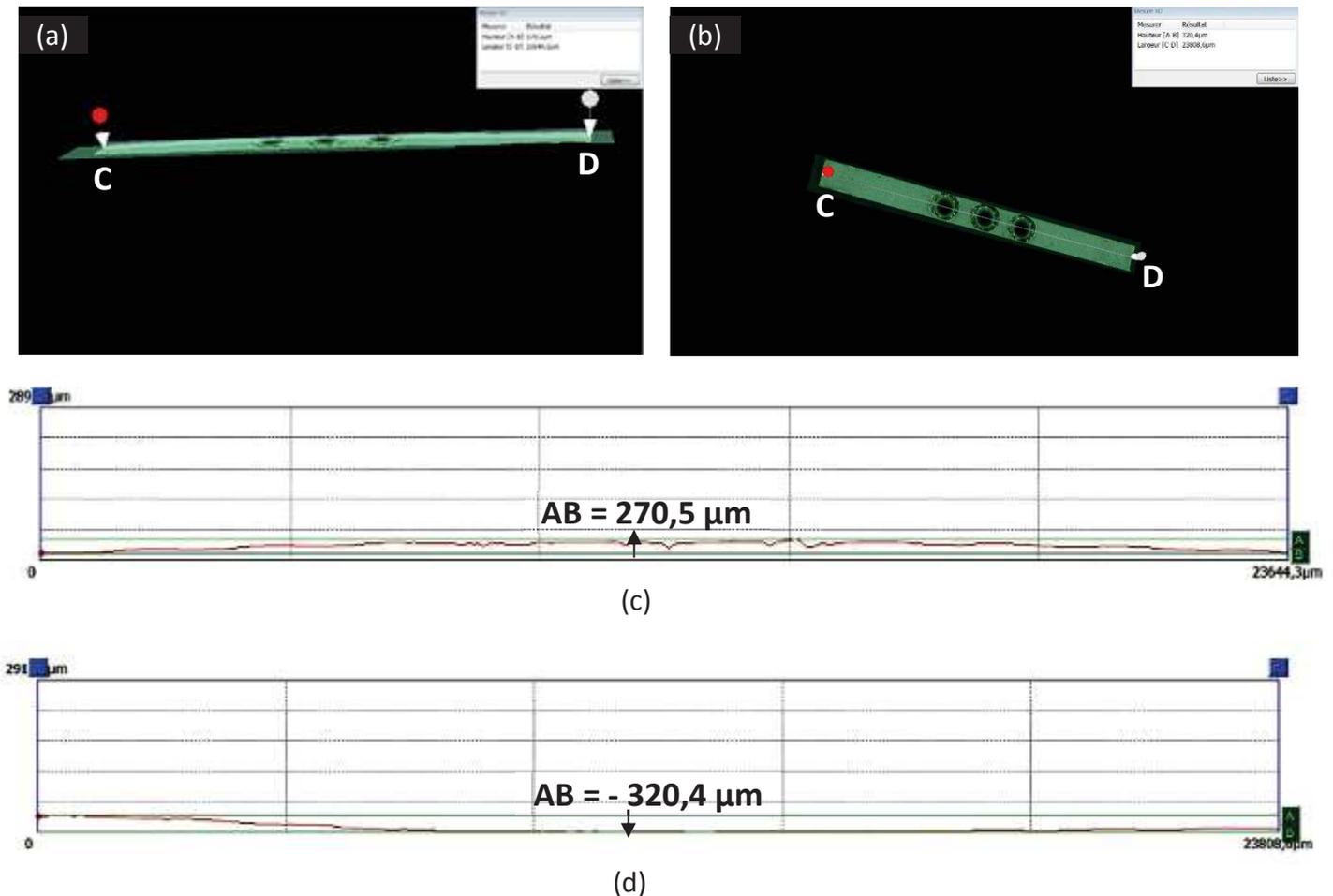


Figure C.3.1 – (a) et (c) Profil d'une languette après chargement en flexion quatre points, (b) et (d) profil d'une languette après chargement en flambage.

D. Annexe D

Coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires

L'objectif de cette annexe est d'étudier la coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires. Dans une première partie, nous présentons la caractérisation de la microstructure des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans une lame mince de Zircaloy-4 TREX irradiée au Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT) du SRMA. Nous détaillons par la suite la méthode mise en œuvre pour la détermination du caractère, interstitiel ou lacunaire, des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Cette méthode est appliquée à six boucles de dislocation $\langle a \rangle$ formées dans un grain d'orientation λ donnée avec λ l'angle entre l'axe cristallographique $\langle c \rangle$ et la normale au plan de la lame mince. Enfin, la proportion de boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires obtenue dans ce grain est confrontée aux données expérimentales de Griffiths *et al.* [1].

Sommaire

D.1 Irradiation au Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT).....	277
D.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le Zircaloy-4 TREX irradié aux électrons de 1 MeV.....	278
D.2.1 Imagerie des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ en MET	278
D.2.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$	278
D.2.3 Coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires	282
D.3 Références bibliographique de l'annexe D.....	286

D.1 Irradiation au Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT)

Les irradiations aux électrons de 1 MeV présentent deux intérêts pour notre étude (§ I.2.1.2.1). D'une part, les irradiations sont conduites *in-situ*, permettant ainsi le suivi de la formation et de la croissance des boucles de dislocation $\langle a \rangle$. D'autre part, du fait de leur faible masse, les électrons ne peuvent créer que des paires de Frenkel lors des chocs balistiques avec les atomes cibles (Eq I.2.6). Les irradiations aux électrons permettent donc d'étudier l'influence des déplacements d'atomes sur la microstructure du matériau irradié sans avoir les effets des cascades.

Dans le cadre de notre étude, des irradiations aux électrons de 1 MeV ont été conduites au Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT) du SRMA (Figure D.1.1). Au cours de l'irradiation, nous mesurons le courant I_2 recueilli sur l'écran. Connaissant l'aire A_{ϕ_2} du diaphragme de sélection d'aire ϕ_2 , il est possible de calculer le flux des électrons incidents selon l'expression suivante :

$$\phi = \frac{I_2}{e A_{\phi_2}} \quad \text{Eq. D.1.1}$$

Pour le THT, nous disposons d'un courant moyen de 83 nA. L'aire du diaphragme ϕ_2 étant égale à $6,15 \times 10^{-9} \text{ cm}^2$, le flux moyen des électrons est de $8,43 \times 10^{19} \text{ e/cm}^2/\text{s}$. En considérant une section efficace de 30 barn pour les électrons d'énergie de 1 MeV, nous déduisons à partir de l'équation Eq I.2.4 le taux de création de dommage qui vaut $2,53 \times 10^{-3} \text{ dpa/s}$.

Le caractère interstitiel ou lacunaire des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ne peut être clairement établi par la méthode du contraste interne/externe (§ D.2.2.2) que si les boucles sont suffisamment grandes. Pour cette raison, nous avons choisi de mener nos irradiations à une température élevée, égale à 580°C . Ce choix est conforté par les données expérimentales de Hellio *et al.* [2], [3]. Au bout d'une durée d'irradiation de 20 minutes avec un flux d'électrons de $4,6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2/\text{s}$ et une température de 500°C , la taille moyenne des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ observées par Hellio *et al.* [2], [3] avoisine les 20 nm.



Figure D.1.1: Photos du Microscope Electronique à Très Haute Tension (THT) du SRMA.

D.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ dans le Zircaloy-4 TREX irradié aux électrons de 1 MeV

La microstructure du Zircaloy-4 TREX irradié aux électrons de 1 MeV a été observée et analysée après irradiation par Microscopie Electronique en Transmission (MET). Le microscope utilisé est le JEOL 2100 du Laboratoire d'Analyse Microstructurale des Matériaux (LA2M) du SRMA (§ II.3). Dans notre étude, la caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ a porté principalement sur leur nature interstitielle ou lacunaire, le but étant de connaître pour une orientation cristalline donnée la proportion relative des boucles interstitielles et lacunaires et de comparer nos résultats expérimentaux à ceux de Griffiths *et al.* [1].

D.2.1 Imagerie des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ en MET

Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ que nous souhaitons imager ont un vecteur de Burgers de type $\langle a \rangle$ ($\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$). Trois familles de boucles sont à distinguer selon que le vecteur de Burgers est suivant \vec{a}_1, \vec{a}_2 ou \vec{a}_3 (Figure I.1.2 (a) et Figure I.1.2 (c)).

Selon le vecteur de diffraction choisi, il est possible d'éteindre une de ces trois familles. En considérant par exemple le vecteur de diffraction $\vec{g} = 11\bar{2}0$, aucune famille de boucles $\langle a \rangle$ n'est éteinte alors que le vecteur de diffraction $\vec{g} = 10\bar{1}0$ éteint la famille de boucles de vecteur de Burgers de type $\vec{b} = 1/3 \langle 1\bar{2}10 \rangle$.

Pour notre étude, les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ sont imagées avec un vecteur de diffraction de type $\vec{g} = 11\bar{2}0$ afin d'éviter d'éteindre une des trois familles de boucles.

D.2.2 Caractérisation des boucles de dislocation $\langle a \rangle$

D.2.2.1 Plan d'habitat et vecteur de Burgers

Dans un premier temps, il est nécessaire de déterminer l'orientation cristallographique du grain dans lequel ont été imagées les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. La méthode de détermination de l'orientation des grains a été détaillée dans la partie II.3.4 du chapitre 2.

Une fois l'orientation cristallographique du grain connue, nous nous basons sur sa projection stéréographique (Figure D.2.1) pour déterminer le plan d'habitat des boucles de dislocation formées dans ce grain. Pour cela, il suffit de reporter la trace de la boucle sur le triangle standard auquel elle est tangente. La Figure D.2.2 illustre la méthode de détermination du plan d'habitat d'une boucle A imagée sur la tranche et d'une boucle B de forme elliptique. La trace de la boucle A est tangente au triangle de la projection stéréographique défini par les directions $[1\bar{2}10]$ et $[0\bar{1}10]$ (Figure D.2.2). La boucle A, visualisée sur la tranche, se trouve donc entre les plans prismatiques $(1\bar{2}10)$ et $(0\bar{1}10)$. La trace de la boucle B est tangente au triangle défini par les directions $[\bar{2}110]$ et $[\bar{1}100]$ (Figure D.2.2). La boucle B se situe entre les plans prismatiques $(\bar{2}110)$ et $(\bar{1}100)$.

Nous notons que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ne sont pas rigoureusement situées dans les plans prismatiques de type $\{10\bar{1}0\}$ mais qu'elles se situent entre les plans $\{10\bar{1}0\}$ et $\{11\bar{2}0\}$. Ce fait a été démontré par Jostsons, Kelly et Blake [4] (§ I.2.3.1, Figure I.2.4 (a) et Figure I.2.4 (b)).

La méthode généralement adoptée pour déterminer le vecteur de Burgers des boucles de dislocation est celle des extinctions successives. Cette méthode consiste à se placer dans trois conditions de diffraction données par les vecteurs de diffraction \vec{g}_1, \vec{g}_2 et \vec{g}_3 tel que le vecteur de diffraction \vec{g}_1 permet d'imager la boucle de dislocation et les deux autres de l'éteindre. Ainsi, les vecteurs de diffraction \vec{g}_2 et \vec{g}_3 vérifient la condition d'extinction $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ et le vecteur de Burgers de la boucle s'écrit comme le produit vectoriel de \vec{g}_2 et \vec{g}_3 .

Comme l'objectif premier de notre étude est de caractériser la nature interstitielle ou lacunaire des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, nous avons préféré appliquer une méthode moins laborieuse pour la détermination de leur vecteur de Burgers. Cette méthode s'appuie sur la distribution en « ailes de papillon » des normales au plan d'habitat des trois familles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (Figure I.2.4 (c)). Comme nous pouvons le constater sur la cartographie proposée par Kelly et Blake [5] (Figure I.2.4 (c)), la boucle A qui se situe entre les plans prismatiques ($\bar{1}\bar{2}10$) et ($0\bar{1}10$) a un vecteur de Burgers $\vec{b} = 1/3 [\bar{1}\bar{2}10]$. Le vecteur de Burgers de la boucle B dont le plan d'habitat se situe entre les plans prismatiques ($\bar{2}110$) et ($\bar{1}100$) correspond à $\vec{b} = 1/3 [\bar{2}110]$.

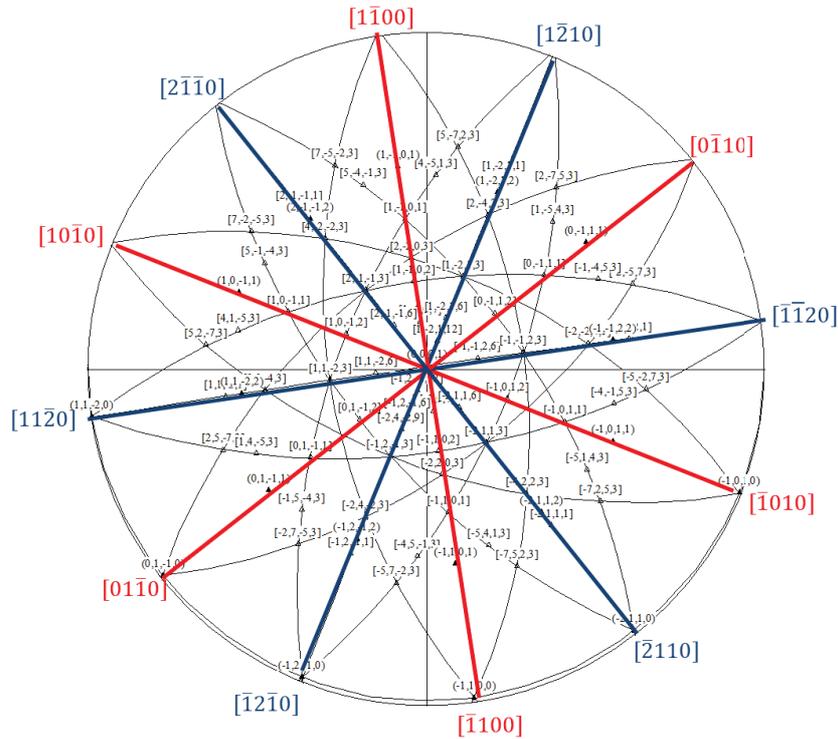


Figure D.2.1: Projection stéréographique du grain étudié ($\vec{B} = [0002]$ et $\vec{g} = 11\bar{2}0$).

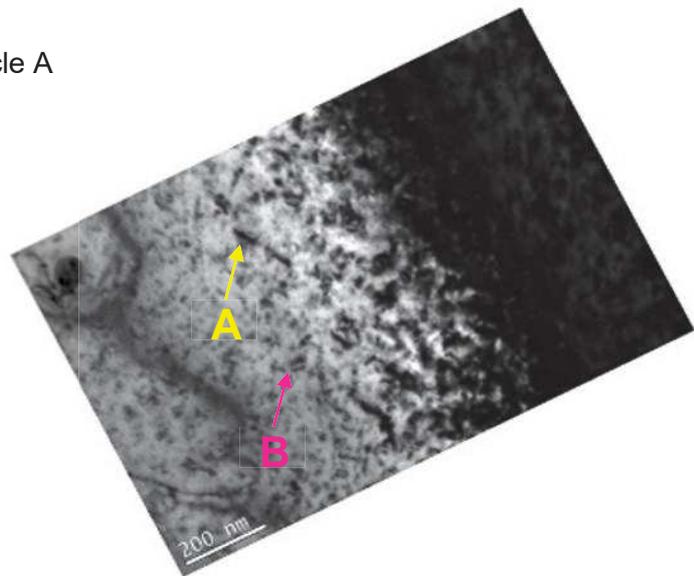
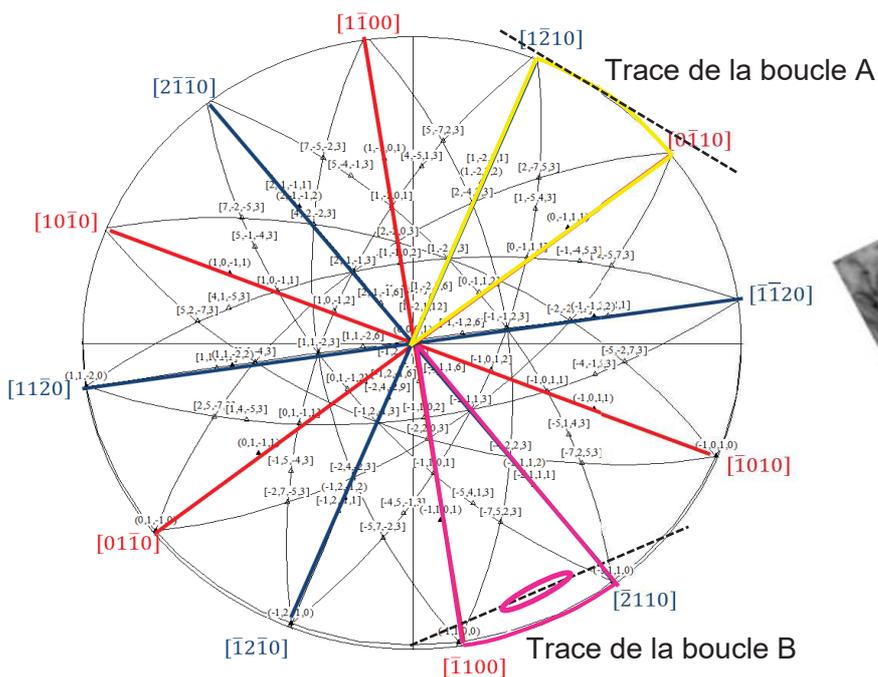


Figure D.2.2: Détermination du plan d'habitat des boucles de dislocation (boucles A et B). 279

D.2.2.2 Caractère interstitiel ou lacunaire

La détermination du caractère interstitiel ou lacunaire des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ repose sur la méthode du contraste interne/externe. Le contraste est dit interne quand l'image de la boucle est à l'intérieur de sa position réelle (Figure D.2.3 (a)) et externe quand il est à l'extérieur (Figure D.2.3 (b)), l'image de la boucle correspondant à la projection sur l'écran des plans réfléchissants de la boucle.



Figure D.2.3 – (a) Boucle lacunaire en contraste interne et (b) boucle lacunaire en contraste externe.

Une boucle de dislocation peut passer d'un contraste interne à un contraste externe par un changement du signe du vecteur de diffraction ou du signe du vecteur de Bragg noté \vec{s} . Nous proposons ici d'expliquer l'origine de l'inversion du contraste d'une boucle de dislocation interstitielle qui présente deux plans XX et YY susceptibles de diffracter (Figure D.2.4). Les vecteurs \vec{n}_a , \vec{n}_b , \vec{n}_c , \vec{n}_d , \vec{n}_e et \vec{n}_f correspondent aux normales à ces deux plans à différentes positions (a, b, c, d, e et f, respectivement) de la boucle de dislocation (Figure D.2.4).

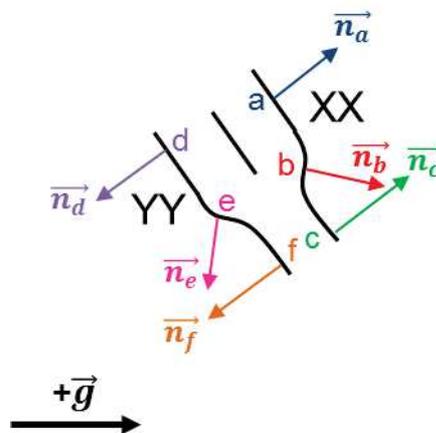


Figure D.2.4: Représentation d'une demi-boucle avec ses plans et leur normale.

Nous considérons les positions a et b de la boucle de dislocation comme configurations de départ pour lesquelles le vecteur de Bragg est positif (Figure D.2.5). Nous rappelons que le vecteur de Bragg positif ($s > 0$) est obtenu lorsque le point du réseau réciproque est à l'intérieur de la sphère d'Ewald. Pour cet exemple illustré dans les Figure D.2.4, Figure D.2.5 et Figure D.2.6, le vecteur de diffraction \vec{g} est maintenu constant, le sens positif étant orienté vers la droite. Le signe du vecteur de Bragg est déterminé pour chaque position sur les plans XX et YY de la boucle de dislocation (Figure D.2.5).

Dans cet exemple, le plan XX de la boucle de dislocation est en condition de diffraction ($s = 0$ en position b) alors que le plan YY s'éloigne des conditions de diffraction ($s \gg 0$ en position e) (Figure D.2.5). Ainsi, pour ces conditions de diffraction correspondant à un vecteur de Bragg initialement positif et un vecteur de diffraction positif, le contraste de la boucle est externe

(Figure D.2.6). Si nous considérons maintenant un vecteur de Bragg initialement négatif ($s < 0$ pour un point du réseau réciproque se trouvant à l'extérieur de la sphère d'Ewald) ou un vecteur de diffraction négatif (orienté vers la gauche), le plan YY devient en condition de diffraction et le plan XX s'en éloigne. Le contraste de la boucle devient interne. L'inversion du contraste de la boucle de dislocation s'obtient donc par une inversion du signe du vecteur de diffraction ou du vecteur de Bragg. Le contraste dépend également de l'inclinaison du plan d'habitat de la boucle par rapport au vecteur de diffraction ce qui se traduit par une dépendance au signe de $(\vec{g} \cdot \vec{n})$ avec \vec{n} la normale au plan d'habitat de la boucle de dislocation. Ainsi, à partir de notre exemple, nous pouvons noter qu'une boucle interstitielle est de contraste externe lorsque le produit scalaire $(\vec{g} \cdot \vec{n})$ et le vecteur de Bragg sont positifs (Figure D.2.6).

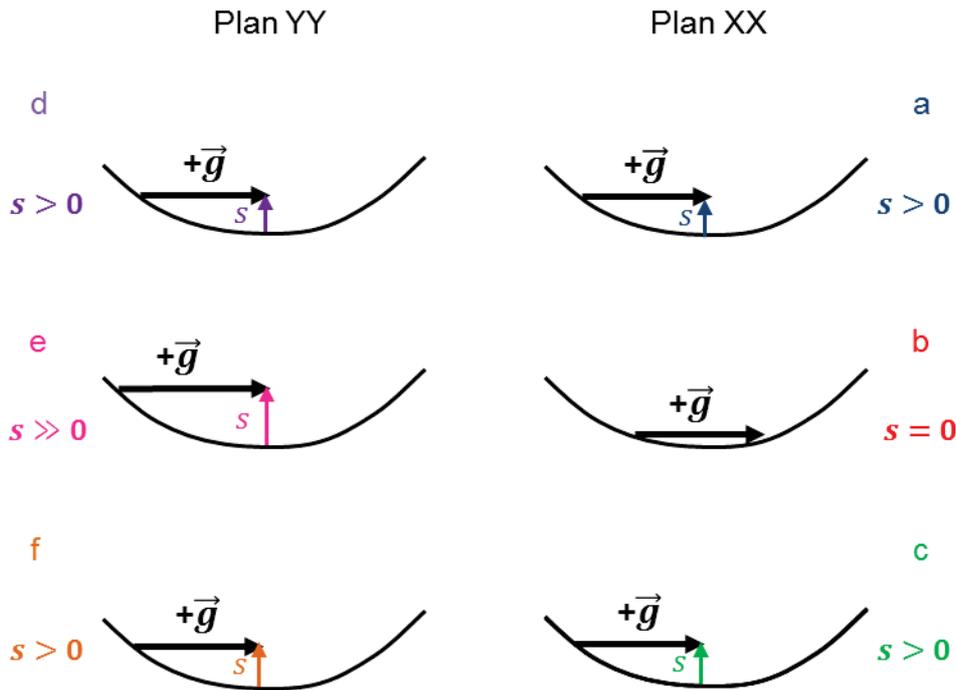


Figure D.2.5: Signe du vecteur de Bragg à différentes positions des plans de diffraction XX et YY.

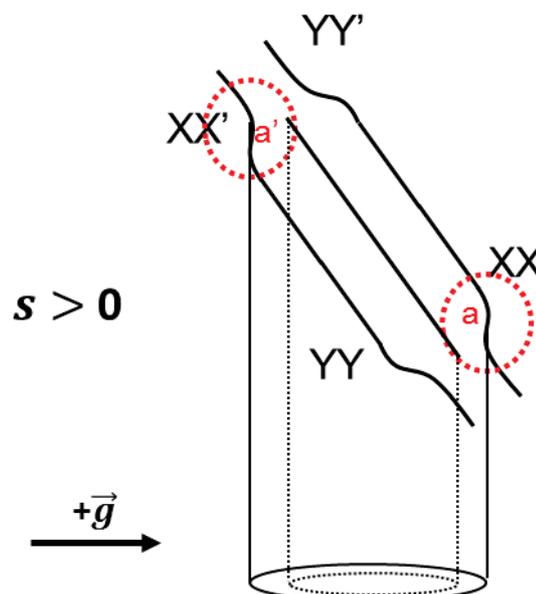


Figure D.2.6: Boucle interstitielle en contraste externe obtenu avec $\vec{g} \cdot \vec{n} > 0$ et $s > 0$.

Pour déterminer la nature d'une boucle de dislocation, il faut donc connaître son plan d'habitat et son inclinaison par rapport au vecteur de diffraction et le signe du vecteur de Bragg. Par convention, la normale \vec{n} au plan d'habitat de la boucle de dislocation est choisie de telle sorte que le produit scalaire $\vec{B} \cdot \vec{n}$ soit positif avec \vec{B} le vecteur parallèle au faisceau des électrons incidents du MET et dirigé dans le sens inverse. Une fois la normale \vec{n} établie, nous définissons l'orientation du vecteur de diffraction \vec{g} comme suit : le vecteur de diffraction \vec{g} est positif et est noté $+\vec{g}$ lorsque $\vec{g} \cdot \vec{n} > 0$ et inversement lorsque $\vec{g} \cdot \vec{n} < 0$, le vecteur de diffraction \vec{g} est négatif et est noté $-\vec{g}$.

D.2.3 Coexistence des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires

Pour simplifier la méthode d'identification de la nature des boucles de dislocation détaillée précédemment, il faut utiliser un axe de zone de type $\vec{B} = \langle 11\bar{2}3 \rangle$ et un vecteur de diffraction de type $\vec{g} = 11\bar{2}2$. Avec ces conditions de diffraction, le produit scalaire $(\vec{g} \cdot \vec{n})$ est toujours de même signe quelque soit le plan d'habitat des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ considéré comme étant un des trois plans prismatiques de type $\{10\bar{1}0\}$. Cette méthode, largement inspirée par les travaux de Ribis [6], nous permet, une fois le signe de $\vec{g} \cdot \vec{n}$ déterminé, de nous affranchir de la détermination du plan d'habitat des boucles de dislocation, l'intérêt étant d'identifier sur un même cliché MET un grand nombre de boucles de dislocation.

Dans le cadre de notre étude de la nature des boucles de dislocation, nous avons utilisé l'axe de zone $\vec{B} = [\bar{2}11\bar{3}]$ et le vecteur de diffraction $\vec{g} = \bar{2}112$. Avec ces conditions de diffraction, le réflecteur $+\vec{g} = \bar{2}112$ est orienté vers le bas et le réflecteur $-\vec{g} = 2\bar{1}\bar{1}2$ est orienté vers le haut (Figure D.2.7). Ainsi, pour les trois plans d'habitat des boucles de dislocation $\langle a \rangle$, $\vec{g} \cdot \vec{n} > 0$ lorsque les boucles sont imagées avec le vecteur de diffraction $+\vec{g}$ (orienté vers le bas) et $\vec{g} \cdot \vec{n} < 0$ dans le cas inverse.

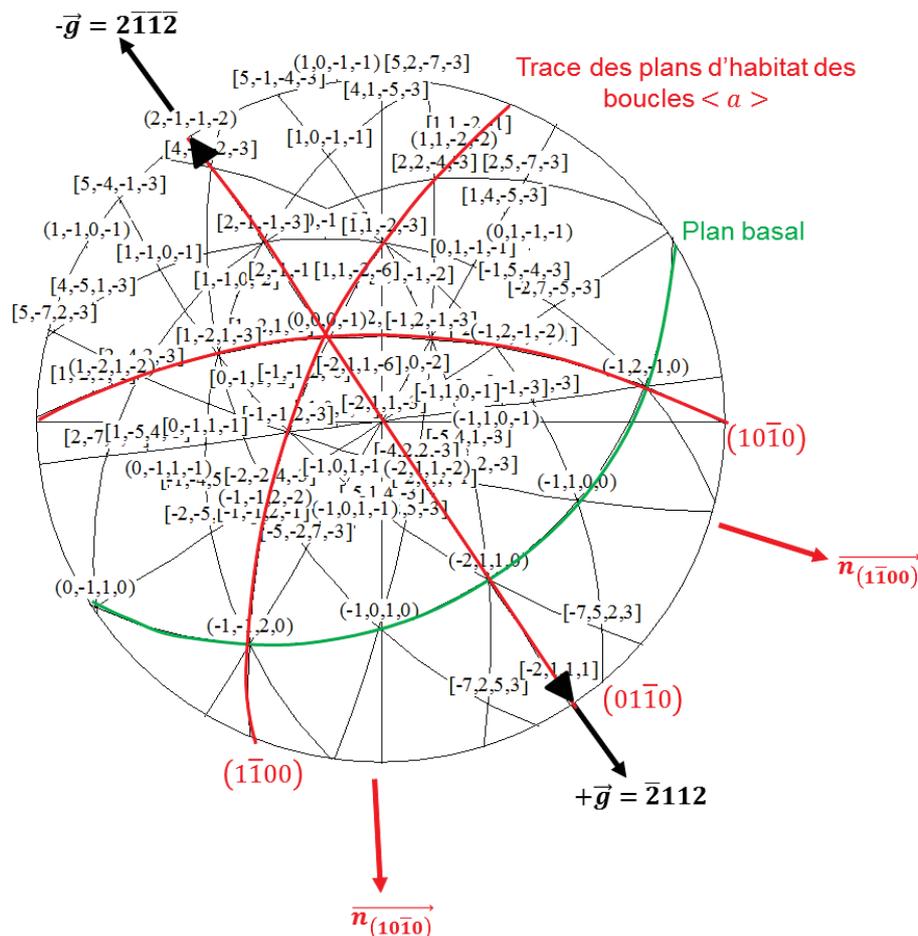


Figure D.2.7: Projection stéréographique du grain étudié ($\vec{B} = [\bar{2}11\bar{3}]$ et $\vec{g} = \bar{2}112$) et orientation des normales aux plans d'habitat de type $\{10\bar{1}0\}$ des boucles de dislocation $\langle a \rangle$.

D.2. CARACTERISATION DES BOUCLES DE DISLOCATION $\langle a \rangle$ DANS LE ZIRCALOY-4 TREX IRRADIE AUX ELECTRONS DE 1 MEV

Dans le cadre de notre étude, l'identification de la nature des boucles par la méthode du contraste interne/externe a porté sur 6 boucles de dislocation $\langle a \rangle$ (Figure D.2.9 et Figure D.2.10).

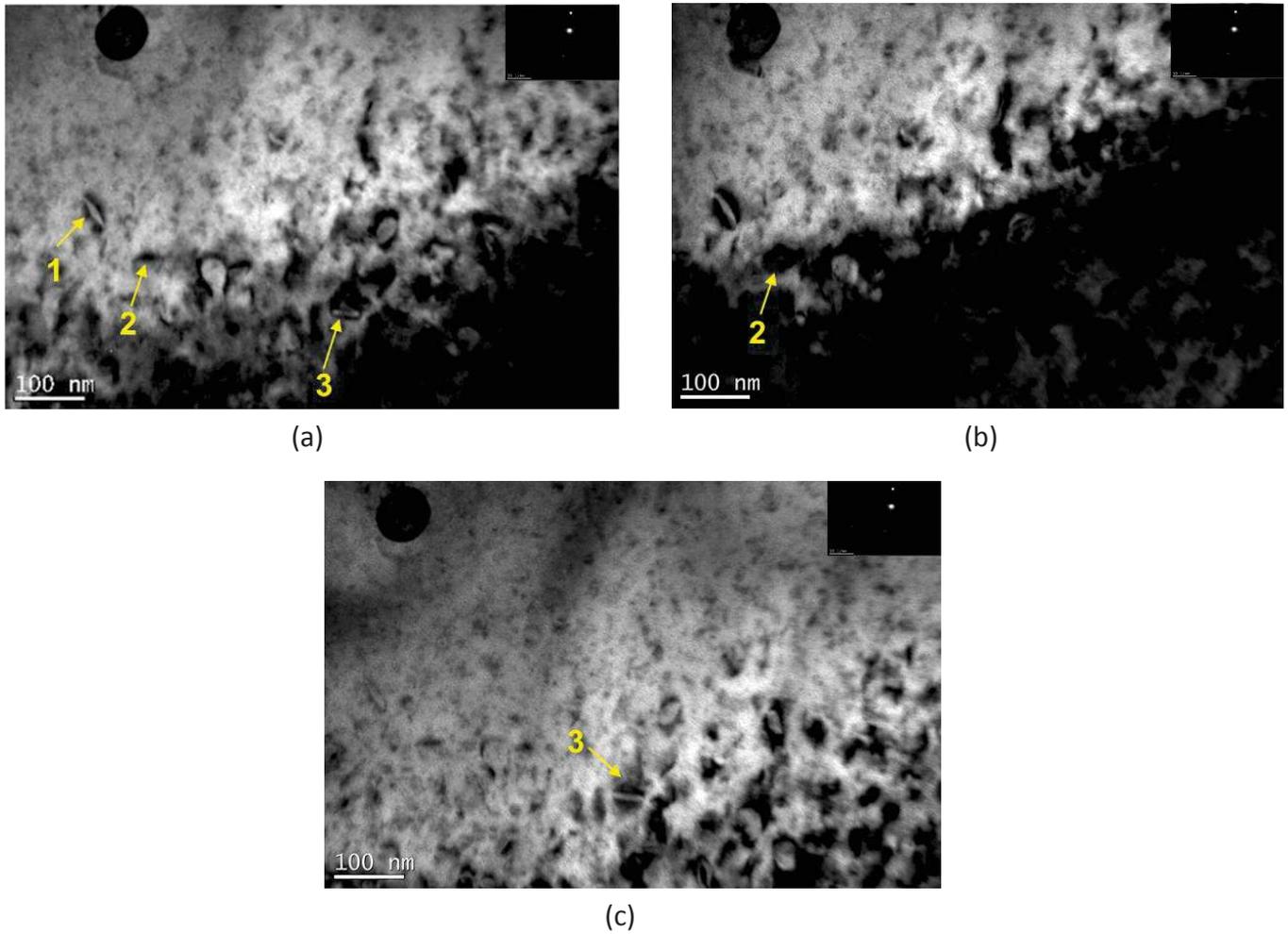


Figure D.2.9: Boucles de dislocation $\langle a \rangle$ imagées avec un vecteur de diffraction $-\vec{g}$ et un vecteur de Bragg positif ou négatif.

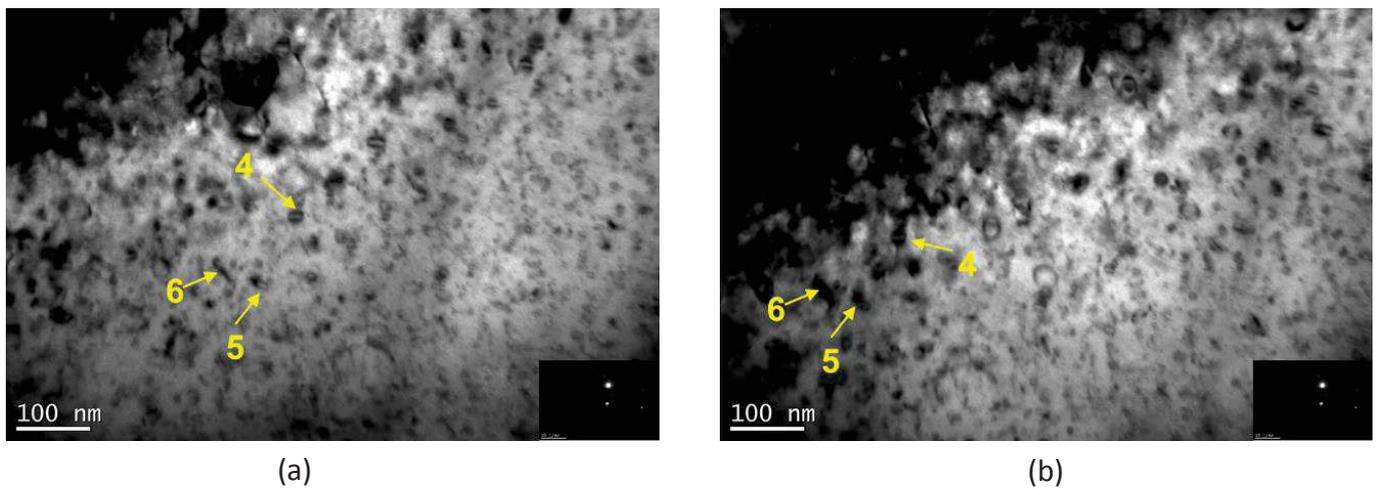


Figure D.2.10: Boucles de dislocation $\langle a \rangle$ imagées avec un vecteur de diffraction $+\vec{g}$ et un vecteur de Bragg positif ou négatif.

Les résultats de l'identification de la nature des 6 six boucles de dislocation $\langle a \rangle$ analysées sont consignés dans le Tableau D.2.1.

Tableau D.2.1: Nature des boucles de dislocation annotées dans la Figure D.2.9 et la Figure D.2.10.

Boucle de dislocation	Vecteur de diffraction	Vecteur de Bragg	Contraste	Nature
1	$-\vec{g}$	$s < 0$	externe	interstitielle
2	$-\vec{g}$	$s > 0$	interne	interstitielle
3	$-\vec{g}$	$s < 0$	interne	lacunaire
4	$+\vec{g}$	$s > 0$	interne	lacunaire
5	$+\vec{g}$	$s > 0$	interne	lacunaire
6	$+\vec{g}$	$s > 0$	interne	lacunaire

Par cette étude, nous démontrons que les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ ne sont pas exclusivement interstitielles. Les deux types, interstitiel et lacunaire, de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ coexistent. Dans la littérature, la coexistence des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires a été principalement prouvée lors des irradiations aux neutrons [4], [5], [7] (§ I.2.3). En ce qui concerne les irradiations aux électrons, ce résultat a été reporté par Griffiths *et al.* [1], [8].

Dans le cadre de notre étude, une seule orientation cristallographique a été examinée. Le grain étudié présente un angle λ de $11,3^\circ$. Sur 6 boucles de dislocation $\langle a \rangle$ analysées, 2 boucles sont interstitielles et 4 sont lacunaires (Tableau D.2.1). Pour cette orientation cristallographique et à la température de 580°C , nous obtenons donc une proportion de 34% pour les boucles interstitielles et de 67% pour les boucles lacunaires.

Comparons maintenant ce résultat avec les données expérimentales de Griffiths *et al.* [1] qui portent sur la caractérisation de la nature des boucles de dislocation $\langle a \rangle$ formées dans du zirconium pur irradié aux électrons de 1 MeV avec un taux de création de dommage de 5×10^{-4} dpa/s et à une température de 422°C . La nature des trois familles de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ a été examinée dans le but de déterminer pour une orientation λ donnée la proportion des boucles interstitielles et lacunaires. Deux orientations cristallographiques ont été examinées : la première en prenant un axe de zone $\vec{B} \cong [2\bar{3}14]$ ce qui donne un angle λ de $34,37^\circ$ et la deuxième avec un axe de zone $\vec{B} \cong [0\bar{1}16]$ et un angle λ de $5,97^\circ$. Les valeurs des angles λ ont été déterminées à l'aide du logiciel *CaRIne Crystallography*.

Tableau D.2.2: Nombre de boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires quantifiées par Griffiths *et al.* [1].

$\vec{B} \cong [2\bar{3}14]$		$\vec{B} \cong [0\bar{1}16]$					
$\vec{b} = \pm \frac{1}{3} [1\bar{2}10]$		$\vec{b} = \pm \frac{1}{3} [1\bar{2}10]$		$\vec{b} = \pm \frac{1}{3} [11\bar{2}0]$		$\vec{b} = \pm \frac{1}{3} [\bar{2}110]$	
Interstitielle	Lacunaire	Interstitielle	Lacunaire	Interstitielle	Lacunaire	Interstitielle	Lacunaire
7	33	20	43	11	11	39	5

D'après la Figure D.2.11, nous constatons que la proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires déterminée lors de notre étude expérimentale est cohérente avec les valeurs obtenues par Griffiths *et al.* [1]. La proportion plus élevée de boucles $\langle a \rangle$ lacunaires est probablement due au fait que l'irradiation a été conduite à une température plus élevée. Plusieurs auteurs [4], [5], [7] ont montré que les boucles sont majoritairement lacunaires à haute température (§ I.1.2.3.1 et I.2.3.2.1).

Cette étude permet aussi de rendre compte de l'effet de l'orientation de la lame mince sur la proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires. Pour des faibles valeurs de λ , les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires coexistent. Au-delà d'une valeur seuil d'environ 8° , la croissance des boucles $\langle a \rangle$ lacunaires est favorisée par rapport à celle des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles. Cette valeur seuil est déduite des courbes de tendance représentées dans la Figure D.2.11. Comme ces courbes regroupent à la fois nos résultats issus des irradiations de Zircaloy-4 recristallisé TREX à 580°C et ceux de Griffiths *et al.* [1] qui proviennent des irradiations de zirconium pur à 422°C , cette valeur seuil de 8° doit être considérée avec précaution.

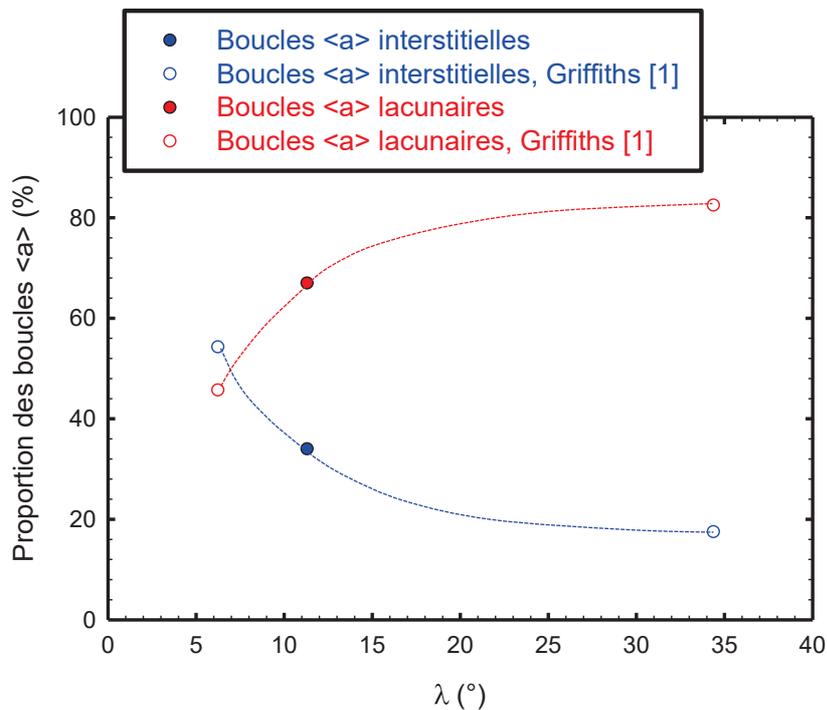


Figure D.2.11: Evolution de la proportion des boucles $\langle a \rangle$ interstitielles et lacunaires avec l'angle λ .

D.3 Références bibliographique de l'annexe D

- [1] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Anisotropic distribution of dislocation loops in HVEM irradiated Zr," *Philos. Mag. A*, vol. 49, pp. 613–624, 1984.
- [2] C. Hellio, "Etude par microscopie électronique à transmission des défauts induits par irradiation aux ions et aux électrons dans du zirconium pur et quatre de ces alliages," Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, 1988.
- [3] C. Hellio, C. H. Novion, and L. Boulanger, "Influence of alloying elements on the dislocation loops created by Zr ion or by electron irradiation in α -Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 368–378, 1988.
- [4] A. Jostsons, P. M. Kelly, and R. G. Blake, "The nature of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, pp. 236–256, 1977.
- [5] P. M. Kelly and R. G. Blake, "The characterization of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 28, pp. 415–426, 1973.

- [6] J. Ribis, "Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement en fluage des alliages de zirconium irradiés," Thèse de doctorat confidentielle, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2008.
- [7] D. O. Northwood, R. W. Gilbert, L. E. Bahen, P. M. Kelly, R. G. Blake, A. Jostsons, P. K. Madden, D. Faulkner, W. Bell, and R. B. Adamson, "Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys - An international 'Round-Robin' experiment," *J. Appl. Phys.*, vol. 79, pp. 379–394, 1979.
- [8] M. Griffiths and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium - I. Defect structure and loop character," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, pp. 313–322, 1983.

