



**HAL**  
open science

# Étude du glissement des dislocations dans le zirconium

Thomas Soyez

► **To cite this version:**

Thomas Soyez. Étude du glissement des dislocations dans le zirconium. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASP053 . tel-03054391

**HAL Id: tel-03054391**

**<https://theses.hal.science/tel-03054391>**

Submitted on 11 Dec 2020

**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.

# Étude du glissement des dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le zirconium

**Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay**

École doctorale n° 564, Physique en Île-de-France (PIF)  
Spécialité de doctorat : Physique  
Unité de recherche : Université Paris-Saclay, CEA, Service de Recherches de  
Métallurgie Physique, 91191, Gif-sur-Yvette, France  
Réfèrent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse présentée et soutenue en visioconférence totale, le 5 novembre 2020, par

**Thomas SOYEZ**

## Composition du jury :

**Jérôme Creuze**

Professeur, Université Paris-Saclay

**Fabienne Ribeiro**

Ingénieure de recherche, IRSN

**Frédéric Mompiau**

Chargé de recherche, CEMES

**Ivan Guillot**

Professeur, Université Paris Est Créteil

**Christophe Domain**

Ingénieur de recherche, EDF

**Daniel Caillard**

Directeur de recherche, CEMES

**Nermine Chaari**

Ingénieure de recherche, EDF

**Fabien Onimus**

Ingénieur de recherche, CEA Saclay

**Emmanuel Clouet**

Ingénieur de recherche, CEA Saclay

Président

Rapporteure

Rapporteur

Examineur

Examineur

Invité

Invitée

Codirecteur

Directeur



À Didier Soyez, mon père et Annie Gaudin, ma grand-mère



# Remerciements

Je tiens à remercier les principales personnes qui ont permis l'établissement de cette thèse. La première personne à laquelle je souhaite adresser ces remerciements est évidemment Emmanuel Clouet. Sa pédagogie, sa disponibilité, sa capacité à analyser les résultats et sa compétence dans le sujet ont constitué un réel appui sans lequel la thèse n'aurait pu suivre une telle direction. Je le remercie infiniment de m'avoir pris, tout d'abord en stage pour étudier l'interaction dislocation  $\langle a \rangle$  - hydrogène en ab initio alors que je ne connaissais que très peu les simulations atomiques et avais des connaissances assez limitées dans les matériaux. Je remercie également Fabien Onimus qui a encadré la partie expérimentale de cette thèse pour sa pédagogie, les compétences, ses qualités de microscopiste et la rigueur sur le choix des mots qu'il m'a transmises.

Je remercie chaleureusement les membres du jury pour avoir accepté de juger mon travail. Leurs questions et leur bienveillance ont permis de rendre cette soutenance de thèse, bien qu'en ligne, très vivante et l'ont fait durer le temps d'un clin d'œil. Vos questions et vos remarques étaient très pertinentes et ouvrent également sur des perspectives non envisagées.

Je remercie le CEA et l'institut tri-partite, CEA-EDF-Framatome pour leur financement et les échanges lors des réunions du projet SP1.2 qui m'ont permis d'effectuer cette thèse dans les meilleures conditions.

Je remercie fortement tous les membres du Service de Recherche de Métallurgie Physique (SRMP), Jean-Luc Bechade premièrement, pour sa bienveillance, son intérêt pour la science et ses qualités humaines qui est à mon avis le chef de service idéal. Je remercie également Patricia Matysiak et Rosabelle Berger qui m'ont permis de ne pas passer des heures avec les formalités administratives ainsi que pour leurs conseils de jardinage. Je remercie tous mes co-bureau pour m'avoir supporté le long de mes années au SRMP, par ordre chronologique, Bérengère, Lisa, Estelle et finalement Quentin qui a dû (partiellement avec le confinement) vivre mon caractère plus "aigri", selon lui, de fin de thèse "J". Je tiens également à remercier toutes les personnes permanentes ou non du SRMP avec qui j'ai eu la chance d'échanger, votre présence et votre bonne humeur ont rendu ce lieu de travail chaleureux et ont ainsi amélioré cet espace. Outre la bonne humeur, l'amour de la science et les compétences réunies au SRMP rendent ce lieu unique où l'on cherche toujours à se dépasser.

Je remercie finalement ma famille pour m'avoir soutenu tout au long de mes études, premièrement mes parents pour m'avoir encouragé à continuer dans des études longues, en m'aidant financièrement alors que les temps n'étaient pas des plus faciles. Je remercie également ma famille proche pour m'avoir soutenu moralement et rappelé que j'étais bien capable d'aller au bout dans mes moments de doutes. Je tiens à remercier spécialement ma cousine qui m'a ouvert la voie en me montrant qu'obtenir son doctorat n'était pas dans le domaine de l'imaginaire et qui a toujours été un exemple pour moi. Je remercie finalement ma fiancée, Huang Jingwen, pour avoir rendu ma vie personnelle beaucoup plus heureuse, pour son soutien moral, affectif et culinaire

dont j'avais besoin au retour à la maison. Je la remercie également pour l'ouverture culturelle qu'elle m'a amené à avoir ce qui m'a amené à faire des voyages que je n'aurais jamais imaginés ainsi que de vivre *in situ* le début de la crise de COVID-19 à Wuhan m'amenant à vivre un rapatriement (je remercie au passage l'état français) et plusieurs confinements d'affilée. Je tiens finalement à dédier ce manuscrit, fruit de mes études supérieures, à mon père et ma grand-mère, qui étaient encore là au début de cette thèse et qui auraient grandement aimé m'appeler docteur.

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>5</b>
<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Synthèse Bibliographique</b>	<b>15</b>
1.1 Plasticité des métaux . . . . .	15
1.1.1 Propriétés des dislocations . . . . .	15
1.1.2 Propriétés élastiques de la dislocation . . . . .	16
1.1.3 Mobilité des dislocations . . . . .	19
1.1.4 Déformation par maclage . . . . .	23
1.2 Plasticité du zirconium . . . . .	24
1.2.1 Cristallographie de la structure hexagonale compacte . . . . .	24
1.2.2 Glissement des dislocations $\langle a \rangle$ dans le zirconium . . . . .	27
1.2.3 Mécanisme de déformation secondaire du zirconium . . . . .	28
1.2.4 Réponse mécanique du polycristal . . . . .	29
1.3 Dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le zirconium . . . . .	32
1.3.1 Observations expérimentales . . . . .	32
1.3.2 Simulations atomistiques . . . . .	34
1.3.3 Dislocation $\langle c + a \rangle$ à direction $\langle a \rangle$ . . . . .	36
1.4 Dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le magnésium . . . . .	43
<b>2 Observations en MET</b>	<b>49</b>
2.1 Méthode de caractérisation . . . . .	49
2.2 Matériau . . . . .	53
2.3 Etude Post-mortem . . . . .	57

<b>3</b>	<b>Étude exp. du glissement des dislocations <math>\langle c + a \rangle</math></b>	<b>63</b>
3.1	Méthode . . . . .	63
3.2	Comportement dynamique des dislocations $\langle c + a \rangle$ . . . . .	66
3.2.1	Plans de glissement . . . . .	66
3.2.2	Mobilité de la dislocation $\langle c + a \rangle$ . . . . .	67
3.2.3	Glissement dévié . . . . .	72
3.2.4	Relaxation . . . . .	78
3.3	Compétition avec le maclage . . . . .	80
3.3.1	Propagation et épaisseur de macle . . . . .	80
3.3.2	Interaction macle-dislocations $\langle c + a \rangle$ . . . . .	80
3.4	Discussion . . . . .	84
<b>4</b>	<b>Méthodes et Outils de Modélisation</b>	<b>87</b>
4.1	Techniques de simulation . . . . .	87
4.1.1	Statique moléculaire . . . . .	88
4.1.2	Calcul de barrière énergétique . . . . .	88
4.1.3	Dynamique moléculaire . . . . .	89
4.2	Modélisation des dislocations . . . . .	89
4.2.1	Agrégats bords fixes . . . . .	90
4.2.2	Dipôle de dislocations . . . . .	92
4.2.3	Conditions aux limites pour la dynamique moléculaire . . . . .	92
4.3	Méthode d'analyse . . . . .	94
4.4	Modèles énergétiques . . . . .	97
4.5	Fautes d'empilement dans le zirconium . . . . .	100
4.5.1	Modélisation atomique des fautes . . . . .	100
4.5.2	Faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce "Loose" . . . . .	102
4.5.3	Faute dans le plan pyramidal de seconde espèce . . . . .	107
4.5.4	Faute d'empilement dans le plan prismatique . . . . .	112
4.5.5	Récapitulatif . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Glissement des dislocations <math>\langle c + a \rangle</math> vis</b>	<b>119</b>
5.1	Choix du potentiel et cœurs de dislocations . . . . .	119
5.1.1	Boîte de simulation . . . . .	119
5.1.2	Configurations de la dislocation vis . . . . .	123
5.2	Effet d'une contrainte appliquée . . . . .	129
5.2.1	Dislocation sous contrainte . . . . .	129
5.2.2	Barrière énergétique de glissement . . . . .	132

5.3	Glissement thermiquement activé . . . . .	135
5.3.1	Paramètres des simulations . . . . .	135
5.3.2	Évolution de la vitesse de la dislocation en fonction du couple contrainte- température . . . . .	136
5.3.3	Loi de mobilité . . . . .	138
<b>6</b>	<b>Modélisation des dislocations <math>\langle c + a \rangle</math> à direction <math>\langle a \rangle</math></b>	<b>143</b>
6.1	Orientation du cristal et estimation de l'énergie de cœur . . . . .	144
6.2	Structures obtenues avec le potentiel EAM #2 . . . . .	147
6.2.1	Structures de cœur obtenues à 0K . . . . .	147
6.2.2	Évolution sous contrainte . . . . .	149
6.2.3	Structures obtenues en température . . . . .	152
6.3	Structures obtenues avec le potentiel EAM #3 . . . . .	153
6.3.1	Structures de cœur obtenues à 0 K . . . . .	153
6.3.2	Évolution sous contrainte . . . . .	155
6.3.3	Structures obtenues en température . . . . .	157
6.4	Structures obtenues avec le potentiel MEAM . . . . .	157
6.5	Discussion . . . . .	158
	<b>Conclusions et Perspectives</b>	<b>161</b>
	<b>Annexe A : Identification de plan via les traces de glissement</b>	<b>165</b>



# Introduction

L'électricité française est issue, à raison de plus de 70%, de centrales nucléaires. Celle-ci est produite via la réaction exothermique de fission nucléaire qui se produit dans les pastilles de dioxyde d'uranium. Cette réaction produit de l'énergie qui est convertie sous la forme de chaleur transformant l'eau du circuit secondaire en vapeur qui entraînent ensuite les turbines à vapeur qui permettent enfin de produire de l'électricité. Les produits de fission étant hautement radioactifs, afin qu'ils ne se dispersent pas dans le circuit primaire, sont confinés dans des gaines de zirconium composant, avec les tubes guides et les grilles, l'assemblage combustible.

Les alliages de zirconium ont été choisis pour être les matériaux des gaines des assemblages combustibles pour leur propriété de quasi-transparence aux neutrons thermiques (section efficace très faible) responsables de la fission de l'uranium. Ils conduisent également bien la chaleur, ont une bonne tenue en milieu corrosif et sous irradiation. En condition d'opération, dans les réacteurs à eau pressurisée, les alliages de zirconium sont en contact avec de l'eau enrichie en acide borique à la température de 330°C, sous une pression d'environ 155 bars et sont soumis à l'irradiation. Afin de s'assurer de l'intégrité structurale de ces alliages, dans toutes les conditions dont des situations accidentelles, les industriels cherchent à prédire le comportement des assemblages combustibles au cours de leur utilisation. Cette prédiction nécessite de connaître les propriétés élémentaires du matériau telles les mécanismes physiques contrôlant sa déformation plastique.

Le zirconium est un métal de transition faisant partie du groupe IV B du tableau périodique. En condition d'opération et à température ambiante, le zirconium dispose d'une structure  $\alpha$  hexagonale compacte et, au dessus de 865°C, d'une structure  $\beta$  cubique centrée. Cette température de transition dépend de la composition de l'alliage.

La déformation plastique du zirconium a largement été étudiée dans la littérature et montre qu'elle est pilotée par le glissement des dislocations ainsi que par le maclage comme dans la majorité des métaux. Dans le zirconium, le mécanisme de déformation principal est le glissement de dislocations de vecteur de Burgers  $\langle a \rangle$  dans les plans prismatiques. Le glissement de ces dislocations est bien revu dans la littérature et modélisé via des simulations numériques à différentes échelles. Néanmoins, les mécanismes de déformation secondaires n'ont pas été autant étudiés et laissent des questions fondamentales non résolues. Cette thèse a été réalisée dans la continuité des précédentes thèses également effectuées au SRMP, celles de Nermine Chaari [1] et Olivier Mackain [2] visant à étudier via des simulations atomiques les mécanismes de déformations principaux et secondaires, respectivement le glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  et le maclage. Cette thèse porte sur un autre mécanisme de déformation secondaire : le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium.

Lors d'une sollicitation suivant la direction  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale, les dislocations  $\langle a \rangle$  ne permettent pas d'accommoder une déformation dans une telle direction. Le maclage ou le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  qui permettent d'accommoder une telle déformation entrent

alors en jeu. Contrairement au maillage dont l'activation dépend fortement de la température (favorisé à basse température et/ou haute vitesse de déformation), le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est actif à toutes températures dans le zirconium pur et dans les alliages de type Zircaloy-4. Le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  nécessite une contrainte d'activation supérieure à celle du glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  et est ainsi rarement observé dans des échantillons se déformant en activant le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$ .

Les objectifs généraux de cette thèse sont de déterminer expérimentalement quels sont les mécanismes de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium et quels sont les mécanismes à l'échelle atomique qui expliquent le glissement observé expérimentalement à l'échelle de la dislocation.

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissent principalement dans les plans pyramidaux de première espèce et adoptent une orientation principale orientée suivant l'intersection du plan de base et le plan de glissement de la dislocation *i.e.* une direction  $\langle a \rangle$ . Le glissement de ces dislocations n'a jamais été observé dans des conditions dynamiques, c'est-à-dire que le plan de glissement et l'orientation de ces dislocations ont été déterminés via des observations post-mortem (après avoir subi une expérience de traction) et donc au repos.

La modélisation de la déformation à l'échelle de la dislocation passe par une description de la structure de son cœur. En effet, le glissement de la dislocation est piloté par sa structure de cœur qui est la région comprise dans un rayon de quelques nanomètres autour de son centre. Pour les dislocations  $\langle a \rangle$ , plan de glissement et structure de cœur des dislocations  $\langle a \rangle$  sont intimement liés [3, 4]. La détermination expérimentale de la structure de cœur d'une dislocation nécessite de réaliser des observations en microscopie électronique à transmission à haute résolution et demande des conditions d'observations difficiles. La structure de cœur des dislocations est ainsi généralement obtenue via des simulations à l'échelle atomique. Ces dernières s'appuient sur des modèles énergétiques, les calculs *ab initio* étant le modèle le plus fiable, permettant d'obtenir des structures de cœur dépendant de la nature de la liaison chimique entre atomes dans le matériau, *i.e.* de la structure électronique des atomes appartenant au cœur de la dislocation. Pour les dislocations  $\langle a \rangle$ , les calculs *ab initio* montrent un bon accord avec les observations expérimentales et démontrent qu'une dislocation dissociée dans le plan prismatique (le plan de glissement principal de la dislocation  $\langle a \rangle$ ) correspond à la structure de cœur de plus basse énergie.

Cette thèse s'articule autour de deux approches complémentaires. La première approche est expérimentale et s'appuie sur des observations MET : premièrement, les conditions d'observation et d'obtention de dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium sont analysées en réalisant des observations post-mortem sur des échantillons pré-écrouis. Deuxièmement, des observations MET au cours d'essais de traction *in situ* sont réalisées de manière à observer et décrire les mécanismes de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium.

La deuxième approche est basée sur des simulations atomistiques. Dans un premier temps, les différents modèles énergétiques permettant de décrire le zirconium à une échelle atomique sont testés afin de choisir le plus adéquat pour modéliser les dislocations  $\langle c + a \rangle$  et reproduire les observations expérimentales.

Ensuite, la dislocation  $\langle c + a \rangle$  d'orientation vis est étudiée et modélisée car elle gouverne le plan de glissement de l'ensemble de la ligne de dislocation. Cette étude se fera autour de la modélisation de la structure de cœur puis autour de l'évolution de cette structure de cœur sous contrainte. Dans l'optique d'établir une loi de mobilité pour décrire le glissement de cette dislocation des simulations de dynamique moléculaire sous différentes contraintes et températures sont réalisées.

Finalement, l'orientation préférentielle de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans la direction  $\langle a \rangle$ , mixte

quasi-coin qui a été déterminée par le biais d'observation MET est étudiée via l'obtention de différentes structures de cœur afin d'expliquer le mécanisme de glissement observé lors des observations en MET *in situ*.



# Chapitre 1

## Synthèse Bibliographique

Afin de comprendre pour quelles raisons il est important de mieux connaître les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium, il est nécessaire avant tout d'introduire les concepts de bases régissant la plasticité des métaux. Après cette introduction, la plasticité du zirconium sera décrite, en se concentrant finalement sur l'anisotropie de déformation qui trouve notamment son origine dans les propriétés des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Une synthèse des études des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium est ensuite proposée. Dans une première partie, les travaux expérimentaux sont présentés. Dans une seconde partie, l'apport des simulations à l'échelle atomique est décrit. Enfin, dans une troisième partie, une revue des études sur le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium, un métal de structure également hexagonale compacte est proposée. Ce métal ayant été plus largement étudié, de nombreux mécanismes ont été proposés, ces derniers pouvant s'appliquer au zirconium.

### 1.1 Plasticité des métaux

Sous une contrainte appliquée, un solide cristallin se déforme de manière réversible tant que la contrainte appliquée est inférieure à une contrainte critique, appelée limite d'élasticité. Sous une contrainte plus importante et après relâchement de la contrainte, il apparaîtra une déformation résiduelle, irréversible, appelée déformation plastique. La déformation plastique dans les métaux est accommodée par la création et le déplacement de défauts cristallins. Les mécanismes de déformation plastique dans les métaux sont principalement le glissement des dislocations et le maillage. Nous nous intéresserons dans ce paragraphe premièrement au glissement des dislocations en définissant tout d'abord ces défauts puis en présentant leurs principales propriétés sur lesquelles nous nous appuyerons pour la suite de l'étude. L'objet principal de l'étude est le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Dans le zirconium, l'activation de ce mode de déformation entre en compétition avec le maillage rendant l'introduction de cet autre mécanisme de déformation nécessaire.

#### 1.1.1 Propriétés des dislocations

Les dislocations sont des défauts linéaires qui correspondent à la frontière entre une zone cisillée d'un vecteur  $\vec{b}$  appelé vecteur de Burgers et le cristal non cisillé. Une dislocation émerge

généralement d'une imperfection du cristal comme un joint de grain ou peut se refermer sur elle même, on parle alors de boucle de dislocation. Les dislocations sont des objets de l'ordre du micromètre en longueur et de l'ordre du nanomètre en épaisseur. Elles sont généralement imagées expérimentalement par microscopie électronique en transmission comme illustré par la Figure 1.1.

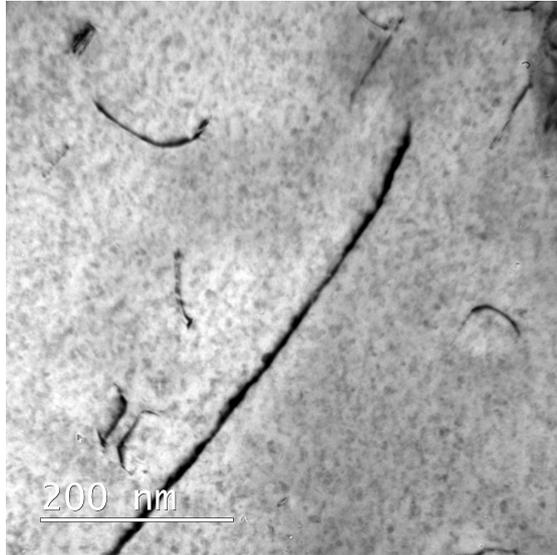


FIGURE 1.1 – Micrographie MET imageant des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans un échantillon de Zircaloy 4 TREx déformé à 350°C à 4 % lors de la thèse de Marine Gaumé [5].

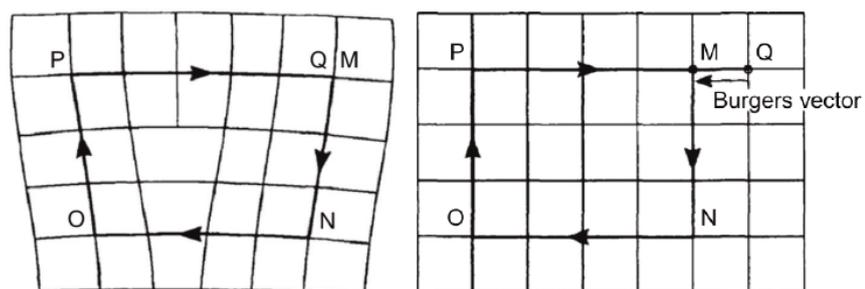
Une dislocation est caractérisée localement par deux grandeurs/vecteurs : son cisaillement  $\vec{b}$  qui est conservé tout le long de la ligne de la dislocation et son vecteur ligne  $\vec{l}$  qui correspond à la direction de la tangente à la ligne de la dislocation. Une nomenclature a été créée de manière à caractériser plus facilement une dislocation en fonction de deux cas particuliers et un cas général :

- Si le vecteur ligne de la dislocation est colinéaire avec la direction de cisaillement  $\vec{b}$ , la dislocation est dite "vis".
- Si le vecteur ligne de la dislocation est orthogonal à la direction de cisaillement  $\vec{b}$ , la dislocation est dite "coin".
- Si le vecteur ligne n'est ni orthogonal ni colinéaire avec la direction de cisaillement de la dislocation, la dislocation est dite "mixte".

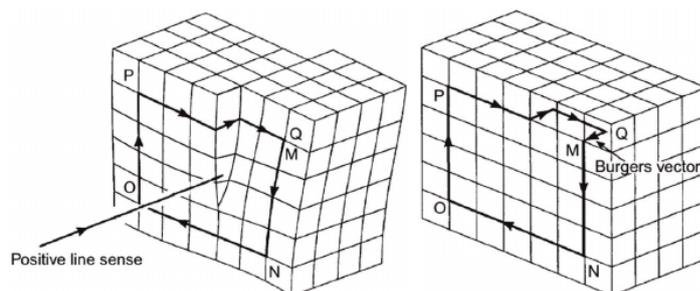
On peut retrouver le vecteur de Burgers en traçant un circuit fermé autour de la dislocation en suivant des liens entre atomes voisins (communément appelé circuit de Burgers) [6]. En traçant ce même chemin dans un cristal parfait, on remarque que le circuit n'est pas parfait, c'est-à-dire qu'il ne se termine pas à son point de départ comme illustré sur la Figure 1.2 où le circuit de Burgers est délimité par les points MNOPQ. Ce circuit se terminant au point Q dans le cristal parfait différent de M. Le cristal parfait a donc été cisailé d'un vecteur  $\vec{b} = \overline{QM}$ .

### 1.1.2 Propriétés élastiques de la dislocation

La présence d'une dislocation dans un cristal induit une réorganisation locale des atomes dans le cristal. La théorie élastique décrit qu'une dislocation rectiligne génère une déformation



(a) Dislocation coin



(b) Dislocation vis

FIGURE 1.2 – Représentation du circuit de Burgers. (a) Le circuit de Burgers d’une dislocation coin est imagée : la ligne de dislocation est orthogonale au plan de la page. Le cristal de gauche contient la dislocation et le cristal est non cisailé. (b) Le circuit de Burgers d’une dislocation vis est imagée. Les schémas sont issus de la référence [6].

élastique qui décroît en  $\frac{1}{r}$  lorsque l'on s'éloigne de la dislocation [8]. Cette théorie continue permet de connaître à longue distance le champ élastique induit par la dislocation. Trop proche du centre de la dislocation, les atomes étant fortement déplacés, ils ne peuvent pas être décrits par la théorie élastique. Une zone spécifique doit alors être introduite pour la description de la déformation induite par la dislocation à faible distance. Il faut alors distinguer deux zones : une zone dite de cœur où l'énergie de la dislocation ne sera décrite que par une constante  $E_{core}$ , la structure atomique ne pouvant être décrite par la théorie élastique et une zone externe où l'estimation de l'énergie élastique est possible. La dislocation étant un défaut linéaire, deux cylindres co-centrés sur la dislocation ayant leur hauteur parallèle à la ligne de la dislocation sont utilisés pour définir l'énergie totale d'une dislocation isolée. Le premier cylindre de rayon  $r_c$  représente la région isolant le cœur où la théorie élastique ne s'applique pas. Le cylindre extérieur a un rayon  $R_\infty$  du fait qu'une dislocation isolée n'existe pas et une distance d'écrantage doit être prise en compte. L'énergie élastique  $E_{elastique}$  est donc obtenue par une intégration dans un volume délimité par un rayon  $r \in [r_c : R_\infty]$ . L'énergie de cœur  $E_{cœur}$  est estimée en soustrayant l'énergie totale de la dislocation  $E_{tot}$  dans le cylindre de rayon  $R_\infty$  par l'énergie élastique dépendante du rayon de coupure.

$$E_{cœur} = E_{tot} - E_{elastique}$$

où l'énergie élastique par unité de longueur est donnée par l'équation suivante :

$$E_{elastique} = \frac{1}{2} b_i K_{ij} b_j \ln \left( \frac{R_\infty}{r_c} \right) \quad (1.1)$$

où  $K_{ij}$  est la matrice de Stroh et dépend uniquement des constantes élastiques,  $b_i$  et  $b_j$  sont relatifs au vecteur de Burgers de la dislocation.

On comprend ainsi que l'énergie d'une dislocation est proportionnelle au carré de son vecteur de Burgers. C'est pour cette raison que les vecteurs de Burgers d'une dislocation sont généralement les plus petits vecteurs de périodicité du réseau cristallin qui correspondent aux directions les plus denses afin de minimiser leur énergie.

La définition d'une telle région de cœur permet d'inclure dans le modèle élastique des restructurations du cœur de la dislocation telle que la dissociation d'une dislocation.

Une dislocation parfaite est une dislocation ayant un vecteur de Burgers correspondant à un vecteur de périodicité du réseau : quand on s'éloigne du cœur de la dislocation, le cristal retrouve un empilement qui correspond au cristal parfait. Si le vecteur de Burgers de la dislocation ne correspond pas à un vecteur de périodicité du réseau, la dislocation est dite partielle et une faute d'empilement accompagne cette dislocation dans la zone cisailée. La présence d'une telle dislocation partielle est possible par la dissociation d'une dislocation parfaite : une dislocation parfaite de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  peut se dissocier en deux dislocations partielles  $b^{(1)}$  et  $b^{(2)}$  vérifiant l'équation  $\vec{b} = b^{(1)} + b^{(2)}$  suivant un plan donné s'il existe une faute d'empilement stable dans ce plan. Cette dissociation est énergétiquement possible, l'énergie d'une dislocation étant proportionnelle à  $b^2$  comme le décrit l'équation de l'énergie élastique (eq : 1.1) [6]. Pour une telle dissociation le gain énergétique en énergie  $\Delta E_{diss}$  serait égal à :

$$\Delta E_{diss}(d) = -b_i^{(1)} K_{ij} b_j^{(2)} \ln \left( \frac{d}{r_c} \right) + \gamma d \quad (1.2)$$

où  $\gamma$  est l'énergie de la faute d'empilement créée par la dissociation de la dislocation.

Pour qu'une dissociation soit possible, ce gain doit être négatif. L'énergie de faute  $\gamma$  est positive. Afin que ce gain soit négatif il est donc nécessaire que la première partie de l'équation soit

négative. Cela étant régit par la réaction suivante dans les hypothèses d'une isotropie élastique et d'une dissociation colinéaire :  $\|\vec{b}^{(1)}\|^2 + \|\vec{b}^{(2)}\|^2 < \|\vec{b}^{(1)} + \vec{b}^{(2)}\|^2$ , soit  $\vec{b}^{(1)} \cdot \vec{b}^{(2)} > 0$ .

En dérivant l'équation 1.2 et en cherchant à atteindre la dissociation la plus stable, il est possible de déterminer la distance de dissociation à l'équilibre :

$$d_{eq} = \frac{b_i^{(1)} K_{ij} b_j^{(2)}}{\gamma}$$

On peut comprendre de cette équation que plus l'énergie de la faute d'empilement sera élevée plus la distance de dissociation à l'équilibre sera courte et vice-versa. De plus, plus un vecteur de Burgers est grand, plus la distance de dissociation est élevée. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ayant un vecteur de Burgers particulièrement grand, il est attendu qu'elles se dissocient sur une importante distance.

### 1.1.3 Mobilité des dislocations

Les dislocations sont des objets dont le mouvement propage la déformation au sein du cristal. Deux mécanismes sont connus pour propager cette déformation. Le premier est le glissement. C'est un mécanisme conservatif. La dislocation glisse dans un plan défini réorganisant localement, au niveau du cœur de la dislocation, les atomes pour faire avancer la dislocation. Le plan de glissement est défini par la direction de cisaillement et la ligne de la dislocation. Une dislocation coin ou mixte ne peut glisser que dans un seul plan : le plan formé par son vecteur ligne et son vecteur de Burgers. La dislocation vis peut a contrario glisser dans de multiples plans du fait que son vecteur ligne est colinéaire avec sa direction de cisaillement. Le second mécanisme est la montée, il s'agit d'un mécanisme non conservatif qui nécessite l'ajout ou le retrait d'atomes pour faire avancer la dislocation hors de son plan de glissement. Ce mécanisme étant lié au déplacement des lacunes ou d'interstitiels par diffusion, il opère plutôt à haute qu'à basse température.

Le déplacement  $\delta\vec{r}$  d'une dislocation amène à une variation d'énergie. Cette variation d'énergie est la conséquence du travail de la force agissant sur la dislocation. Ce travail  $dW$  est fonction de la contrainte appliquée  $\underline{\sigma}$ , de la direction et de l'amplitude du mouvement de la dislocation  $\delta\vec{r}$ , de  $\vec{l}$  et  $\vec{b}$ .

$$dW = \underline{\sigma} \cdot (\vec{l} \times \delta\vec{r}) \cdot \vec{b} = [(\underline{\sigma} \cdot \vec{b}) \times \vec{l}] \cdot \delta\vec{r}. \quad (1.3)$$

Le travail pouvant également s'exprimer comme le produit scalaire d'une force et du déplacement  $\delta\vec{r}$ , la force de Peach-Koehler [8,9] est définie par

$$\vec{F}^{PK} = (\underline{\sigma} \cdot \vec{b}) \times \vec{l}. \quad (1.4)$$

Afin que la dislocation se déplace, il est nécessaire d'appliquer une contrainte supérieure à une contrainte seuil. Peierls en 1940 [11] puis Nabarro en 1947 [12] ont introduit une énergie de faute ayant une périodicité du réseau cristallin pour prendre en compte le fait que dans le cœur de la dislocation, les atomes sont dans un environnement très éloigné du cristal de référence. Le résultat physique est que l'énergie de la dislocation devient une fonction périodique de sa position dans le réseau, passant par des minima énergétiques correspondant au fond des vallées de Peierls. Ces vallées de Peierls représentent l'état fondamental de la dislocation. Les maxima correspondent aux cols que la dislocation doit franchir pour passer d'une vallée de Peierls à une autre et ainsi glisser. Ce phénomène est décrit dans le paragraphe suivant.

La Figure 1.3(a) représente une dislocation coin ayant sa ligne de dislocation colinéaire avec l'axe  $z$  orthogonal au plan de la page. En observant de plus près le cœur de la dislocation, on comprend que lorsque la dislocation avance suivant  $\vec{x}$ , les atomes doivent se réorganiser de manière à ce que la dislocation avance. Cette réorganisation fait passer la dislocation de son état fondamental à un état intermédiaire excité avant de retourner dans un autre état fondamental décalé de la distance entre deux vallées de Peierls ( $\Delta l$ ). L'énergie de la dislocation en fonction de sa position est décrite par le potentiel de Peierls. Ce potentiel est périodique, alternant entre minima et maxima locaux comme décrit par la Figure 1.3(b). La dislocation à son état stable (minimum) est située dans une vallée de Peierls. L'écart d'énergie entre la dislocation au potentiel de Peierls le plus élevé (maximum) et la dislocation à son état fondamental correspond à l'énergie à fournir à la dislocation pour qu'elle avance, appelée barrière de Peierls  $\Delta E_p$ .

Le potentiel de Peierls décrit par la Figure 1.3(b) n'est qu'une schématisation du potentiel de Peierls. En effet, la forme de la barrière et son amplitude dépendent de la structure de cœur de la dislocation. Cette barrière peut admettre plusieurs états métastables intermédiaires, ces états correspondant à différentes structures de cœur métastables. Une barrière de Peierls n'est pas forcément symétrique non-plus, cette non symétrie étant la cause d'un sens de glissement facile et difficile.

Lorsqu'une contrainte est appliquée au cristal, le glissement de la dislocation diminue l'énergie du cristal grâce au travail de la force de Peach-Koehler introduite précédemment (si la contrainte de cisson résolue est non nulle dans le plan de glissement). En effet, comme illustré par la Figure 1.3(b)2 le déplacement d'une longueur  $\Delta x$  de la dislocation équivaut à un gain d'énergie de  $\tau_A b \Delta x$  (Équation 1.3). Ce gain d'énergie ajouté au potentiel de Peierls initial conduit à un nouveau paysage énergétique de la dislocation. La nouvelle barrière de Peierls est ainsi diminuée et le glissement est facilité. On remarque sur cette Figure que plus la contrainte appliquée est importante plus la barrière diminue. Lorsque cette barrière s'annule, la contrainte appliquée correspondante est appelée contrainte de Peierls  $\tau_P$ . Pour une contrainte appliquée supérieure ou égale à cette dernière, la dislocation peut glisser librement sans rencontrer de barrière énergétique.

### Mécanismes de glissement de la dislocation

La barrière de Peierls précédemment décrite correspond à la barrière énergétique que la dislocation doit franchir lorsqu'elle avance dans son plan de glissement en un seul bloc. Si cette barrière est faible par rapport à l'agitation thermique, la dislocation peut avancer sans ressentir de friction avec le réseau. Si cette barrière est trop importante, elle ne peut être franchie que localement. Deux mécanismes de glissement impliquant la structure de cœur de la dislocation sont admis pour permettre son glissement.

### Glissement par propagation de double décrochement

Dans un cristal où le glissement en bloc de toute une dislocation coûte trop d'énergie, le mécanisme de glissement par propagation de double décrochements est souvent observé. Ce processus se base sur la discrétisation du déplacement de la dislocation : au lieu qu'une dislocation glisse sur toute sa longueur, une petite partie de la dislocation va d'abord glisser dans son plan comme on peut le voir sur la Figure 1.4 b), correspondant à la germination d'un double décrochement. Ce double décrochement va alors se propager le long de la dislocation (c) afin d'arriver au glissement total de la dislocation (d). Il existe deux régimes possibles, soit un régime de germination d'un seul double décrochement, limité par le temps de germination car beaucoup

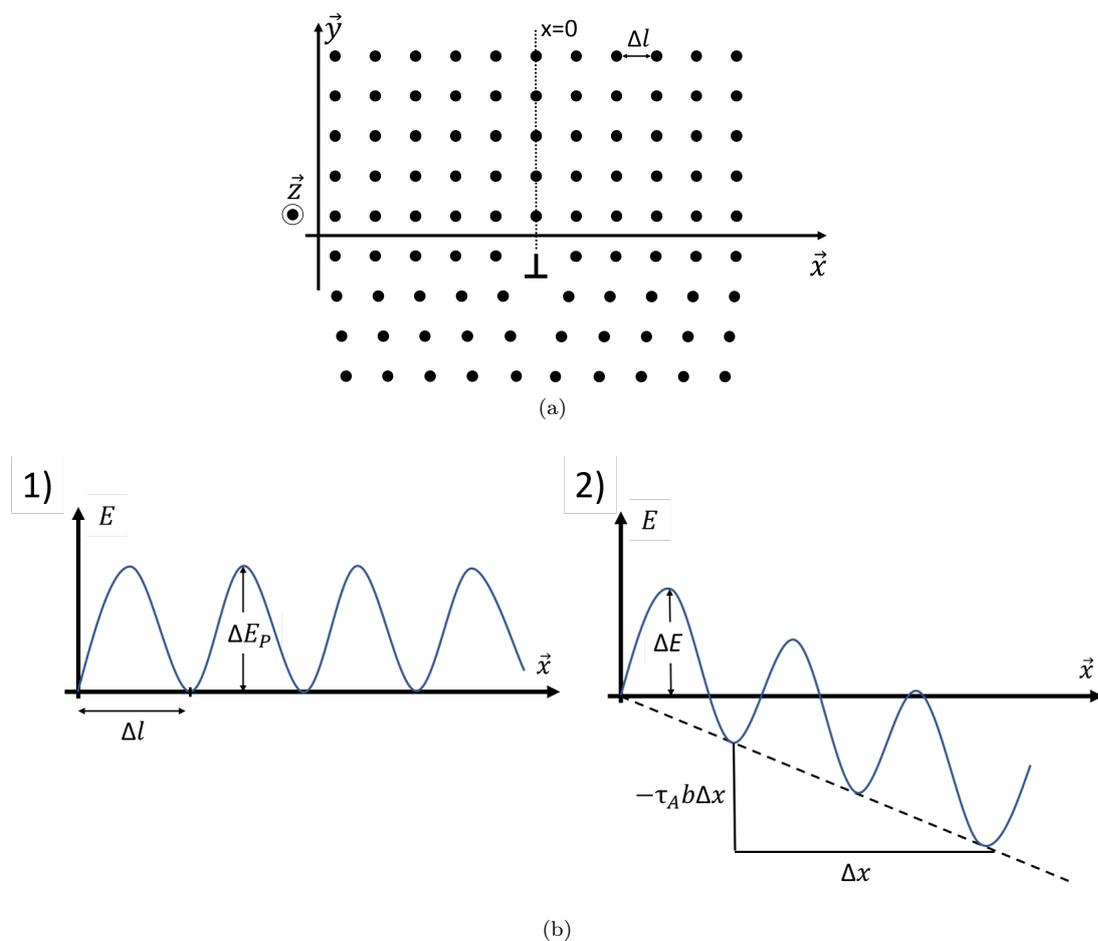


FIGURE 1.3 – (a) Dislocation coin dans un cristal parfait, le vecteur ligne de la dislocation étant orthogonal au plan de la feuille. b) Potentiel de Peierls : variation de l'énergie de la dislocation avec sa position  $x$  dans son plan de glissement (1) dans un cristal non contraint (2) sous une contrainte appliquée  $\tau_A$ .

plus grand que le temps de migration, soit un régime de collision entre décrochement, lorsque la germination est facile.

Dans le premier mécanisme, l'étape cruciale est celle de germination, les décrochements étant considérés comme facilement mobiles dans la plupart des métaux [13]. La fréquence de germination d'un double décrochements par unité de longueur de dislocation a été décrite par Guyot et Dorn [14, 15] :

$$P = \nu_D \frac{b}{\lambda^2} \exp\left(\frac{-H(\tau)}{kT}\right)$$

où  $H(\tau)$  décrit l'enthalpie d'activation de la germination,  $\nu_D \frac{b}{\lambda^2}$  est la fréquence de vibration de la dislocation dépendante de la fréquence fondamentale d'essai prise égale à la fréquence de Debye  $\nu_D$  propre au matériau et de la longueur d'onde de la vibration de la dislocation  $\lambda$  étant égale à la périodicité le long de la dislocation, dans le cas d'une dislocation vis  $\lambda = b$ .

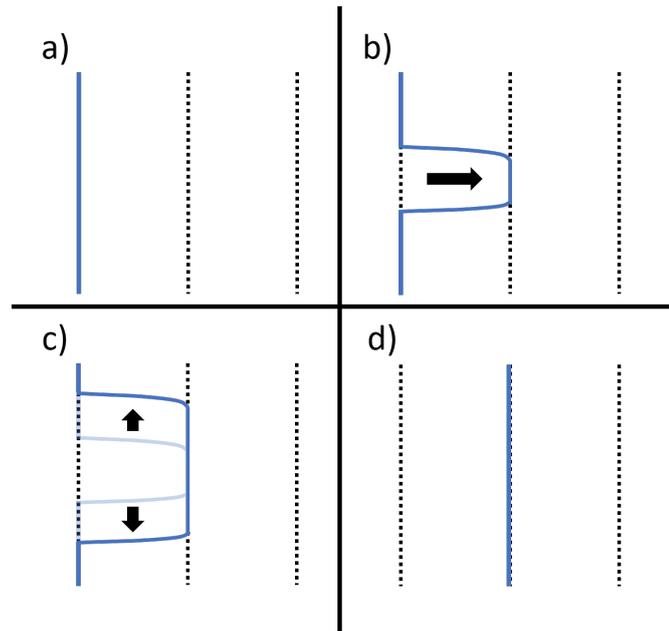


FIGURE 1.4 – Représentation du mécanisme de glissement de germination et propagation d'un double décrochement, la dislocation représentée par une droite bleue avance vers la droite, les pointillés représentent les vallées de Peierls de la dislocation. En (a) est représentée la dislocation à l'état initial, la germination d'un double décrochement est décrit par (b), (c) décrit la propagation d'un double décrochement et (d) représente la dislocation après avoir totalement glissé.

La vitesse de la dislocation qui en découle est donc, dans le cas où l'on estime que le temps de migration de double décrochement est négligeable devant le temps de germination (un seul double décrochement) :

$$v = \nu_D \frac{bL}{\lambda^2} \Delta l \exp\left(\frac{-H(\tau)}{kT}\right)$$

où  $L$  est la longueur de la dislocation car chaque décrochement parcourt l'ensemble de la ligne et  $\Delta l$  l'écart entre vallée de Peierls. Dans le cas d'une dislocation vis et dans l'hypothèse que la migration est infiniment plus rapide, on obtient :

$$v = \nu_D \frac{L\Delta l}{b} \exp\left(\frac{-H(\tau)}{kT}\right)$$

### Mécanisme locking/unlocking

Le mécanisme de double décrochement ne s'applique pas toujours. En observant les dislocations glisser par à-coups, le mécanisme locking/unlocking a été proposé : des configurations métastables plus glissiles que la dislocation à l'état fondamental existent. Par activation thermique la dislocation peut atteindre cet état excité glissile et se déplacer sur une longue distance avant de retomber dans son état fondamental [13] [16].

### Glissement dévié

Lorsqu'une dislocation rencontre un obstacle dans son plan de glissement, elle doit franchir une barrière énergétique considérable pour le cisailier ou le contourner (mécanisme d'Orowan). La dislocation vis pouvant glisser dans plusieurs plans différents, elle peut changer de plan afin de contourner ce type d'obstacle. Ce processus a été étudié premièrement dans les métaux CFC puis dans les métaux HCP [7,13]. Ce procédé est d'autant plus facile pour des dislocations compactes, ces dernières ne devant pas changer de structure de cœur pour se déplacer dans un autre plan de glissement. Dans le cas d'une dislocation dissociée à l'état fondamental, plusieurs modèles ont été mis en avant pour décrire ce type d'événement :

- Le mécanisme de Fleischer [17] : Considérons une dislocation dissociée en deux partielles A et B dans un plan  $P_1$ . La dislocation de tête B se dissocie dans le plan  $P_2$  en dislocation C' à l'intersection des deux plans et D plus loin dans  $P_2$ . La dislocation A avance et interagit avec la dislocation C' et toutes deux se recombinent en une dislocation C glissile dans  $P_2$  résultant en une dislocation dissociée uniquement suivant  $P_2$  pouvant facilement y glisser. Une représentation graphique de ce mécanisme est illustrée par la Figure 1.5 où l'on observe la projection d'une dislocation vis passant par ces étapes de dissociation. Ce procédé semble énergiquement viable mais il nécessite que la dislocation partielle de tête puissent se dissocier dans un plan secondaire correspondant à un plan possible pour du glissement dévié.
- Le mécanisme de Friedel-Escaig [18] : La dislocation dissociée dans son premier plan de glissement se contracte localement pour retourner sous une forme compacte pour ensuite se dissocier dans un autre plan de glissement. La dislocation nouvellement dissociée peut glisser dans son second plan de dissociation.

Le glissement dévié est donc un mécanisme thermiquement activé demandant à une dislocation en son état fondamental de passer à un état excité afin de contourner un obstacle par exemple.

#### 1.1.4 Déformation par maclage

Le maclage est un autre mécanisme de déformation plastique en compétition avec le mouvement des dislocations dans les métaux. Le maclage est un processus où une région d'un cristal parfait subit un cisaillement homogène qui amène une partie du cristal dans une nouvelle orientation. On parle de cristal parent pour le grain d'origine et de joint de macle pour l'interface entre la macle et le cristal parent. La Figure 1.6 illustre une macle avec une micrographie MET où la zone blanche correspond au grain de macle et la zone apparaissant plus sombre est le grain parent.

Une macle est généralement caractérisée par son plan de macle qui est un plan qui ne varie pas avec le cisaillement et la direction associée au cisaillement.

Bell et Cahn [20] ont proposé de décrire l'évolution d'une macle en plusieurs étapes : la germination, la propagation et l'épaississement. La Figure 1.7 schématise les différentes étapes de croissance de la macle. Premièrement la macle germe à une imperfection du cristal, un joint de grain par exemple où existe une concentration de contrainte. De ce germe va suivre l'étape de propagation de la macle : la macle croit en traversant le grain parent jusqu'à rencontrer un obstacle, l'autre bord du grain par exemple. La dernière étape est l'épaississement où la macle va grandir dans une direction orthogonale à la direction de propagation. Il est communément accepté dans la littérature que l'étape d'épaississement est bien plus lente que les deux précédentes étapes.

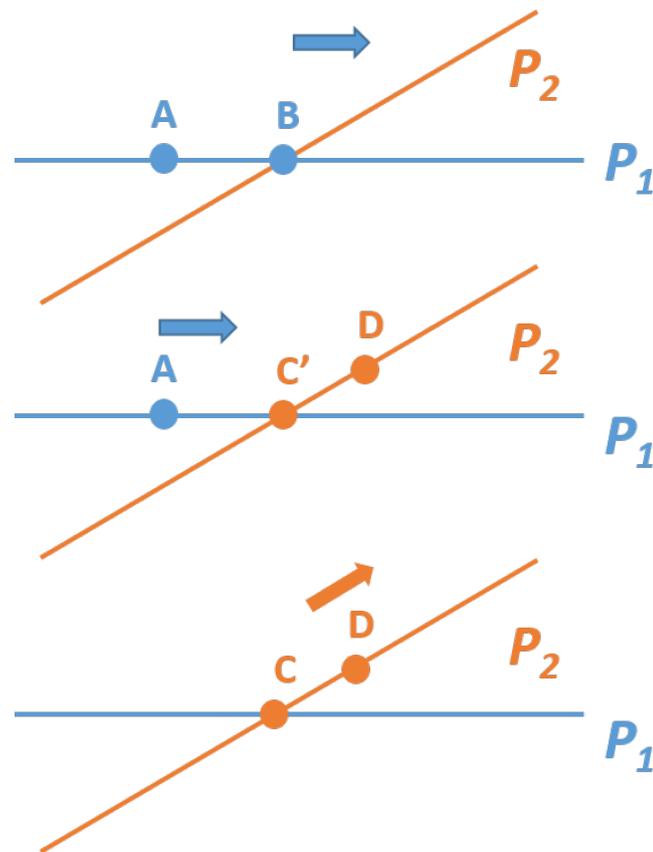


FIGURE 1.5 – Représentation du mécanisme de Fleischer : les ronds représentent ici les projections des dislocations partielles vis et les lignes les projections des plans de glissement où la dislocation va effectuer son glissement dévié.

## 1.2 Plasticité du zirconium

Les mécanismes de déformation ayant été introduits dans la section précédente, la déformation du zirconium va être décrite en fonction de la sollicitation : chargement mécanique, température... Premièrement, des rappels de cristallographie sont faits afin de mieux comprendre la structure hexagonale compacte. En sera suivi de l'introduction du mode de déformation principal puis des mécanismes de déformation secondaires tels que le maclage et le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ .

### 1.2.1 Cristallographie de la structure hexagonale compacte

Le zirconium est un métal de structure hexagonale compacte c'est-à-dire un empilement de plans atomiques denses parallèles au plan de base de type ABABA comme illustré par la Figure 1.8(a). La maille primitive de la structure hexagonale compacte est composée de deux atomes, un appartenant à un plan de type A (représenté en noir) et un de type B (en gris). Cette maille est définie par deux paramètres : son côté  $a$  dans le plan de base et la hauteur  $c$  de l'hexagone.

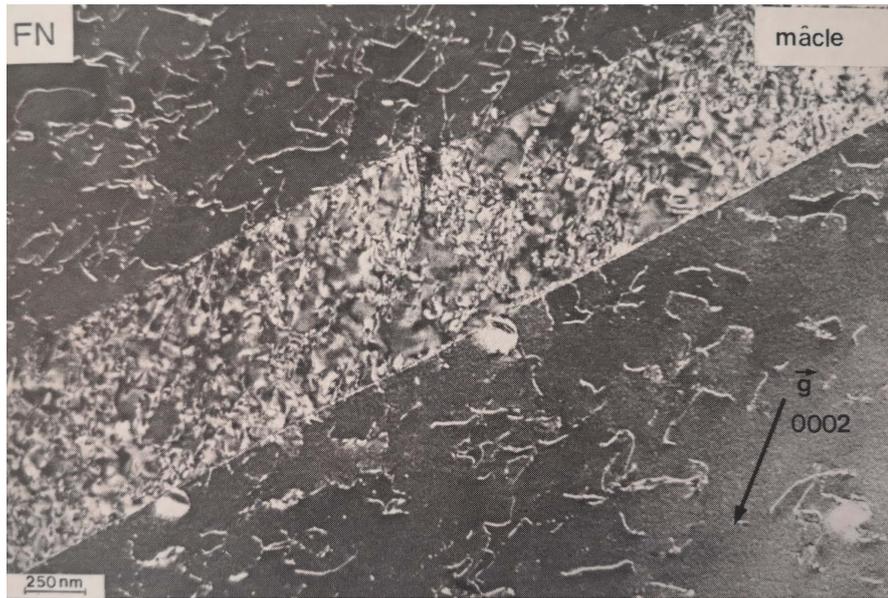


FIGURE 1.6 – Micrographie MET de tôle de zirconium grade 702 déformé à 200°C où une maclé  $\{10\bar{1}2\}$  est mise en évidence : la zone maclée y apparaît en blanc et le cristal parent apparaît plus sombre [19].

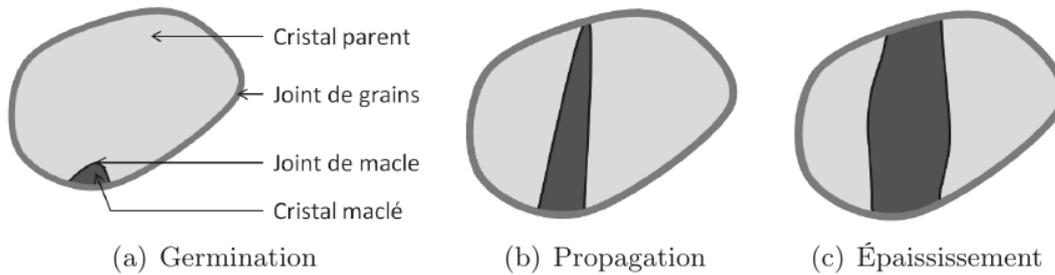


FIGURE 1.7 – Représentation des différentes étapes de croissance pour la maclé selon le mécanisme proposé par Bell et Cahn [20].

Cette structure est généralement représentée dans un réseau de Bravais composé de trois vecteurs  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{c}$ . La distinction de symétries étant difficile en utilisant seulement ces vecteurs, un troisième vecteur  $\vec{a}_3$  est utilisé dans le plan de base, ce dernier vérifiant l'équation suivante :

$$\vec{a}_1 + \vec{a}_2 + \vec{a}_3 = 0$$

Une représentation graphique de ces trois derniers vecteurs définissant le plan de base est donnée par la Figure 1.8(b).

Ces différents vecteurs ont été introduits afin de permettre de mieux caractériser les directions du réseau hexagonal compact. En effet, les trois vecteurs  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  sont équivalents par rotation

de  $120^\circ$  autour de l'axe  $\vec{c}$ . Néanmoins, si on les décrits par une notation de Miller, ces directions deviennent  $[1\ 0\ 0]$ ,  $[0\ 1\ 0]$  et  $[\bar{1}\ \bar{1}\ 0]$  où il est difficile de relever l'équivalence entre ces trois directions. Les directions sont alors exprimées suivant une nouvelle indexation à quatre chiffres  $[i\ j\ k\ l]$  où un vecteur  $\vec{V} = [i\ j\ k\ l] = i\vec{a}_1 + j\vec{a}_2 + k\vec{a}_3 + l\vec{c}$ , cette notation devant vérifier  $i + j + k = 0$ . Ainsi les directions données par les vecteurs  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  deviennent  $\frac{1}{3}[2\ \bar{1}\ \bar{1}\ 0]$ ,  $\frac{1}{3}[\bar{1}\ 2\ \bar{1}\ 0]$  et  $\frac{1}{3}[\bar{1}\ \bar{1}\ 2\ 0]$  où l'on remarque facilement que ces directions sont équivalentes.

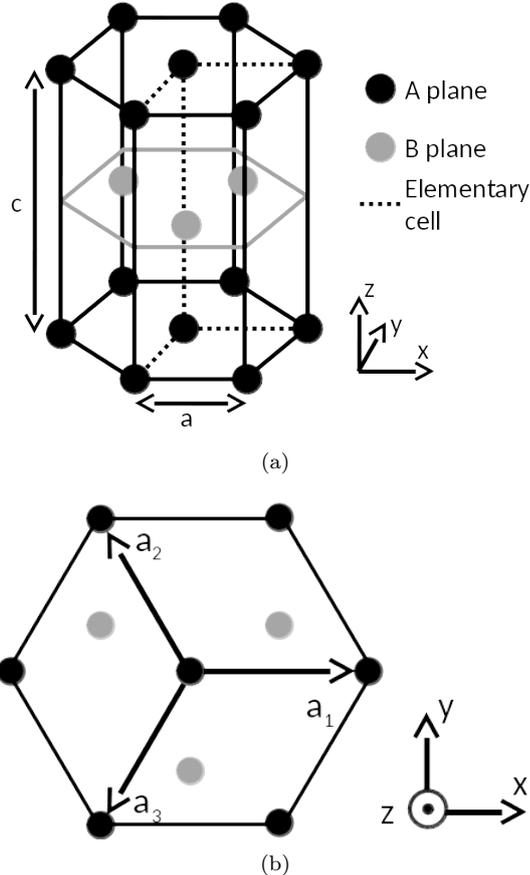


FIGURE 1.8 – (a) Structure Hexagonale compacte, les atomes noirs appartiennent à un plan de type A et les atomes gris à un plan de type B. Les traits pointillés correspondent à la maille élémentaire. (b) Vecteurs  $\vec{a}_i$  définissant le plan de base du réseau hexagonal compact.

Les dislocations glissant généralement dans les plans formés par les directions denses du cristal, il est d'intérêt de connaître ces principaux plans de la structure hexagonale compacte. Le plan basal  $(0001)$  illustré sur la Figure 1.9 en vert est le plan perpendiculaire à la direction  $\langle c \rangle$  du cristal. Les plans prismatiques  $\{1\bar{1}00\}$  (en orange) comprennent une direction  $\langle a \rangle$  et la hauteur  $\langle c \rangle$  du cristal. Il existe trois plans prismatiques différents. Les plans pyramidaux de première espèce  $\{1\bar{1}01\}$  en rouge sont définis par une direction  $\langle c + a \rangle$  et une direction  $\langle a \rangle$ . Il existe 6 différents plans pyramidaux de première espèce  $\pi_1$ . Le dernier plan imagé en rose décrit un plan pyramidal de seconde espèce  $\pi_2$  ( $2\bar{1}\bar{1}2$ ). Il est composé d'une direction  $\langle c + a \rangle$  et d'une direction  $\langle 1\bar{1}00 \rangle$  orthogonale à cette dernière. Il existe six différents plans  $\pi_2$ .

Les dislocations  $\langle a \rangle$  peuvent glisser dans le plan basal, le plan prismatique ou le plan pyramidal de première espèce contenant la direction  $\langle a \rangle$  correspondant au vecteur de Burgers de la dislocation. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  peuvent, quand à elles, glisser potentiellement dans les plans prismatiques, les plans pyramidaux de première espèce et les plans pyramidaux de seconde espèce contenant la direction  $\langle c + a \rangle$  considérée.

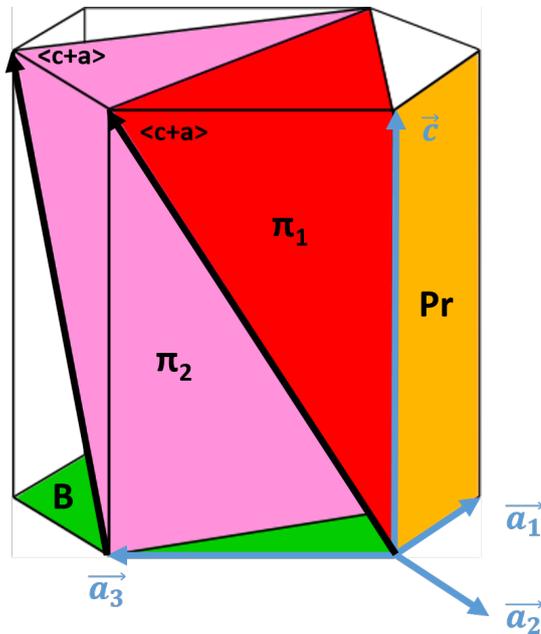


FIGURE 1.9 – Représentation dans le repère hexagonal compact de 4 types de plans denses du cristal hexagonal compact. En vert est représenté le plan de base B (0001), en orange un plan prismatique Pr (10 $\bar{1}$ 0), en rouge un plan pyramidal de première espèce  $\pi_1$  ( $\bar{1}$ 01 $\bar{1}$ ) et en rose un plan pyramidal de seconde espèce  $\pi_2$  ( $\bar{1}$ 2 $\bar{1}$ 2).

### 1.2.2 Glissement des dislocations $\langle a \rangle$ dans le zirconium

La déformation par glissement de dislocation est généralement accommodée par des dislocations ayant un vecteur de Burgers correspondant aux directions les plus denses du réseau cristallin. Dans les cristaux hexagonaux compacts, cette direction correspond aux directions  $\langle a \rangle = \frac{1}{3}\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ . Dans le zirconium, ce sont ces dislocations qui accommodent majoritairement la déformation en glissant dans les plans prismatiques. Les dislocations  $\langle a \rangle$  glissent plus facilement dans leurs plans prismatiques grâce à une contrainte de cisaillement critique résolue (CRSS pour critical resolved shear stress) bien plus faible que dans les plans basaux et pyramidaux [21–24].

Les dislocations  $\langle a \rangle$  peuvent aussi glisser dans d'autres plans. Comme on peut le voir sur la Figure 1.9, la dislocations  $\langle a \rangle$  peut également glisser dans les plans pyramidaux de première espèce et dans le plan de base. Expérimentalement, il est observé que les dislocations vis  $\langle a \rangle$  glissant dans des plans prismatiques peuvent dévier dans d'autres plans comme dans le plan basal ou le plan pyramidal de première espèce [25–30].

En résumant, avec tous ces mécanismes de glissement s'appliquant aux dislocations  $\langle a \rangle$ , on

obtient 4 systèmes de glissement indépendants [31], aucun d'entre eux n'accommodant la déformation dans la direction  $\langle c \rangle$  du cristal.

### 1.2.3 Mécanisme de déformation secondaire du zirconium

Von Mises [32] suivi de Taylor [33] ont montré que pour qu'un cristal puisse se déformer de manière homogène sans formation de fissures, 5 systèmes de glissement indépendants sont nécessaires. D'autres mécanismes de glissement sont alors requis pour permettre une déformation homogène dans le cristal.

#### Systèmes de déformation accommodant une déformation dans les directions $\langle c \rangle$ du cristal

Les mécanismes de déformation permettant l'accommodation de la déformation dans les directions  $\langle c \rangle$  du cristal sont le maclage et le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle = \frac{1}{3} \langle 2\bar{1}\bar{1}3 \rangle$  [21, 34–37]. Le maclage est favorisé à plus haute contrainte.

Mackain a, dans sa thèse [2], résumé les systèmes de maclage observés dans la littérature en fonction de la température et du type de sollicitation (traction ou compression suivant l'axe  $\langle c \rangle$ ) dans le Tableau 1.1.

TABLE 1.1 – Paramètres cristallographiques des systèmes de maclage observés dans le zirconium par différents auteurs. Le tableau présente la nature de la sollicitation permettant de les activer (Compression ou Tension suivant l'axe  $\langle c \rangle$ ) en première colonne et le domaine de température (Haute Température ou Basse Température) dans lequel ils sont observés en deuxième colonne.  $K_1$  est le plan de maclage qui ne varie pas avec le cisaillement et  $\eta_1$  la direction associée au cisaillement.

		$K_1$	$\eta_1$	Références
C	HT	$(10\bar{1}1)$	$[10\bar{1}2]$	[37, 38]
C	BT	$(11\bar{2}2)$	$[\bar{1}\bar{1}23]$	[21, 37, 39]
T	HT	$(10\bar{1}2)$	$[\bar{1}011]$	[21, 37, 39, 40]
T	BT	$(11\bar{2}1)$	$[\bar{1}\bar{1}26]$	[21, 37, 39, 40]

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$ , dans le zirconium, glissent principalement dans les plans pyramidaux de première espèce [19, 35, 36, 41–43] et peuvent dans une moindre mesure également glisser dans les plans pyramidaux de seconde espèce [42]. Ce dernier plan de glissement n'a été observé que dans du zirconium allié avec du niobium.

Le Tableau 1.2 récapitule les systèmes de glissement observés pour les dislocations dans le zirconium.

TABLE 1.2 – Plans de glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  et  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium.

Vecteur de Burgers	Plan de glissement principal	Plan de glissement secondaire
$\langle a \rangle = 1/3 \langle 1\bar{2}10 \rangle$	Prismatique $\{10\bar{1}0\}$	Pyramidal $\pi_1 \{10\bar{1}1\}$ Basal $\{0001\}$
$\langle c + a \rangle = 1/3 \langle 1\bar{2}13 \rangle$	Pyramidal $\pi_1 \{10\bar{1}1\}$	Pyramidal $\pi_2 \{11\bar{2}2\}$

### 1.2.4 Réponse mécanique du polycristal

Les gaines des crayons combustibles sont sous la forme de tube. Les différentes étapes de laminage du procédé de fabrication ont induit une texture particulière : les axes  $\langle c \rangle$  des cristaux sont orientés à plus ou moins  $30^\circ$  de la direction radiale dans le plan (DR-DT). La direction DR correspond à la direction radiale du tube et la direction DT correspond à la direction transverse ou circonférentielle du tube.

En compression ou en traction, pour des échantillons extraits des gaines suivant la direction transverse DT du tube ou selon la direction axiale DA, les échantillons extraits suivant la direction transverse (DT) présentent une limite d'élasticité plus importante et un écrouissage diminué que suivant la direction axiale (DA) [19, 37]. La Figure 1.10 montre que la limite d'élasticité est toujours plus importante selon la direction transverse que suivant la direction axiale pour des températures entre 0 et  $800^\circ\text{C}$ . On peut également remarquer sur cette figure que le taux d'écrouissage, caractérisé ici par le coefficient  $n = \frac{\delta\sigma}{\delta\epsilon}$  devient plus faible à haute température preuve de l'activation de nouveaux mécanismes de déformation. Cette tendance s'inverse à  $500^\circ\text{C}$  [44]. Ces observations montrant une réponse anisotrope du polycristal, elles sont donc preuves de l'effet de l'activation de mécanismes de déformation opérant suivant les directions  $\langle c \rangle$  du cristal, ces derniers pouvant être du maillage ou le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Une forte compétition a toujours lieu entre ces deux mécanismes de déformation. Lors de la description des observations de dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans la section suivante, il sera toujours fait mention du maillage lorsqu'il apparaît.

La texture du polycristal joue donc un rôle majeur dans l'activation ou non de certains mécanismes de déformation et ainsi sur la réponse mécanique du matériau. Cette activation est dépendante de l'orientation des grains par rapport à la direction de la déformation. Cette dépendance des systèmes de glissement des dislocations par rapport à la direction de déformation est caractérisée par une quantité appelée facteur de Schmid. Pour un cristal cylindrique de section  $S_0$ , soumis à une force  $\vec{F}$  représentée sur la Figure 1.11, seule la composante de cette force projetée sur le système de glissement peut permettre une déformation plastique. Soient  $f_T$  la composante tangentielle de la force  $F$  au plan de glissement et selon la direction de glissement,  $\chi$  l'angle entre la direction de traction et la normale au plan de glissement et  $\theta$  l'angle entre la direction de traction et la direction de glissement, la cission résolue  $\tau$  peut être décrite par l'équation :

$$\tau = \frac{f_T}{S} = \frac{F}{S_0} \cos \theta \cos \chi \quad (1.5)$$

avec  $\cos \theta \cos \chi$  correspondant au facteur de Schmid.

Afin de modéliser correctement le comportement mécanique des gaines utilisées en réacteur, il est donc nécessaire de connaître les mécanismes de déformation dans les directions  $\langle c \rangle$  du cristal.

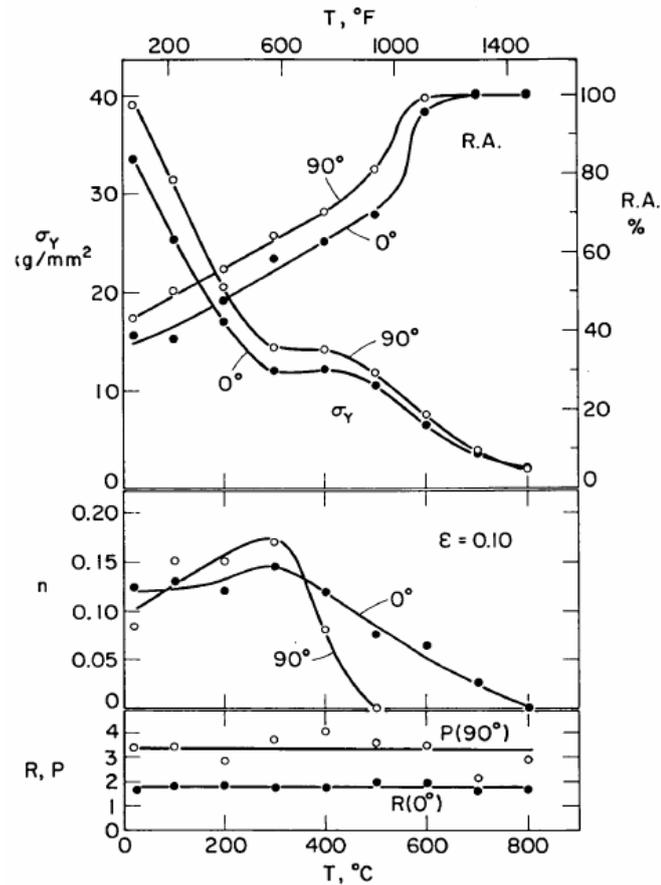


FIGURE 1.10 – Comportement mécanique d'échantillons de Zircaloy-4 tractionnés dans la direction axiale ( $0^{\circ}$ ) et dans leur direction transverse ( $90^{\circ}$ ). De haut en bas sont représentés la limite d'élasticité  $\sigma_y$  et la réduction d'aire à la fracture  $R.A.$  et l'exposant du durcissement  $n$ . Les ratios de déformation transverse  $R$  et  $P$  sont mesurés sur des échantillons cassés entre la surface de fracture et la surface d'attache. [37].

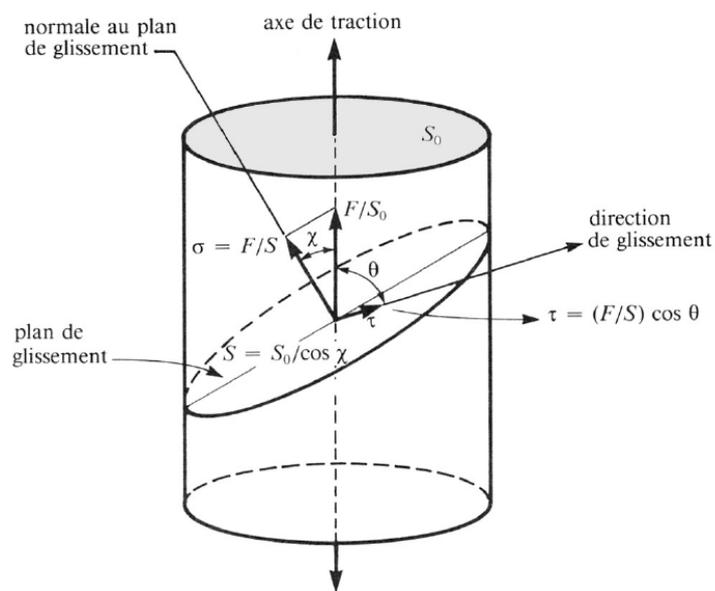


FIGURE 1.11 – Loi de Schmid. Projection de l'effort appliqué sur un plan de glissement et cission résolue  $\tau$  dans une direction de glissement. Image issue de la référence [45].

## 1.3 Dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le zirconium

### 1.3.1 Observations expérimentales

La déformation par glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  a été en premier soulignée par les travaux de Tenckhoff [34] qui démontre leur existence grâce à des essais de cisaillement. Dans ses expériences, le plan de glissement n'est pas bien identifié :  $\pi_1$  ( $1\bar{1}01$ ) ou ( $\bar{2}111$ ). Les résultats d'Akhtar et de Jensen et Backofen [36,37] viennent ensuite compléter ces travaux en réalisant des essais de compression à différentes températures. Dans les travaux d'Akhtar, des monocristaux de zirconium quasi purs (seulement 120 ppm d'oxygène) sont compressés suivant l'axe  $\langle c \rangle$  du monocristal. Il observe ainsi du maillage ( $11\bar{2}2$ ) jusqu'à 800 K et ensuite une combinaison de glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  et de maillage ( $10\bar{1}\bar{1}$ ). De ces travaux est estimée une contrainte de cisaillement critique en fonction de la température, cette dernière étant bien plus importante que celle des dislocations  $\langle a \rangle$  comme le montre la Figure 1.12. La contrainte de cisaillement critique présente ainsi une forte dépendance à la température ce qui souligne un glissement thermiquement activé impliquant potentiellement la friction avec le réseau. Un faible volume d'activation est estimé pour ces dislocations ( $8b^3$  à 800K et  $48b^3$  à 1100 K). Dans des études plus récentes [43], la contrainte de cisaillement critique des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est estimée à 3,5 fois celle des dislocations  $\langle a \rangle$  dans les plans prismatiques à température ambiante. Contrairement à Akhtar, Jensen et Backofen ont utilisé des échantillons polycristallins. Ils ont étudiés des échantillons de zirconium quasi pur et de Zircaloy-4 en compression, présentant une texture prononcée. La majorité des grains avaient l'axe  $\langle c \rangle$  selon la direction radiale. Ces essais ont été réalisés à différentes températures (entre 20 et 800°C). Ils retrouvent des conclusions proches de celles d'Akhtar pour le zirconium pur bien qu'ils observent une transition d'activation du maillage en dessous de 250°C. Pour les échantillons de Zircaloy-4, ils n'observent pas de maillage à basse température mais seulement du glissement de dislocations montrant un effet important de l'alliage sur la compétition entre le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  et le maillage.

Woo et al. [46] ont réalisé, dans des échantillons de Zircaloy-4, plusieurs expériences permettant l'obtention de dislocations  $\langle c + a \rangle$  : premièrement ils observent après un refroidissement amenant l'alliage d'une structure  $\beta$  à  $\alpha$  l'apparition de rares dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Dans des expériences de traction, ils retrouvent une activité de glissement de ces dislocations proches des macles, mais pas seulement. La majorité des dislocations apparaissent nécessaires pour accommoder la déformation induite par les macles. En revanche, peu d'activité de dislocation  $\langle c + a \rangle$  est observée dans des grains ne contenant pas de macle. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans leurs expériences apparaissent rectilignes parallèlement aux traces du plan de base et du plan de glissement  $\pi_1$ .

Des observations ont été faites en microscopie en transmission et montrent que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissent dans les plan pyramidaux de première espèce. Comme illustré sur la Figure 1.13 où le vecteur  $\vec{g} = 0002$  est colinéaire avec la direction  $\langle c \rangle$  du cristal, les dislocations ont pour direction majoritaire une direction à l'intersection du plan de base et pyramidal de première espèce [19,41–44,47–49]. Cette direction est donc du type  $\langle \bar{2}110 \rangle$ . Les dislocations apparaissent longues et rectilignes dans cette dernière direction. Il est à noter qu'en réalisant des observations en tomographie, Long et al. [42] ont observé certains brins de dislocation  $\langle c + a \rangle$  orientés dans un plan pyramidal de seconde espèce, mais cet événement est très peu fréquent.

Dans des observations de Zr2.5Nb, une réponse asymétrique des dislocations  $\langle c + a \rangle$  en compression et en tension a été observée, la compression menant à une contrainte de cisaillement critique plus importante, la dislocation est considérée comme moins glissile avec une friction avec le réseau plus importante [49]. Dans cette même étude, la densité de dislocations  $\langle c + a \rangle$  augmente

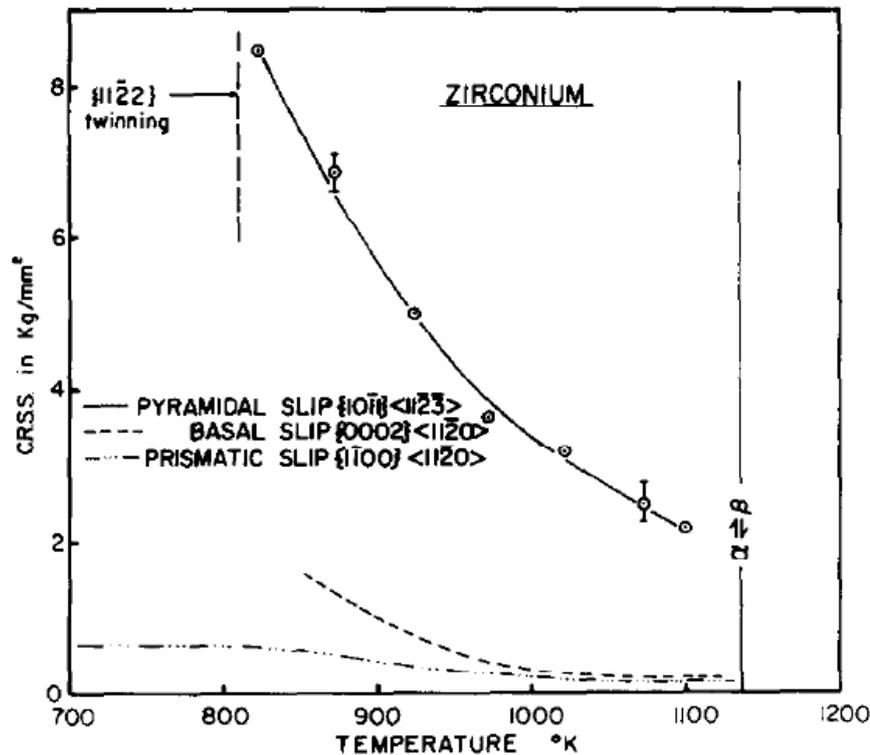


FIGURE 1.12 – Contrainte de cisaillement critique de différents systèmes de glissement dans le zirconium en fonction de la température [36].

avec la déformation et leur alignement suivant leur direction  $\langle \bar{2}110 \rangle$  diminue avec la contrainte, les dislocations s'orientant de plus en plus vers leur configuration vis. Une corrélation entre la densité de dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec la densité de dislocations  $\langle a \rangle$  y est également observée. Le glissement dévié entre deux plans pyramidaux de première espèce est également observé [47] et l'activité de dislocations  $\langle c + a \rangle$  semble également facilitée avec l'irradiation aux ions  $\text{Kr}^+$  [48].

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  sont donc des dislocations plus difficiles à faire glisser que les dislocations  $\langle a \rangle$  avec une contrainte d'écoulement bien supérieure, leur activation dépendant fortement de la température. Le plan de glissement de ces dislocations est le plan pyramidal de première espèce. Les dislocations apparaissent généralement orientées suivant leur direction  $\langle a \rangle$ . Les éléments d'alliage semblent avoir également un rôle majeur dans l'activation de ces dislocations, ces derniers pouvant même stabiliser la dislocation dans un plan pyramidal de seconde espèce. De plus, les éléments d'alliages influencent la compétition du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec le maillage.

Du point de vue expérimental, l'objectif de la thèse sera de déterminer via des observations en traction in-situ le mécanisme de glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ , et de vérifier que le glissement de cette dernière se fait bien uniquement dans un plan pyramidal de première espèce.

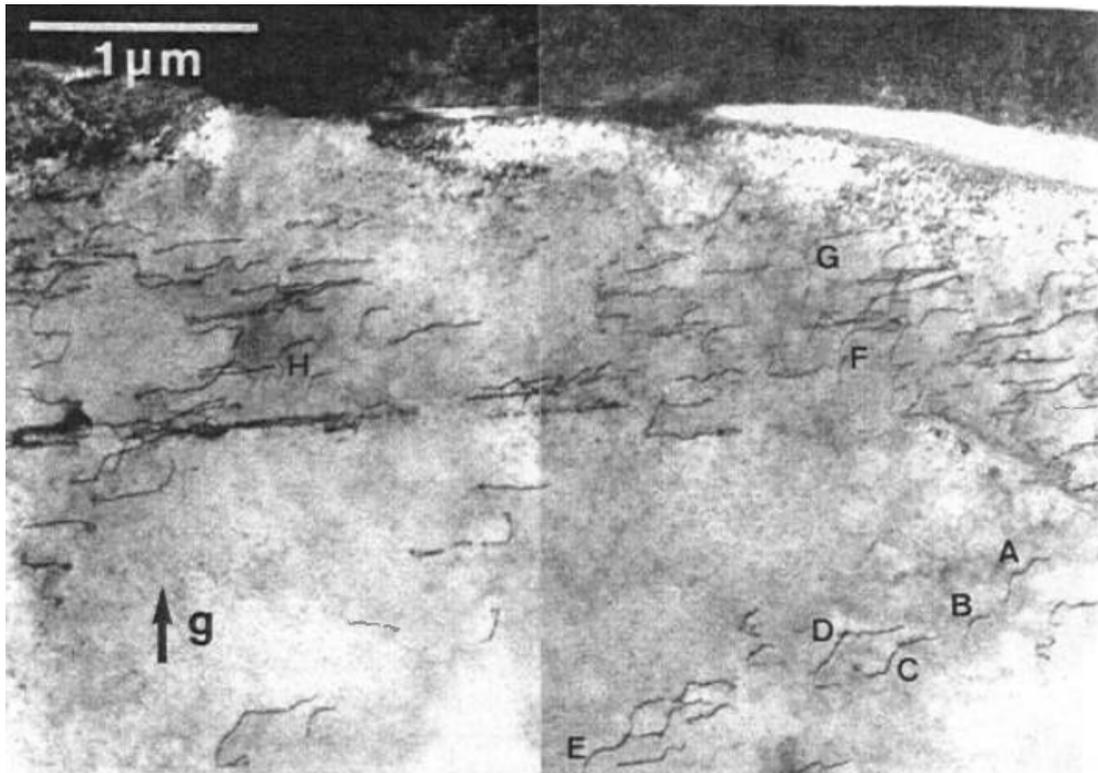


FIGURE 1.13 – Observation MET de dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans un échantillon déformé à 5,5% imagées avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  [41].

### 1.3.2 Simulations atomistiques

De nombreux auteurs ont réalisé des simulations atomistiques qui se révèlent être un bon moyen pour étudier la structure atomique et les propriétés des défauts cristallins. Pour les dislocations, la détermination de la structure de cœur peut permettre d'expliquer le mécanisme de glissement observé expérimentalement. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  disposent d'un vecteur de Burgers ne correspondant pas à une direction dense du cristal et de norme élevée. Comme décrit dans la section 1.1.2, ce vecteur de Burgers important peut conduire la dislocation à se dissocier en deux dislocations partielles s'il y a une présence d'une faute d'empilement dans un plan contenant la dislocation.

Les simulations atomistiques sont basées sur des modèles énergétiques. Ces modèles énergétiques peuvent être soit des calculs *ab initio* soit des potentiels empiriques. Ces derniers sont basés sur des fonctions analytiques rendant compte de la liaison chimique métallique et ajustées sur des propriétés physiques contrôlant le comportement des dislocations, telles, outre le paramètre de maille d'équilibre, les constantes élastiques et les énergies de fautes lorsqu'elles sont connues. Dans cette partie les potentiels génériques adaptés aux matériaux HCP et ajustés sur le titane qui a un comportement proche du zirconium (le plan de glissement principal des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le titane est  $\{1\bar{1}01\}$ ) seront discutés en plus des modèles ajustés pour le zirconium.

La première dislocation qui sera présentée ici sera la dislocation vis. La dislocation mixte à orientation  $\langle a \rangle$  sera ensuite décrite, cette dernière étant la plus observée en microscopie électro-

nique à transmission. La dislocation coin sera finalement abordée.

### Dissociation et faute

La dislocation vis peut choisir son plan de glissement et ainsi déterminer le plan de glissement de la dislocation totale. Lorsque l'on étudie la structure de cœur de la dislocation, le plan de glissement correspond généralement au plan de dissociation de la dislocation à son état fondamental. Cette dissociation étant pilotée par la faute d'empilement, l'énergie de faute est donc cruciale pour la définition du plan de glissement. Dans les matériaux de structure hexagonale compacte, Legrand [50] a montré que le plan de glissement principal des dislocations  $\langle a \rangle$  (prismatique ou basal) observé expérimentalement est corrélé à un rapport

$$R = \frac{C_{66} \times \gamma_B}{C_{44} \times \gamma_P}$$

où  $C_{66}$  et  $C_{44}$  sont des constantes élastiques et  $\gamma_B$  et  $\gamma_P$  sont les énergies de fautes d'empilement dans le plan de base et dans le plan prismatique. Si le rapport est supérieur à un, le plan de glissement est le plan prismatique et si ce rapport est inférieur à un, le plan de glissement est le plan de base. Les plans de glissement possibles pour les dislocations  $\langle c + a \rangle$  étant les plans pyramidaux de première espèce ou de seconde espèce, la mesure de ces énergies de faute dans ces plans est une étape importante.

Le tableau 1.3 issu de la revue bibliographique de Rodney et al. [51] répertorie, les énergies de faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce et pyramidal de seconde espèce. Les calculs ab initio sont basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité décrivant la liaison inter-atomique au niveau de la structure électronique et sont ainsi des modèles énergétiques physiques permettant d'étudier la structure de défauts à l'échelle atomique. Leur efficacité est reconnue mais le temps de calcul associé est grand et la taille des systèmes est limitée à quelques centaines voire du millier d'atomes. On remarque sur ce tableau que l'énergie de faute obtenue dans le plan pyramidal de première espèce est inférieure à celle obtenue dans le plan pyramidal de seconde espèce, favorisant a priori une structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce, ce qui est en accord avec les observations expérimentales. On remarque également que le vecteur faute correspondant à la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce serait responsable d'une dissociation en deux dislocations partielles non équivalentes laissant ainsi supposer que la structure de cœur de la dislocation ne serait pas symétrique.

TABLE 1.3 – Faute d'empilement dans le plan pyramidal de première et de seconde espèce dans le zirconium.

Faute $\pi_1$ Vecteur	$\gamma$ (mJ m <sup>-2</sup> )	Faute $\pi_2$ Vecteur	$\gamma$ (mJ m <sup>-2</sup> )
0.212 $[10\bar{1}2]$	127 [51]	0.153 $[2\bar{1}\bar{1}3] + 0.07$ $[0\bar{1}10]$	282 [52]

### Dislocation $\langle c + a \rangle$ vis

Minonishi et al. se sont intéressés en 1981 et 1982 [53–56] en premier aux structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec un potentiel Lennard-Jones adaptés aux matériaux hexagonaux. Ce potentiel ne décrit pas spécifiquement le zirconium mais a permis d'obtenir les premières

structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  soulignant les plans possibles de dissociation. Avec leur potentiel, ils obtiennent de multiples structures de cœur stables pour la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$ . Ils montrent ainsi que la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  peut se dissocier sur un plan pyramidal de première ou de seconde espèce, ou une combinaison de plans pyramidaux de première et de seconde espèce.

Le glissement de la dislocation vis a été également étudié. De leurs études ils montrent une réponse différente en fonction de la direction de la contrainte. Indépendamment de la structure de cœur initiale lorsqu'une contrainte négative est appliquée, la dislocation se réorganise pour se dissocier dans  $\pi_2$  et se met ensuite à glisser dans ce plan (Figure 1.14(a)). L'inverse se produit pour une contrainte positive : la dislocation se réorganise pour se dissocier dans  $\pi_1$  et se met à glisser dans ce plan (Figure 1.14(b)). Ces résultats, obtenus avec un potentiel générique simulant un cristal HCP quelconque, montrent que la réponse d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  peut être différente en fonction de la direction de la contrainte et que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  peut facilement conduire à dévier du plan pyramidal de première vers le plan pyramidal de seconde espèce.

Les représentations utilisées pour décrire ces phénomènes sont des cartes de déplacement différentiel introduites par Vitek [57]. Ces dernières sont utilisées afin de décrire les structures de cœur en indiquant les différences de déplacement entre les colonnes atomiques. À un point sur cette image correspond une rangée d'atomes. En effet, la direction orthogonale à la feuille est  $[2\bar{1}\bar{1}3]$ , direction colinéaire au vecteur de Burgers de la dislocation. Les flèches indiquent ici la différence de déplacement entre les rangées atomiques. Ces flèches sont plus ou moins grandes en fonction de la déformation. Lorsqu'elles sont alignées dans un plan donné, elles permettent de reconnaître la dissociation en deux dislocations partielles.

Liang et Bacon [58–60] ont poursuivi ces études en étudiant les dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec d'autres potentiels empiriques ajustés pour le béryllium, le sodium et le titane. Comme dit précédemment, le titane montre un comportement similaire au zirconium, ayant pour plan de glissement principal des dislocations  $\langle c + a \rangle$  le plan pyramidal de première espèce. Ils se sont intéressés aux dislocations vis et aux dislocations coins dissociées dans le plan pyramidal de seconde espèce. Ils retrouvent pour la dislocation vis des structures de cœur similaires, planaires et dissociées dans des plans pyramidaux de première et de seconde espèce. Ils trouvent pour le titane des structures telles que celles illustrées par la Figure 1.15 sans déterminer la stabilité relative de ces deux structures.

Lorsqu'une contrainte est appliquée afin de faire glisser la dislocation, ils retrouvent, comme Minonishi et al., une réponse différente si la contrainte est positive ou négative : les structures de cœur adoptant une dissociation dans  $\pi_2$  pour des contraintes positives et dans  $\pi_1$  pour des contraintes négatives.

### 1.3.3 Dislocation $\langle c + a \rangle$ à direction $\langle a \rangle$

Des calculs ont également été réalisés afin de déterminer la structure de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  orientée dans une orientation  $\langle a \rangle$ . Numakura et al. [61, 62] ont, dans la continuité des travaux de Minonishi en utilisant le même potentiel Lennard-Jones ajusté aux matériaux à structure hexagonale compacte, simulé des structures de cœur de cette orientation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ .

Trois structures de cœur stables sont obtenues pour la dislocation à direction  $\langle a \rangle$ . La première est dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et apparaît purement planaire, elle est appelée de type I. Cette configuration est illustrée par la Figure 1.16(a). Cette structure est hautement métastable et n'est obtenue que dans des conditions favorables. Sa structure planaire est obtenue après une dissociation :

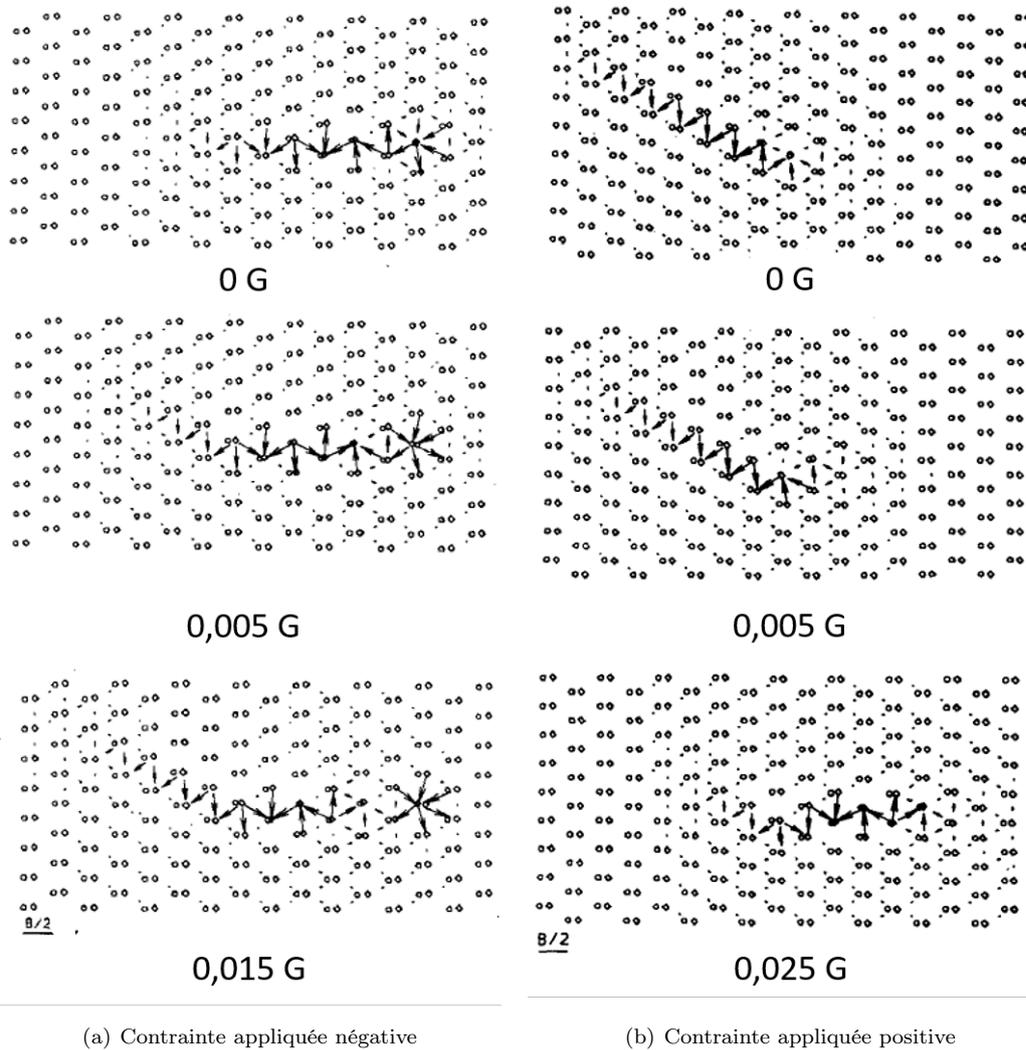


FIGURE 1.14 – Évolution de la structure de cœur d'une dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  sous différentes déformations visant à faire glisser la dislocation dans le plan pyramidal de seconde espèce obtenues par Minonishi et al. [53, 55] montrent (a) pour une contrainte négative et (b) positive. Il est à noter que le même comportement est observé si l'on cherche à faire glisser la dislocation dans un plan pyramidal de première espèce. La contrainte est exprimée en fraction de  $G$  qui est le module de cisaillement. Le plan pyramidal de seconde espèce apparaît ici horizontal et le plan pyramidal de première espèce apparaît oblique, parallèle à la dissociation observée en b) pour une contrainte nulle. La dislocation imagée ici est une dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis, le plan de dissociation est pour a) à  $0 G$  un plan pyramidal de seconde espèce et pour b) à  $0G$  le plan pyramidal de première espèce. La ligne de la dislocation est perpendiculaire au plan de la feuille.

$$\frac{1}{3}[11\bar{2}3] \rightarrow \frac{1}{4}[10\bar{1}2] + \frac{1}{12}[\bar{1}4\bar{3}2] + \frac{1}{6}[10\bar{1}2]. \quad (1.6)$$

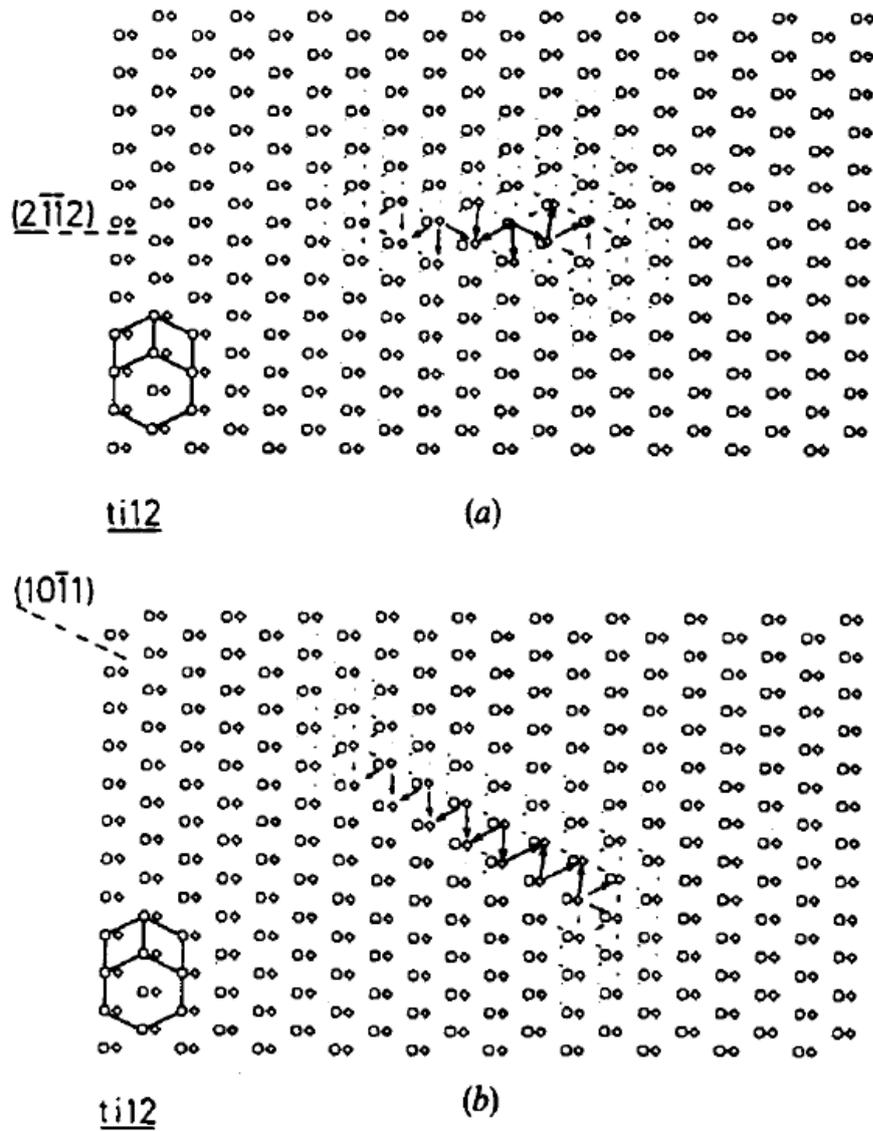


FIGURE 1.15 – Dislocations  $\langle c + a \rangle$  vis dans le titane obtenue par Liang et Bacon [59] : la structure est dissociée dans un plan pyramidal a) de seconde espèce et b) de première espèce.

Sur la Figure 1.16(a), les deux premières dislocations partielles formant une dislocation partielle "composite" apparaissent à la gauche de la structure de cœur et l'autre dislocation à la droite de cette dernière.

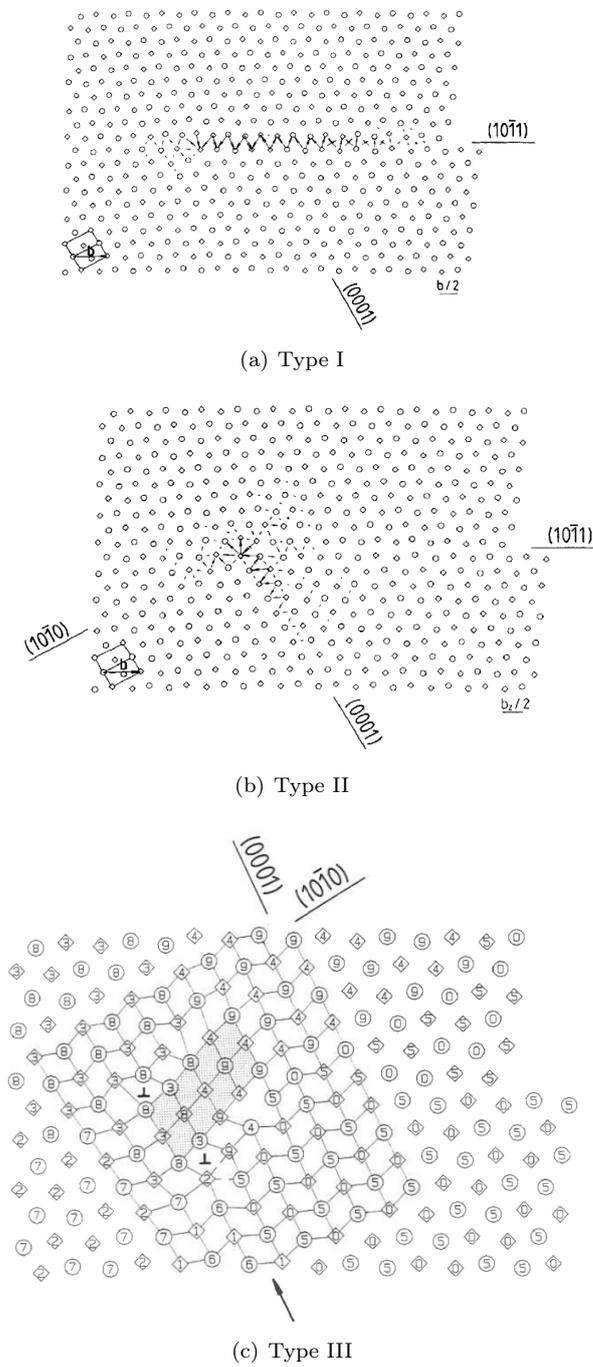


FIGURE 1.16 – Structures de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans son orientation  $\langle a \rangle$  (résidant dans le plan pyramidal de première espèce) obtenues par Numakura et al. [61]. La structure de type III est décrite par des lignes, lorsqu'elles sont discontinues, elles témoignent que les deux atomes qu'elles relient ont été fortement déplacés.

Des structures plus stables sont également obtenues par Numakura et al. (Figure 1.16(b) et 1.16(c)). Une première structure, dite de type II, présente une dissociation non coplanaire composée de trois dislocations partielles. Deux plans de dissociation ont été déterminés. Comme l'illustre la Figure 1.16(b), une première dissociation est observée dans un plan correspondant à une combinaison de plan pyramidal de première espèce et de plan prismatique (à gauche). Une seconde dissociation, plus importante, est observée dans le plan basal (0001) et semble selon leur calcul être due à une faute d'empilement basale  $I_2$ .

Une troisième structure de cœur de type III est également obtenue. Cette structure est relativement compacte et ne semble pas présenter de dissociation particulière. La structure atomique de cette dernière ne peut être décrite par des différences de déplacements entre les colonnes atomiques : l'environnement de la dislocation est fortement perturbé comme on peut le voir sur la Figure 1.16(c). En dessous du plus bas symbole  $\perp$  des rangées d'atomes différent significativement prouve que la composante vis s'étale dans le plan basal (0001).

S'en suivent des études du glissement de ces nouvelles structures de cœur. Pour la dislocation de type I, un comportement différent est observé en fonction du sens de la contrainte. Pour une contrainte positive, la dislocation partielle ayant un vecteur de Burgers parallèle au vecteur de Burgers total de la dislocation avance alors que les deux autres partielles à l'autre extrémité de la structure de cœur restent ancrées. Après un autre incrément de contrainte, la dislocation totale se met à glisser indéfiniment. Pour une contrainte opposée, la dislocation va premièrement se contracter d'une vallée de Peierls avec sa partielle plus mobile puis la dislocation totale se met à glisser. La dislocation totale est glissile mais une asymétrie pour la contrainte appliquée a été observée. La dislocation "composite" semble avoir une barrière de Peierls plus importante que l'autre : c'est cette dernière qui va contrôler le glissement de la dislocation totale.

Le glissement de la dislocation de type II est également asymétrique. Considérons sa partie dissociée dans le plan de base à gauche. Lorsque la contrainte est telle que la dislocation totale doit avancer vers la droite, la partielle de droite (issue d'une dissociation dans le plan pyramidal de première espèce) avance dans son plan de glissement, les partielles dissociées dans le plan basal restant ancrées. Après certains incréments de contrainte, la longueur de dissociation dans le plan de base diminue alors que la longueur de dissociation dans le plan pyramidal de première espèce continue d'augmenter. A partir d'une contrainte de 0.035 G, la dissociation dans le plan de base se résorbe et la dislocation glisse indéfiniment avec une longueur de dissociation bien plus importante que la dislocation de type I.

Lorsque la dislocation de type II est amenée à glisser vers la gauche, la longueur de dissociation dans le plan pyramidal de première espèce diminue dans un premier temps. C'est ensuite la longueur de dissociation dans le plan de base qui diminue pour finalement se recombiner et donner une dislocation totale planaire dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce.

La dislocation de type III évolue très peu sous la contrainte et reste ancrée quelle que soit la contrainte.

Des études sur la dislocation coin dans le plan pyramidal de première espèce ont été également réalisées. Dans les travaux de Numakura et al. [61,62], la dislocation coin apparaît dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et est purement planaire comme illustrée par la Figure 1.17. La discontinuité de déplacement a été étudiée le long du plan pyramidal de première espèce et a permis de déterminer que cette dislocation est issue de la même réaction que celle décrite par l'équation 1.6. Cette dislocation apparaît comme facilement glissile, cette dernière glissant dès la première contrainte appliquée.

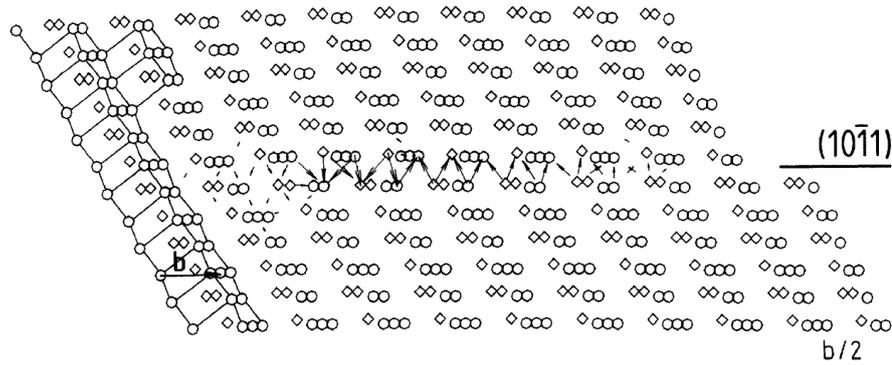


FIGURE 1.17 – Structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  coin dans le plan pyramidal de première espèce. Le plan pyramidal de première espèce apparaît ici horizontal [61].

### Dislocation $\langle c + a \rangle$ coin

Des études plus récentes ont été réalisées par Dai et al. [63] sur la dislocation coin dans le zirconium. Deux potentiels empiriques adaptés au zirconium ont été utilisés : les potentiels EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland [64] et que nous utiliserons nous aussi dans notre étude. Suite à une étude des fautes d'empilement, ils ont choisi le potentiel #3 pour l'étude de l'évolution de la dislocation coin sous contrainte, mais ont tout de même obtenu les structures de cœur à l'état non contraint pour ces deux potentiels. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  coin est dissociée principalement sur un plan pyramidal de première espèce qui apparaît horizontal sur la Figure 1.18. On remarque un autre plan de dissociation pour la structure de cœur obtenue avec le potentiel EAM #3, ce dernier correspondant à un autre plan pyramidal de première espèce. La dislocation coin obtenue avec le potentiel EAM #2 apparaît plus planaire avec un étalement dans le plan de base pour la partielle qui apparaît à droite de la figure.

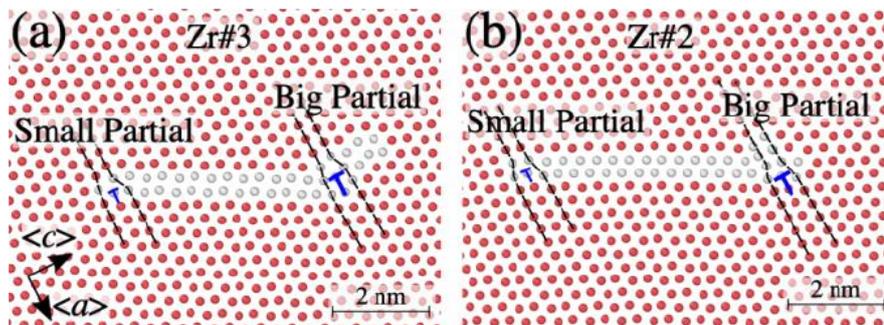


FIGURE 1.18 – Structures de cœur de la dislocation coin obtenue avec les potentiels empiriques EAM #3 et #2 développés par Mendeleev et Ackland [64]. L'horizontale correspond au plan pyramidal de première espèce. Les atomes sont colorés ici en fonctions du nombre de premiers voisins, permettant d'identifier la dislocation. [63]

Après avoir simulé le cœur de la dislocation, des déformations ont été appliquées au cristal pour faire glisser la dislocation. La sollicitation est implémentée sous forme d'une déformation de cisaillement visant à faire avancer la dislocation dans le plan pyramidal de première espèce.

Le sens de la sollicitation a un effet sur le comportement de glissement de la dislocation. En effet si la partielle de tête correspond à la petite dislocation, comme illustré par la Figure 1.19(a), la dislocation glisse premièrement en étendant la distance de dissociation jusqu'à ce que la partielle de queue, moins glissile avance sur quelques vallées de Peierls, restant confinée dans le plan de glissement. Lorsque la partielle de tête correspond à la grande partielle comme illustré par la Figure 1.19(b), la dislocation va d'abord se resserrer jusqu'à effectuer un changement de structure, permettant à la dislocation de s'étendre par la suite.

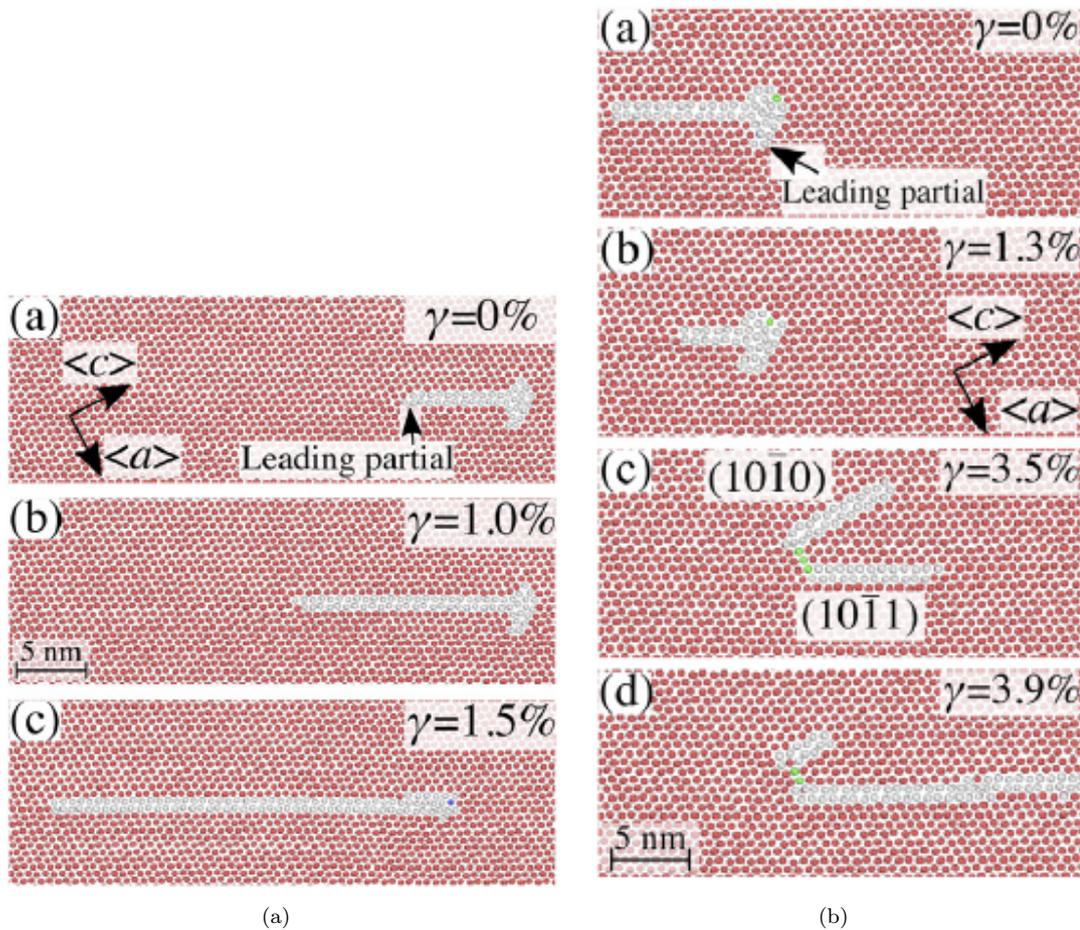


FIGURE 1.19 – Comportement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  coin dans le zirconium obtenue avec un potentiel développé par Mendeleev et Ackland EAM #3 sous une déformation appliquée, la déformation appliquée amène à ce que la partielle de tête soit (a) la petite partielle et (b) la grande partielle. [63]

Les simulations atomistiques établies sur la dislocation vis montrent que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis compacte a tendance à se dissocier facilement que ce soit dans le plan pyramidal de première ou de seconde espèce. Des calculs basés sur des potentiels empiriques propres au zirconium s'appliquant à ces dislocations n'ont pas été réalisés et seront réalisés dans notre étude. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  coin et à orientation  $\langle a \rangle$  montrent plusieurs états métastables plus ou moins glissiles.

Une comparaison de leur mobilité vis-à-vis de la dislocation vis doit être réalisée afin d'expliquer l'orientation préférentielle de la dislocation dans la direction  $\langle a \rangle$  observée expérimentalement.

De nombreuses études ont été réalisées sur les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium. Ces dernières mettent en évidence certains mécanismes non observés qui pourraient intervenir dans notre étude. C'est pourquoi nous allons nous intéresser aux dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium.

## 1.4 Dislocations $\langle c + a \rangle$ dans le magnésium

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été plus largement étudiées dans le magnésium. En effet, l'activation du glissement de ces dislocations peut améliorer les performances de ces métaux largement utilisés dans le secteur de l'automobile et de l'aéronautique. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium glissent plus facilement dans le plan pyramidal de seconde espèce [65-67], néanmoins certaines expériences montrent également du glissement dans le plan pyramidal de première espèce [68,69] montrant que ces deux plans peuvent être activés. Ces dislocations ont un comportement similaire à celui des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium : elles sont orientées préférentiellement suivant l'intersection de leur plan de glissement et le plan de base conduisant dans le cas d'un glissement pyramidal de seconde espèce à une dislocation purement coin. Cette orientation est visible sur la Figure 1.20 qui illustre des dislocations  $\langle c + a \rangle$  alignées suivant une direction  $[10\bar{1}0]$  qui apparaît sur l'image perpendiculaire au vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$ .

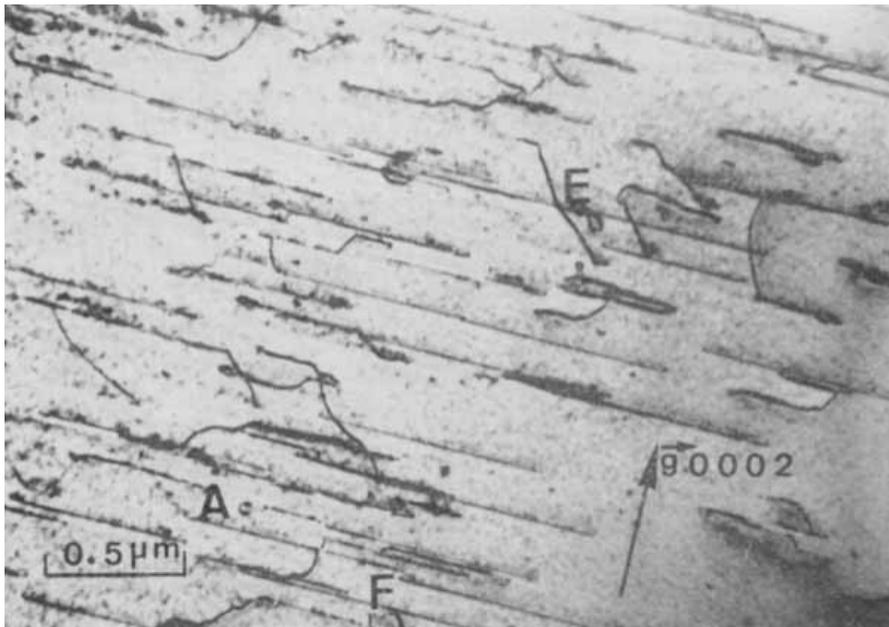


FIGURE 1.20 – Dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans du magnésium pur déformé en compression à 200K où de grands segments coin se sont formés. [70]

Ceci s'explique par une structure de cœur difficile à faire glisser. En étudiant avec différents vecteurs de diffraction ces dislocations  $\langle c + a \rangle$ , un modèle de dissociation non conservative pour la dislocation coin pouvant expliquer une force de friction de réseau a été proposé par Stohr et Poirier [70]. La dislocation se dissocierait suivant :

$$\frac{1}{3}[11\bar{2}3] = \frac{1}{6}[20\bar{2}3] + \frac{1}{6}[02\bar{2}3] \quad (1.7)$$

La dislocation  $\langle c + a \rangle$  glissant initialement dans un plan pyramidal de seconde espèce se dissocie donc dans le plan basal où une faute de type  $I_1$  est créée. Les deux partielles ne sont pas glissiles dans le plan de la faute et la dissociation non conservative est de type montée et doit être thermiquement activée. La structure de cœur correspondant à cette dissociation non conservative pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  coin a pu être observée par microscopie haute résolution (HREM) (Figure 1.21) [71]. On observe que cette dissociation se fait principalement dans le plan basal et que les dislocations partielles ne sont pas à la même hauteur.

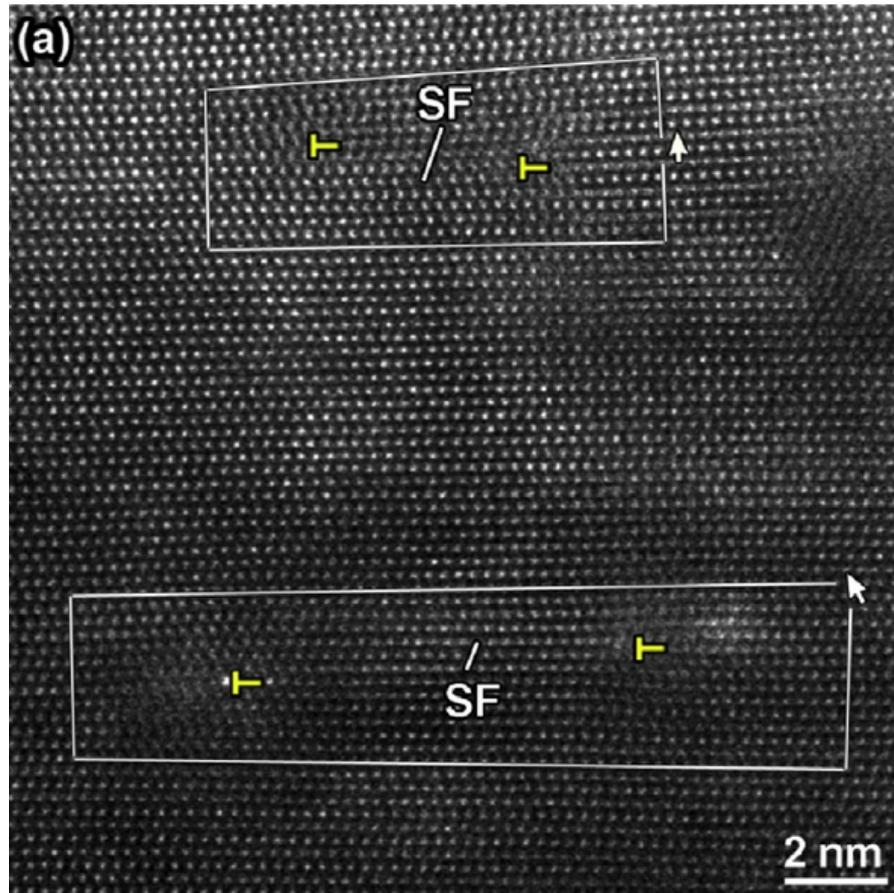


FIGURE 1.21 – Observation HREM de dislocations  $\langle c + a \rangle$  coin dissociée en deux partielles dans le plan basal dans le magnésium [71], l'horizontale correspond à une direction  $[10\bar{1}0]$  et la verticale à une direction  $[0001]$ . SF symbolise la faute d'empilement et les symboles en jaune représentent les dislocation partielles.

Le comportement dynamique de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  a également été observé en compression in-situ [68]. Comme on peut l'observer sur la Figure 1.22, la dislocation s'oriente préférentiellement suivant des directions à l'intersection du plan de glissement et du plan de base (perpendiculaire au  $g=0002$ ). On peut remarquer sur cette figure que la dislocation forme des macro-kinks,

l'avancée de ces derniers contrôlant le glissement de la dislocation entière.

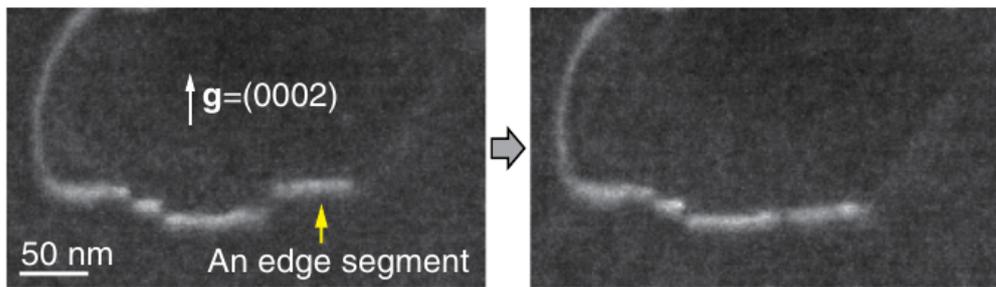


FIGURE 1.22 – Glissement d’une dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium, un segment coin glisse jusqu’à rattraper une autre portion coin de la dislocation. Les deux images sont prises pour la même dislocation à deux temps différents. [68]

Itakura et al. [72] ont étudié la stabilité de différentes structures de cœur de dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis dans le magnésium avec des calculs *ab initio*. Ils retrouvent que la structure à l’état fondamental est dissociée dans un plan pyramidal de seconde espèce et que la structure de cœur dissociée dans le plan pyramidal de première espèce est d’une énergie légèrement plus haute permettant ainsi à la dislocation de changer facilement de plan de glissement.

Des calculs *ab initio* ont également été réalisés sur la dislocation coin [73] et permettent d’obtenir un cœur dissocié dans le plan pyramidal de seconde espèce avec une distance de dissociation d’environ 18 Å. Les calculs *ab initio* ne permettent pas d’obtenir directement une dissociation non conservative telle que celle prédite par l’équation 1.7 à partir d’une structure compacte ou dissociée dans le plan pyramidal de deuxième espèce. Pour cela, il serait nécessaire d’ajouter de l’activation thermique au système.

Wu et al. ont effectué des simulations en dynamique moléculaire permettant d’implémenter cette activation thermique et ont pu obtenir des structures de cœur en accord avec la dissociation observée par Stohr et Poirier [74]. En partant d’une structure de cœur de dislocation coin  $\langle c + a \rangle$  dissociée en deux partielles équivalentes [75] dans un plan pyramidal de seconde espèce en accord avec la faute d’empilement stable connue dans ce plan [51] et avec la structure de cœur obtenue par les calculs *ab initio* [73], une simulation en dynamique moléculaire à une température comprise entre 500 et 700 K a été réalisée. Il est observé que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  évolue vers une nouvelle structure. Cette nouvelle structure est dissociée dans la plan de base via une faute d’empilement  $I_1$  comme illustré par la Figure 1.23 [74], en accord donc avec la structure mise en évidence expérimentalement pour cette orientation coin.

La structure de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  résidant dans le plan pyramidal de première espèce a été étudiée suivant la même méthode dans le magnésium. En partant d’une dislocation dissociée dans un plan pyramidal de première espèce et en y ajoutant seulement de l’activation thermique (température de 500 K), Wu et al. [76] trouvent deux réponses différentes. La première illustrée par la Figure 1.24a) montre que la dislocation partielle  $\langle c + a \rangle$  de gauche se dissocie dans le plan basal jusqu’à émettre une dislocation  $\langle a \rangle$ . De cette émission résulte deux dislocations proches  $\langle a \rangle$  et  $\langle c \rangle$  toutes deux dissociées dans le plan basal. La Figure 1.24b) illustre le deuxième scénario : la dislocation se réorganise et se re-dissocie en une dislocation  $\langle a \rangle$  et une dislocation  $\langle c \rangle$  toutes deux dissociées dans le plan basal. Ces dernières se recombinent ensuite et donnent naissance à une dislocation  $\langle c + a \rangle$  dissociée dans le plan basal via la présence d’une faute d’empilement  $I_1$ .

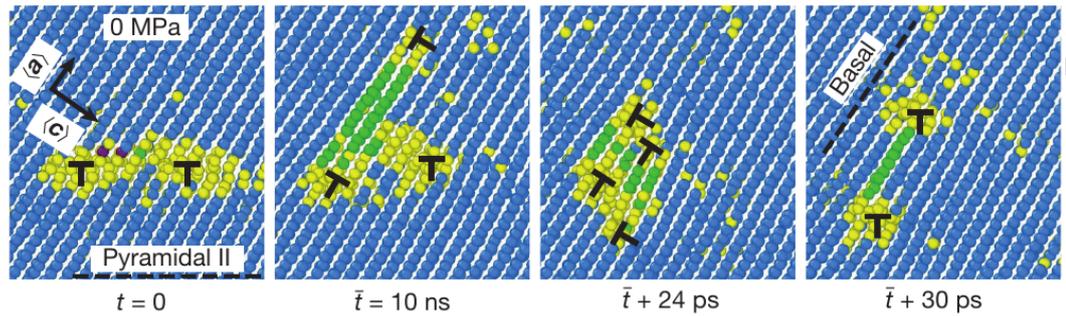


FIGURE 1.23 – Évolution en temps pour une contrainte nulle d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  dissociée initialement dans le plan pyramidal de seconde espèce apparaissant ici horizontal vers une structure dissociée dans le plan basal avec création d'une faute  $I_1$  dans le magnésium [74].

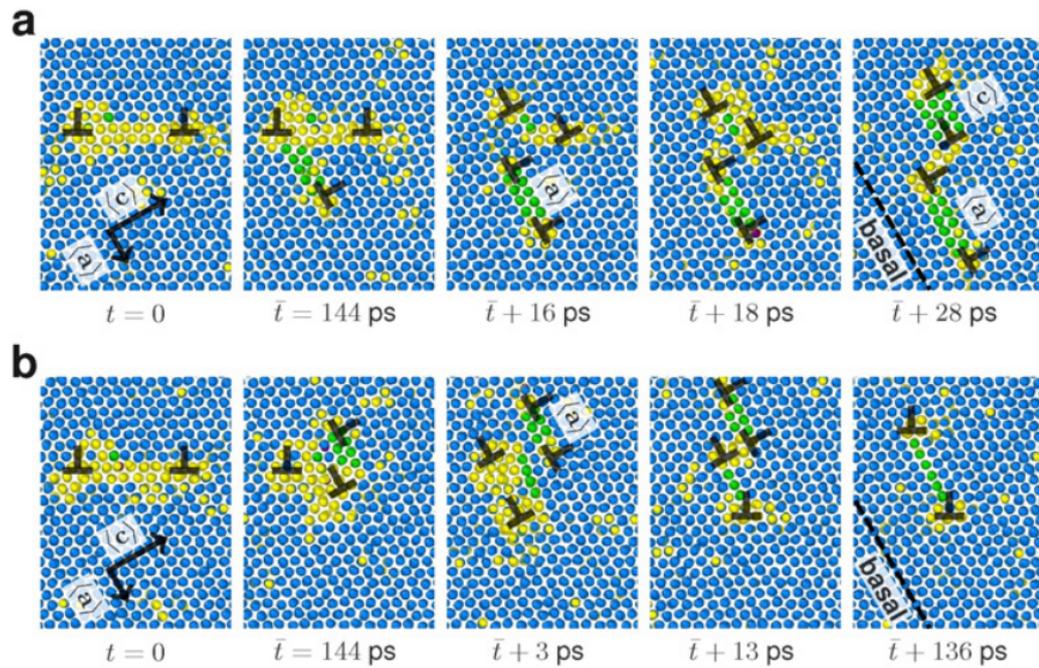


FIGURE 1.24 – Transition d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  dissociée initialement dans un plan pyramidal de première espèce vers des dislocations dissociées dans le plan basal du magnésium. Deux scénarios sont ici illustrés, ces derniers provenant de la même structure initiale. Les simulations sont effectuées pour une température de 500K, le plan pyramidal de première espèce apparaît horizontal et le plan basal oblique. [76]

Des calculs basés sur la théorie élastique et sur les fautes d'empilement mais ne prenant pas en compte les énergies de cœur des dislocations [52] montrent que pour une distance critique de montée, la structure de cœur dissociée dans le plan de base est énergétiquement plus stable. Cette structure étant particulièrement sessile, on peut s'attendre à ce qu'elle soit responsable de la stabilisation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  selon l'orientation à l'intersection entre le plan pyramidal

de première espèce et le plan de base.

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium ont un comportement qui a été largement étudié dans la littérature, ces dislocations présentent, comme dans le zirconium, une orientation préférentielle dans le plan de base et semble glisser par de grands décrochements. Bien que le plan de glissement principal ne soit pas le même, les hypothèses que suggèrent les résultats des simulation atomistiques peuvent également s'appliquer au zirconium. Des calculs en dynamique moléculaire seront donc nécessaires à notre étude afin de vérifier si ce type de dissociation non conservative pourrait expliquer ou non cet alignement préférentiel des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium dans l'orientation  $\langle a \rangle$ .

## Conclusion

Nous avons dans ce chapitre introduit les mécanismes de déformation expliquant l'anisotropie de déformation plastique du zirconium. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  accompagnées du maclage permettent la déformation du cristal suivant les directions  $\langle c \rangle$  et sont plus dures à activer que le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$ . Les études en microscopie électronique à transmission montrent que ces dislocations apparaissent orientées majoritairement suivant une direction  $\langle a \rangle$  preuve d'un glissement principal dans le plan pyramidal de première espèce. Le mécanisme de glissement de ces dernières n'a pas encore été observé expérimentalement et des essais de traction in-situ seront donc réalisés afin de le comprendre. La stabilité de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  orientée dans une orientation  $\langle a \rangle$  est un problème complexe que les simulations à l'échelle atomique essayent d'expliquer. Les travaux de Numakura et al. laissent supposer l'existence d'une structure de cœur glissile planaire et l'existence d'une structure de cœur plus stable dissociée sur deux plans (pyramidal de première espèce et basal) moins glissile pourrait expliquer un tel comportement. Une autre hypothèse provenant de l'étude des dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium expliquerait cette stabilité par l'existence d'une structure de cœur dissociée dans le plan basal via une dissociation non conservative.

## Chapitre 2

# Observations en Microscopie Électronique à Transmission

La synthèse bibliographique a montré que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium glissent principalement dans le plan pyramidal de première espèce [19, 35, 36, 41–43] avec une très faible quantité de glissement dans le plan pyramidal de seconde espèce [42]. Ces dislocations apparaissent rectilignes et orientées dans leur orientation  $\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$  correspondant à une direction  $\langle a \rangle$ . Le glissement de ces dislocations est un mécanisme de déformation secondaire, en compétition avec le maclage. Leur activation nécessite des conditions de sollicitation spécifiques. Nous allons, dans ce chapitre, présenter les conditions de sollicitation choisies et vérifier la présence de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Cette étude préliminaire à la traction in-situ d'éprouvettes, permettra ensuite de comparer la réponse plastique d'un échantillon massif et d'une lame mince.

Dans ce chapitre, il sera premièrement introduit la méthode de caractérisation (Section 2.1), puis le matériau (Section 2.2). Ensuite, il sera vérifié si le matériau de l'étude permet d'obtenir de telles dislocations. Ces dernières, si présentes, seront caractérisées (orientation, plan de glissement, ...) dans la section 2.3).

### 2.1 Méthode de caractérisation

La microscopie électronique à transmission est une technique généralement utilisée pour observer les dislocations à l'échelle nanoscopique [77]. Elle permet d'obtenir sur un écran phosphorescent l'image magnifiée et projetée d'une lame mince. Elle consiste à faire traverser la lame mince par un faisceau d'électrons. Le faisceau d'électrons après interaction avec la matière est projeté sur un écran. L'interaction entre la matière et les électrons étant forte, une faible quantité de matière doit interagir avec ces derniers pour donner une image. Les épaisseurs de lames observées sont de l'ordre de quelques centaines de nanomètres au maximum.

Afin d'obtenir de telles épaisseurs, plusieurs techniques sont utilisées. La plus courante est l'électropolissage : partant d'un échantillon déjà poli miroir mécaniquement d'une épaisseur de quelques centaines de micromètres, ce dernier est attaqué localement par une solution acide jusqu'à l'obtention d'un trou. Les bords de ce trou étant peu épais, ils permettent l'observation en MET.

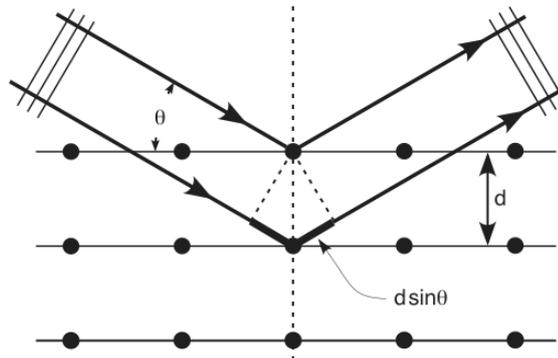


FIGURE 2.1 – Démonstration de la loi de Bragg. Les points représentent les colonnes atomiques projetées, les lignes horizontales les plans cristallins et les flèches le chemin des électrons du faisceau.

Les métaux ayant une structure cristalline, lorsque le faisceau traverse un grain sans défaut il peut se trouver dans des conditions spécifiques de diffraction. Si une famille de plan interagit avec le faisceau en vérifiant la loi de Bragg :

$$2 d \sin \theta = n \lambda$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau,  $d$  la distance entre les plans cristallographiques,  $n$  l'ordre de diffraction (entier) et  $\theta$  le demi-angle de déviation, les faisceaux diffractés réagissent de manière constructive sur l'écran (interférences constructives) conduisant à l'apparition de tâches de diffraction. La Figure 2.1 illustre ce phénomène.

Il existe plusieurs modes de fonctionnement différents. Le mode diffraction : le plan focal de la lentille objectif est conjugué avec le plan de l'écran, on observe alors sur l'écran une figure de diffraction constituée de plusieurs spots lumineux. Cette figure de diffraction est composée du faisceau transmis au centre et d'autres spots lumineux issus de la diffraction des électrons par des familles de plans satisfaisant les conditions de Bragg. La distance séparant le premier spot lumineux de cette rangée au spot correspondant au faisceau transmis est la distance interréticulaire  $g$  du réseau réciproque. L'espace réciproque étant un espace dual de l'espace direct, les longueurs observées sur les images prises en mode diffraction sont exprimées en  $\text{nm}^{-1}$ . Ce mode permet de déterminer quel vecteur de diffraction peut être utilisé ou quelle est l'orientation du cristal.

Si plusieurs familles de plans sont en conditions de Bragg, il apparaîtra sur la figure de diffraction plusieurs rangées de spots lumineux, ce type de figure de diffraction est appelée axe de zone et permet une caractérisation très simple de l'orientation d'un cristal ; une telle figure est illustrée par la Figure 2.2.

Ces figures de diffraction sont caractéristiques de la structure cristallographique d'un métal. Les axes de zones les plus fréquemment observés ont été étudiés et regroupés dans des abaques.

Le mode champ clair : le plan image de la lentille objectif est conjugué avec le plan de l'écran. On place un diaphragme afin de sélectionner un faisceau. Avec ce faisceau, seules les régions qui diffractent fortement apparaissent plus sombres.

Les dislocations étant un défaut linéaire qui induit une déformation dans le cristal apparaissent plus sombres. Néanmoins la dislocation réarrange les atomes de manière ordonnée et

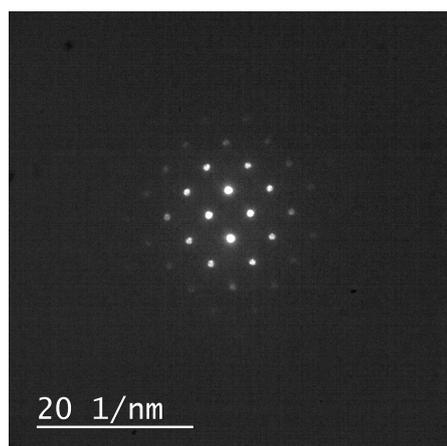


FIGURE 2.2 – Figure de diffraction dans le zirconium d'un axe de zone de type  $(10\bar{1}1)$ .

certaines familles de plans restent communes avec le cristal parfait. De ce fait lorsque que l'on choisit un vecteur diffraction correspondant à une telle famille de plans, la dislocation n'apparaîtra pas plus sombre : elle est en condition d'extinction. Cette condition d'extinction est régie par l'équation suivante :

$$\vec{b} \cdot \vec{g} = 0$$

où  $\vec{g}$  est le vecteur diffraction. De cette manière une dislocation  $\langle a \rangle$  ayant un vecteur de Burgers  $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\ 1\ \bar{2}0]$  entrera en condition d'extinction pour un vecteur diffraction  $\vec{g} = [0002]$ . Ce dernier vecteur est d'ailleurs crucial pour l'étude des dislocations  $\langle c + a \rangle$  : ce vecteur permet de mettre en condition d'extinction toutes les dislocations  $\langle a \rangle$  qui sont généralement les dislocations les plus nombreuses dans le zirconium, ces systèmes de glissement étant facilement activables. Néanmoins, ce vecteur ne met pas en condition d'extinction les dislocations  $\langle c + a \rangle$  qui apparaîtront donc sur l'image.

Une micrographie MET est une image en deux dimensions d'une lame MET en trois dimensions. Une ligne droite observée sur une micrographie est ainsi la projection de la section d'un plan contenant la dislocation, cette dernière étant formée par la normale à la micrographie et la ligne de la dislocation. La Figure 2.3 illustre ce phénomène. Une ligne de dislocation purement rectiligne de vecteur ligne  $\vec{l}$  est observée au MET, à l'écran elle apparaît comme un segment de direction  $\vec{l}_{ecran}$ . Comme imagé sur la Figure, cette direction n'est pas colinéaire au réel vecteur ligne de la dislocation mais est orthogonale à la normale de l'écran et comprise dans le plan  $P$  qui contient la dislocation et la normale à l'écran. La direction observée est donc la projection de la section du plan  $P$  définie par la ligne de la dislocation et la direction de projection suivant la normale de l'écran.

Pour déterminer l'orientation d'un vecteur ligne d'un dislocation, il faut alors disposer d'une projection de cette ligne dans deux plans différents au moins. Afin de faire de telles observations, on utilise le porte échantillon qui a la capacité de pivoter suivant deux axes de rotation différents. Ces deux axes permettent d'accéder à un grand nombre de vecteurs diffractés.

La direction qui nous intéresse le plus est la direction appartenant à la fois au plan de base et au plan de glissement. En effet, si cette direction est du type  $\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ , le plan de glissement sera un plan pyramidal de première espèce et si la direction est du type  $\langle 1\bar{1}00 \rangle$  le plan de glissement résultant sera un plan pyramidal de seconde espèce. L'imagerie avec un vecteur diffraction  $\vec{g} =$

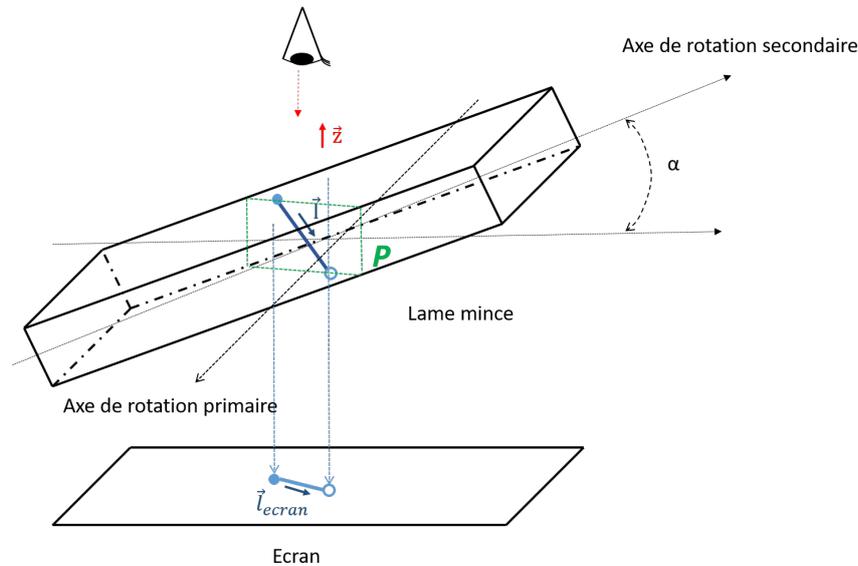


FIGURE 2.3 – Schématisation de l’observation d’une lame mince au microscope. La dislocation est représentée par un segment bleu dans la lame mince et la projection de cette dernière par un segment bleu sur l’écran. Une rotation a été ici réalisée sur l’échantillon d’un angle  $\alpha$  autour de l’axe de rotation principal.

0002 donne de belles images et permet de n’observer que les dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Néanmoins, même si l’on pivote l’échantillon autour des axes de rotation tout en gardant ce vecteur diffraction actif, le plan que l’on déterminera pour cette orientation spécifique de ligne sera toujours le plan basal. En effet si l’on reprend la représentation illustrée par la Figure 2.3 c’est comme si l’on pivotait la lame mince autour d’un axe  $\vec{q}$  perpendiculaire au plan  $P$  : le vecteur  $\vec{l}_{ecran}$  serait ainsi conservé, seule la taille de cette projection serait impactée. Cette variation de longueur, si elle est déterminée de manière stéréographique en conservant le vecteur diffraction peut permettre de déterminer l’orientation de la ligne. Néanmoins une telle étude est longue et doit ce faire sur chacune des lignes de dislocations. Pour déterminer plus facilement l’orientation des lignes, il est préférable d’utiliser deux vecteurs diffraction différents.

Afin de mieux connaître la nature des dislocations observées, il est nécessaire de connaître le vecteur de Burgers. Afin de le déterminer, les conditions d’extinctions sont utilisées. Avant toute chose il est de mise de vérifier que la dislocation observée est bien une dislocation  $\langle c + a \rangle$ , c’est-à-dire qu’elle ne s’éteint pas avec un vecteur  $\vec{g} = 0002$  *i.e.* ce n’est pas une dislocation  $\langle a \rangle$ . Il est ainsi nécessaire de s’assurer qu’elle ne s’éteint pas avec vecteur diffraction orthogonal à ce dernier ( $\vec{g} = \bar{1}100$  ou  $\vec{g} = \bar{2}110$ ), preuve qu’il ne s’agit pas d’une dislocation  $\langle c \rangle$ . 12 vecteurs de Burgers sont possibles pour une dislocation  $\langle c + a \rangle$ , néanmoins le sens de ce dernier ne peut être déterminé au MET donc 6 vecteurs de Burgers peuvent être déterminés. Pour déterminer ce vecteur de Burgers, il faut obtenir au moins deux extinctions de la dislocation. Si l’on connaît le plan de glissement de la dislocation, la détermination du vecteur de Burgers est plus simple : seul deux vecteurs de Burgers sont possibles, il suffit donc de n’en éteindre qu’un.

Dans cette thèse, une méthode de représentation de l’orientation du grain à tilt nul est utilisée. Il s’agit d’une projection stéréographique. Sur cette représentation sont représentées les directions par des points et les plans par des arcs de cercle. Ces plans sont orthogonaux à leur

pôle schématisé par un triangle.

## 2.2 Matériau

Le critère limitant pour l'observation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium est donc l'activation des dislocations  $\langle a \rangle$ . Elles accommodent la majorité de la déformation et empêchent alors la création de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Pour pouvoir produire des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , il faut appliquer une contrainte au cristal de manière à ce que le facteur de Schmid des dislocations  $\langle a \rangle$  soit assez bas et celui des dislocations  $\langle c + a \rangle$  assez important. Idéalement, pour une traction ou compression suivant l'axe  $\langle c \rangle$  conduisant à un facteur de Schmid nul pour les dislocation  $\langle a \rangle$ , on obtient un facteur de Schmid égal à 0.418 pour les dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissant dans des plans pyramidaux de première espèce.

Les échantillons que nous étudierons par la suite n'étant pas des monocristaux, il est nécessaire que le matériau utilisé ait une texture prononcée afin que les grains s'activent globalement de la même manière : si un grain est bien orienté suivant les conditions précédentes mais que ses voisins sont tous bien orientés pour l'activation de dislocations  $\langle a \rangle$ , ces derniers accommoderaient toute la déformation inhibant ainsi l'activation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le grain bien orienté.

Le choix du matériau s'est porté sur le Zircaloy-4 qui est un alliage de zirconium utilisé dans les centrales à eau pressurisée sous forme de gaine, de tube guide et de grilles des assemblages combustibles. Sa composition est décrite dans le tableau 2.1. Il est allié en oxygène, fer, étain et chrome permettant une meilleure ductilité et résistance à la corrosion.

TABLE 2.1 – Composition chimique du Zircaloy-4 ( % massique).

Sn	Fe	Cr	O	Zr
1.32	0.215	0.108	0.125	bal.

Deux états métallurgiques existent pour les alliages de zirconium, l'état détendu et l'état recristallisé.

Le Zircaloy-4 est utilisé sous l'état détendu dans les gaines de combustibles. Cet état est obtenu après un recuit de plusieurs heures à une température comprise entre 450 et 500°C. Ce traitement thermique restaure les contraintes internes accumulées lors des étapes de fabrication mais conserve la microstructure d'écroutissage. L'état détendu se traduit dans le matériau par des grains fins allongés dans la direction de laminage. La longueur moyenne de ces grains fins varie entre 20 et 50  $\mu\text{m}$  et la largeur entre 5 et 10  $\mu\text{m}$ . Ces grains contiennent une très grande densité de dislocations.

L'état recristallisé est quant à lui utilisé pour les tubes guides et les grilles des assemblages combustibles. L'état recristallisé est issu également d'un traitement thermique mais à plus haute température (environ 580°C pendant deux heures). Ce traitement thermique restaurant complètement la microstructure d'écroutissage, la densité de dislocations présente dans le grain est de ce fait faible. La microstructure de l'état recristallisé est composée de grains equiaxes de taille moyenne comprise entre 5 et 10  $\mu\text{m}$ .

À son état final, le matériau a subi plusieurs étapes de laminage et est sous forme de tube peu épais. Du fait de ces étapes de mise en forme, le matériau présente une texture prononcée : il a les axes  $\langle c \rangle$  de ses grains orientés autour de la direction radiale (DR) du tube comme illustré sur la Figure 2.4(a), ces axes se trouvant dans le plan (DR,DT) à plus ou moins 30° de DR.

Les gaines de combustibles en Zircaloy-4 étant peu épaisses comme illustré par la Figure 2.4(c) et la direction des axes  $\langle c \rangle$  des grains étant alignés avec la direction radiale, le prélèvement d'éprouvettes de traction ayant les axes  $\langle c \rangle$  des grains parallèles à la direction de traction est compliqué. C'est pourquoi le Zircaloy-4 TREx (Tube Reduced Extrusion) est utilisé. Ce matériau est un produit intermédiaire du procédé de fabrication de la gaine c'est-à-dire qu'il a subi des étapes de laminage en moins. De ce fait, il est plus épais (Figure 2.4(c)), dispose d'un diamètre de 55 mm et d'une épaisseur de 10 mm. Il présente une texture différente : les axes  $\langle c \rangle$  des grains sont orientés dans le plan DR-DT avec la plus grande densité suivant DT comme illustré par la Figure 2.4(b). La Figure de pôle du Zircaloy-4 TREx est illustrée par la Figure 2.5. On y lit la densité d'axes  $\langle c \rangle$  (0002) dans les orientation (DR,DT). Les zones où le vecteur diffraction  $\vec{g} = (0002)$  est accessible avec une simple rotation autour de l'axe (DT) sont représentées en violet. Les zones oranges représentent, dans ces zones violettes, les grains ayant une orientation permettant une observation avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = (0002)$  et dont les grains ont une forte chance d'activer le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . On peut remarquer alors que cette zone est petite et que notre étude *in situ* ne peut se porter que sur un faible nombre de grains, malgré les efforts mis en place pour le choix du matériau et la direction de prélèvement.

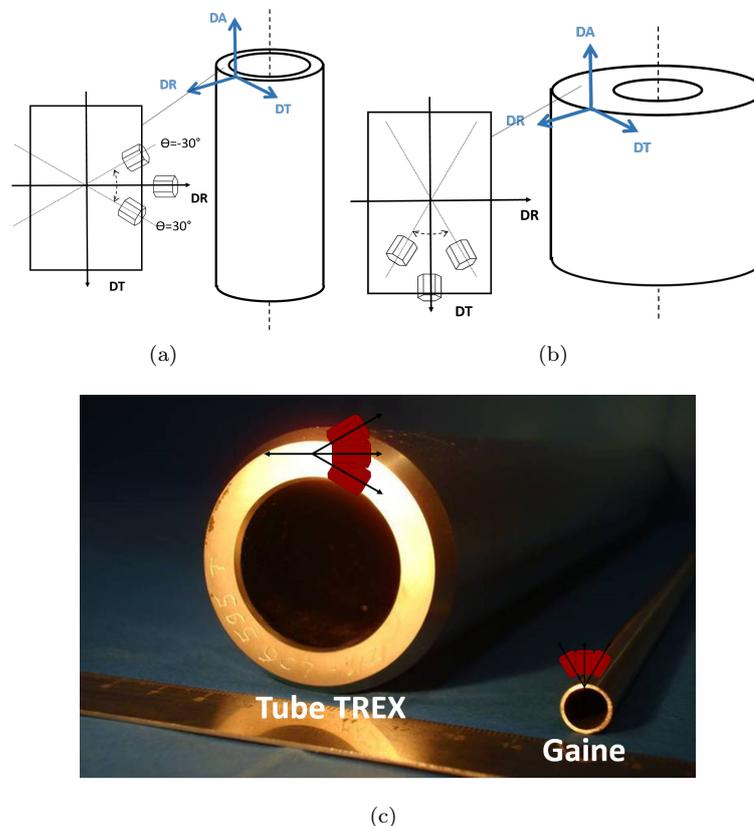


FIGURE 2.4 – Représentation de la texture des gaines de (a) Zircaloy-4 utilisée en REP et (b) du tube de Zircaloy-4 TREx. En (c) est imagée une photographie de ces deux tubes cotes à cotes illustrant la différence d'épaisseur de ces tubes (image provenant de la thèse de N. Gharbi [78]). Les encadrés représentent le plan DR-DT du tube, les axes  $\langle c \rangle$  des grains étant orientés dans ce plan majoritairement dans la direction DR pour (a) et suivant DT pour (b).

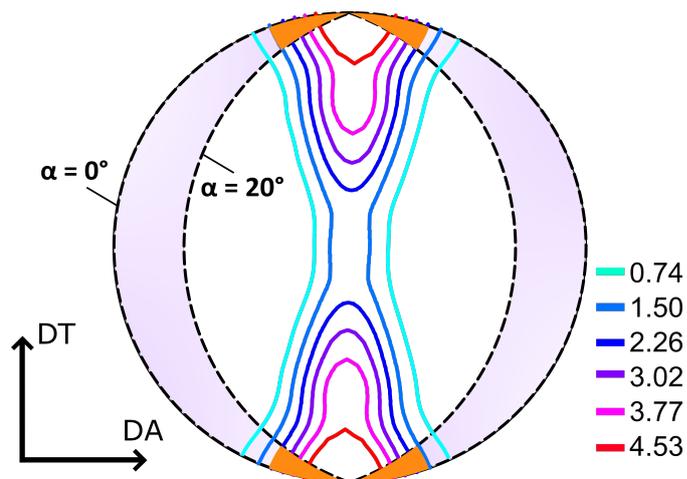


FIGURE 2.5 – Figure de pôle (0002) du Zircaloy-4 TREx utilisé dans cette étude. Les lignes tracées sont les lignes d’iso-contour des densités des pôles 0002 et sont normalisées par rapport à une texture aléatoire. La zone violette indique les grains où un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  pourra être accessible dans le microscope, ce dernier ne pouvant bien imaginer qu’en pivotant le porte objet de plus ou moins  $20^\circ$  suivant son axe. La zone orange est l’intersection de cette zone avec la zone indiquant les grains pouvant activer du glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  (à plus ou moins  $20^\circ$  de la direction transverse). Cette zone représente les grains d’intérêt permettant l’étude des dislocations  $\langle c + a \rangle$  en traction *in-situ*.

De ce matériau, deux types d’éprouvettes conventionnelles ont été prélevées : des éprouvettes de traction lors de la thèse de Marine Gaumé [5] et des micro-éprouvettes de traction dans cette thèse permettant l’observation en traction *in situ*. Ces deux types d’éprouvettes ont été prélevées dans les directions (DR,DT) du tube.

Les éprouvettes de traction ont ensuite été déformées à  $350^\circ\text{C}$  jusqu’à des déformations de 2 et 4 % (pour une vitesse de déformation égale à  $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ). Les courbes contrainte-déformation issues de ces essais mécaniques sont représentées dans la Figure 2.6. Ces courbes ont été obtenues jusqu’à des déformations de 2 et 4 % et jusqu’à rupture. On peut remarquer que ces courbes ne reproduisent pas exactement le même comportement. Cette variabilité est due au prélèvement des éprouvettes. En effet, un prélèvement d’éprouvettes plates à différentes profondeurs dans l’épaisseur induit une variabilité de texture locale dans la largeur de l’éprouvette. La limite d’élasticité  $Re$  obtenue de ces courbes est environ égale à 170 MPa ce qui est élevé comparé à la limite d’élasticité obtenue d’essais de traction sur des échantillons de Zircaloy-4 dans la direction axiale [79] (environ 100 MPa à  $350^\circ\text{C}$ ).

Ces éprouvettes après les essais de tractions ont développé une grande densité de macles comme on peut le voir sur la Figure 2.7 où des exemples de macles y sont indiqués avec des flèches noires. Cette étude métallographique a été obtenue sur un échantillon déformé à 4% à  $350^\circ\text{C}$ .

Ces éprouvettes ont ensuite été polies mécaniquement et électro-polies [5] avec une solution d’éthanol et d’acide perchlorique (90%-10%). Les micro-éprouvettes ont quant à elles été polies mécaniquement puis électro-polies directement après prélèvement sur le tube restant ainsi vierges de toute sollicitation mécanique.

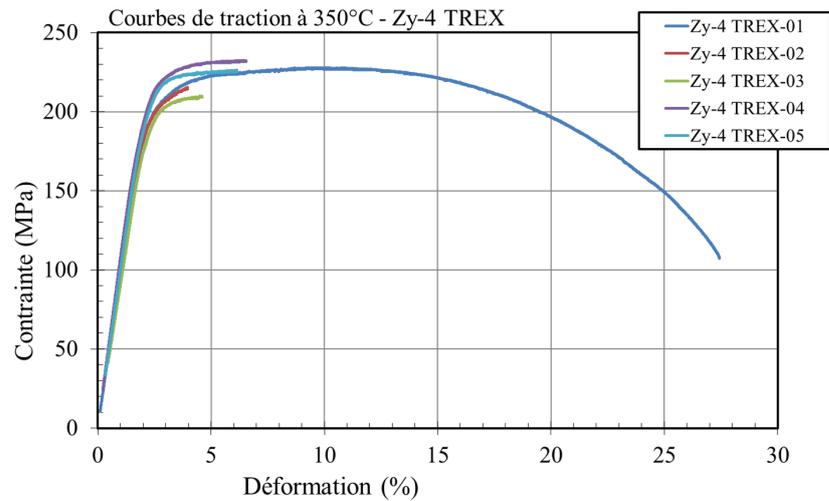


FIGURE 2.6 – Courbes contrainte-déformation de différents échantillons de Zircaloy 4 TREX recristallisé obtenues lors d’essais de traction. La traction a été réalisée suivant la direction transverse du tube et à 350°C jusqu’à des déformations de 2% (courbes rouge et verte), 4% (courbes bleu clair et violette) et jusqu’à rupture (courbe bleu foncé) [5].

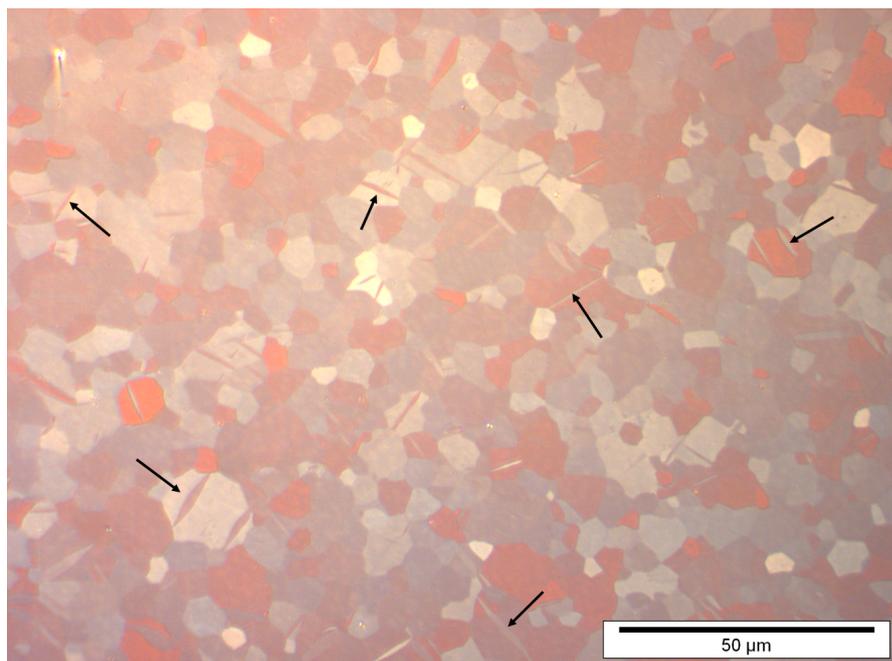


FIGURE 2.7 – Étude métallographique d’échantillon de Zircaloy 4 TREX recristallisé déformé à 4% à 350°C. Les grains sont colorés en fonction de leur orientation et des exemples de macles y sont indiqués à l’aide de flèches noires. Cette étude métallographique est issue de la thèse de Marine Gaumé [5].

## 2.3 Etude Post-mortem

Après avoir subi une étape d'électropolissage, les éprouvettes obtenues après essais de traction ont été analysées au MET. Une grande partie des grains observables a été analysée avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$ . Cette analyse préliminaire a révélé que tous les grains n'ont pas activé le système de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , contrairement aux dislocations  $\langle a \rangle$  qui ont été observées dans la majorité de ces grains. Cela montre une grande sensibilité au facteur de Schmid et la difficulté d'activer le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Les dislocations  $\langle c + a \rangle$ , lorsqu'elles sont observées, sont alignées suivant une direction particulière, perpendiculaire au vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  indiquant que cette direction est l'intersection du plan de base avec leur plan de glissement. Une micrographie MET (Figure 2.8) met en évidence ces dislocations. Une forte présence d'hydrure a été également observée, ces derniers sont généralement créés lors des étapes de préparation des échantillons et "habitent" dans le plan de base comme illustré par la Figure 2.8. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont donc ici une orientation préférentielle suivant cette direction à l'intersection entre le plan de glissement et le plan de base. Néanmoins on peut remarquer que les dislocations ne sont pas purement rectilignes et présentent des décrochements entre des portions rectilignes. Cela montre qu'il y a un épinglage de ces décrochements, ces derniers devant normalement s'éliminer sous l'effet de la tension de ligne. Cela montre ainsi que la dislocation est plus stable pour ce type d'orientation mais qu'un effet d'ancrage avec les éléments en solution pourrait la stabiliser sur plusieurs plans différents. On remarque également que les dislocations dans une orientation autre paraissent courbes en accord a priori avec une forme contrôlée par la tension de ligne. Lorsque l'observation ne se fait pas avec un vecteur

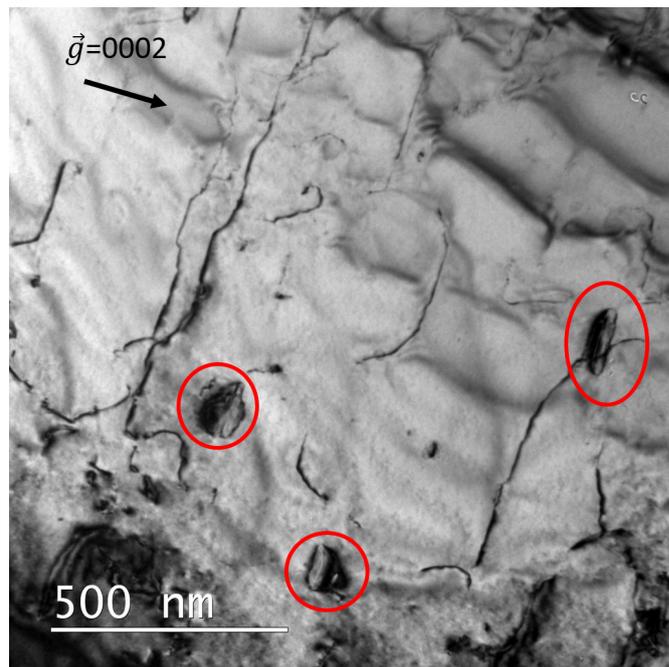
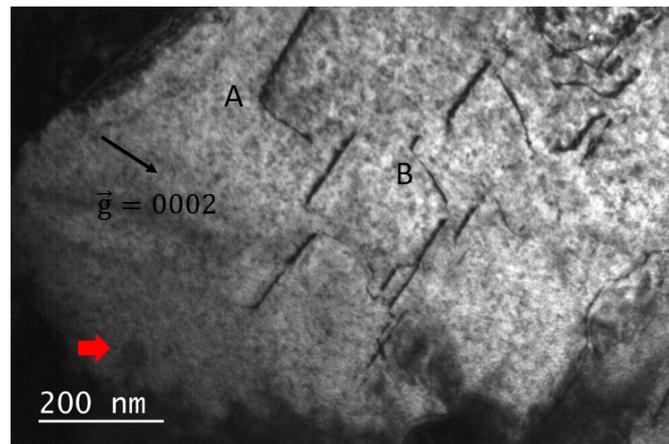
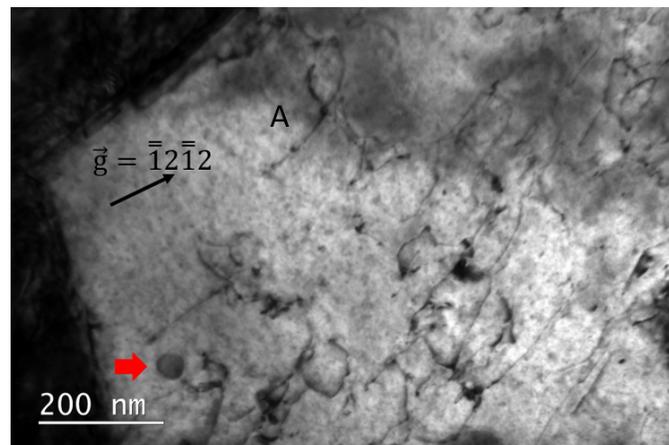


FIGURE 2.8 – Micrographie MET de dislocations  $\langle c + a \rangle$  observée dans un échantillon de Zircaloy-4 TREx déformé à 2% à 350°C. Le vecteur diffraction  $\vec{g}$  est indiqué par une flèche noire. Les hydrures sont ici entourés en rouge.

diffraction  $\vec{g} = 0002$ , on peut voir apparaître des dislocations  $\langle a \rangle$  qui vont rendre l'indexation des orientations des lignes de dislocations plus difficiles, se mélangeant avec les dislocations  $\langle c + a \rangle$ . La Figure 2.9 montre un exemple de ce cas : la première image est une micrographie prise avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  et la seconde avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = \bar{1}\bar{2}\bar{1}2$ . Le précipité en bas à gauche de l'image indiqué avec une flèche rouge permet de se retrouver dans le grain. On peut remarquer pour la dislocation A que de nouveaux brins de dislocations  $\langle a \rangle$  viennent se superposer à la dislocation  $\langle c + a \rangle$ . De plus, il est difficile de retrouver la dislocation B sur la seconde image.



(a)



(b)

FIGURE 2.9 – Micrographies MET montrant des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans des échantillons de Zircaloy-4 TREx déformé à 2% à 350°C, a) avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$ , b) avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = \bar{1}\bar{2}\bar{1}2$ . Les flèches rouges indiquent un précipité pouvant servir de repère.

Les directions non  $\langle a \rangle$  des dislocations  $\langle c + a \rangle$  apparaissent courbes et ne permettent pas de caractériser le plan de glissement.

Ces facteurs rendent l'indexation des orientations de la dislocations  $\langle c + a \rangle$  difficile, un protocole complet est donc nécessaire pour atteindre une caractérisation optimale.

Une étude complète de dislocations est représentée par la Figure 2.10. On y observe la dislocation avec 3 vecteurs diffraction différents : a)  $\vec{g} = 0002$ , b)  $\vec{g} = \bar{1}101$  et c)  $\vec{g} = 0\bar{1}11$ . On se concentre sur la portion de la dislocation entourée en vert, rouge et blanc des micrographies a), b) et c) respectivement. Sur la partie d) de la figure est représentée la projection stéréographique du grain à tilt nul. Le plan déterminé pour la portion d'intérêt en a) est représenté par la ligne verte et en b) par la ligne rouge. Leur intersection donne la direction de la ligne de cette portion qui est  $[\bar{1}2\bar{1}0]$  correspondant à l'intersection du plan de base et de deux probables plans pyramidaux de première espèce. Le vecteur diffraction permet d'éteindre deux types de dislocations  $\langle c + a \rangle$  :  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$  et  $\frac{1}{3} [\bar{1}2\bar{1}3]$ . Seul  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$  est en commun avec un des deux plans pyramidaux possibles :  $(10\bar{1}\bar{1})$  montrant que la dislocation glisse dans ce dernier plan avec un vecteur de Burgers  $\frac{1}{3} [11\bar{2}3]$ .

Dans cette étude, une extinction a été observée dans les gammes accessibles de rotation de l'échantillon qui a permis une caractérisation totale des dislocations. Dans la plupart des cas seule l'orientation de la dislocation à l'intersection du plan de base et du plan de glissement a été obtenue comme celle illustrée par la Figure 2.11. Cette dernière étant toujours du type  $\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$  preuve d'un glissement dans un plan pyramidal de première espèce. Dans certains cas la présence d'un segment d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction non  $\langle a \rangle$  bien défini pour deux vecteurs diffraction différents a permis une confirmation du plan de glissement, ce dernier étant toujours un plan pyramidal de première espèce.

Les observations MET ici réalisées nous ont permis de vérifier que l'activation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans ce matériau texturé sont possibles. Ces observations étant en accord avec la littérature : le plan de glissement est bien un plan pyramidal de première espèce, la direction préférentielle est bien  $\langle a \rangle$  [41, 42, 47, 48]. Du glissement dans le plan pyramidal de seconde espèce n'a pas été observé. Une observation tomographique plus poussée permettant la caractérisation du plan de glissement le long de la ligne entière comme celle réalisée par Long et al. [42] n'ayant pas été réalisée, nous ne pouvons conclure que ce type de glissement est absent de l'échantillon.

Ces observations sont donc le point de départ pour les observations in-situ, elles montrent avant tout que le plan de glissement devrait bien être le plan pyramidal de première espèce et que le glissement pourrait se faire avec du glissement de grands décrochements des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans leur direction  $\langle a \rangle$ . Les observations in-situ suivantes doivent répondre aux questions suivantes : quel mécanisme de glissement régit le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ ? Est ce que l'orientation préférentielle des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est conservée en condition dynamique ?

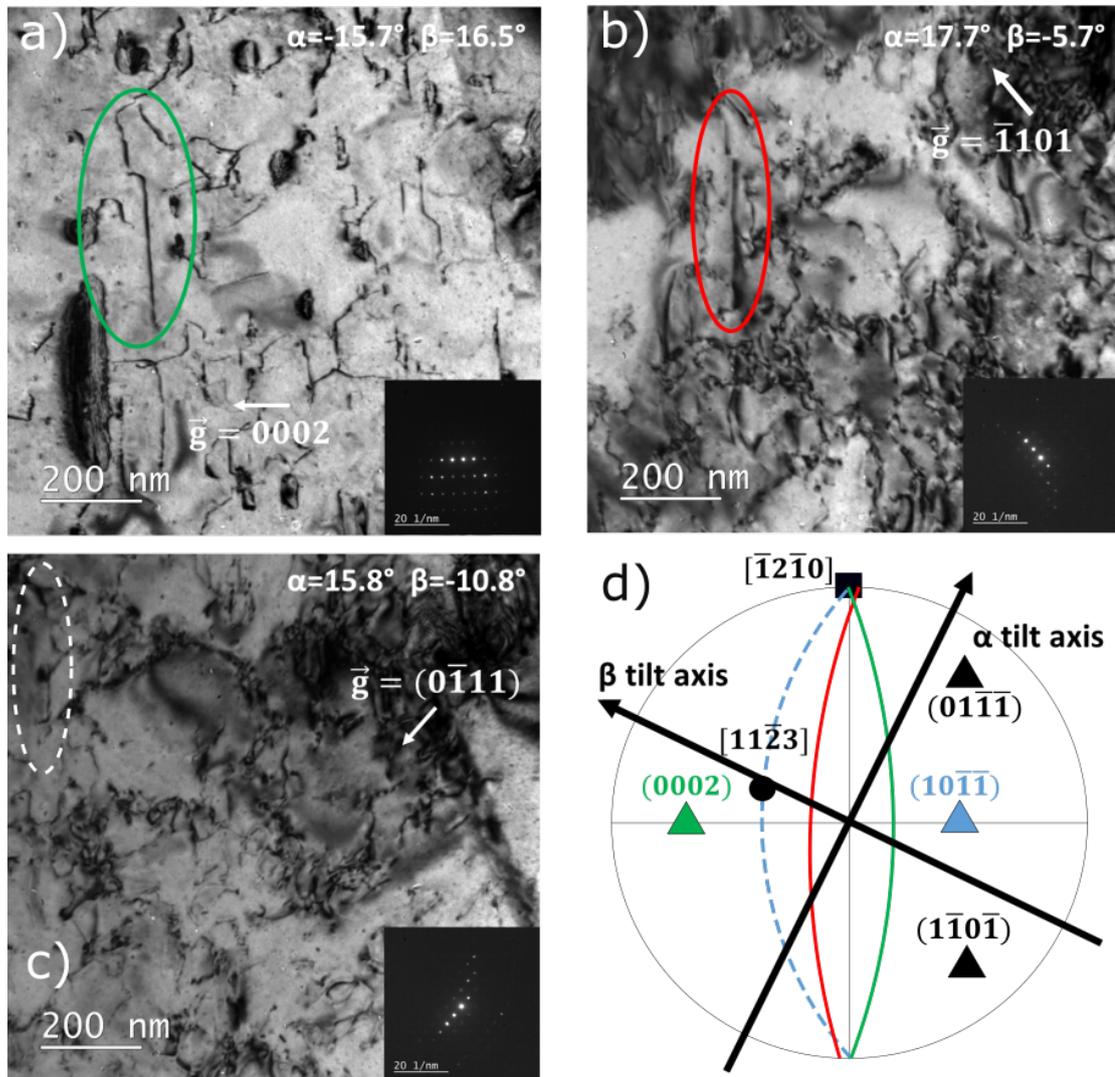


FIGURE 2.10 – a,b,c) Micrographies MET d'échantillon de Zircaloy-4 TREx déformé à 2% à une température de 350°C pour des vecteurs diffraction différents (respectivement  $\vec{g} = 0002$ ,  $\vec{g} = \bar{1}101$  et  $0\bar{1}11$ ). d) projection stéréographique du grain à tilt nul avec les plans d'intérêt ou vecteur diffraction indiqués par des triangles, par un carré la direction de la ligne entourée et par un rond le vecteur de Burgers de la dislocation.

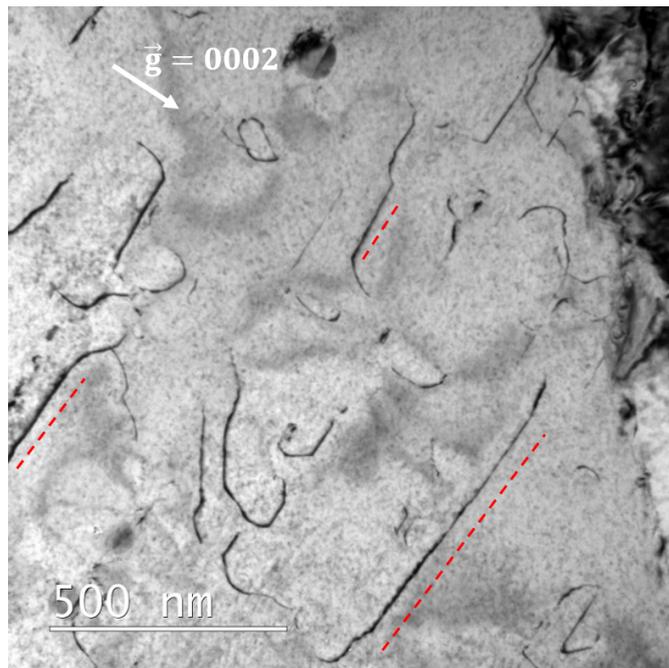


FIGURE 2.11 – Micrographie MET d'échantillon de Zircaloy-4 TREx déformé à 2% à une température de 350°C observée avec un vecteur diffraction  $\vec{g}=0002$ , des lignes segmentées rouges ont été superposées aux lignes de dislocations déterminées comme étant orientées suivant une direction  $\langle a \rangle$ .

## Conclusion

L'observation post-mortem en microscopie électronique à transmission d'échantillons de Zircaloy-4 TREx déformés à 2% à 350°C a montré la présence dans certains grains bien orientés de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Ces dislocations sont majoritairement orientées dans une orientation  $\langle a \rangle$  preuve d'un glissement dans des plans pyramidaux de première espèce. Cette orientation majoritaire peut admettre plusieurs "étages" dans des directions  $\langle a \rangle$  parallèles synonymes de macro-décrochements qui ne sont pas de hauteur monoatomique.

Cette étude est un point de départ. Les dislocations observées ici étant obtenues dans des échantillons massifs, elle permettra de mettre en relief les observations en MET in-situ sur des lames minces. Ces observations étant effectuées sur des échantillons massifs, elles seront également un point de référence pour vérifier l'absence d'artefacts liés à la lame mince en traction in-situ.

## Chapitre 3

# Étude expérimentale du glissement des dislocations $\langle c + a \rangle$

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été observées par microscopie électronique à transmission dans des échantillons pré-déformés dans le chapitre précédent. Dans ce chapitre, le mouvement de ces dislocations va être observé au cours d'essais de traction réalisés dans le microscope. On observe ainsi, à partir de grains vierges de déformation, l'apparition de dislocations  $\langle c + a \rangle$  qui glissent par la suite à l'intérieur du grain. Les expériences permettant d'observer ces dislocations dans de telles conditions seront d'abord introduites dans la Section 3.1. La mobilité de ces dislocations ainsi observée sera ensuite décrite dans la Section 3.2. L'activation de ce système de glissement étant en compétition avec le maclage, quelques événements de maclage ont été observés. Ces derniers peuvent en outre interagir avec le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  : ils seront décrits dans la Section 3.3. Finalement, nous verrons comment ces expériences peuvent s'intégrer dans la littérature en comparant nos observations avec celles réalisées sur d'autres alliages de zirconium ou dans le magnésium 3.4.

### 3.1 Méthode

Les expériences de traction in-situ se sont réalisées sur des éprouvettes minces électropolies afin d'imager le mouvement des dislocations au bord du trou. Cette lame fait 11,5 mm de longueur, 2,3 mm de large et dans les zones non électro-polie 100  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Elle dispose de deux trous aux extrémités de sa longueur pour que les mords du porte objet du microscope puissent s'y attacher. Une représentation de cette lame est donnée sur la Figure 3.1. La traction se fait ensuite comme suit : le porte objet est muni de deux mords, l'un statique et l'autre mobile. Le mord mobile peut avancer suivant l'axe de traction. Seul le déplacement de ce mord permet de contrôler la déformation. Généralement, il produit un allongement d'une centaine de micromètres.

Les expériences ici décrites ont été réalisées en utilisant un microscope FEI Tecnai qui opère à 200 kV. La traction in-situ a pu être réalisée grâce au porte échantillon GATAN qui fonctionne à température ambiante. La caméra utilisée pour les expériences est une caméra grand angle ORIUS pouvant acquérir 30 images par seconde. Du fait que la quantité d'électrons reçue en un

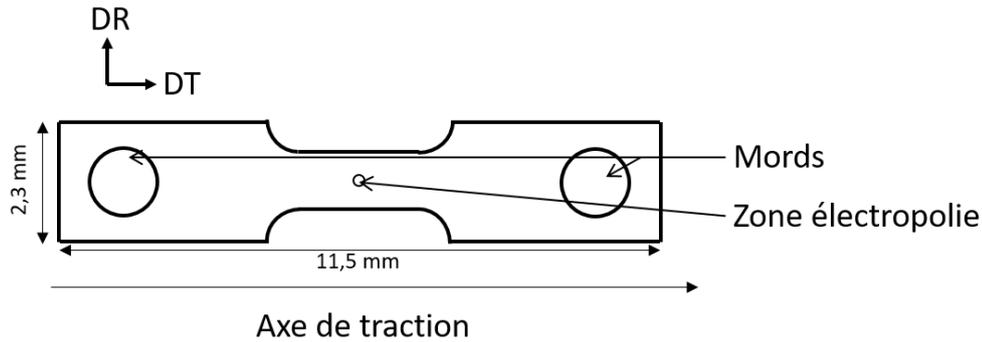


FIGURE 3.1 – Géométrie d'une lame de traction in-situ. La lame a été prélevée dans le tube TREX de telle manière à ce que l'axe de traction soit parallèle à la direction transverse du tube, direction correspondant à l'orientation préférentielle des axes  $\langle c \rangle$ .

temps  $\Delta t = \frac{1}{30}$  s amenait à une mauvaise qualité d'image, le temps d'acquisition a été augmenté conduisant à l'acquisition de 10 images par seconde.

Lors de l'essai de traction, un seul axe de tilt est disponible, il correspond à l'axe de traction : les mords du porte objet ne permettent pas d'effectuer de rotation autour d'un axe de rotation secondaire. Ce simple tilt est une forte limitation pour l'observation seule des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , ces dernières nécessitant un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$ . Il faut ainsi pour observer correctement ces dislocations avoir un grain où le vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  soit accessible en simple tilt à raison de  $\pm 35^\circ$  maximum pour obtenir une image acceptable.

Une limite autre que les conditions d'imagerie, est l'orientation des grains pouvant réellement se déformer : comme l'ont montré les observations post-mortem, même si la texture est favorable au glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , peu de grains se déforment réellement, ceci étant dû aux grains pouvant se déformer via le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  qui accommodent ainsi la majorité de la déformation dans leur voisinage.

Du fait de la faible épaisseur des zones mince, la déformation va premièrement être activée dans ces zones au bord du trou, limitant ainsi la zone observable à quelques dizaines de grains. Pour des raisons mécaniques, les grains aux extrémités des trous suivant l'axe de traction ne pourront pas s'activer : le grain étant tiré d'un côté mais pas de l'autre, seuls les grains sur les côtés latéraux du trou seront déformés. La Figure 3.2 donne une représentation schématique de la zone où les grains subissent une contrainte pouvant activer le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  et où la zone est observable au microscope. Ces difficultés d'activation accompagnées aux limites propres à la texture et aux conditions d'imagerie ( $\vec{g} = 0002$  accessible) limitent ainsi l'observation seule de dislocations  $\langle c + a \rangle$  à un faible nombre de grains d'intérêt (2-3 grains par échantillons).

Une expérience de traction in-situ se termine généralement lorsque la contrainte accumulée dans les grains au bord du trou a été trop importante, conduisant à la création de fissures partant du trou et se propageant dans la direction perpendiculaire à l'axe de traction, soit suivant la direction DR sur la figure 3.1. Une fois que la fissure a germé, elle accommode la majorité de la déformation, empêchant ainsi la déformation intra-granulaire.

Les études en traction in-situ se concentrant sur l'étude d'un seul grain lorsque l'activation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est observée, la fin de l'expérience n'est pas seulement décidée par la création

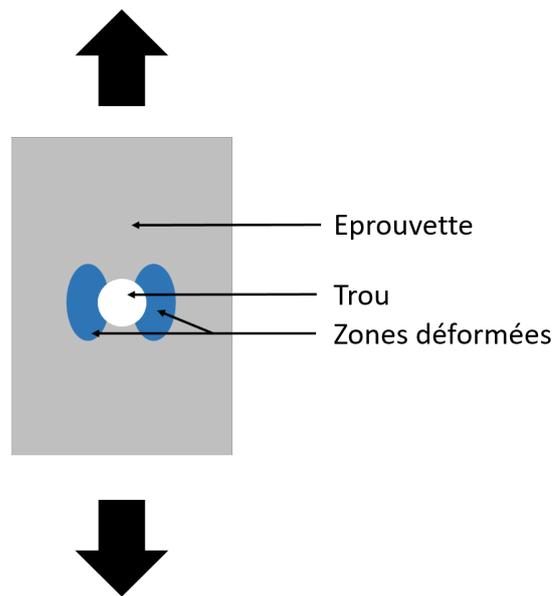


FIGURE 3.2 – Représentation schématique des zones où la déformation peut être observée lors d'essai de traction *in-situ*.

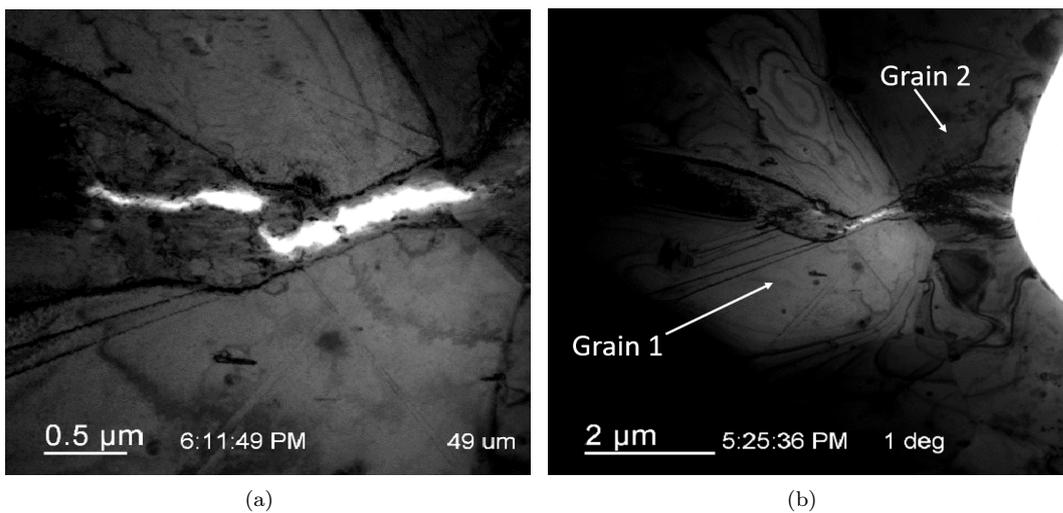


FIGURE 3.3 – Fissure intra-granulaire, ayant germé lors de l'essai de traction *in situ* pour deux grossissements différents. (a) On peut observer aux bords de ces fissures des traces de glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$ , ces fissures se trouvent à l'intérieur du Grain 1 et rejoignent à la droite de l'image le Grain 2. (b) Pour un grossissement plus important, on peut remarquer que le Grain 2 ne s'est pas aussi fortement fissuré que le Grain 1 alors qu'il se trouve au bord du trou d'électropolissage.

d'une fissure. En effet une fracture intra-granulaire peut apparaître comme observé sur la Figure 3.3, ou la germination d'une macule. Ces deux événements après germination accommodent la

majorité de la déformation, inhibant ainsi le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  présentes dans le grain. Le phénomène de fissuration intra-granulaire dans le grain observé est hautement probable du fait que le grain déformé est particulièrement difficile à déformer. Dans le cas présenté sur la Figure 3.3, le trou n'est pas voisin du grain déformé. Un grain entre le trou et le grain dur se déforme facilement, par glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  sans faire apparaître de fissure. En revanche, dans le grain dur, qui a du mal à accommoder la déformation, une fissure apparaît. Cette expérience est donc la parfaite illustration des mécanismes d'endommagement et rupture qui doivent se produire dans les alliages de zirconium.

La traction in-situ conduit au glissement de dislocations. Ces dernières étant contenues dans la lame, elles débouchent à la surface. Lors de leur glissement, elles cisailent les oxydes de surface laissant ainsi des traces de glissement. Ces traces sont d'un intérêt particulier du fait qu'elles correspondent à l'intersection du plan de glissement de la dislocation avec le plan de la lame. Elles permettent ainsi une caractérisation plus simple du plan de glissement.

## 3.2 Comportement dynamique des dislocations $\langle c + a \rangle$

Le dispositif expérimental ayant été introduit, les observations du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  vont maintenant être décrites. Le plan de glissement activé sera tout d'abord caractérisé puis la mobilité des dislocations sera étudiée. Enfin, les particularités du glissement seront décrites.

### 3.2.1 Plans de glissement

Comme expliqué dans la section méthode, les traces de glissement ont été utilisées afin de déterminer le plan de glissement. Toutes les traces de glissement examinées dans nos expériences correspondent à des plans pyramidaux de première espèce. Cette détermination est en accord avec la littérature [19,35,36,41–43] ainsi que nos observations post-mortem sur des échantillons massifs montrant ainsi qu'un artefact de la lame mince est peu probable. Dans chaque grain activé ici, plusieurs plans de glissement différents ont été déterminés. Sur la Figure 3.4, sont imagées trois dislocations (apparaissant horizontale) entre leurs traces de glissement (apparaissant obliques sur l'image). Deux plans différents de glissement sont visibles sur cette image et sur ce même grain, cinq plans sur les six plans  $\{10\bar{1}1\}$  possibles ont été activés (échantillon 2).

Les facteurs de Schmid des différents systèmes de glissements activés et activables ont été calculés pour le glissement prismatique  $\langle a \rangle$  et  $\pi_1 \langle c + a \rangle$ . Pour le glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  dans les plans prismatiques, le facteur de Schmid est toujours inférieur à 0.005. Les facteurs de Schmid des plans pyramidaux de première espèce où le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  a été observé sont répertoriés dans le Tableau 3.1. Seul le premier échantillon n'a pas activé le système de glissement ayant le plus haut facteur de Schmid (0.451). On remarque ainsi que les facteurs de Schmid sont très importants et compris entre 0.369 et 0.441 dû à l'orientation des axes  $\langle c \rangle$  des grains quasi colinéaires avec l'axe de traction. Du fait de cette orientation, les facteurs de Schmid des systèmes de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le plan pyramidal sont proches et le glissement dévié est ainsi observé pour chaque expérience. On trouve alors un rapport de cisssions résolues  $\frac{\tau_{\langle c+a \rangle}}{\tau_{\langle a \rangle}}$  environ égal à 74, ce qui est plus élevé que le rapport de cisssions critiques déterminé dans la littérature de 3,5 à température ambiante [43]. Ceci s'explique par le fait que la cisssion critique des dislocations  $\langle a \rangle$  n'a pas été obtenue lors de nos expérience car le seuil d'activation du glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  n'a pas été étudié. Le rapport de cisssions résolues obtenu est donc supérieur au vrai rapport de cisssion critique  $\frac{\tau_{\langle c+a \rangle}}{\tau_{\langle a \rangle}} \leq 74$ .

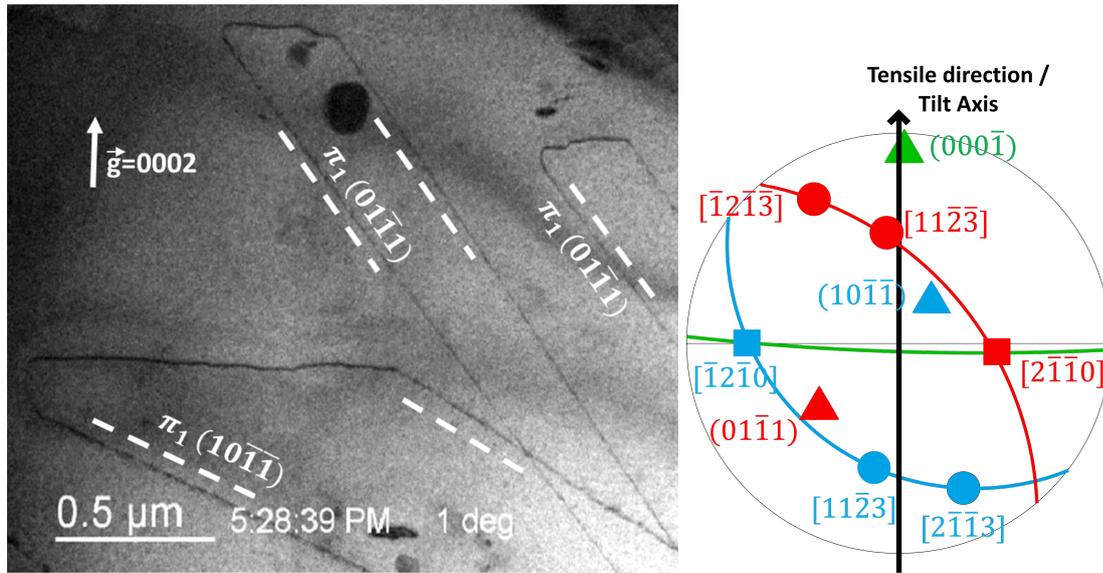


FIGURE 3.4 – Micrographie MET de l'échantillon 2 après glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Trois dislocations  $\langle c + a \rangle$  y apparaissent horizontales entre leurs traces de glissements  $\pi_1$  repérées par un trait blanc tireté. Apparaît à droite de la micrographie MET la projection stéréographique à tilt nul avec les directions d'intérêt indiquées. Aux ronds correspondent les possibles vecteurs de Burgers et aux carrés les directions  $\langle a \rangle$ . Les triangles sont les pôles correspondant aux plans de base en vert et de glissement en bleu et rouge.

TABLE 3.1 – Facteur de Schmid (FS) des systèmes de glissement activés dans les trois grains correspondant à trois échantillons différents où du glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  a été observé.

Échantillon	Plan de glissement	Burgers	FS	Burgers	FS
1	$(01\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.441	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.421
1	$(10\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.400	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.380
2	$(10\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.427	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.422
2	$(01\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.411	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.400
2	$(01\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.406	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.394
2	$(10\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.385	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.379
2	$(1\bar{1}01)$	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.385	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.379
3	$(10\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.429	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.420
3	$(1\bar{1}01)$	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.405	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.393
3	$(10\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.385	$\frac{1}{3}[\bar{2}113]$	0.377
3	$(01\bar{1}\bar{1})$	$\frac{1}{3}[11\bar{2}3]$	0.374	$\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}3]$	0.369

### 3.2.2 Mobilité de la dislocation $\langle c + a \rangle$

L'observation in-situ a pour avantage de mettre en évidence le mécanisme de glissement de la dislocation. Elle peut également permettre d'observer la germination d'une dislocation. Ce phénomène n'a pas pu être systématiquement observé mais le site de germination a généralement

été identifié comme étant un joint de grain comme le montre la Figure 3.5(a), suggérant ainsi que l'activation du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est le résultat de concentrations de contraintes aux joints de grain du fait de la déformation plastique des grains voisins. Peu de sources de dislocations  $\langle c + a \rangle$  intra-granulaires ont été identifiées, certaines obtenues dans l'échantillon 2 sont illustrées par la Figure 3.5(b). Il est à noter que cette source non identifiée (précipité ou hydrure) a été également le centre de la fissure intra-granulaire illustrée par la Figure 3.3.

Nous commençons premièrement à étudier quelle orientation de la dislocation contrôle le glissement de la dislocation totale.

En utilisant un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$ , il est facile de reconnaître la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$ , cette dernière apparaissant perpendiculaire à ce vecteur diffraction.

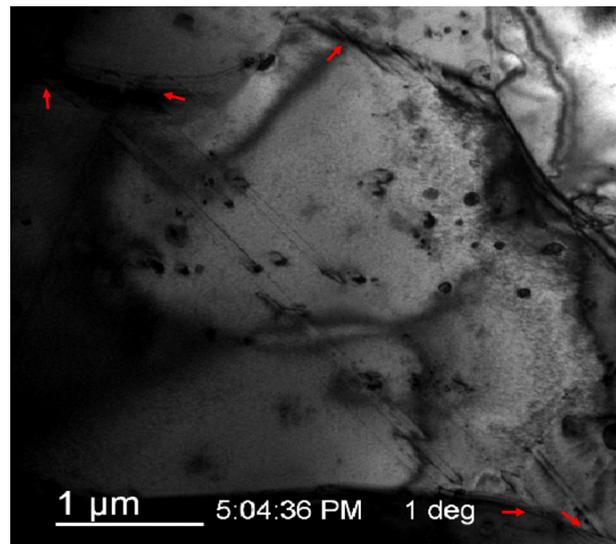
Pour une séquence de glissement analysée, la Figure 3.6 illustre en (a), (b) et (c) trois images de la même dislocation à des temps différents. Cette dislocation glisse dans un plan pyramidal de première espèce  $(01\bar{1}\bar{1})$ . En (d) et (e) sont représentées des soustractions d'images respectivement (a-b) et (b-c) imageant ainsi l'avancée de la dislocation. La dislocation dans sa position initiale apparaît en noir et la dislocation ayant avancé en blanc. Entre les images a et b, la dislocation a glissé de manière continue tout en gardant sa forme rectiligne. Ce glissement visqueux est plutôt lent ( $\Delta t = 10$  s).

La deuxième soustraction d'images illustre un glissement différent. En effet, après avoir glissé, la dislocation est épinglée en son milieu et seule une portion se met à avancer créant ainsi un macro décrochement au milieu de la ligne. Ces macro-décrochements peuvent varier en taille (ici entre 20 et 100 nm), correspondent à un alignement toujours suivant la direction  $\langle a \rangle$  de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  et, en analysant plus finement la ligne de la dislocation durant les étapes de glissement, on peut observer jusqu'à quatre portions de lignes orientées dans des directions  $\langle a \rangle$  parallèles et séparées par de tels macro-décrochements, preuve d'un épinglage assez fréquent. La raison de ces épinglages n'a pas pu être identifiée. Ces derniers doivent être dus à des défauts plus petits que la résolution du microscope comme des éléments en solution ou un changement de structure de cœur de la dislocation. Ces macro-décrochements avancent dans la direction parallèle à la trace de glissement et ne semblent pas se propager au reste de la dislocation.

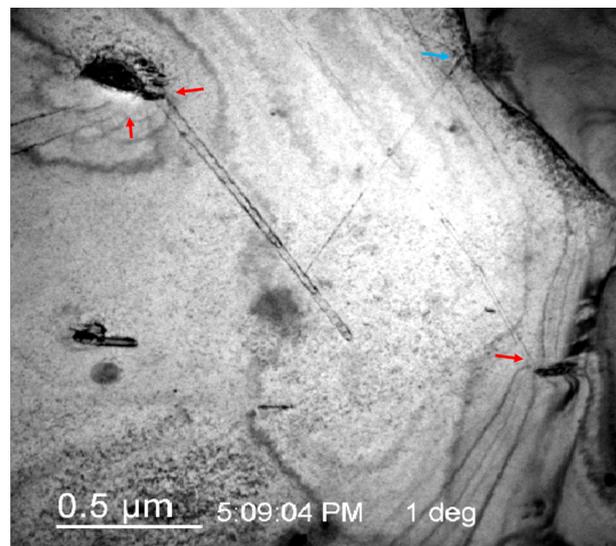
La dislocation imagée en Figure 3.6e) reste fortement ancrée jusqu'à se désépingler. Ce désépinglage conduit à un glissement brutal : la dislocation traverse en moins de 0.1 s (le temps d'acquisition de la caméra) le reste du grain (quelques microns).

Les autres directions sont plus mobiles, comme cela est observé pour une dislocation vis dans la Figure 3.7. On y voit qu'entre deux images successives la dislocation a pu faire un saut d'une longueur d'environ 123 nm montrant ainsi le caractère mobile de cette orientation.

Pour étudier la mobilité des dislocations en fonction de leurs orientations, on s'intéresse généralement à la vitesse de ces dernières. La vitesse d'acquisition de la caméra n'a pas permis de capturer un glissement fluide de la dislocation : la dislocation avance entre deux images successives ( $\Delta t = 0.1$  s) puis reste immobile pendant un certain temps et se remet ensuite à bouger (70% des intervalles de temps, la dislocation reste immobile). De ce fait, seule une borne inférieure pour la vitesse de la dislocation peut être estimée via la distance de saut  $\Delta L$  de la dislocation dans le temps d'acquisition qui est de 0.1 s. Nous nous sommes donc intéressés aux distances de saut en fonction de l'orientation de la dislocation : pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans sa direction  $\langle a \rangle$  et les autres directions de cette même dislocation. L'histogramme présenté dans la Figure 3.8 représente pour la même séquence de glissement que les images illustrées par la Figure 3.6 et 3.7 le nombre de sauts observés en fonction de leur distance, cette dernière étant



(a)



(b)

FIGURE 3.5 – Exemples de germinations de dislocations, en a) sont représentés sur une micrographie MET par des flèches rouges les centres de germination de dislocations  $\langle c + a \rangle$  aux joints de grains et en b) des sources de dislocation intra-granulaires avec des flèches rouges avec autour des sites de germination également aux joints de grains (flèche bleue). Ici trois sites sont indiqués par des flèches rouges.

discrétisée par intervalle de 10 nm. Le temps d'attente moyen de la dislocation entre deux sauts est estimé à environ 0.7 secondes et la durée de la séquence de glissement est de 42 s.

On remarque en analysant l'histogramme que la majorité des sauts sont courts que ce soit pour la direction  $\langle a \rangle$  ou les autres directions. Néanmoins, la direction  $\langle a \rangle$  a tendance à effectuer

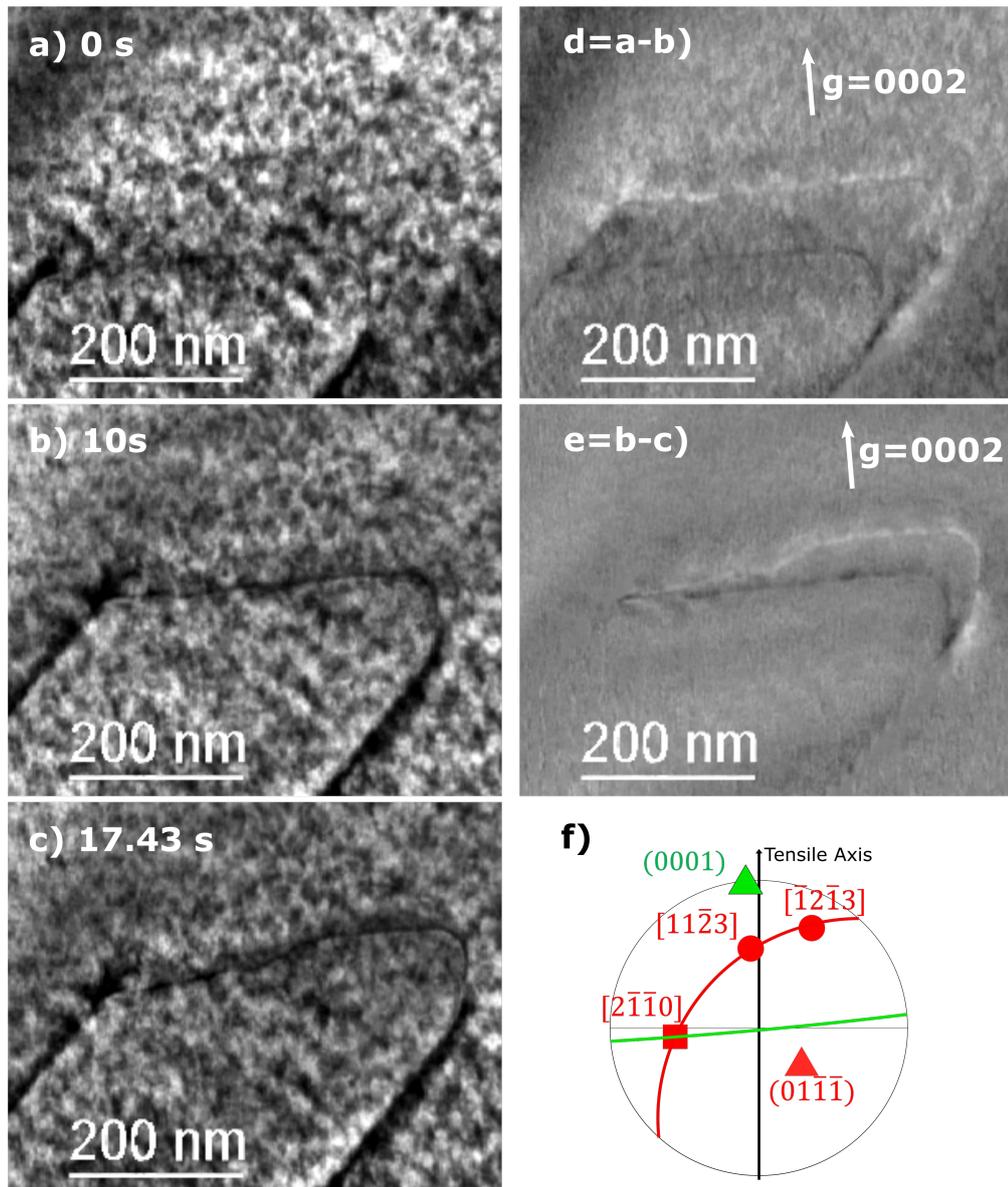


FIGURE 3.6 – Glissement d’une dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans un plan pyramidal de première espèce  $(01\bar{1}\bar{1})$ . Une même dislocation est imagée en a, b et c à trois temps différents. La dislocation en a et b est majoritairement orientée suivant une direction  $[2\bar{1}\bar{1}0]$  et en c suivant plusieurs directions  $[2\bar{1}\bar{1}0]$  colinéaires. Les images d et e sont des soustractions des images a-b et b-c respectivement.

des sauts plus courts. Ceci montre un glissement plus difficile pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans cette orientation. En analysant la séquence de glissement avec la vidéo, on comprend que les dislocations de direction  $\langle a \rangle$  sont plus lentes et que les dislocations ayant une direction autre adoptent une forme dépendante de la tension de ligne, c’est pour cela que sur l’histogramme elles ont tendance à effectuer des sauts courts, ces dernières devant accompagner les dislocations à

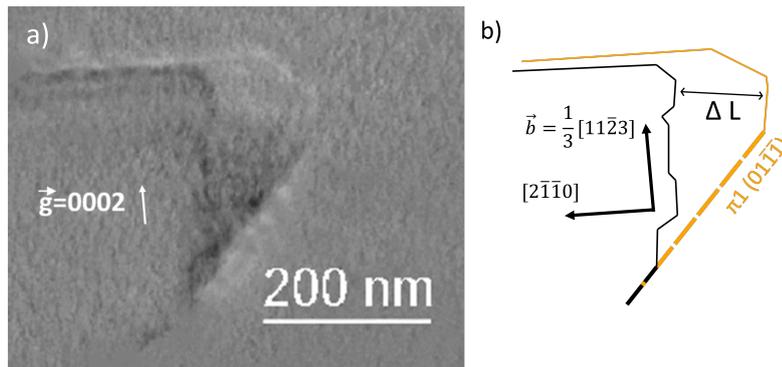


FIGURE 3.7 – Saut d’une dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis extraite de la même séquence que la Figure 3.6. En (a) est représentée une soustraction d’images espacées de 0.1 s où une dislocation vis saute d’une longueur de 123 nm, tandis que l’orientation  $\langle a \rangle$  n’a presque pas bougé. En (b) est représenté un schéma de cette soustraction d’images où la dislocation initiale apparaît en noire et la dislocation ayant glissé en orange avec les directions d’intérêt indiquées, les traces de glissement apparaissant avec des traits épais discontinus.

direction  $\langle a \rangle$ . Les sauts importants sont généralement obtenus pour les portions lignes qui n’ont pas une direction  $\langle a \rangle$  comme l’a illustré la Figure 3.7. On peut alors affirmer en observant cet histogramme que c’est bien la direction  $\langle a \rangle$  des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium qui contrôle le glissement de la dislocation totale.

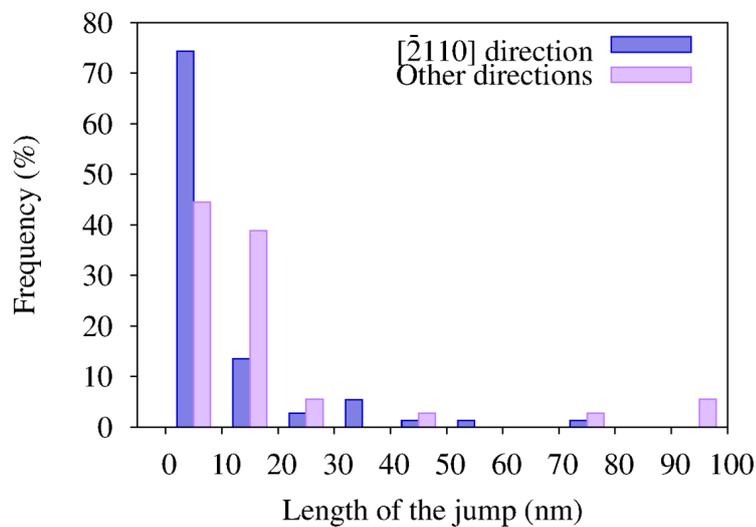


FIGURE 3.8 – Distribution de la distance de saut d’une dislocation  $\langle c + a \rangle$ . Les sauts sont mesurés entre deux images espacées de 0.1 s pour une séquence de 49.2 s comme illustré par la Figure 3.7b). En bleu est représentée la distribution des sauts de lignes ayant une direction  $\langle a \rangle$  (distribution pour 76 sauts) et en rose des autres directions (34 sauts).

### 3.2.3 Glissement dévié

Au cours de nos expériences, les grains se déformant dans nos échantillons ayant les axes  $\langle c \rangle$  quasi parallèles à l'axe de traction, les différents systèmes de glissement  $\pi_1 \langle c + a \rangle$  ont des facteurs de Schmid très proches. De plus, la forte concentration d'éléments en solution et de précipités dans le Zircaloy-4 génère des obstacles pour le glissement des dislocations ce qui peut conduire à des événements de glissement dévié.

Dans l'échantillon 3, une séquence de glissement dévié est décrite dans la Figure 3.9. On y observe une dislocation  $\langle c + a \rangle$  glissant dans un premier plan pyramidal de première espèce. L'interaction avec un défaut, ici représenté par un rond vert, conduit à un épingleage de la dislocation. La dislocation continuant d'avancer mais étant toujours épinglée, elle s'oriente suivant sa direction vis, cette dernière change ensuite de plan de glissement et continue d'avancer dans ce second plan. Les facteurs de Schmid des deux systèmes étant respectivement de 0.429 et de 0.393.

Un autre exemple de glissement dévié est représenté par la Figure 3.10. On y voit sur le schéma une dislocation glissant dans un plan pyramidal de première espèce  $(10\bar{1}\bar{1})$ , la dislocation avançant de bas en haut. La dislocation rencontre ici un obstacle (qui semble être un hydrure, ce dernier ayant une orientation particulière dans le plan de base) qui ancre ainsi la dislocation, la séparant de ce fait en deux segments : A et B. Le segment de gauche, A, continue de glisser dans le plan pyramidal de première espèce d'origine  $(10\bar{1}\bar{1})$  tandis que la partie B reste ancrée. En glissant, le segment de la dislocation A qui retient la dislocation à l'obstacle prend progressivement une orientation vis le long de sa ligne comme représenté au temps  $t_2$  avec le segment A'. Cette portion de la dislocation se met ensuite à dévier dans le plan pyramidal de première espèce  $(1\bar{1}0\bar{1})$  qui apparaît sur le schéma en rouge. La partie A restée dans le plan  $(10\bar{1}\bar{1})$  se met à glisser très loin, les traces de glissement illustrées ici s'étendent vers la partie A qui est à  $t_4$  très loin. La micrographie a) est ainsi représentée par le schéma à  $t_4$ . La partie B de la dislocation reste ici très ancrée : elle ne bouge pas sur un très grand intervalle de temps. En ajoutant de plus grands incréments de déplacement, la partie B se met alors à bouger dans le plan d'origine  $(10\bar{1}\bar{1})$ , elle glisse vers la gauche retrouvant ainsi l'autre bord du plan de glissement. Elle continue ensuite de glisser, dans son plan de glissement jusqu'à donner l'image illustrée en b). On reconnaît sur cette dernière de très nombreux décrochements orientés suivant la direction  $[\bar{1}2\bar{1}0]$ . Il est à noter, comme représenté en  $t_5$ , que la partie B de la dislocation a glissé dans le plan pyramidal de première espèce  $(10\bar{1}\bar{1})$  et a retrouvé la trace de glissement de gauche. La dislocation est encore reliée à l'hydrure avec la partie B', orientée comme la partie B suivant une direction  $\langle a \rangle$ . Le facteur de Schmid des deux systèmes de glissement est de 0.385.

Les événements de glissement dévié n'ont pas toujours été observés après rencontre d'un obstacle identifié comme pour l'événement illustré par la Figure 3.11. Sur cette Figure est observée aux deux premiers temps une dislocation  $\langle c + a \rangle$  ayant une forme de spirale. Cette forme n'est pas possible si la dislocation glisse dans un seul plan et a donc permis de mettre en évidence du glissement dévié. Le schéma ici représenté explique ce mécanisme. Trois plans sont identifiés : deux plans pyramidaux de première espèce parallèles  $\pi_1$  et  $\pi'_1$  et un plan pyramidal de première espèce non parallèle  $\pi''_1$ . Probablement dû au fait que la dislocation est encore proche du joint de grain, la dislocation a, sur une partie de sa ligne, dévié du plan pyramidal  $\pi_1$  vers le plan pyramidal  $\pi''_1$ . Sous l'effet de la contrainte, ce segment a de nouveau dévié dans un plan pyramidal de première espèce  $\pi'_1$  parallèle au plan de glissement initial illustrant ainsi un phénomène de double glissement dévié. De ce double glissement dévié, les portions de lignes aux intersections des plans ne peuvent glisser que dans la direction parallèle à la direction vis de la dislocation. On retrouve alors la structure décrite par le schéma avec deux portions lignes aux extrémités

A1 et A2 glissant dans le plan  $\pi_1$ , les lignes C1 et C2 sont les portions de ligne habitant dans le plan  $\pi_1''$  et le segment B réside dans le plan pyramidal  $\pi_1'$ . Après avoir avancé en conservant sa forme de spirale, la dislocation continue d'avancer et ne glisse plus que dans un unique plan : le plan  $\pi_1$ . Il est à noter que ce type de glissement est rarement observé, la dislocation  $\langle c + a \rangle$  ne s'orientant pas suivant une direction  $\langle a \rangle$ .

Tous les événements de glissement dévié observés ne sont pas aussi complexes, la majeure partie n'a pas été observée dans des conditions dynamiques mais les traces de glissement témoignent d'un mécanisme plus simple comme celui imagé par la Figure 3.12 où l'on peut voir deux paires de traces de glissement dévier dans un second plan. Il a été vérifié que l'intersection entre ces deux plans correspond bien à une direction  $\langle c + a \rangle$ , direction vis de la dislocation et donc de son vecteur de Burgers.

Tous les événements de glissement dévié ont eu lieu entre deux plans pyramidaux de première espèce. Aucun glissement dévié dans un plan de seconde espèce n'a été observé. Dans tous les événements observés, un obstacle était la raison d'un glissement dévié. Cette relation glissement dévié - obstacle s'explique par le fait que c'est la dislocation dans son orientation vis qui permet cet événement. L'orientation préférentielle de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  étant suivant la direction  $\langle a \rangle$  à  $75^\circ$  de la direction vis, la dislocation a peu de possibilité de faire du glissement dévié. L'épinglage par un obstacle est ainsi la meilleure manière pour réorienter la dislocation afin qu'elle prenne une orientation vis pouvant faire du glissement dévié.

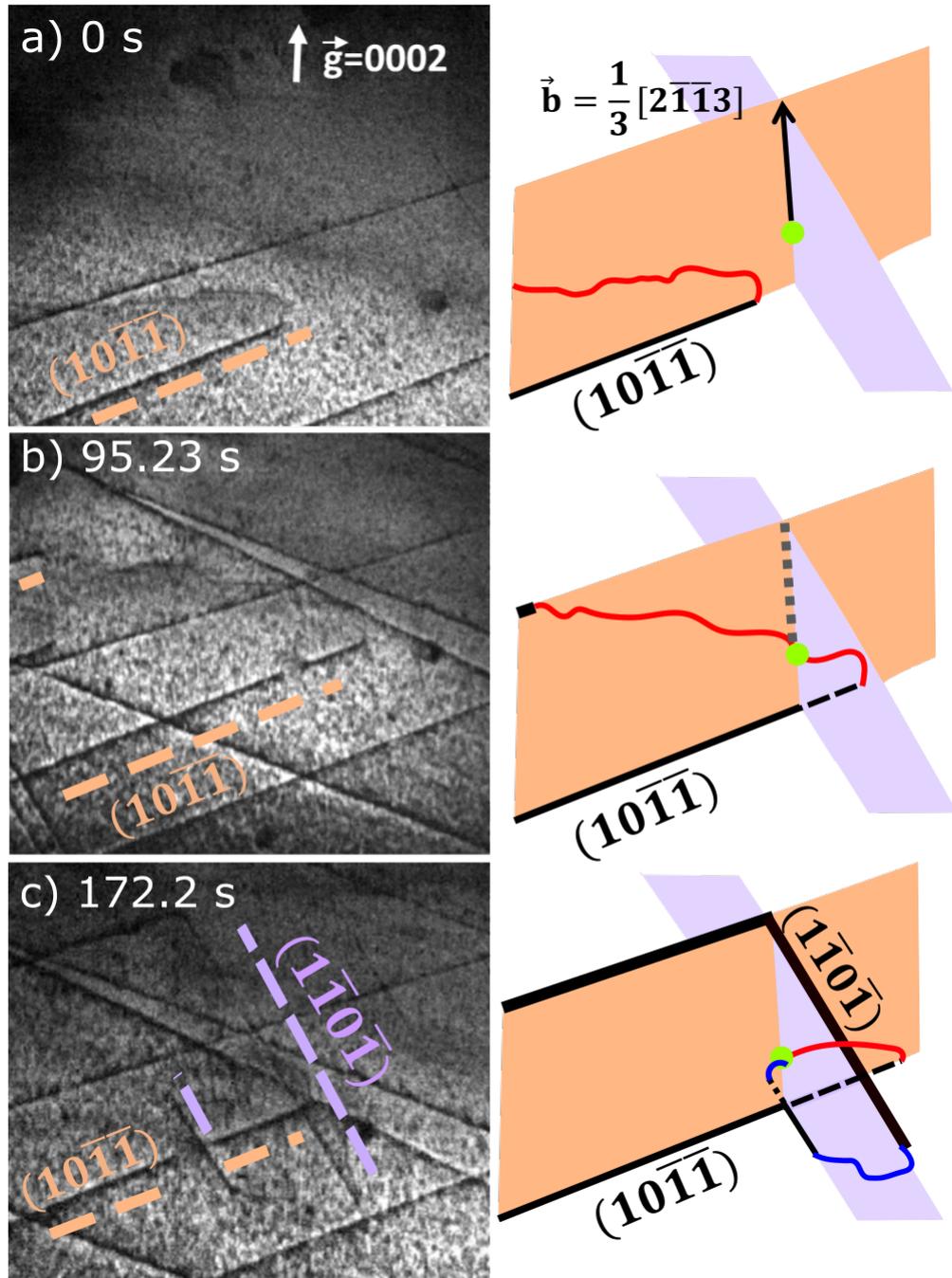


FIGURE 3.9 – Observation de glissement dévié. Les micrographies MET a), b) et c) montrent une dislocation  $\langle c + a \rangle$  à trois temps différents. Ces micrographies sont accompagnées de schémas permettant de comprendre les étapes de glissement. Lorsque la dislocation glisse dans son plan original, elle est représentée en rouge et en bleu dans le plan de déviation. Le rond vert représente le défaut ayant amené la dislocation à dévier.

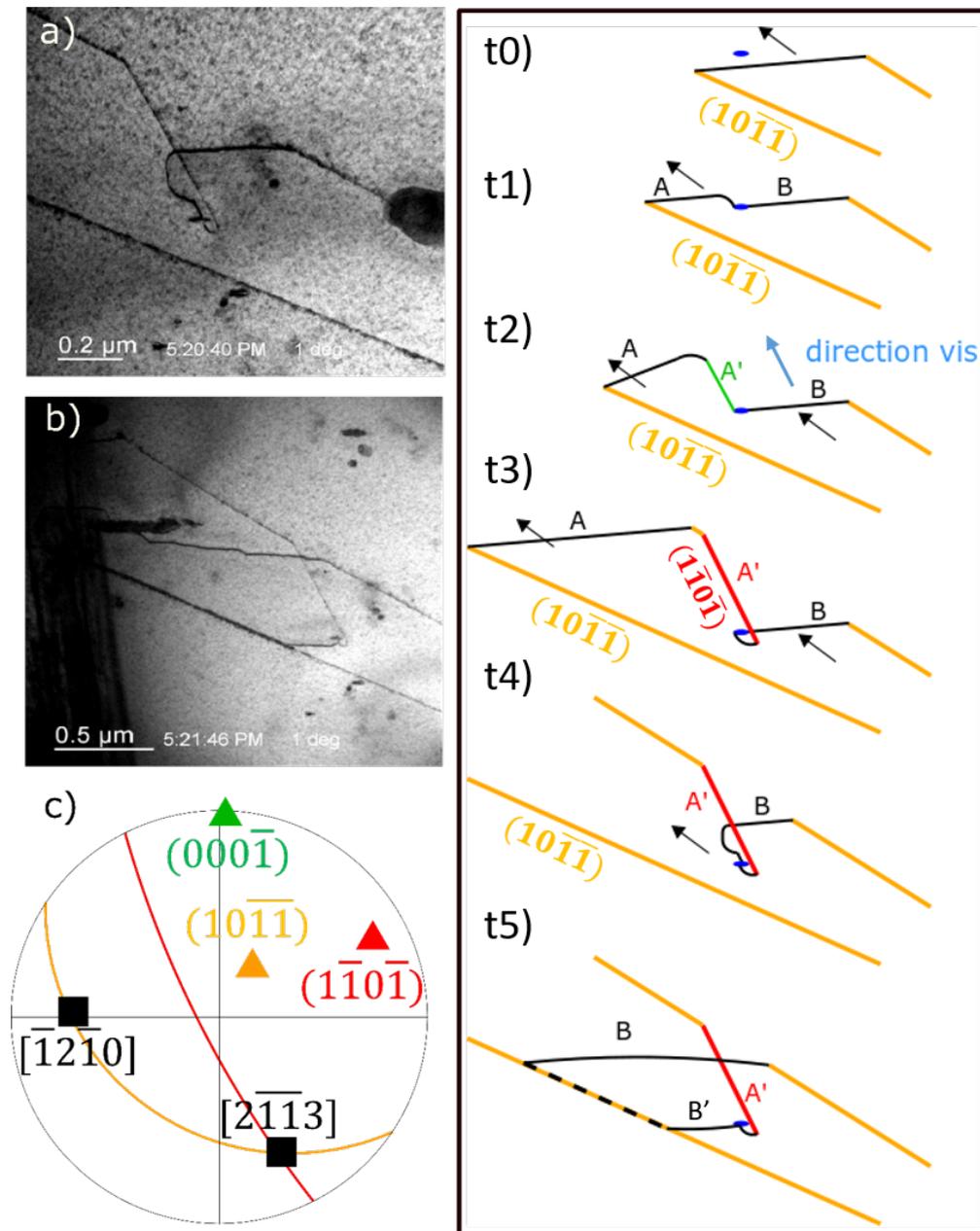


FIGURE 3.10 – Observations de glissement dévié. Les micrographies MET a) et b) montrent une dislocation  $\langle c + a \rangle$  à deux temps différents. Ces micrographies sont accompagnées d'un schéma de la dislocation en fonction de six temps différents  $t_0$ ,  $t_1$ ,  $t_2$ ,  $t_3$ ,  $t_4$  et  $t_5$  allant dans l'ordre chronologique,  $t_2$  et  $t_5$  correspondant respectivement aux micrographies a et b. Les traces de glissement sont représentées par des traits épais de couleur et les dislocations par des lignes plus fines noires.

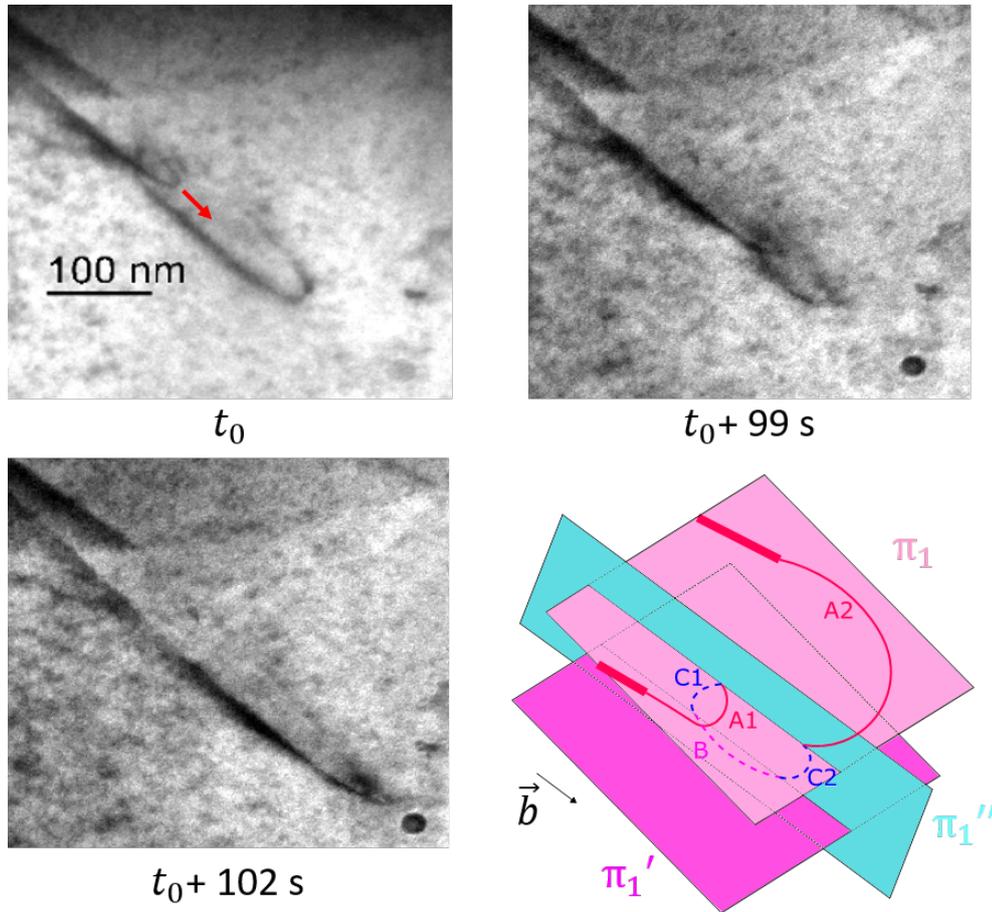


FIGURE 3.11 – Observations de glissement dévié. Les trois micrographies MET illustrent l'évolution d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  observée avec un vecteur diffraction  $\vec{g} = 0002$  à trois temps différent. Ces micrographies sont accompagnées d'un schéma expliquant cette forme de spirale observée.

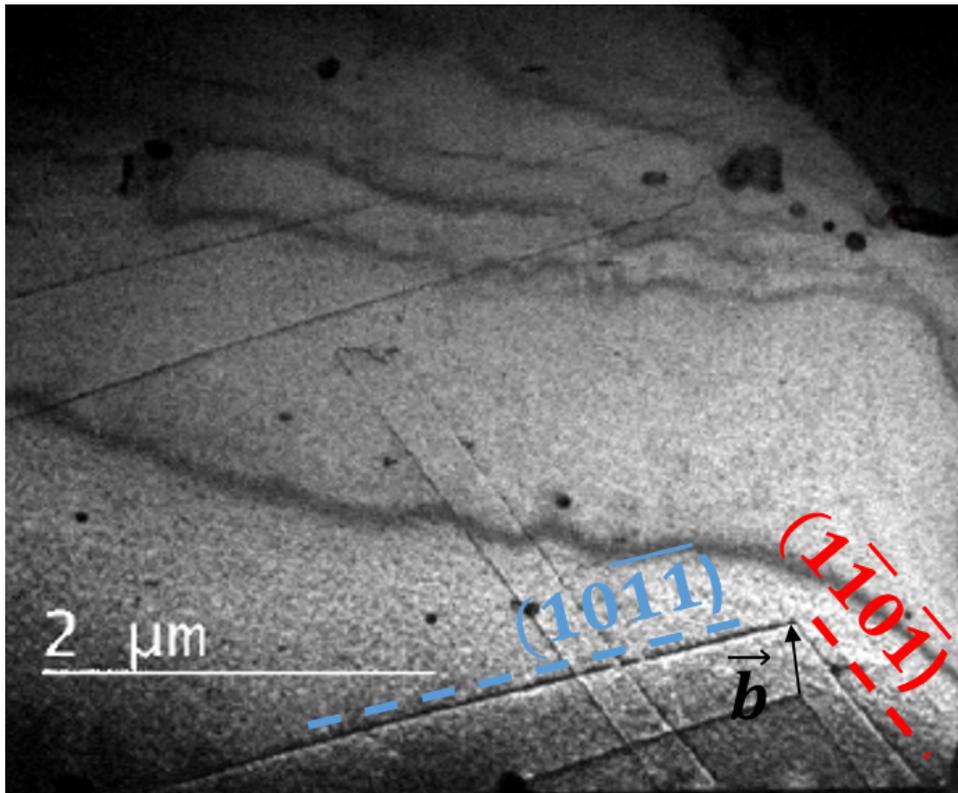


FIGURE 3.12 – Observations de glissement dévié : une dislocation  $\langle c + a \rangle$  est partie d'un joint de grain (en bas à droite), a glissé dans un plan pyramidal de première espèce  $(1\bar{1}0\bar{1})$  puis a dévié dans un second plan  $(10\bar{1}\bar{1})$ .

### 3.2.4 Relaxation

Au cours de certains essais de traction, la contrainte appliquée a été diminuée en réduisant le déplacement imposé à l'éprouvette via le porte-objet. Cela a conduit quelques dislocations ayant initialement glissé dans une direction donnée à glisser en arrière après le relâchement de la contrainte. Un tel phénomène, relativement surprenant, est illustré par la Figure 3.13 où l'on observe en (a) la dislocation ayant déjà glissé de droite à gauche et en (b) la dislocation après relâchement partiel de la contrainte. En (c) est illustrée la soustraction de ces deux images. On peut remarquer que la dislocation a gardé sa partie inférieure ancrée alors que la partie supérieure a eu un mouvement de recul dans son plan de glissement en adoptant une direction plus proche de son orientation vis qui n'a pas pu être déterminée : cette dernière est soit suivant une direction  $[1\ 1\ \bar{2}\ 3]$  ou une direction  $[2\ \bar{1}\ \bar{1}\ 3]$ , ces directions étant relativement proches. Ce retour en arrière de la dislocation peut s'expliquer par le fait que la dislocation vis a une énergie élastique plus basse et la tension de ligne tend donc à favoriser cette orientation. Une autre propriété que l'on peut extraire de cette observation est que la dislocation en retournant en arrière a résorbé la trace de glissement. Cela est une preuve que le glissement de la dislocation est parfaitement planaire. On peut souligner que sur cette observation la dislocation n'adopte pas une orientation préférentielle suivant  $\langle a \rangle$  : les orientations préférentielles  $\langle a \rangle$  voient probablement une force de friction de réseau trop forte pour qu'un tel phénomène de relaxation soit possible pour elles.

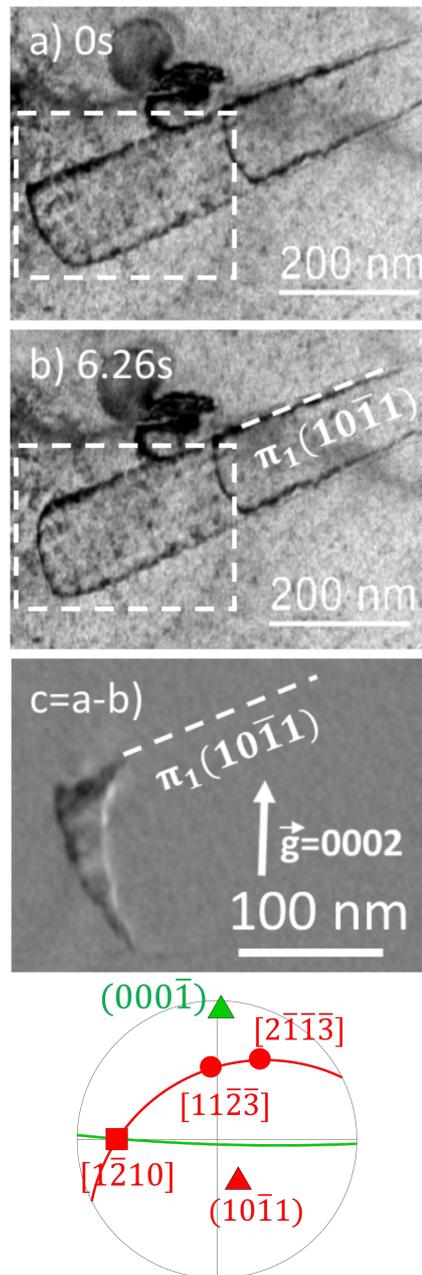


FIGURE 3.13 – Relaxation d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  lorsque le déplacement appliqué est diminué. Entre a) et b) la dislocation glisse dans le sens contraire à son sens de glissement initial. La soustraction d'image en c) est la soustraction d'images de la zone spécifiée dans les deux images MET précédentes avec l'encadré blanc. La projection stéréographique montre que la dislocation se réoriente dans son orientation vis.

### 3.3 Compétition avec le maillage

Outre la fissuration de l'éprouvette, un autre critère limitant l'observation du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est la création d'une macle dans le grain. En effet, lorsqu'une macle a germé et crû dans le grain, elle accommode la déformation grâce à l'activation de systèmes de glissement plus faciles tel le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  dans des plans prismatiques en son sein. De plus, avec le phénomène d'épaississement, elle va ensuite grandir jusqu'à recouvrir l'entièreté du grain. Plusieurs macles ont été observées durant nos expériences dont l'une a pu être complètement indexée. Nous allons ensuite discuter de l'interaction macle-dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec la germination d'une macle dans un grain "dur" (mal orienté pour le glissement de dislocation  $\langle a \rangle$ ) qui a créé avec son apparition des dislocations  $\langle c + a \rangle$ .

#### 3.3.1 Propagation et épaississement de macle

Dans notre éprouvette 3 où ont eu lieu les premières observations de glissement dévié, une macle a germé dans le grain. La vitesse d'acquisition de la caméra a permis d'obtenir des vitesses de propagation de la macle (avancée du front de macle dans la direction de cisaillement) et par la suite des vitesses d'épaississement (avancée des joints de macles dans la direction perpendiculaire au cisaillement). La Figure 3.14 illustre différentes micrographies MET extraites de la vidéo à plusieurs temps montrant différentes étapes de la déformation par maillage. On peut remarquer que les intervalles de temps  $\Delta t$  sont relativement courts entre les trois premières images et plus long pour la dernière : la vitesse de propagation de la macle est plus élevée que la vitesse d'épaississement.

On remarque sur les deux premières images qui correspondent à l'étape de propagation que le front de la macle apparaît diffus contrairement au bord de la macle qui apparaît plus contrasté. Sur les quelques images de propagation de la macle, une vitesse moyenne de  $3,2 \mu\text{m/s}$  a été déterminée. La différence entre la dernière micrographie et la précédente montre le phénomène d'épaississement : la macle grandit de manière à recouvrir l'entièreté du grain. La vitesse d'épaississement est bien plus lente et a été déterminée comme égale à  $33,3 \text{ nm/s}$ .

Les projections stéréographiques à tilt nul en e) et f) ont permis de déterminer le système de maillage activé. La macle est une macle de tension : elle est de type  $[10\bar{1}1](10\bar{1}\bar{2})$ . Ce système de maillage activé est en accord avec les travaux de Jensen et Backofen [37] : dans le Zircaloy-4, contrairement au zirconium pur, seul ce système de maillage est observé.

#### 3.3.2 Interaction macle-dislocations $\langle c + a \rangle$

Avant que n'apparaissent les premières dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans un grain difficile, une macle a germé dans le grain comme illustré par la Figure 3.15. Avant la création de la macle, le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  a été observé dans le grain voisin, les dislocations se concentrant au niveau du joint de grain. Cette concentration de contrainte au joint de grain a été nécessaire à la germination de la macle. La germination de la macle a été ici très rapide, la vitesse d'acquisition de la caméra n'a permis d'obtenir que des images "avant-après". Les images (a) et (b) de la Figure 3.15 montrent le grain vierge de déformation et le grain après la germination de la macle. Le grain "dur" (mal orienté pour le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$ ) apparaît clair et le grain plus sombre en haut à gauche de l'image est le grain où le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  a été observé. On peut remarquer sur ce dernier grain de nombreuses lignes de dislocations preuves du glissement de dislocations  $\langle a \rangle$ . Sur la seconde image, on remarque la macle qui est apparue.

Comme on peut le voir sur la troisième image de la Figure 3.15, la germination de cette macle a donné naissance à des dislocations à composantes  $\langle c \rangle$  qui sont probablement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . En effet, les dislocations  $\langle c \rangle$  glissent dans des plans ayant leurs normales orientées dans le plan de base, conduisant à un facteur de Schmid quasi nul, en outre les dislocations  $\langle c \rangle$  sont connues pour être sessiles or les dislocations observées glissent. Le grain ayant été recouvert totalement par la macle, il n'a pas pu être possible de caractériser proprement ces dislocations après déformation. De nombreuses dislocations de ce type sont observables de part et d'autre de la macle. Les traces des dislocations  $\langle c + a \rangle$  prennent origine au bord de la macle. Lors de l'épaississement, il est à noter que la macle avait une interaction répulsive avec les dislocations, ces dernières étant comme poussées par la macle.

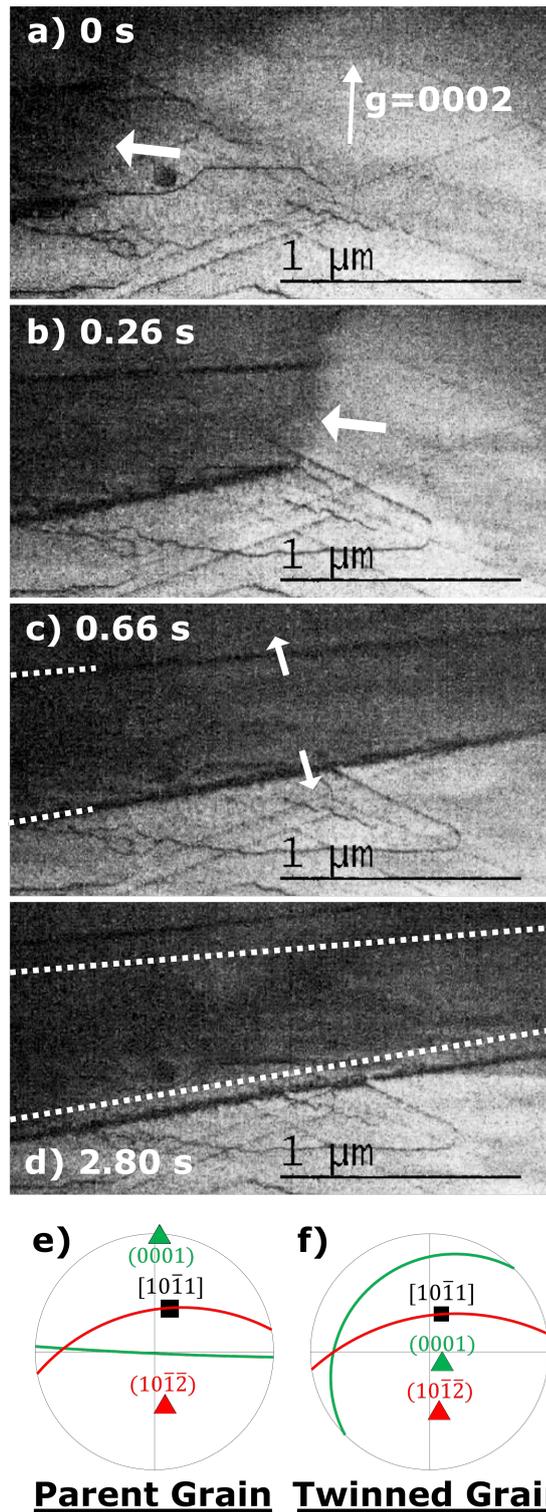


FIGURE 3.14 – (a-d) Micrographies MET prises à quatre temps différents illustrant la propagation et l'épaississement d'une macle dans un échantillon de Zircaloy-4 TREx. Les flèches blanches larges indiquent sur les deux premières images le front de macle, les flèches blanches sur la troisième image indique la direction d'épaississement et la ligne droite blanche segmentée représente le joint de macle avant l'épaississement. Les projections stéréographiques en (e) et (f) illustrent l'orientation du grain où la macle a germé et l'orientation de la macle.

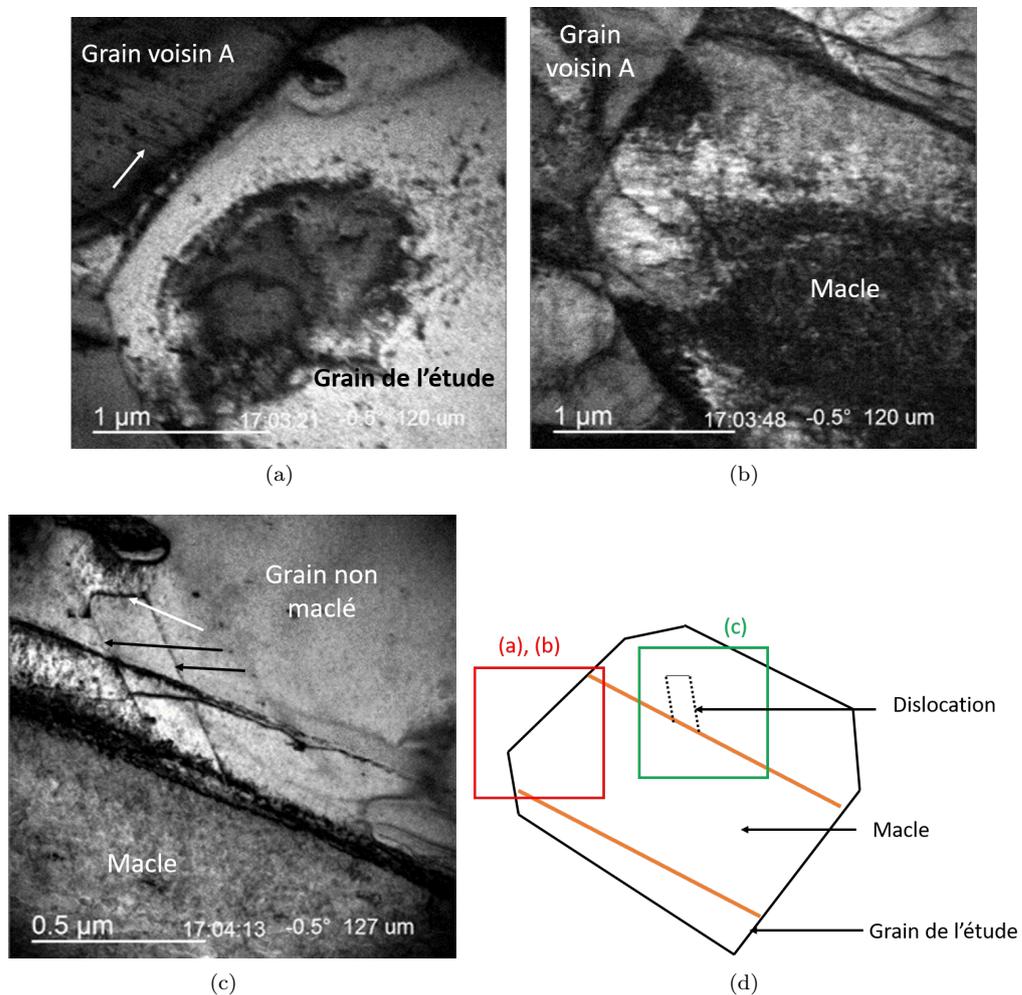


FIGURE 3.15 – Micrographies MET d'un grain où la germination d'une macle a été observée : (a) le grain est vierge de déformation, des traces de dislocations  $\langle a \rangle$  (flèche blanche), s'annihilant au joint de grain dans le grain voisin A, sont visibles en haut à gauche de l'image. (b) Pour la même position après 27 secondes, une macle a germé dans le grain, les bords de la macle sont visibles en haut à droite de l'image. (c) Observation d'une dislocation à composante  $\langle c \rangle$  indiquée par une flèche blanche entre ces traces de glissement indiquées par des flèches noires prenant naissance au bord de la macle, cette dernière est ensuite poussée par la macle et continue de glisser dans son plan. (d) Représentation schématique du grain de l'étude au même temps que la micrographie (c), les positions où ont été observé le grain avant et après la germination de la macle (micrographies (a) et (b)) sont représentées par l'encadré rouge et en (c) par l'encadré vert.

### 3.4 Discussion

#### Effet des éléments d'alliage dans le zirconium

Une étude similaire d'observation *in situ* du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  a été réalisée par Daniel Caillard et a été publiée avec les résultats de notre étude dans un article commun [80]. Les échantillons étaient composés de zirconium pur (Composition chimique : Zr, Fe=0.019 % massique et O=0.024 % massique). Les grains de ce matériau sont plus grands (70  $\mu\text{m}$ ), et des éprouvettes ont été prélevées de manière à ce que l'axe  $\langle c \rangle$  des grains soient suivant l'axe de traction. Les essais ont également été conduits à température ambiante

Les observations montrent, comme les nôtres, que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  s'orientent préférentiellement suivant une orientation  $\langle a \rangle$  et que les dislocations glissent uniquement dans des plans pyramidaux de première espèce.

Les différences notables entre ces deux expériences sont premièrement que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  apparaissent plus rectilignes dans le zirconium pur : elles forment moins fréquemment des macro-décrochements. Deuxièmement, du glissement dévié est également observé mais a priori moins fréquemment. Cette première observation montre ainsi que la composition chimique a un effet sur les décrochements. Des objets nanométriques qui ne sont pas observés stabilisent ces décrochements. On peut supposer que ce sont des éléments en solution solide qui ont créé un épingleage sur la dislocation. A contrario, ce sont les obstacles plus grands tels les précipités qui sont la raison d'observations de glissements déviés plus fréquents dans le Zircaloy-4. Du glissement dévié a également été observé dans des alliages Zr-2.5Nb dans les expériences de Long et al. [42, 48, 49] montrant ainsi que le glissement dévié peut s'observer dans le zirconium allié.

#### Comparaison Zirconium - Magnésium

Le blocage des dislocations  $\langle c + a \rangle$  suivant leur direction préférentielle  $\langle a \rangle$  a donc été déterminé ici. Cette orientation n'est pas sessile mais a un glissement plus lent que les autres orientations de la dislocation. Cette orientation est due à une forte force de friction avec le réseau et stabilise ainsi la dislocation dans cette orientation en formant de longs segments rectilignes dans cette direction. Ce comportement s'observe dans le Zircaloy-4 et dans le zirconium pur. Dans le magnésium un tel comportement avait également été observé [81]. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissant dans le magnésium s'orientent suivant une direction  $[1 \bar{1} 0 0]$  et se dissocient de manière non conservative dans le plan de base [70]. Les dislocations peuvent ainsi se bloquer lorsqu'elles sont dans cette direction. Ce mécanisme a été plus finement étudié par microscopie électronique en transmission haute résolution (HRTEM) [71] et des simulations atomistiques valident ce mécanisme. Néanmoins, l'observation de telles stabilisations est corrélée avec l'apparition de boucles prismatiques avec une faute d'empilement  $I_1$ . De telles boucles n'ont pas été observées dans nos expériences, laissant supposer que ce mécanisme de dissociation non conservative ne semble pas être la raison de la stabilisation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium dans la direction  $\langle a \rangle$  à température ambiante. Cela pourrait s'expliquer par une énergie de faute  $I_1$  plus importante dans le zirconium que dans le magnésium (148 contre 18  $\text{mJ/m}^2$  [52]). Une telle énergie de faute serait source d'une dissociation sur une bien plus courte distance dans le zirconium. Si l'on considère ce mécanisme de dissociation non conservatif dans le zirconium, on pourrait alors s'attendre à ce que le mouvement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  soit plus facile que dans le magnésium, la distance de dissociation étant plus courte. Avec une distance de dissociation plus courte, un glissement par germination de doubles décrochements ou par re-combinaison locale est possible, amenant aux deux types de mouvement observés : un glissement visqueux ou un glissement rapide.

Ce mécanisme de dissociation non conservative n'a pas été le seul avancé pour expliquer le blocage de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  lors de son glissement dans le magnésium. Il a été observé dans le magnésium que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  peuvent émettre une dislocation  $\langle a \rangle$  qui glisse dans le plan de base laissant derrière elle une dislocation  $\langle c \rangle$  sessile [76] et un blocage complet de la dislocation. Néanmoins, nos observations ont conclu à des observations de dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissant sans se bloquer et sans observation de dislocation  $\langle c \rangle$ , un tel mécanisme apparait alors peu probable à part si les deux dislocations demeurent très proches l'une de l'autre avec une forte interaction attractive entre elles.

Un mécanisme qui apparait plus probable est celui que proposent les travaux de Numakura et al. [61, 62]. La dislocation dispose d'une structure à son état fondamental étalée dans le plan pyramidal de première espèce et basal et d'une structure métastable étalée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce. A partir d'une contrainte appliquée seuil, la dislocation dissociée sur deux plans se transforme en une dislocation planaire qui est glissile.

Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ne glissent pas de la même manière que dans le magnésium, le glissement étant restreint aux plans pyramidaux de première espèce, néanmoins le blocage se fait dans la même direction (intersection du plan de glissement et le plan de base) et du glissement est observé par création de macro décrochements. Les raisons du blocage semblent néanmoins différentes entre le zirconium et le magnésium et restent à éclaircir.

La création de macro-décrochements suivant des directions  $\langle a \rangle$  rectilignes a été observé dans nos expériences. Un tel phénomène a également été observé dans le magnésium [81]. Ce phénomène pourrait s'expliquer via une interaction avec les éléments en solutions ou par la stabilisation de plusieurs types de configurations de cœur de dislocation. La structure de cœur n'apparait ici pas facilement glissile et ces décrochements ne se recombinent pas pour former une dislocation purement rectiligne.

## Conclusion

L'observation du glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le Zircaloy-4 TREx a été réalisé à température ambiante grâce à des essais de tractions in situ en MET. Ces expériences montrent l'orientation particulière des dislocations  $\langle c + a \rangle$  s'alignant dans la direction  $\langle a \rangle$  sous contrainte, en accord donc avec nos observations post-mortem précédentes ainsi que celles disponibles dans la littérature. Cette orientation  $\langle a \rangle$  glisse plus difficilement que les autres et contrôle la mobilité de la dislocation totale. Cette orientation préférentielle peut se faire suivant plusieurs portions rectilignes via des macro-décrochements. Du glissement dévié a été observé entre des plans pyramidaux de première espèce uniquement, sans détection de glissement dans les plans pyramidaux de seconde espèce. La compétition entre le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  et le maillage a été observée dans ces expériences réalisées à température ambiante, de nombreuses macles étant présentes dans nos observations.

## Chapitre 4

# Méthodes et Outils de Modélisation

Les observations MET illustrent le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  à une échelle microscopique. La raison du blocage des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans leur direction  $\langle a \rangle$  n'a pas été déterminée. Le glissement des dislocations est une propriété contrôlée par le cœur de ce même défaut. Afin d'accéder à cette échelle, soit des observations encore plus fines qu'à l'échelle accessible en MET conventionnelle doivent être réalisées (en MET haute résolution par exemple) soit des simulations à l'échelle atomique. Ces simulations permettent alors d'observer différents comportements de la structure de cœur de la dislocation qui pourraient expliquer la raison du comportement observé expérimentalement. Afin de connaître les propriétés que l'on peut extraire des simulations atomistiques, les techniques de simulation sont premièrement introduites dans la section 4.1. Dans la section 4.2, les méthodes utilisées pour modéliser les dislocations sont décrites. Les outils utilisés pour visualiser la déformation induite par les dislocations sont ensuite introduits dans la section 4.3. Les simulations atomistiques s'appuyant sur différents modèles énergétiques, ces derniers sont décrits dans la section 4.4. Cette section propose une vue d'ensemble des propriétés qu'elles décrivent. Néanmoins toutes ne sont pas connues, telles les énergies de faute d'empilement dans les plans possibles de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Comme décrit dans le chapitre 1.4, la présence d'une faute d'empilement dans un plan possible de glissement permet une dissociation en deux dislocations partielles, cette dernière conduisant à une structure plus ou moins stable en fonction de l'énergie de cette faute d'empilement. Pour cette raison, les fautes d'empilements dans les plans possibles de glissement tels les plans pyramidaux de première ou de seconde espèce et le plan prismatique sont finalement étudiées dans la section 4.5.

### 4.1 Techniques de simulation

Dans cette section sont décrites les différentes techniques de simulations employées lors de cette thèse, ces dernières s'appuyant sur le logiciel LAMMPS. Les calculs en statique moléculaire sont réalisés dans cette thèse de manière à obtenir les différentes structures de cœur possibles de la dislocation et leurs énergies, les barrières de Peierls dans le plan de glissement et les contraintes de Peierls. Les calculs en dynamique moléculaire, visent plutôt à établir des lois de glissement et d'observer les mécanismes qui gouvernent ce glissement.

### 4.1.1 Statique moléculaire

Les calculs en statique moléculaire sont des calculs cherchant à minimiser l'énergie totale d'un système en relaxant la position de chaque atome. Les positions atomiques sont modifiées étapes par étapes suivant les estimations des forces de chaque atome et de l'énergie totale du système. La structure est dite relaxée après satisfaction d'un critère d'arrêt. Ce critère peut s'appliquer sur les forces ou sur les énergies. Dans cette thèse, le critère d'arrêt est défini sur les forces et est de  $10^{-4}$  eV/Å. Ces calculs ne prennent pas en considération la température qui est donc de 0 K. On peut ainsi obtenir la structure atomique relaxée d'un défaut correspondant à un minimum d'énergie possible. Ce minimum énergétique ne correspond pas forcément à l'état fondamental du défaut : la minimisation est dépendante de la condition initiale et l'algorithme va stabiliser la première structure stable rencontrée au cours de ces étapes de réarrangements atomiques du défaut étudié. Cette méthode s'applique aux potentiels empiriques comme aux calculs *ab initio*.

La minimisation de l'énergie est locale et la structure relaxée peut ne pas être la structure à son état fondamental. En effet, une structure métastable se situe dans une cuvette énergétique. Si cette cuvette est assez profonde, la relaxation d'une structure initiale peut conduire à un état métastable. Il est alors important de chercher à obtenir toutes les structures stables possibles afin de déterminer laquelle est l'état fondamental et tout les états stables possibles pour ce défaut, ces derniers pouvant gouverner certains mécanismes comme nous le verrons dans la suite de ce manuscrit.

Il est également possible d'appliquer une contrainte sur le cristal. Cette contrainte peut ainsi amener une dislocation à changer de structure de cœur ou/et à glisser. Si la contrainte appliquée à une dislocation est plus importante que la contrainte de Peierls, la dislocation va avancer dans son plan de glissement indéfiniment.

### 4.1.2 Calcul de barrière énergétique

Il est possible, en utilisant des simulations atomiques, de déterminer la barrière énergétique à franchir pour passer d'une structure stable à une autre. Ces calculs permettent ainsi de déterminer la barrière de Peierls que doit franchir une dislocation pour avancer dans son plan de glissement. Ces calculs se font suivant la même méthode que la statique moléculaire et peuvent même se faire sous contrainte. La technique utilisée pour réaliser cette dernière est la méthode NEB (Nudged Elastic Band) [82]. Deux états doivent être fixés : l'état initial et l'état final. La méthode NEB consiste à créer une série d'"images" entre ces deux états, à chaque "image" correspond une coordonnée de réaction. Ces images sont connectées entre elles par des ressorts dans l'espace des configurations. Chaque image est ensuite relaxée suivant un algorithme de statique moléculaire. Afin d'éviter que les images intermédiaires ne retournent dans l'état initial ou final, seule la composante des forces perpendiculaire à la tangente au chemin défini est considérée. En utilisant l'énergie de chacune de ces images en fonction de la coordonnée de réaction, il est possible d'établir le profil énergétique de la barrière à franchir pour aller de la structure initiale à la structure finale. Plus le nombre d'images intermédiaires est grand plus on est assuré de connaître tous les points cols et les minimas correspondant à des structures métastables le long de cette barrière. Ce chemin correspond à une transition possible mais il n'est pas non plus exclu qu'une transition différente de plus basse énergie soit possible.

### 4.1.3 Dynamique moléculaire

Contrairement aux calculs en statique moléculaire, les calculs en dynamique moléculaire font intervenir la température et le temps. Les positions atomiques sont modifiées en intégrant les équations de mouvement de Newton suivant une intégration de Verlet [83]. L'équation du mouvement est régie par la deuxième loi de Newton [84]  $\vec{f}_i = m_i \vec{a}_i$  où la force sur un atome  $i$  est  $\vec{f}_i = -\delta V(\{\vec{r}_i\})/\delta \vec{r}_i$  où  $V$  est le potentiel énergétique,  $r_i$  la position d'un atome et l'accélération  $\vec{a}_i = d^2 \vec{r}_i / dt^2$ . L'intégration ne se faisant pas d'une manière continue, un pas de temps court doit être défini. Dans nos simulations, le pas de temps  $\Delta t$  est égal à 2 fs. Pour chaque atome sont ainsi définies une position et une vitesse qui évoluent suivant cette intégration dans le temps.

La température en dynamique moléculaire est fixée par l'énergie cinétique du système qui est donnée par la relation  $\frac{1}{2} N k_B T = \sum_i \frac{1}{2} m_i v_i^2$ . Cette température est initialisée en ajoutant une vitesse sur chaque atome suivant une distribution aléatoire dont la moyenne correspond à la température cible. Cette température cible est deux fois plus élevée que la température souhaitée à cause de l'équipartition de l'énergie d'excès en énergie cinétique et en énergie potentielle. Cette distribution aléatoire est donnée suivant une "graine" donnée qui génère un ensemble de nombres aléatoires. Chaque simulation dépend ainsi de cette "graine". Nos simulations ne pouvant se faire sur une durée infinie, afin de déterminer une vitesse moyenne correcte, plusieurs simulations différentes de courtes durées sont réalisées via l'utilisation de différentes "graines".

L'ajout de la température peut permettre de fournir à une structure stable l'énergie nécessaire permettant de franchir une barrière énergétique par activation thermique. L'ajout de la température permet ainsi d'explorer plus largement le catalogue des structures possibles pour un défaut, sans forcément rester "coincé" dans le minimum obtenu par simple relaxation de statique moléculaire comme celui observé dans le magnésium avec la dissociation non conservative de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans le plan de base via une faute d'empilement  $I_1$  [74]. Pour cette raison, des simulations avec un thermostat ont été réalisées afin d'obtenir la structure à l'état fondamental.

## 4.2 Modélisation des dislocations

Les simulations atomistiques se réalisent sur des boîtes d'un nombre  $N$  d'atomes définies par ses vecteurs de périodicité  $\vec{U}_1$ ,  $\vec{U}_2$  et  $\vec{U}_3$ . Il est possible d'appliquer à cette boîte des conditions aux limites périodiques : les atomes du motif sont alors dupliqués suivant les vecteurs de périodicité dans les directions de périodicité de la boîte.

L'introduction d'une dislocation dans un cristal parfait génère une réorganisation des atomes de la boîte. L'introduction d'une seule dislocation n'est pas compatible avec les conditions périodiques : les atomes de part et d'autre de la dislocation étant décalés, les atomes aux deux extrémités de la boîte sont également décalés et ne peuvent plus être parfaitement raccordés par périodicité. La Figure 4.1(a) illustre ce phénomène avec une dislocation coin : un demi plan a été enlevé pour la partie inférieure de la boîte de simulation et on peut remarquer que les plans contenant les atomes du cristal ne se raccordent pas si l'on duplique la boîte suivant  $y$ . Ce type de problème n'est pas spécifique à la dislocation coin mais existe quelque soit le caractère de la dislocation, même vis.

Afin de résoudre ce problème, il est possible d'introduire un dipôle de dislocations. Les deux dislocations introduites ont un vecteur de Burgers opposé. De cette manière, si l'on trace un circuit de Burgers autour de la boîte entière, on retrouvera un vecteur de Burgers nul preuve que la boîte peut se dupliquer périodiquement suivant toutes les directions. La Figure 4.1(b) illustre ce deuxième cas.

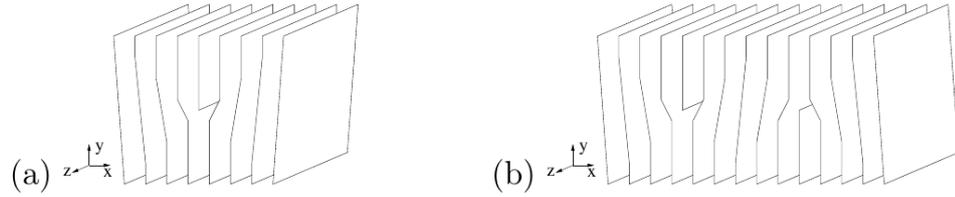


FIGURE 4.1 – Représentation schématique (a) d’une dislocation coin isolée et (b) d’un dipôle de dislocations coins. Un problème de raccordement des plans atomiques est observable pour la Figure (a).

Comme le montre la Figure 4.1(a), la dislocation génère également à longue distance un champ élastique qui induit un déplacement. Ce déplacement évolue en  $\ln(r)$  [8] où  $r$  est la distance séparant le point d’intérêt du centre de la dislocation. On comprend ainsi que, même à longue distance, ce dernier ne s’annule pas. Ce déplacement doit ainsi être pris en compte dans le choix des conditions aux limites des simulations atomiques.

Dans cette thèse deux méthodes s’appliquant au traitement des conditions aux limites périodiques ont été utilisées pour décrire les dislocations en statique moléculaire, chacune des deux présentant des avantages et des inconvénients. Pour les simulations en dynamique moléculaire, un troisième type de conditions aux limites a été utilisé et sera décrit plus loin.

#### 4.2.1 Agrégats bords fixes

Cette technique a pour avantage qu’elle permet d’étudier une dislocation isolée. Considérons une dislocation au centre d’une boîte. Comme la dislocation est isolée, seule une condition limite périodique est imposée parallèlement à la ligne de la dislocation. Un cylindre de hauteur parallèle à la ligne de la dislocation et centré sur cette dernière et de rayon  $R_I$  est défini. Ce cylindre définit une zone I où les atomes seront libres de se relaxer suivant les forces fournies par le modèle énergétique considéré, *ab initio* ou potentiel empirique. Dans le reste de la boîte (soit la zone II), les atomes ont leurs positions fixées suivant le déplacement prédit par la théorie élastique des dislocations [85,86] et, lors de la relaxation, la position de ces atomes sera gelée. La taille de cette deuxième zone doit être suffisamment grande pour interdire à un atome de la zone I d’interagir avec l’extérieur, la distance maximale de l’interaction inter-atomique étant définie par le rayon de coupure du potentiel. La Figure 4.2 donne une représentation d’une telle boîte contenant une dislocation ici représentée comme un point, la ligne de la dislocation étant orthogonale au schéma.

Comme décrit dans la section 4.2.3, cette approche n’est pas adaptée lorsqu’il y a un mouvement de la dislocation donc en particulier pour étudier son glissement. En effet, l’interaction entre la dislocation et le bord de la boîte génère une résistance et limite également la distance que peut parcourir la dislocation. De plus, sans aller jusqu’au glissement sur une grande distance, les atomes de bords sont définis suivant la théorie élastique pour une dislocation centrée en un point. Si la dislocation glisse, la solution élastique en bord de boîte ne sera plus adaptée car le centre de la dislocation aura bougé. Cela engendre ainsi une contrainte supplémentaire au glissement de la dislocation et la contrainte de Peierls déterminée en utilisant cette méthode serait de ce fait surestimée si la taille de la boîte n’est pas assez grande pour rendre cette contribution négligeable.

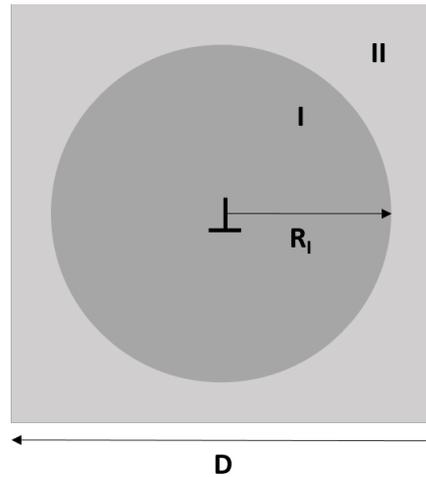


FIGURE 4.2 – Représentation schématique de la boîte de simulation utilisée pour modéliser une dislocation rectiligne dans l’approche agrégat. La dislocation symbolisée par le symbole  $\perp$  a son vecteur ligne dans la direction  $\vec{x}$  orthogonale au plan de la feuille

De plus, la solution élastique pour une dislocation ne dépend pas de sa structure de cœur. Une dissociation en dislocations partielles ou un étalement de la dislocation induit un champ élastique supplémentaire qui n’est ainsi pas prédit et rendra la détermination de l’énergie de cœur d’une dislocation plus compliquée. Il est possible de contrer néanmoins cet effet : le champ élastique induit par ces effets de cœur décroît plus rapidement que celui induit par l’introduction de la dislocation et si le rayon  $R_I$  est assez grand, cette nouvelle contribution peut apparaître négligeable.

Cette approche est donc d’autant plus valide si le rayon du cylindre est grand, imposant ainsi à la boîte de simulation de comprendre un grand nombre d’atomes, ce qui est possible avec des potentiels empiriques comme ici conduisant à des simulations avec des centaines de milliers d’atomes mais pas avec des calculs *ab initio*. Cette approche ne sera employée que pour les simulations en statique moléculaire.

L’estimation de l’énergie de cœur d’une structure d’une dislocation obtenue avec cette approche se fait comme suit : l’énergie  $E(r)$  du cristal contenant la dislocation est estimée dans un cylindre centré sur la dislocation et de rayon  $r$  variant de 0 à  $R_I$ . L’énergie d’excès  $\Delta E$  apportée au cristal par la dislocation est estimée en soustrayant de cette énergie  $E(r)$  l’énergie qu’aurait autant d’atomes dans un cristal parfait, cette dernière étant estimée via l’énergie de cohésion  $E_{coh}$  c’est-à-dire l’énergie d’un atome du cristal parfait :

$$\Delta E(r) = E(r) - n(r)E_{coh}$$

où  $n(r)$  est le nombre d’atomes compris dans ce cylindre de rayon  $r$ .

Une contribution élastique se développe jusqu’à une grande distance ainsi qu’une contribution propre au cœur de la dislocation dite énergie de cœur. Afin de déterminer l’énergie de cœur de la dislocation, la contribution élastique est soustraite à l’énergie d’excès, cette contribution élastique étant estimée suivant la théorie élastique avec

$$E_{elastique}(r) = \frac{1}{2}b_i K_{ij} b_j \ln\left(\frac{r}{r_c}\right),$$

où  $b$  est le vecteur de Burgers de la dislocation,  $K$  la matrice de Stroh et  $r_c$  le rayon de coupure qui est généralement considéré comme égal à la longueur du vecteur de Burgers de la dislocation. L'énergie de cœur est obtenue avec l'équation :

$$E_{cœur} = \Delta E(r) - E_{élastique}(r).$$

Cette énergie de cœur, définie pour un rayon  $r_c$  fixé, est une propriété de la dislocation ne devant dépendre que de sa configuration et pas de son environnement.

### 4.2.2 Dipôle de dislocations

L'utilisation de dipôles de dislocations est la seule méthode possible permettant de garder des conditions aux limites périodiques dans les trois directions. Cette méthode permet de ne pas introduire de surface. L'énergie d'excès de la boîte n'est ainsi dépendante que des dislocations. Néanmoins il est à noter qu'une contribution énergétique provient de l'interaction entre les dislocations composant le dipôle et également entre le dipôle et ses images périodiques. Les tailles des systèmes que l'on peut étudier avec des potentiels empiriques permettent de conduire à des énergies d'interaction négligeables. Un des inconvénients de cette technique est que l'emploi de dipôle de dislocations demande de vérifier que la dislocation  $+\vec{b}$  a bien évolué de la même manière que la dislocation opposée  $-\vec{b}$ . Cette approche ne sera pas utilisée pour explorer les différentes structures métastables des dislocations.

Pour l'estimation de l'énergie de cœur avec cette approche, elle se fait via l'énergie d'excès du système  $\Delta E$  et l'estimation via la théorie élastique de l'énergie d'interaction entre les dislocations composant le dipôle  $E_{dip}$  et entre le dipôle et ses images périodiques  $E_{img}$ . L'énergie totale du système est définie par :

$$\Delta E = 2E_{cœur} + E_{dip} + E_{img}$$

où  $E_{cœur}$  est l'énergie de cœur d'une seule dislocation.

### 4.2.3 Conditions aux limites pour la dynamique moléculaire

L'étude de la mobilité des dislocations en dynamique moléculaire nécessite l'introduction d'un dispositif particulier. Le choix a été fait d'étudier la mobilité des dislocations en fonction de la contrainte appliquée et non de la déformation comme cela a été fait dans les travaux de Numakura et al. [53, 54] et de Bacon et al. [58–60]. La mobilité de la dislocation nécessite des conditions périodiques particulières. Le premier point à prendre en compte est que les bords d'une boîte non périodique ne sont pas transparents et que la dislocation en mouvement va s'arrêter aux bords de la boîte. Le deuxième point à prendre en compte est lié aux effets de surfaces, ces dernières ont une interaction avec la dislocation. Ces interactions s'intensifient au fur et à mesure que la dislocation s'approche des bords de la boîte. Un réseau périodique de dislocations doit être défini [87].

Soit une dislocation ayant sa direction de ligne  $\vec{l}$  parallèle à la direction  $\vec{x}$  glissant sous une contrainte de cisaillement  $\sigma$  dans un plan  $(XY)$ . Une première condition périodique est ajoutée dans la direction  $\vec{x}$ . Cela permet à la dislocation de glisser librement sans rester ancrée aux extrémités et sans avoir d'effet de surface dans cette direction modélisant ainsi une dislocation de longueur infinie. Une condition périodique est également ajoutée dans la direction  $\vec{y}$ , direction de glissement. Cette dernière évite des interactions avec le bord de la boîte dans cette direction. Néanmoins cette dernière introduit une nouvelle interaction : la dislocation interagit avec son

image périodique. La longueur de la boîte est donc maximisée dans cette direction afin de rendre cette interaction négligeable. Néanmoins elle demeure quasi constante au cours du glissement de la dislocation, la distance entre la dislocation et ses images périodiques restant constante quelle que soit la position de la dislocation. Pour que la dislocation ne soit pas attirée par un côté de la boîte, cette dernière est insérée à mi-hauteur de la boîte et la hauteur totale de la boîte est optimisée de manière à ce que l'interaction avec les bords soit minimale.

Dans la directions  $\vec{z}$ , il est impossible de définir une périodicité car c'est suivant ces directions que des surfaces permettent avec une zone contrôlée d'imposer soit une contrainte soit une déformation. Comme on peut l'observer sur la Figure 4.3 deux zones sont définies suivant les deux extrémités  $\pm \frac{h}{2}$  de la boîte. Aux atomes de ces zones est ajoutée une force  $+\vec{F}$  à la zone supérieure et  $-\vec{F}$  à la zone inférieure afin d'imposer la contrainte appliquée au cristal. Cette force est obtenue via l'équation  $\sigma = \sigma_{xz} = \frac{F_x}{S_{xy}}$  pour faire glisser une dislocation vis ( $\vec{b} = b\vec{e}_x$ ) ou  $\sigma = \sigma_{yz} = \frac{F_y}{S_{xy}}$  pour faire glisser une dislocation coin ( $\vec{b} = b\vec{e}_y$ ) dans la direction  $\vec{y}$  où  $S_{xy}$  est l'aire du plan  $(XY)$ . Les atomes de ces zones se voient alors ajoutée une force  $\vec{f}_+ = \frac{\vec{F}}{n_+}$  pour les atomes de la zone supérieure et  $\vec{f}_- = \frac{-\vec{F}}{n_-}$  pour les atomes de la zone inférieure où  $n_+$  et  $n_-$  sont respectivement les nombres d'atomes composant la zone du haut et du bas. Bien qu'une force soit ajoutée à ces atomes, ces derniers restent libres de se relaxer dans toutes les directions.

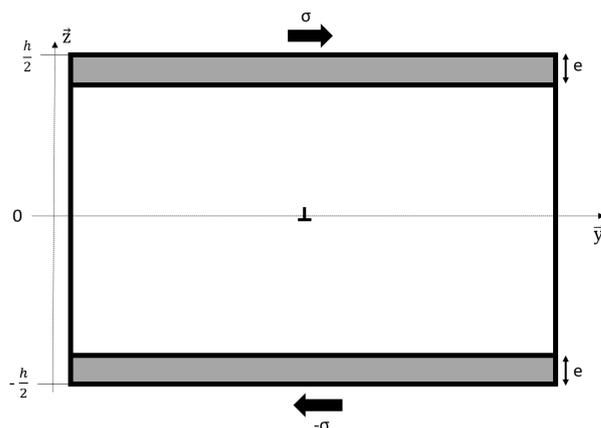


FIGURE 4.3 – Représentation de la boîte utilisée pour imposer une contrainte, les zones colorées en gris représentent les zones où une force a été ajoutée sur les atomes afin d'introduire la contrainte  $\sigma$ .

La dislocation subit alors une contrainte de cisaillement  $\sigma$  et lorsqu'elle avance de  $\Delta y$  dans son plan de glissement, le travail de la contrainte dissipe une énergie  $\Delta E = \sigma b l_x \Delta y$  avec  $l_x$  la longueur de ligne comprise dans la boîte de simulation. Cet incrément énergétique se dissipe sous la forme de chaleur dans le cristal augmentant ainsi la température totale du système. Le système modélisé est suffisamment grand pour que cette augmentation de température soit négligeable.

Afin de modéliser correctement la vitesse des dislocations en fonction de différents couples contraintes-température, nous nous sommes affranchis de ces facteurs de redimensionnement. Pour que la température du système reste quasiment constante, un grand nombre d'atomes est employé de manière à ce que la chaleur générée se dissipe dans le cristal et conduise à un incrément de température négligeable. De plus, les simulations réalisées sont limitées à des temps

courts conduisant à une distance  $\Delta y$  parcourue par la dislocation petite. Cette petite distance de parcours se traduit par un travail de la contrainte faible.

### 4.3 Méthode d'analyse

Pour visualiser les dislocations dans nos simulations atomiques, nous utiliserons principalement le logiciel Ovito [88], en particulier son option permettant de détecter l'environnement atomique de chaque atome. Les atomes dans la région de cœur de la dislocation se réarrangent, l'environnement atomique de ces derniers ne correspond plus à un arrangement hexagonal compact. La Figure 4.4(a) illustre une telle observation : en rouge sont représentés des atomes ayant un environnement proche de celui hexagonal compact propre au cristal parfait et en blanc les atomes dont l'environnement diffère fortement de l'hexagonal compact. Il est représenté sur cette Figure une dislocation vis  $\langle c + a \rangle$ , la ligne de la dislocation étant perpendiculaire au plan d'observation. On remarque ainsi sur cette Figure que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis représentée se dissocie suivant un plan qui correspond ici à un plan pyramidal de première espèce.

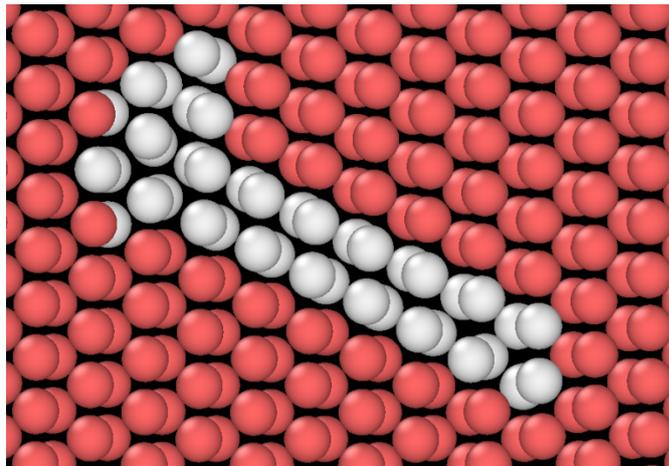
Ovito permet également de déterminer la nature d'une dislocation grâce à son algorithme DXA qui peut trouver les dislocations présentes dans une boîte de simulation atomique et déterminer leurs vecteurs de Burgers. Cet algorithme DXA sera en particulier utilisé dans la thèse pour déterminer la position de la dislocation au cours des simulations de dynamique moléculaire.

Pour caractériser plus finement le cœur de la dislocation des cartes de déplacement différentiels introduites par Vitek seront utilisées [57]. Pour réaliser cette dernière on projette le cristal dans le plan perpendiculaire à la ligne de la dislocation. Les colonnes atomiques sont alors représentées par des symboles qui varient en fonction de leur hauteur suivant la direction de projection. Les flèches entre chaque atome sont proportionnelles à la différence de déplacements entre les rangées atomiques le long de la ligne de la dislocation. Comme ces flèches sont proportionnelles à la différence de déplacements, elles sont une représentation discrétisée de la dérivée du champ de déplacement, c'est-à-dire une mesure locale de la déformation. Afin que la lecture d'une carte de Vitek soit facilitée et que l'on puisse localiser facilement la déformation [89], les flèches sont tracées pour des différences de déplacement supérieures à une valeur seuil.

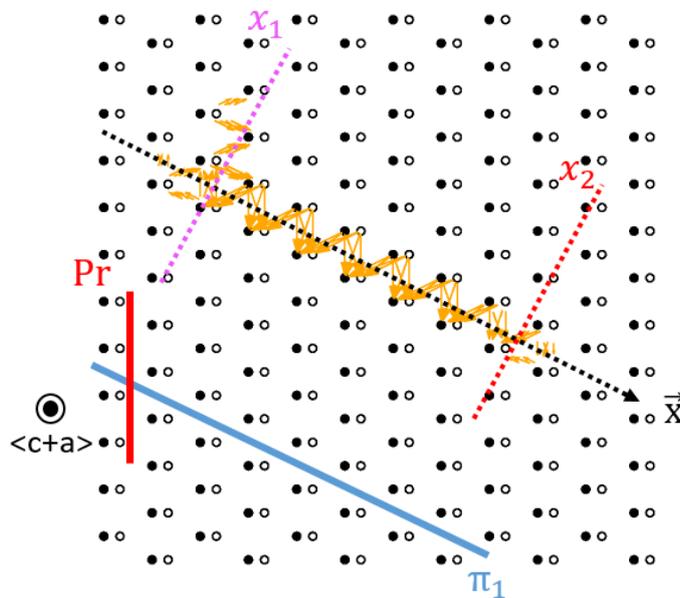
Grâce à ces flèches il est possible d'observer plus facilement la structure de cœur d'une dislocation comme le montre la Figure 4.4(b) où est représentée la même dislocation que sur la Figure 4.4(a). On y observe ainsi un ruban de faute dans le plan pyramidal de première espèce (apparaissant ici oblique) et un étalement secondaire de la dislocation au niveau de la partielle apparaissant ici en haut à gauche.

Pour une dislocation dissociée sur une distance suffisante, il est possible de déterminer le vecteur de Burgers des dislocations partielles. Pour cela il est nécessaire de tracer un circuit de Burgers autour de la dislocation partielle que l'on veut caractériser, circuit qui n'entoure pas d'autres dislocations. En ajoutant les liaisons inter-atomiques et en prenant en compte les fortes perturbations liées à la traversée du ruban de faute, il est possible de déterminer le vecteur de Burgers d'une dislocation partielle.

Bien que les cartes de Vitek fournissent une bonne représentation de la déformation, la position des dislocations partielles n'est pas déterminée de manière assez précise. Pour y arriver, la discontinuité le long du plan de dissociation est étudiée. La discontinuité  $D(x)$  correspond à la différence de déplacement dans la direction parallèle au vecteur de Burgers entre les atomes situés dans le plan immédiatement supérieur,  $u^+(x)$ , et ceux dans le plan immédiatement inférieur



(a)



(b)

FIGURE 4.4 – Structure de cœur d’une dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis obtenue avec un potentiel EAM #2 [64]. Cette structure de cœur est ici visualisée avec (a) le logiciel Ovito qui colore les atomes en fonctions de l’environnement atomique et (b) avec une carte de Vitek où les flèches indiquent la différence de déplacement entre les colonnes atomiques. Le plan prismatique (Pr) est représenté par une droite rouge et le plan pyramidal de première espèce où l’on peut observer la dissociation principale est représenté en bleu. Les atomes sont ici projetés dans la direction  $\langle c + a \rangle$ .

$u^-(x)$  en fonction de la position  $x$  le long du plan de dissociation :

$$D(x) = u^+(x) - u^-(x)$$

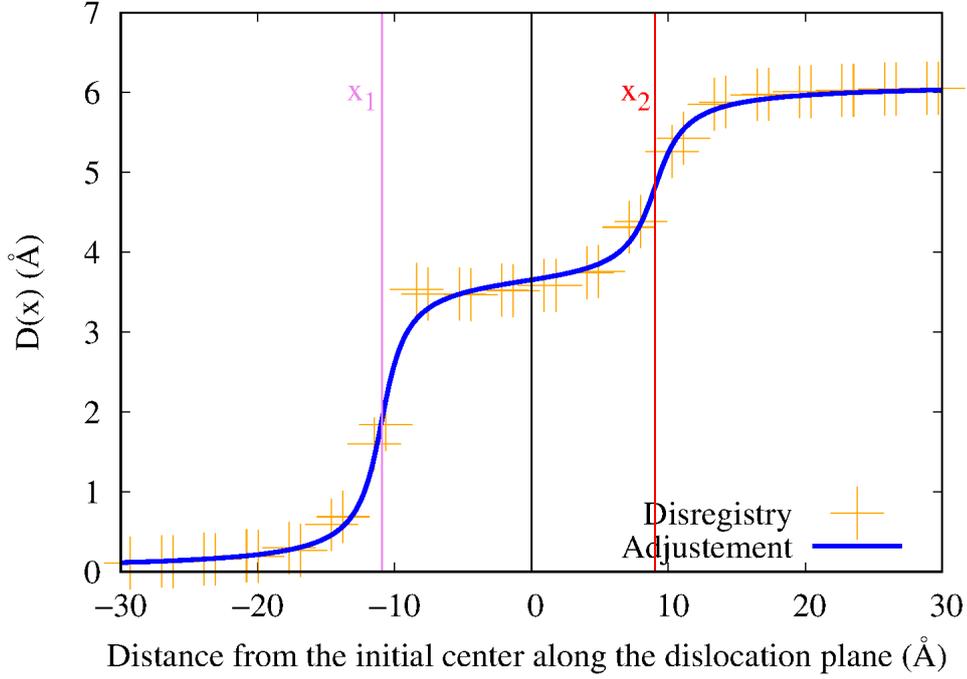


FIGURE 4.5 – Étude de la discontinuité dans la direction du vecteur de Burgers le long du plan pyramidal de première espèce pour la structure de coeur illustrée en Figure 4.4(b). En violet sont représentées les valeurs de la discontinuité le long du plan de dissociation en bleu est représentée la droite issues d'un ajustement visant à déterminer les positions des deux dislocations partielles repérées ( Eq. 4.1).

Cette discontinuité varie d'un bord de la boîte à l'autre de 0 à  $b$ . Elle évolue fortement au voisinage de la dislocation ou des dislocations partielles comme le montre la Figure 4.5.

À cette courbe est ajustée une fonction analytique simple qui décrit la discontinuité induite par une seule dislocation telle que prédite par le modèle de Peierls-Nabarro [8] :

$$D(x) = \frac{b}{\pi} \left[ \arctan\left(\frac{x - x_D}{\xi}\right) + \frac{\pi}{2} \right] \quad (4.1)$$

où  $x_D$  est la position de la dislocation et  $\xi$  l'étalement de la dislocation dans le plan de glissement. Pour une dislocation dissociée en deux partielles, cette fonction devient :

$$D(x) = \frac{b}{\pi} \left( \beta \tan^{-1} \left( \frac{x - (x_0 + \frac{d}{2})}{\xi_1} \right) + (1 - \beta) \tan^{-1} \left( \frac{x - (x_0 - \frac{d}{2})}{\xi_2} \right) + \frac{\pi}{2} \right)$$

où  $x_0$  est le centre de la dissociation,  $d$  la distance de dissociation (de ce fait  $x_1 = x_0 - \frac{d}{2}$  et  $x_2 = x_0 + \frac{d}{2}$  sont les deux positions des dislocations partielles et sont représentées sur la Figure 4.4(b),  $\beta$  est une constante visant à pondérer la discontinuité induite par les deux dislocations partielles variant entre 0 et 1, la première et la seconde partielle ayant pour vecteurs de Burgers (norme) respectivement  $\beta b$  et  $(1 - \beta) b$ .  $\xi_1$  et  $\xi_2$  sont les étalements des deux partielles.

## 4.4 Modèles énergétiques

Les simulations atomiques sont effectuées sur un cristal de  $N$  atomes contenant un défaut ou non. Ces atomes sont décrits par leur positions  $\vec{r}_i$  ( $i$  variant de 1 à  $N$ ). Le modèle énergétique permet d'obtenir à partir de ces positions atomiques l'énergie du système  $E(\{\vec{r}_i\}_{1 \leq i \leq N})$  et les forces sur chaque atome  $\vec{F}_i = -\vec{\nabla}_i E$ . Deux types de modèles énergétiques sont généralement utilisés pour obtenir ces quantités : le calcul ab initio et les potentiels empiriques. Le calcul ab initio repose sur une approche quantique basée sur la structure électronique des atomes modélisés. Les potentiels empiriques reposent quant à eux sur une description analytique de l'interaction inter-atomique.

Dans cette thèse, aucun calcul ab initio n'a été réalisé néanmoins ils seront nécessaires pour tester les potentiels en faisant une comparaison des énergies et des structures des fautes d'empilement. Les calculs réalisés ici s'appuient sur des potentiels empiriques, la première sous section en expliquera la raison. Ces potentiels ont été utilisés pour réaliser des calculs en statique et dynamique moléculaire qui ont été toutes deux introduites dans la section 4.1.

### Calculs ab initio

Les calculs ab initio permettent de déterminer la structure électronique des atomes composant le cristal étudié en fonction de la nature des atomes sans paramètre ajustable, en théorie, à partir de la simple connaissance du numéro atomique et de la position de chaque atome. En dérive non seulement l'énergie totale du système, mais également la force agissant sur chaque atome ainsi que la contrainte dans l'élément de volume correspondant à la boîte de simulation. Ces calculs reposent sur la résolution de l'équation de Schrödinger. De nombreuses approximations sont utilisées afin de rendre la résolution de cette équation possible. La résolution de cette équation est, malgré de nombreuses approximations, très couteuse en temps de calcul et en mémoire. Ces contraintes limitent ainsi les systèmes étudiés à quelques centaines d'atomes, ce nombre limite variant en fonction du nombre d'électrons de valence nécessaires pour chaque atome. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont un important vecteur de Burgers et peuvent donc se dissocier sur une importante distance. Afin de modéliser correctement la structure de cœur d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  de nombreux atomes doivent être utilisés rendant la modélisation d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  en calculs ab initio difficile. Néanmoins des calculs ab initio ont pu être réalisés pour étudier des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium [72,73], ces calculs se faisant sur des boîtes de plus de 1000 atomes. Ces calculs étant extrêmement difficiles à réaliser, seules quelques structures stables de la dislocation ont pu être obtenues mais permettent toutefois d'identifier l'état fondamental. Ces calculs ont été réalisés sur des boîtes peu profondes dans la direction de la ligne de la dislocation. L'observation de décrochements le long de la ligne de la dislocation est alors impossible à réaliser pour les dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec des calculs ab initio. Le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  semblant être thermiquement activé, on peut penser qu'elles glissent par propagation de double décrochements, la mobilité de la dislocation ne pourra ainsi pas s'étudier avec des calculs ab initio.

### Calculs en potentiel empirique

Les calculs empiriques reposent sur des modèles énergétiques plus simples que les calculs ab initio. L'énergie du système est obtenue en ajoutant différentes contributions issues de l'interaction inter-atomique. Ces contributions sont évaluées via différentes fonctions analytiques

explicites. Les potentiels s'appliquant aux métaux sont à courte portée. Un atome donné n'interagit directement qu'avec les atomes les plus proches se trouvant dans une sphère centrée sur cet atome d'intérêt, de rayon  $R_c$  communément appelé rayon de coupure. Ces potentiels empiriques peuvent correspondre à différents modèles (reposant sur différentes fonctions analytiques) comme les potentiels Lennard-Jones, Finnis-Sinclair, ou le modèle de l'atome entouré [90, 91] en anglais Embedded Atom Method (EAM) qui sera utilisé dans cette thèse. Le modèle EAM utilise deux énergies : une énergie d'interaction de paires entre l'atome central et les atomes l'entourant et une contribution dépendante d'une quantité pouvant être assimilée à la densité électronique créée localement par les atomes voisins. Il est à noter que bien que les potentiels EAM prennent en compte une contribution propre à l'environnement atomique, le caractère angulaire des liaisons entre les atomes n'est pas pris en compte, ce qui est un problème : les métaux de transition comme le zirconium disposent de liaisons inter-atomiques directionnelles. Les potentiels MEAM [92, 93] tentent de palier cette lacune en incluant un caractère angulaire dans la contribution propre à l'environnement atomique.

Les potentiels empiriques sont donc basés sur différentes fonctions analytiques. Ces dernières sont ajustées sur des valeurs de référence afin de reproduire le plus correctement possible les grandeurs physiques les plus importantes telles que le paramètre de maille ou les constantes élastiques. Les valeurs de référence sont issues de données expérimentales quand c'est possible, ou par calcul ab initio quand elles ne sont pas connues expérimentalement. La paramétrisation de potentiels empiriques est un processus long et difficile, et aucun potentiel empirique ne peut retrouver toutes les propriétés physiques d'un matériau.

Il faut alors déterminer quels potentiels empiriques peuvent être raisonnables pour décrire un matériau et un phénomène physique. L'objet de la thèse étant le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , on cherchera ainsi à retrouver le bon paramètre de maille, les bonnes constantes élastiques et les fautes d'empilement raisonnables permettant la dissociation de ces dislocations. De plus, les fautes d'empilement décrivent un cisaillement homogène d'un plan là où la dislocation correspond à un cisaillement localisé, c'est ainsi un moyen de vérifier que le cisaillement du plan est bien décrit. Comme vu dans le chapitre 1.4, dans le magnésium après ajout de température, la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  tend vers une structure de cœur composée de deux dislocations partielles reliées par un ruban de faute dans le plan basal, cette faute étant du type  $I_1$  ou  $I_2$ . Il faut alors savoir qu'elles sont les différentes fautes d'empilement basale.

L'empilement dans le plan basal de réseau hexagonal compact est, contrairement aux cristaux de structure cubiques faces centrées, non pas un empilement de trois plans différent  $\dots ABCABC\dots$  mais constitué d'une séquence d'empilement de deux types de plans  $A$  et  $B$  :  $\dots ABABAB\dots$  où  $A$  et  $B$  sont tout deux orthogonaux à la hauteur  $\vec{c}$  du cristal. Il existe trois types de faute d'empilement stable [6] : premièrement, la faute extrinsèque, où un nouveau plan  $C$  est pris en compte dans l'empilement :  $\dots ABA|BCA|BA\dots$ , la faute  $I_1$  : avec un plan hors environnement hexagonal compact  $\dots ABA|B|C|BCB\dots$  et la faute d'empilement  $I_2$  avec un empilement de plan de base  $\dots ABAB|CA|CACA\dots$  où deux plans ne sont pas dans un environnement hexagonal compact.

Trois différents potentiels empiriques ont été pré-sélectionnés pour modéliser les dislocations  $\langle c + a \rangle$ . L'un des potentiels développés par Mendeleev et Ackland et noté #3 dans la publication d'origine [64] a été utilisé dans de nombreuses études [1, 94, 95] portant sur le glissement des dislocations  $\langle a \rangle$  du fait qu'il reproduise bien, en plus des constantes élastiques, la faute d'empilement dans le plan prismatique qui gouverne la dissociation de la dislocation  $\langle a \rangle$  et la faute basale  $I_2$ . Le potentiel EAM #2 quant à lui reproduit également bien les constantes élastiques mais n'a pas été ajusté sur ces fautes d'empilement, il a été ajusté de manière à plutôt reproduire la transition de phase hexagonal compact-cubique centré du zirconium à haute température. Le potentiel MEAM [96] introduit une dépendance angulaire de la liaison inter-atomique et retrouve

de bonnes constantes élastiques et des fautes d'empilement stables dans le plan de base, prismatique et de type  $I_2$ . Le tableau 4.1 décrit pour les trois potentiels empiriques pré-sélectionnés, les calculs ab initio (DFT) et les données expérimentales les valeurs de certaines propriétés physiques telles que le paramètre de maille, le rapport  $\frac{c}{a}$ , la température de transition  $\alpha - \beta$  et les énergies de fautes dans le plan de base et prismatique (suivant  $1/2 \langle a \rangle$ ).

On peut conclure de ce tableau que les constantes élastiques prédites par les potentiels empiriques pré-sélectionnés sont proches des valeurs obtenues expérimentalement et que ces derniers prédisent tous des fautes d'empilement stables dans le plan prismatique et dans le plan de base. Néanmoins ces fautes d'empilement ne sont pas toutes aussi bien décrites. Les fautes dans le plan de base ( $I_1$ ,  $I_2$  et  $E$ ) sont mal décrites par le potentiel EAM #2 du à un problème propre aux potentiels EAM. Les fautes d'empilement sont mieux décrites par le potentiel EAM #3 mais la faute d'empilement dans le plan prismatique est de trop basse énergie du fait qu'elle a été ajustée de manière à reproduire une valeur issue de calcul ab initio également trop basse. Le potentiel MEAM, quant à lui, décrit mieux la faute d'empilement  $I_2$  du fait qu'il prenne en charge la dépendance angulaire des liaisons mais décrit une faute d'empilement dans le plan prismatique avec une forte surestimation. On peut également remarquer que les potentiels EAM#2 et #3 retrouvent une température de transition  $\alpha - \beta$  en accord avec les données expérimentales voire supérieure ce qui impose une limite raisonnable, au niveau de la température, aux simulations en température.

TABLE 4.1 – Propriétés de volume, température de transition  $\alpha - \beta$  et énergies de fautes d'empilement dans le plan de base d'un cristal de zirconium avec un potentiel empirique EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland [64], avec un potentiel MEAM développé par Kim et al. [96], en ab initio [2, 3, 97] ou mesurées expérimentalement [3] (les constantes élastiques ont été mesurées à 4K [98]). L'absence de valeur signifie que ce paramètre n'a pas été déterminé.

	Exp.	EAM #2	EAM #3	MEAM	Ab initio
$a$ (Å)	3.232	3.220	3.234	3.23	3.236 [2]
$\gamma = c/a$	1.603	1.620	1.598	1.586	1.601 [2]
$C_{11}$ (GPa)	155	165	147	152	144 [2]
$C_{12}$ (GPa)	67	65	69	72	72 [2]
$C_{13}$ (GPa)	65	63	74	66	67 [2]
$C_{33}$ (GPa)	172	180	168	161	170 [2]
$C_{44}$ (GPa)	36	48	44	34	27 [2]
$C_{66}$ (GPa)	44	50	39	40	35 [2]
$T_{\alpha-\beta}$ (K)	1136	1233	1369		
$\gamma_{I_1}$ (mJ/m <sup>-2</sup> )		55	99		147 [97]
$\gamma_{I_2}$ (mJ/m <sup>-2</sup> )		110	198	201	213 [3]
$\gamma_E$ (mJ/m <sup>-2</sup> )		164	297		274 [97]
$\gamma_{pr}$ (mJ/m <sup>-2</sup> )		357	135	497	211 [3]

Afin de se rapprocher de la structure de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium, les fautes d'empilement dans les principaux plans (prismatique, pyramidal de première et de second espèce) contenant une direction  $\langle c + a \rangle$  sont étudiées en fonction de ces potentiels.

## 4.5 Fautes d'empilement dans le zirconium

Comme décrit dans la revue bibliographique, la dissociation d'une dislocation est pilotée par la présence d'une faute d'empilement dans son plan de dissociation [6]. Dans cette section, il sera premièrement vu comment une faute d'empilement est simulée. Ensuite, la méthode de simulation permettant de trouver toutes les fautes d'empilement possibles dans les plans qui nous intéressent sera décrite. Ces plans sont les plans pyramidaux de première et de seconde espèce où le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans les métaux à structure hexagonale compacte est observé. De plus, les fautes d'empilement propres aux plans prismatiques seront également étudiées, ce plan pouvant permettre la dissociation de dislocation  $\langle c + a \rangle$  bien que le glissement n'y soit pas observé expérimentalement.

### 4.5.1 Modélisation atomique des fautes

Une boîte de simulation est définie par ses vecteurs de périodicité  $\vec{U}_1$ ,  $\vec{U}_2$  et  $\vec{U}_3$  non coplanaires. Dans un cristal parfait, ces vecteurs sont une composition des vecteurs élémentaires propres à la maille hexagonale compacte ( $\vec{u}_1$ ,  $\vec{u}_2$  et  $\vec{u}_3$ ). Les vecteurs de périodicité de la boîte  $\vec{U}_1$  et  $\vec{U}_2$  forment un plan  $P$  qui est le plan dont la faute d'empilement est étudiée. Pour introduire la faute d'empilement, un vecteur faute  $\vec{f} = \alpha\vec{u}_1 + \beta\vec{u}_2$  ( $\alpha$  et  $\beta$  sont des nombres décimaux compris entre 0 et 1) est ajouté au vecteur de périodicité  $\vec{U}_3$ . De ce fait, l'empilement des plans  $P$  dans la boîte correspond à un empilement habituel mais une faute d'empilement est introduite entre la boîte et son image périodique. La Figure 4.6(a) illustre cette méthode.

Après avoir introduit la faute d'empilement, il est possible de calculer l'énergie associée à cette faute. Pour se faire, une simulation en statique moléculaire est réalisée. Les atomes sont relaxés seulement suivant la direction orthogonale au plan  $P$ . Ceci assure que la relaxation ne conduise pas à ce que les atomes du cristal se réorganisent de manière à résorber la faute d'empilement. L'énergie de faute est alors définie par :

$$\gamma = \frac{E_{faute} - E_{HCP}}{S_{faute}}$$

où  $E_{faute}$  est l'énergie du cristal fauté,  $E_{HCP}$  l'énergie du cristal parfait et  $S_{faute}$  la surface du plan de faute.

Afin de déterminer toutes les fautes d'empilements stables pour les plans d'intérêt, l'énergie de la faute d'empilement est calculée pour différents vecteurs fautes  $\vec{f} = \alpha\vec{u}_1 + \beta\vec{u}_2$  avec  $\alpha$  et  $\beta$  variant entre 0 et 1.

Afin de visualiser ces énergies de faute d'empilement généralisées, nous utilisons une représentation graphique de l'énergie de la faute d'empilement en fonction du vecteur faute  $\vec{f}$ , représentation appelée gamma-surface. À un minimum de cette  $\gamma$  surface correspond un minimum énergétique propre à une potentielle faute d'empilement stable. Cette  $\gamma$  surface a été obtenue avec des relaxations atomiques contraintes et la stabilité de cette potentielle faute d'empilement doit être vérifiée en relaxant complètement tous les atomes et en vérifiant que la structure fautée n'est pas résorbée. Une faute d'empilement est ainsi caractérisée par un vecteur faute et une énergie d'excès définie par unité de surface.

Dans le cas où l'obtention d'une structure de faute d'empilement stable ne peut être obtenue suivant cette méthode et/ou afin de vérifier qu'il n'existe pas de structure de faute d'empilement plus stable possible, il est possible d'imposer une contrainte sur les relaxations atomiques moins

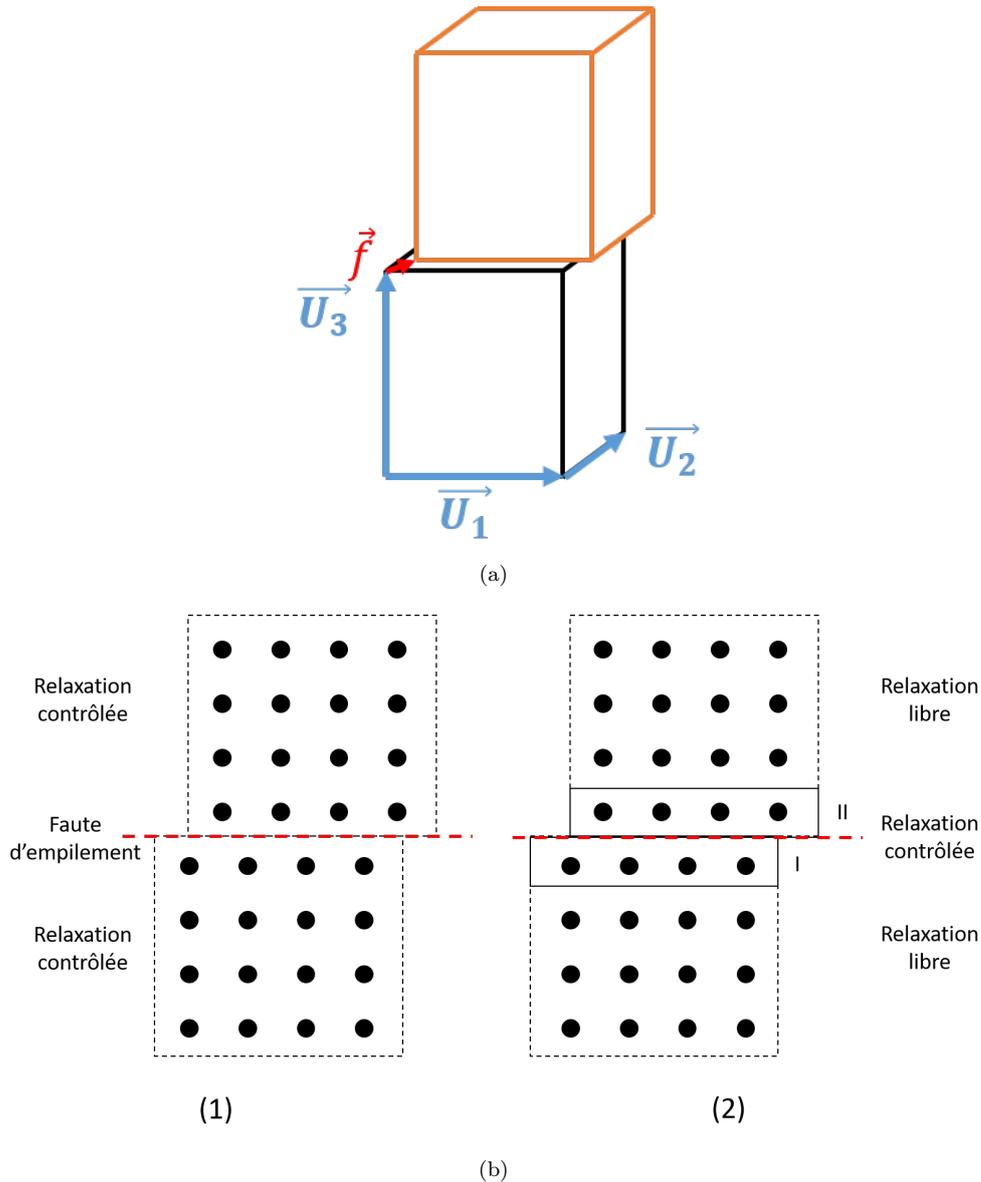


FIGURE 4.6 – (a) Modèle de construction des boîtes de simulation pour des calculs de faute d'empilement généralisée. En noir est représenté le cristal à l'origine et en orange son image périodique après une duplication suivant  $\vec{U}_3^* = \vec{U}_3 + \vec{f}$ . (b) Deux manières de contraindre les atomes du cristal afin de conserver la faute lors des étapes de relaxation des positions atomiques. Pour le dispositif (1) tout les atomes ne sont autorisés à relaxer que dans la direction perpendiculaire au plan de faute, (2) seulement les atomes appartenant aux plans voisins de la faute (I et II sur la Figure) ne sont contraints à ne relaxer que suivant cette direction.

restrictive. Cette technique a été introduite par Morris et al. [99]. Elle consiste à contraindre seulement les atomes contenus dans les plans denses parallèles au plan de faute immédiatement

voisins de la faute comme illustré par la Figure 4.6(b).

La méthode de simulation ayant été introduite, les fautes d'empilement dans les plans d'intérêt peuvent maintenant être décrites.

#### 4.5.2 Faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce "Loose"

Le plan pyramidal de première espèce contient une direction  $\langle a \rangle$  et une direction  $\langle c + a \rangle$ . Ces deux directions non colinéaires définissent les vecteurs unitaires  $\vec{u}_1 = \frac{1}{3}[\bar{2}110]$  et  $\vec{u}_2 = \frac{1}{3}[11\bar{2}3]$  composant le plan de faute. Le vecteur  $\vec{u}_3 = \frac{1}{3}[1\bar{2}13]$  utilisé correspond à une autre direction  $\langle c + a \rangle$ . La cellule élémentaire définie par ces vecteurs est composée de 4 atomes. La Figure 4.7 illustre une telle cellule projetée dans un plan  $(\bar{2}110)$ . On remarque sur cette figure que le plan pyramidal de première espèce est un plan rugueux. Du fait de cette rugosité, il est possible de définir deux types de plans pyramidaux de première espèce le plan dense et le plan moins dense appelé "Loose" [1, 4]. Il a été montré que les fautes d'empilements dans le plan dense n'admettent qu'une faute stable suivant la direction  $\langle a \rangle$  mais pas dans la direction ou proche de la direction  $\langle c + a \rangle$  contrairement au plan "Loose" que nous étudierons ainsi par la suite. La cellule décrite par la Figure 4.7 est dupliquée 30 fois suivant  $\vec{u}_3$  formant ainsi le cristal parfait où la faute d'empilement sera introduite. Cette duplication est faite de manière à ce que la faute d'empilement ait une interaction négligeable avec son image périodique.

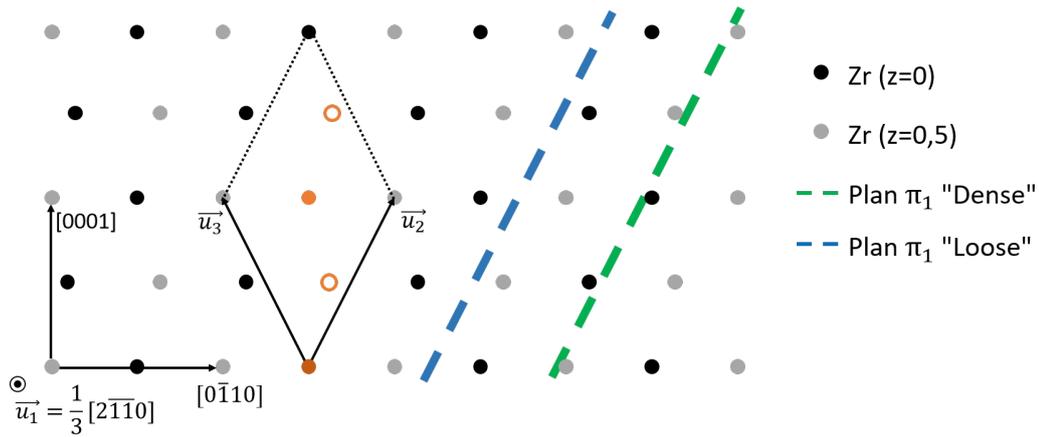


FIGURE 4.7 – Cellule élémentaire (atomes en orange) utilisée pour construire la faute pyramidale de première espèce. Les atomes sont noirs ou gris en fonction de leur hauteur dans la direction  $\frac{1}{3}[\bar{2}110]$ .

Les fautes d'empilements dans le plan pyramidal de première espèce ont été étudiées avec les potentiels empiriques EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland [64] et le potentiel MEAM développé par Kim et al. [96]. Ces simulations ont permis d'obtenir les  $\gamma$  surfaces illustrées par la Figure 4.8. On peut remarquer sur ces figures que la topologie de ces surfaces ne varie pas trop, seule une forte accentuation est visible pour la  $\gamma$  surface obtenue avec le potentiel MEAM.

Plusieurs fautes d'empilement stables différentes ont été obtenues, ces dernières se trouvant toutes dans la direction  $[0\bar{1}12]$ . La Figure 4.9 illustre les énergies de fautes d'empilement dans

cette direction  $[0\bar{1}12]$  après une relaxation où des atomes ont été contraints (droites continues) et une relaxation totale (croix) pour chacun des potentiels et avec les valeurs issues de calculs ab initio [51]. On remarque ainsi qu'il existe trois principales fautes d'empilement stables mais que celle autour de  $0.4\ 1/2[0\bar{1}12]$  est la faute d'empilement dont l'énergie est la plus basse. Cette figure met en évidence le fait que le vecteur faute correspondant à la structure de plus basse énergie est le même pour tout les modèles énergétiques étudiés  $\xi [0\bar{1}12]$  avec  $\xi = 0.32$  ou  $0.42$  en fonction du potentiel (Voir tableau 4.2). Le potentiel EAM #3 retrouve une énergie de faute correspondant à la faute d'empilement de plus basse énergie proche de celle issue de calcul ab initio bien qu'il ne retrouve pas parfaitement le même vecteur faute. On peut également remarquer que le potentiel MEAM évolue d'une manière assez abrupte.

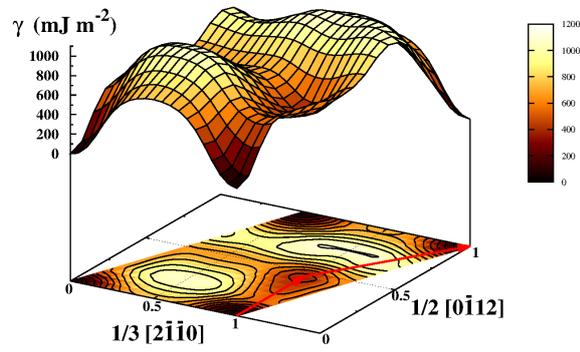
Le minimum énergétique n'est pas le long d'une direction  $\langle c + a \rangle$  mais le long d'une direction  $[0\bar{1}12]$ . Cela induit que si la dislocation se dissocie suivant le plan pyramidal de première espèce, la structure de cœur résultante sera non symétrique, les deux vecteurs de Burgers des dislocations partielles n'étant pas équivalents cristallographiquement. Les vecteurs fautes et les énergies correspondant à la faute d'empilement stable obtenue après relaxation totale sont donnés dans le tableau 4.2.

La structure de la faute d'empilement stable déterminée est donnée par la Figure 4.10. Les atomes  $y$  sont décrits par des symboles différents en fonction de leur cote suivant la projection selon  $u_1^*$ . La structure de la faute d'empilement est une mono-macle : la faute change l'empilement ...DEFG... en un empilement ...DE|DEF... des plans pyramidaux de première espèce. En suivant une ligne segmentée violette sur la Figure 4.10 représentant un plan basal et en avançant jusqu'au plan de faute, le plan de base correspondant est décalé et correspond alors au plan de base qui apparaissait avant supérieur. Cette structure de faute est commune à tout les modèles énergétiques étudiés  $y$  compris le potentiel EAM #3 qui dispose d'un vecteur faute un peu plus court que les autres.

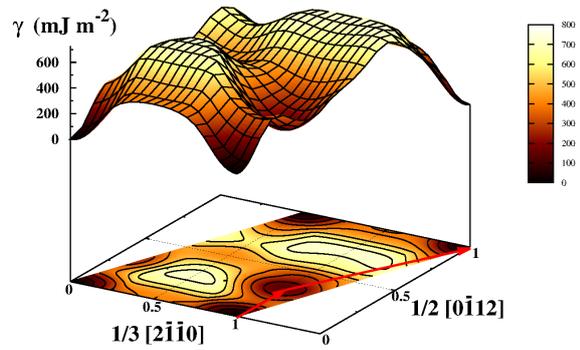
Le tableau récapitulatif 4.2 des énergies permet de mettre en relief les énergies déterminées dans cette étude avec les énergies déterminées en calcul ab initio [51]. La présence d'une faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce permettra à la dislocation de se dissocier dans ce plan, amenant ainsi la dislocation à diminuer son énergie et favorisant son glissement. On peut ainsi remarquer que le vecteur de la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce est le même sauf pour le potentiel EAM #3 qui demeure néanmoins assez proche des autres. Le potentiel EAM #3 conduit à une énergie de faute très proche de celle déterminée avec des calculs ab initio. Les potentiels EAM #2 et MEAM ont, quant à eux, tendance à surestimer les énergies de fautes.

TABLE 4.2 – Tableau récapitulatif de la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce. L'énergie de la faute d'empilement stable de plus basse énergie  $\gamma_{\pi_1}$  et son vecteur faute  $\vec{f}$   $y$  sont représentés pour chacun des modèles énergétiques.

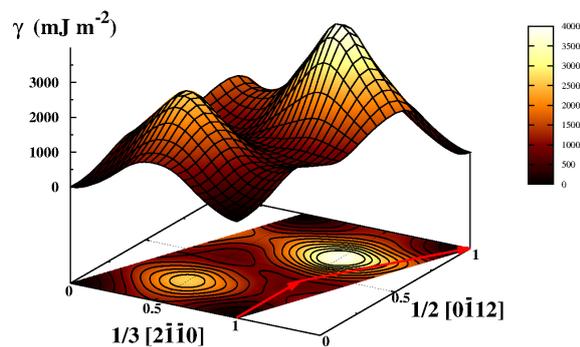
	$\gamma_{\pi_1}$ (mJ/m <sup>2</sup> )	$\vec{f}$
DFT [51]	127	0.21 $[0\bar{1}12]$
EAM2	278	0.21 $[0\bar{1}12]$
EAM3	137	0.16 $[0\bar{1}12]$
MEAM	364	0.21 $[0\bar{1}12]$



(a) EAM 2



(b) EAM 3



(c) MEAM

FIGURE 4.8 – Fautes d’empilement généralisées dans le plan pyramidal de première espèce obtenues pour les potentiels EAM #2, EAM #3 et MEAM. Les flèches rouges indiquent les vecteurs de Burgers des dislocations partielles associées à la faute d’empilement de plus basse énergie obtenue dans le plan étudié.

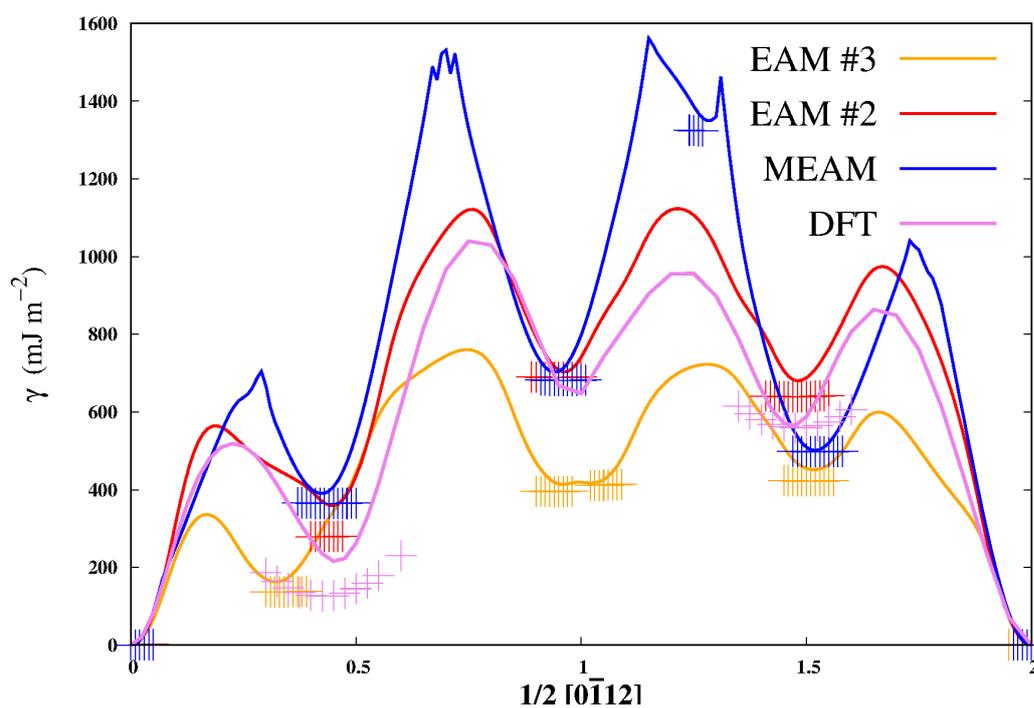


FIGURE 4.9 – Évolution de l'énergie de faute dans la direction  $[0\bar{1}12]$  du vecteur faute pour 4 modèles énergétiques différents (DFT, EAM#2 et #3 et MEAM). Les lignes continues sont issues de calculs où les positions des atomes ne sont relaxées que perpendiculairement au plan de faute, les croix sont issues d'une seconde étape de relaxation complète.

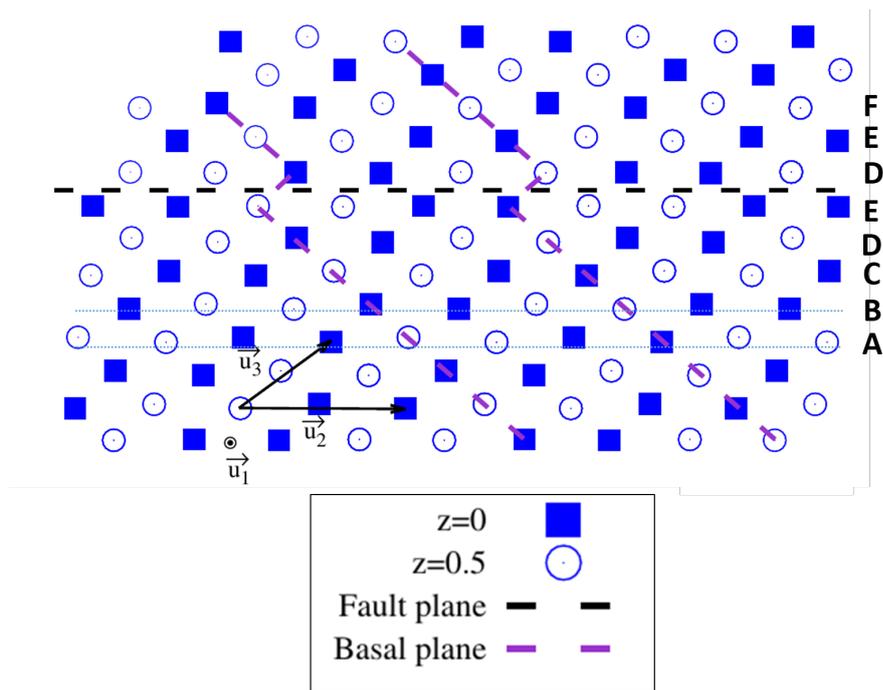


FIGURE 4.10 – Structure de la configuration métastable de plus basse énergie commune aux différents modèles énergétiques étudiés obtenue pour la faute  $\pi_1$ . La faute d'empilement  $\gamma$  est représentée par la droite segmentée noire et les plans de bases par des droites segmentées violettes. La direction orthogonale à la figure est orientée suivant  $\vec{u}_1 = \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}0]$ .

### 4.5.3 Faute dans le plan pyramidal de seconde espèce

Le plan pyramidal de seconde espèce est défini par une direction  $\langle c + a \rangle$  (ici  $\frac{1}{3}[11\bar{2}\bar{3}]$ ) et une direction  $[1\bar{1}00]$ . Le vecteur  $\vec{u}_3 = \frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}0]$  est utilisé afin de dupliquer ce plan dans une direction orthogonale à celui-ci (20 fois afin que l'interaction faute-faute soit négligeable). Une représentation de la cellule élémentaire et des vecteurs utilisés ici est faite dans une projection suivant la direction  $[1\bar{1}00]$  dans la Figure 4.11.

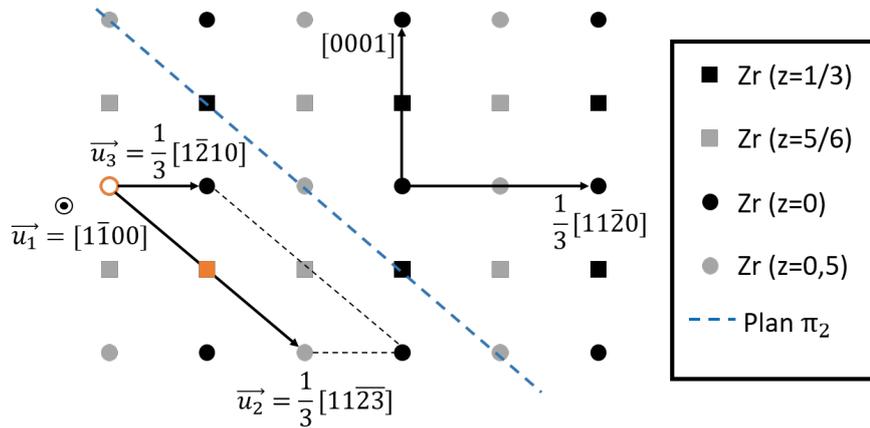
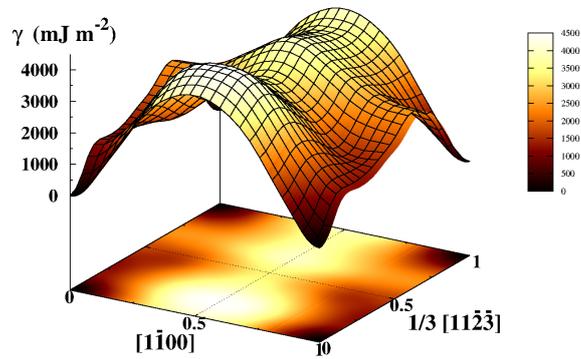


FIGURE 4.11 – Cellule élémentaire (atomes en orange) utilisée pour construire la faute pyramidale de seconde espèce. Les atomes sont des carrés ou ronds, noirs ou gris en fonction de leur hauteur dans la direction  $[1\bar{1}00]$ .

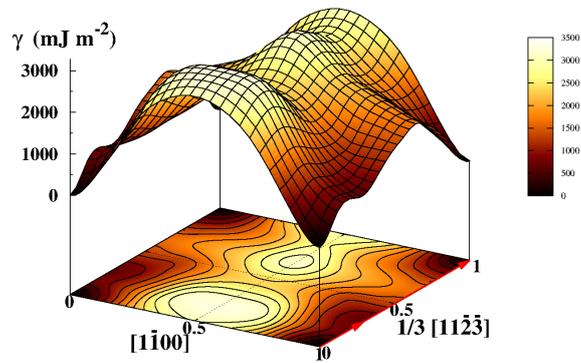
La Figure 4.12 illustre les différentes  $\gamma$ -surfaces obtenues pour une faute d'empilement dans le plan pyramidal de seconde espèce tout en gardant une contrainte sur tous les atomes afin qu'ils ne se relaxent que dans la direction orthogonale au plan pyramidal de seconde espèce. On peut ainsi remarquer que ces  $\gamma$ -surfaces ont des typologies similaires et qu'il n'y a pas de faute visible mais que la direction  $\langle c + a \rangle$  est la direction la plus facile à cisailer.

La stabilité des minima obtenus avec ces différents potentiels a ensuite été étudiée en permettant à tous les atomes de se réorganiser librement avec une relaxation complète. Comme le montre la Figure 4.13, on peut voir que les énergies diminuent de manière considérable. En effet, cette seconde étape de relaxation des positions atomiques amène à de nouvelles structures de faute d'empilement correspondant à des minima énergétiques différents de ceux précédemment obtenus.

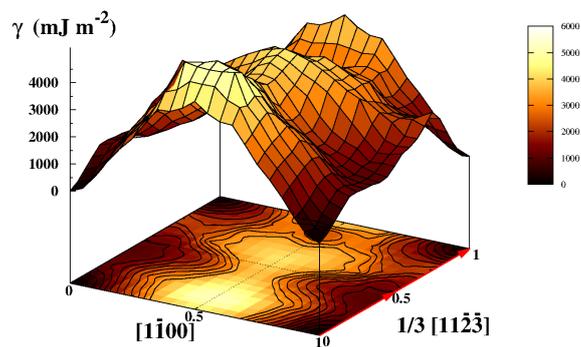
Les différents modèles énergétiques décrivent à peu près tous une structure de faute différente comme on peut le voir illustré par la Figure 4.14. Le potentiel EAM #2 et le potentiel MEAM retrouvent une structure de faute particulière où un atome sur deux au voisinage de la faute a une hauteur dans la direction  $[1\bar{1}00]$  modifiée. C'est pour ce changement de hauteur que cette structure n'a pu être obtenue en ne relaxant que les positions atomiques perpendiculairement au plan de faute. Le potentiel EAM #3 décrit quant à lui une faute d'empilement composée de deux plans de faute, en effet une macule de hauteur monoatomique s'est créée entre les deux cristaux fautes créant ainsi deux surfaces. Les calculs *ab initio* retrouvent une structure quasi similaire à celle obtenue avec le potentiel EAM #2 et MEAM. Les atomes au voisinage de la faute se voient bien changer de hauteur dans la direction  $[1\bar{1}00]$  mais seulement d'un côté de la faute contrairement à l'autre structure où les atomes immédiatement voisins du plan de faute des deux extrémités de la faute avaient leur hauteur modifiée.



(a) EAM 2



(b) EAM 3



(c) MEAM

FIGURE 4.12 – Fautes d'empilement généralisées dans le plan pyramidal de seconde espèce obtenues pour les potentiels EAM 2, EAM 3 et MEAM. Les flèches rouges indiquent les vecteurs de Burgers des dislocations partielles associées à la faute d'empilement de plus basse énergie obtenue dans le plan étudié.

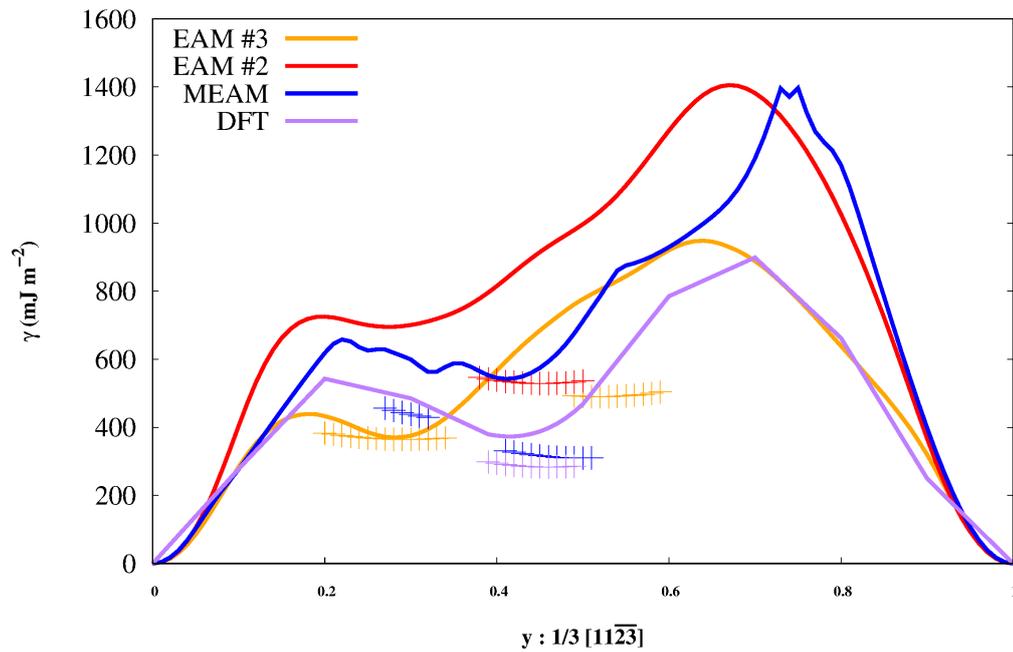
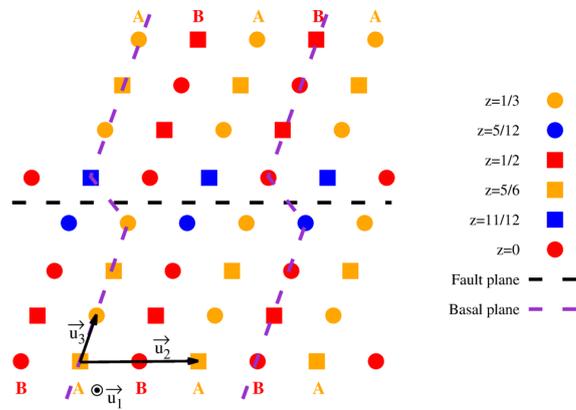
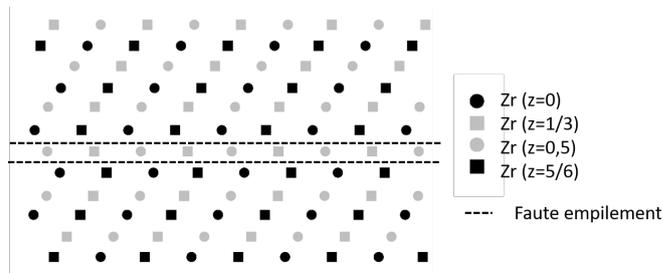


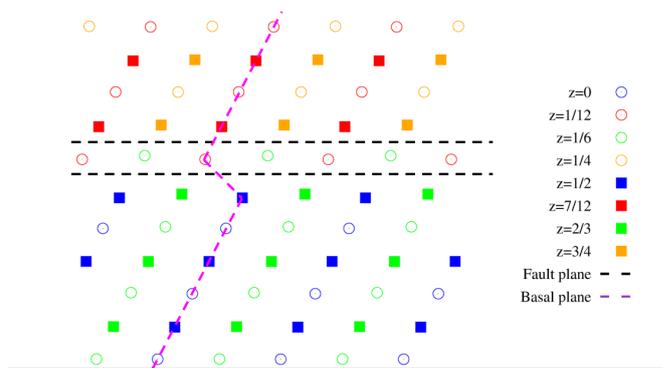
FIGURE 4.13 – Évolution de l'énergie de faute dans la direction  $\langle c + a \rangle$  du vecteur faute pour quatre modèles énergétiques différents (DFT [51], EAM #2, EAM #3 et MEAM). Les lignes continues sont issues de premières relaxation des positions atomiques en contraignant les atomes à ne relaxer que dans les directions orthogonales au plan de faute. Les croix sont issues d'une seconde étape de relaxation où aucune restriction n'est appliquée lors des relaxations atomiques.



(a) EAM #2 - MEAM



(b) EAM #3



(c) Ab initio

FIGURE 4.14 – Structures des fautes d’empilements de plus basses énergies obtenues avec les potentiels EAM #2 et #3, MEAM et les calculs ab initio. Les atomes sont ici colorés en fonction de leur hauteur suivant la direction  $[1\bar{1}00]$  perpendiculaire au plan de la feuille, et la faute d’empilement est toujours représentée par une droite segmentée noire.

Le tableau 4.3 donne les valeurs des énergies et des vecteurs fautes correspondant à la faute d'empilement de plus basse énergie. On remarque ainsi que les vecteurs des fautes d'empilement sont tous proches de  $\frac{1}{6} [2\bar{1}\bar{1}3]$  sauf pour le potentiel EAM #3 qui sous estime le vecteur faute. Au niveau énergétique, seul le potentiel EAM #2 surestime l'énergie de la faute d'empilement par rapport à l'ab initio. Avec de telles fautes d'empilement, les dislocations sont attendues à se dissocier dans le plan pyramidal de seconde espèce en deux dislocations partielles colinéaires avec la même norme du vecteur de Burgers.

TABLE 4.3 – Tableau récapitulatif de la faute d'empilement dans le plan pyramidal de seconde espèce. L'énergie de la faute d'empilement stable de plus basse énergie  $\gamma_{py2}$  et son vecteur faute  $\vec{f}$  y sont représentés pour chacun des modèles énergétiques utilisés.

	$\gamma_{py2}$ (mJ/m <sup>2</sup> )	$\vec{f}$
DFT	300	$0.46 \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}3] + 0.07 \frac{1}{2} [0\bar{1}10]$
EAM2	527	$0.45 \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}3]$
EAM3	364	$0.29 \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}3]$
MEAM	314	$0.50 \frac{1}{3} [2\bar{1}\bar{1}3]$

#### 4.5.4 Faute d'empilement dans le plan prismatique

Les fautes d'empilement dans le plan prismatique ont été également étudiées avec ces trois différents potentiels. Ce plan dense contient une direction  $\langle c + a \rangle$  bien qu'aucun glissement de dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans ce plan n'ait été observé expérimentalement. Ce plan est formé par deux vecteurs élémentaires  $\vec{u}_1 = \frac{1}{3} [1\bar{2}10]$  et  $\vec{u}_2 = [0001]$ . Afin que l'interaction faute-faute soit négligeable, la cellule unitaire a été dupliquée 20 fois dans la direction  $\vec{u}_3 = [10\bar{1}0]$ . On s'attend principalement à observer une faute d'empilement dans la direction  $\langle a \rangle = \frac{1}{3} [\bar{2}110]$ , cette dernière pilotant la dissociation de la dislocation  $\langle a \rangle$  lui permettant ainsi un glissement facile dans le plan prismatique.

La Figure 4.15 illustre les différentes  $\gamma$ -surfaces obtenues avec les trois différents potentiels et avec des calculs ab initio. On peut remarquer que la typologie est la même : un creux suivant la direction  $[1\bar{2}10]$  correspondant à la faute stable connue en  $1/2 \langle a \rangle$  et décalée d'une petite composante suivant  $\langle c \rangle$  avec le potentiel EAM #3 et un maximum unique dans la direction  $\langle c \rangle$ .

En étudiant plus finement le profil énergétique de la faute d'empilement dans la direction  $\langle c \rangle$ , on remarque comme l'illustre la Figure 4.16 que le potentiel EAM #3 admet une faute d'empilement stable dans cette direction comme pour le potentiel MEAM. La stabilité de cette faute dans cette direction avec le potentiel MEAM est néanmoins discutable. En effet ce minimum dans la direction  $\langle c \rangle$  correspond à un point de selle et donc ne correspond pas à une faute d'empilement stable. Cette faute dispose d'une énergie très importante avec le potentiel EAM #3 mais demeure néanmoins stable et est a priori un artefact du potentiel, cette faute n'étant pas stable en ab initio.

L'étude des fautes d'empilements dans le plan prismatique nous montre ainsi qu'une ou deux fautes d'empilement peuvent être obtenues suivant le modèle énergétique choisi. La faute d'empilement suivant  $1/2 \langle a \rangle$  et la faute d'empilement suivant  $1/2 \langle c \rangle$  sont données en fonction de leur vecteur faute et leurs énergies dans le tableau 4.4. Ces deux fautes peuvent alors stabiliser respectivement deux dissociations différentes :  $1/2 \langle a \rangle + (1/2 \langle a \rangle + \langle c \rangle)$  et  $1/2 \langle c \rangle + (1/2 \langle c \rangle + \langle a \rangle)$ . Ces dissociations reposant sur deux dislocations partielles non colinéaires ne correspondant pas à la même direction cristallographique.

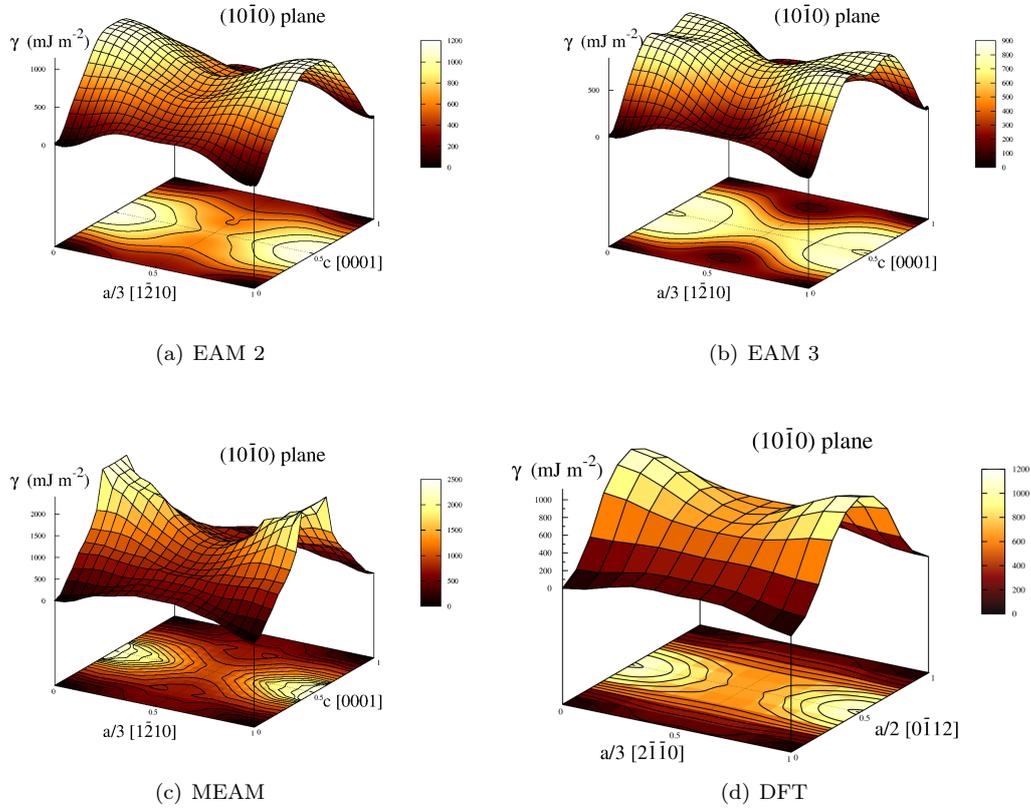


FIGURE 4.15 – Fautes d’empilement généralisées dans le plan prismatique obtenues pour les potentiels EAM 2, EAM 3 et MEAM et les calculs ab initio. Les flèches rouges indiquent les vecteurs de Burgers des dislocations partielles associées à la faute d’empilement de plus basse énergie obtenue dans le plan étudié.

TABLE 4.4 – Tableau récapitulatif de la faute d’empilement dans le plan prismatique. L’énergie de la faute d’empilement stable de plus basse énergie  $\gamma_{pr}$  et son vecteur faute  $\vec{f}$  y sont représentés pour chacun des modèles énergétiques utilisés pour une faute de type  $1/2 \langle a \rangle$  et  $1/2 \langle c \rangle$ .

	$\gamma_{pr}(1/2\langle a \rangle)$ (mJ/m <sup>2</sup> )	$\vec{f}$	$\gamma_{pr}(1/2\langle c \rangle)$ (mJ/m <sup>2</sup> )	$\vec{f}$
DFT	211	$0.5 \frac{1}{3} [1 \bar{2} 1 0]$	×	×
EAM2	357	$0.5 \frac{1}{3} [1 \bar{2} 1 0]$	×	×
EAM3	135	$0.5 \frac{1}{3} [1 \bar{2} 1 0] +$ $0.15 [0001]$	845	$0.5 [0 0 0 1]$
MEAM	497	$0.5 \frac{1}{3} [1 \bar{2} 1 0]$	×	×

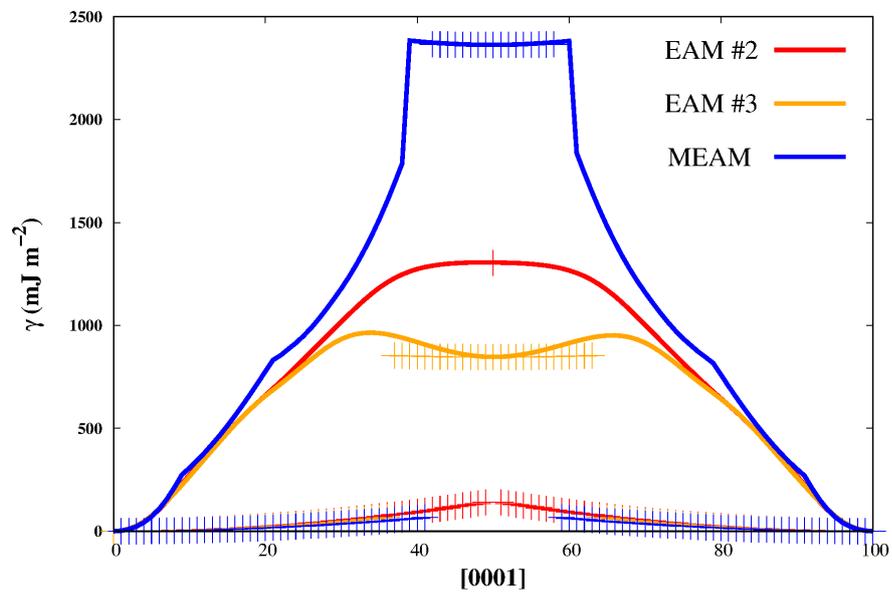


FIGURE 4.16 – Évolution de l'énergie de faute en fonction de la hauteur dans la direction  $\langle c \rangle = [0001]$  pour trois potentiels empiriques différents : EAM #2 et #3 et MEAM.

### 4.5.5 Récapitulatif

Les fautes d'empilement dans les plans possibles de glissement ont été étudiées et comparées aux données issues de calculs *ab initio* dans les sous-sections précédentes. Dans cette sous-section finale nous pouvons conclure quels sont les potentiels qui pourraient décrire convenablement les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium.

Selon les calculs *ab initio*, la structure de cœur de la dislocation de plus basse énergie aurait un cœur étalé dans le plan pyramidal de première espèce. Cette stabilité est corrélée au rapport des énergies de fautes d'empilement  $\frac{\gamma_{\pi_1}}{\gamma_{\pi_2}}$ . Comme on peut le voir avec le tableau 4.5, en *ab initio* la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce est d'énergie plus basse que celle obtenue dans le plan pyramidal de seconde espèce.

Le potentiel EAM #3 semble être un très bon candidat pour la modélisation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium. En effet, il retrouve des énergies de fautes similaires ainsi qu'une même hiérarchie énergétique qui laisse supposer qu'une dislocation dissociée dans le plan pyramidal de première espèce est plus stable qu'une dislocation dissociée dans le plan pyramidal de seconde espèce. Comme les énergies de fautes correspondent à celles obtenues en *ab initio*, les distances de dissociation des dislocations devraient être les mêmes. Il faut néanmoins prendre en compte que les vecteurs faute diffèrent de ceux obtenus en *ab initio* et que la faute d'empilement dans le plan pyramidal de seconde espèce diffère fortement en sa structure. Un deuxième point à prendre en compte est le fait qu'une faute suivant  $1/2 \langle c \rangle$  est stable avec ce potentiel. Bien qu'elle soit énergétiquement peu probable, elle reste possible et doit être évitée, cette dernière n'étant pas stable en calcul *ab initio*.

Le potentiel EAM#2 ne semble pas, au premier coup d'œil, être le meilleur potentiel pour modéliser les dislocations  $\langle c + a \rangle$ , les énergies de fautes étant environ deux fois plus hautes que celles obtenues en *ab initio*. Néanmoins, la hiérarchie énergétique est conservée et une dissociation plus stable dans le plan pyramidal de première espèce est suggérée. Les vecteurs des fautes d'empilement sont proches de ceux des fautes stables obtenues en *ab initio* et la structure des fautes est la même dans le plan pyramidal de première espèce et proche dans le plan pyramidal de seconde espèce.

Le potentiel MEAM, quant à lui, semble le moins adapté à la modélisation des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Bien que l'énergie de faute dans le plan pyramidal de seconde espèce soit proche de celle obtenue en *ab initio*, celle dans le plan pyramidal de première espèce est fortement surestimée et supérieure à celle dans le plan pyramidal de seconde espèce. Ceci suggère alors qu'une dissociation dans le plan pyramidal de seconde espèce soit plus stable avec ce potentiel.

TABLE 4.5 – Énergies des fautes d'empilement en  $\text{mJ}/\text{m}^2$  de plus basse énergie dans les plans pyramidaux de première et de seconde espèce et le plan prismatique en fonction des modèles énergétiques.

	$\gamma_{py1}$	$\gamma_{py2}$	$\gamma_{pr}$ (suivant $1/2 \langle c \rangle$ )
DFT [51]	127	300	×
EAM2	278	527	×
EAM3	137	364	845
MEAM	364	314	×

Les énergies et vecteurs issues des fautes d'empilements stables et des constantes élastiques ont été estimées et ont permis l'estimation des distances de dissociation dans le cas de dissociation

simple d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$ . Ces distances de dissociation ont été calculées via l'équation [6] :

$$d_{eq} = \frac{b_i^{(1)} K_{ij} b_j^{(2)}}{\gamma},$$

où  $b_i(1)$  et  $b_j(2)$  sont les vecteurs de Burgers des deux dislocations partielles,  $K_{ij}$  la matrice de Stroh et  $\gamma$  l'énergie de la faute d'empilement responsable d'une telle dissociation. Ces distances sont répertoriées dans le tableau 4.6.

TABLE 4.6 – Distances de dissociation prédites suivant la théorie élastique dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan pyramidal de seconde espèce pour une dislocation  $\langle c + a \rangle$  en fonction du modèle énergétique.

	$d_{eq}(\pi_1)$ (Å)	$d_{eq}(\pi_2)$ (Å)
DFT	35	16
EAM2	24	14
EAM3	39	30
MEAM	16	18

On peut remarquer que la distance de dissociation est plutôt bien prédite par le potentiel EAM #3 du fait que les énergies de fautes sont comparables à celles obtenues avec des calculs *ab initio*. La distance de dissociation dans le plan pyramidal de première espèce avec les deux autres potentiels est moins bien prédites du fait d'une surestimation de l'énergie de faute.

De ces études, on peut conclure que le potentiel EAM #3 obtient des énergies de fautes d'empilement proches des valeurs issues des calculs *ab initio*, néanmoins, leurs vecteurs fautes diffèrent de ceux estimés en *ab initio*. Cela laisse un doute sur la capacité de ce potentiel à reproduire le comportement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  ajouté au fait qu'il puisse introduire un artefact.

Le potentiel EAM #2 surestime les énergies de fautes d'empilement et ainsi sous-estimerait les distances de dissociations. Néanmoins, il retrouve les bons vecteurs des fautes d'empilement et les structures des fautes d'empilement obtenues avec ce potentiel sont similaires à celles obtenues en *ab initio*.

Le potentiel MEAM, quant à lui ne retrouve pas bien l'énergie de faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce ce qui amènerait à une forte sous estimation de la distance de dissociation. De plus, ce potentiel ne prédit pas la bonne hiérarchie énergétique  $\frac{\gamma_{\pi_1}}{\gamma_{\pi_2}}$  et devrait être écarté de la modélisation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis.

Les différents potentiels et leurs impacts sur les structures de cœur ayant été introduits, les structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  peuvent être maintenant étudiées.

## Conclusion

Les méthodes et techniques utilisées dans les simulations atomistiques réalisées dans cette thèse ont été introduites. Les simulations atomiques des dislocations nécessitent des conditions limites périodiques spécifiques que ce soit en statique ou en dynamique moléculaire.

Les énergies des fautes d'empilement en *ab initio* prédisent une faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce plus stable que dans les autres plans possibles de dissociation. Les potentiels EAM #2 et #3 prédisent également une faute d'empilement plus stable dans le plan pyramidal de première espèce, néanmoins, les structures de cœur obtenues avec ces potentiels pourraient être de formes différentes dû au fait que les vecteur faute et énergies de fautes correspondant aux fautes les plus stables dans les plans possibles de dissociation sont fortement différentes. Le potentiel EAM #3 est plus quantitatif au niveau des énergies de fautes mais reproduit moins bien les structures de faute stables et les vecteurs fautes correspondant ne correspondent pas à ceux obtenus avec les calculs *ab initio*. Le potentiel EAM #2, au contraire, prédit des énergies de fautes surestimées mais des structures de fautes qui diffèrent moins de l'*ab initio*.

Du fait que le zirconium est un métal de transition, le potentiel MEAM qui prend en compte un caractère angulaire des liaison inter-atomique devrait être le plus adapté pour reproduire le comportement du matériau mais échoue à prédire les fautes d'empilement.



## Chapitre 5

# Glissement des dislocations $\langle c + a \rangle$ vis

Les moyens de simulations ayant été introduits dans le chapitre précédent, nous allons maintenant présenter les études qui ont été réalisées dans cette thèse sur le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec des simulations atomiques. Nous commençons par présenter les études portant sur le glissement des dislocations vis car elles contrôlent le plan de glissement qui est connu expérimentalement comme étant le plan pyramidal de première espèce [19, 35, 36, 41–43] (voir Chapitre 2.3 et 3.4). Des structures de cœur de la dislocation vis sont premièrement obtenues dans la section 5.1 avec les différents potentiels introduits dans le chapitre précédent. De l'étude des fautes d'empilement on peut s'attendre à ce que la dislocation dissociée dans le plan pyramidal de première espèce soit la plus stable pour les potentiels EAM #2 et #3 de Mendeleev et Ackland publiés en 2007 [64] et plus stable dans le plan pyramidal de seconde espèce pour le potentiel MEAM [96]. La détermination de ces structures de cœur va mener au choix d'un potentiel pour simuler ces dislocations en dynamique moléculaire visant à étudier leur comportement sous contrainte et en température. Les simulations en dynamique moléculaire visent à obtenir une loi de mobilité et sont décrites dans la section 5.3

### 5.1 Choix du potentiel et cœurs de dislocations

#### 5.1.1 Boîte de simulation

Les simulations en statique moléculaire sont réalisées ici premièrement en approche agrégats afin de modéliser des dislocations isolées et obtenir les énergies de cœur. Une boîte suffisamment grande doit ainsi être utilisée afin de limiter les artefacts liés aux bords de la boîte.

Afin de pouvoir observer correctement les dislocations  $\langle c + a \rangle$ , la boîte est orientée de manière à ce que la direction  $\langle c + a \rangle$  soit alignée suivant une direction  $\vec{y}$ . Cette direction permet ainsi une projection facile. Projetée dans cette direction  $\vec{u}_2 = 1/3 [\bar{2} 1 1 3]$ , qui est un vecteur de la maille élémentaire, la structure hexagonale compacte conduit à une cellule élémentaire composée de 4 atomes. Cette cellule élémentaire est définie par deux autres vecteurs :  $\vec{u}_1 = [0 1 \bar{1} 0]$  et  $\vec{u}_3 = \frac{1}{3} [\bar{2} 1 1 0]$ . La structure hexagonale compacte apparaît dans cette direction comme illustrée par la Figure 5.1. Suivant cette projection, le plan pyramidal de seconde espèce apparaît horizontal

(représenté par la droite segmentée violette  $\pi_2$ ) et les deux plans pyramidaux de première espèce apparaissent obliques (droites segmentées bleues, appelées  $\pi_1$ ). Le plan prismatique qui n'est pas observé expérimentalement comme étant un plan où le glissement de dislocation  $\langle c + a \rangle$  opère, apparaît quant à lui vertical (Pr).

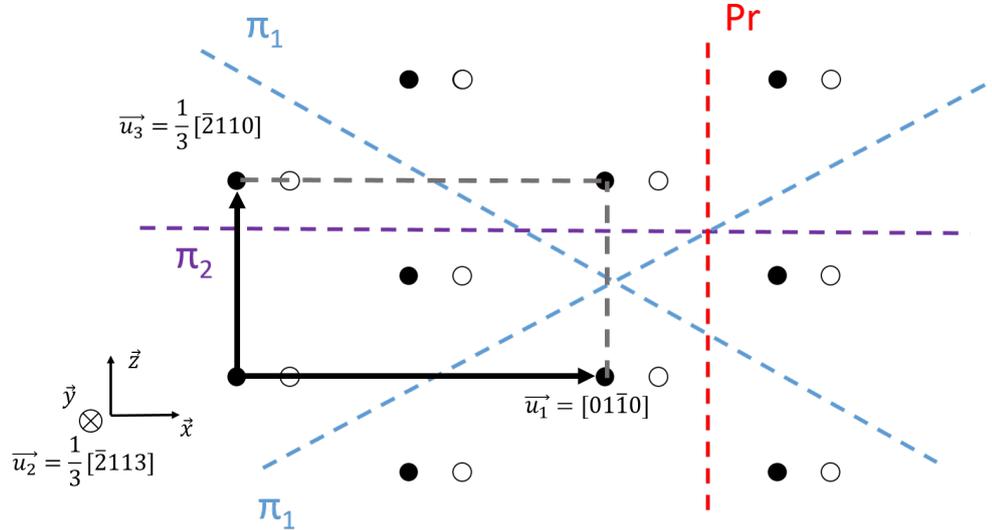


FIGURE 5.1 – Schéma représentant la projection de la structure hexagonale compacte suivant une direction  $\langle c + a \rangle$ . La cellule élémentaire est contenue dans le rectangle segmenté gris. Les autres lignes segmentées correspondent aux traces des plans dans lesquels la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  pourrait glisser. Deux plans pyramidaux de première espèce ici représentés en bleu, un seul plan pyramidal de seconde espèce en violet et un plan prismatique en rouge peuvent être des plans de glissement possibles. Les atomes sont colorés ici en fonction de leur hauteur dans la direction de projection.

Afin d'obtenir un maximum de types de structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis, des dislocations sont générées suivant la théorie élastique [85, 86] à l'état compact dans la matrice à différentes positions. Après relaxation, plusieurs structures de cœur ont été obtenues de cette manière. Des dislocations à l'état dissocié ont également été introduites dans la matrice en spécifiant les vecteurs des dislocations partielles (issues des calculs sur les fautes d'empilement) et la distance de dissociation. Ces dislocations générées sont ensuite relaxées et les structures finales sont étudiées en cherchant leur énergie.

Pour correctement caractériser l'énergie de cœur d'une dislocation, il est nécessaire de vérifier que la taille de la boîte de simulation est suffisamment grande pour que l'énergie de cœur ait bien convergé. Comme décrit dans le Chapitre 4, l'énergie de cœur  $E_{cœur}$  est obtenue en retranchant à l'énergie d'excès  $\Delta E(r)$  la contribution élastique  $E_{élastique}(r)$  estimée avec la théorie élastique :

$$E_{cœur} = \Delta E(r) - E_{élastique}(r), \quad (5.1)$$

où d'après l'équation 1.1 :

$$E_{élastique}(r) = \frac{1}{2} b_i K_{ij} b_j \ln\left(\frac{r}{r_c}\right)$$

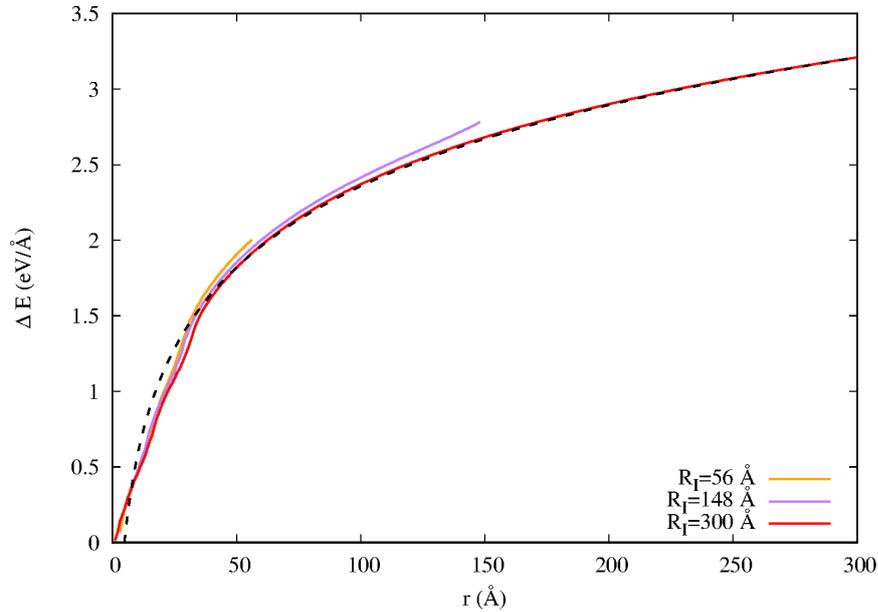
où le rayon de cœur  $r_c$  est pris égal à la norme du vecteur de Burgers de la dislocation.

L'énergie d'excès apportée par une dislocation  $\Delta E(r)$  est évaluée dans un cylindre centré sur la dislocation de rayon  $r$  variant de 0 au rayon  $R_I$  du cylindre délimitant la zone où les atomes sont libres de relaxer. La boîte simulée est obtenue suite à une duplication en fonction de ses vecteurs élémentaires :  $\vec{U}_1 = t \vec{u}_1$ ,  $\vec{U}_2 = 5 \vec{u}_2$  et  $\vec{U}_3 = 2t \vec{u}_3$ ,  $t$  étant un nombre entier. Trois boîtes de tailles différentes ont été ainsi créées : pour  $t=30, 60$  et  $120$ . Elles peuvent également être catégorisées par le rayon  $R_I$  du cylindre où les atomes sont libres de relaxer :  $56 \text{ \AA}$ ,  $148 \text{ \AA}$  et  $300 \text{ \AA}$ .

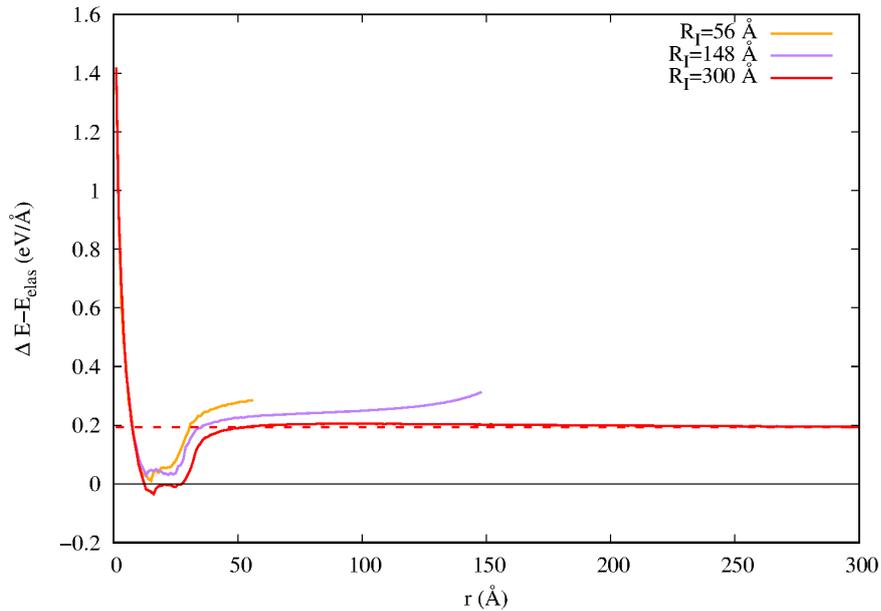
La Figure 5.2 illustre l'énergie d'excès  $\Delta E(r)$  en fonction du rayon  $r$  du cylindre où l'énergie est représentée par des lignes continues pour ces trois boîtes. Ces énergies d'excès suivent bien les variations prédites par la théorie élastique (Eq 1.1), spécifiquement la courbe correspondant à un rayon  $R_I = 300 \text{ \AA}$  qui converge bien à longue distance avec l'énergie d'excès prédite par la théorie élastique ajoutée d'une énergie de cœur  $E_{cœur} = 192 \text{ meV/\AA}$ .

En traçant la différence entre l'énergie d'excès et la contribution élastique (Figure 5.2(b)), on peut remarquer que la courbe correspondant à un rayon  $R_I = 300 \text{ \AA}$  retrouve une énergie de cœur égale à  $192 \text{ meV/\AA}$ . En ce qui concerne les courbes issues des boîtes un rayon  $R_I$  plus faible, l'énergie de cœur diverge du fait que les atomes dans la zone où les atomes ne sont pas libres de relaxer (zone II) ne sont pas bien positionnés par la théorie élastique. Ceci résulte du fait que la dislocation étudiée a un cœur non compact qui génère un champ élastique supplémentaire non prévu par la théorie élastique. Cet impact diminuant avec la distance, il est normal que pour la boîte ayant de plus grandes dimensions, cet effet soit négligeable.

On remarque ainsi que pour une boîte de taille  $120 \times 5 \times 240$  comprenant  $576000$  atomes, l'énergie de cœur et l'énergie élastique sont bien reproduites permettant ainsi de comparer énergétiquement les différentes structures de cœur.



(a) Variation de l'énergie d'excès  $\Delta E$  avec le rayon  $r$  pour différentes tailles de boîte. Les valeurs extraites des simulations sont représentées par des lignes continues. La droite segmentée représente l'énergie d'excès théorique prédite par la théorie élastique avec une énergie de coeur  $E_{coeur}=192$  meV/Å (Éq. 1.1).



(b) Évolution de la différence entre l'énergie d'excès et l'énergie élastique de la dislocation en fonction du rayon  $r$ . Les lignes continues représentent les résultats des simulations atomistiques et la droite segmentée l'énergie de coeur obtenue comme limite asymptotique pour la plus grande boîte ( $R_I=300$  Å).

FIGURE 5.2 – Évolution des énergies d'excès et de coeur au sein de boîte de simulation pour différentes tailles de boîte (décrites ici par le rayon  $R_I$  de la zone laissant les atomes libres de relaxer).

### 5.1.2 Configurations de la dislocation vis

Différentes structures de cœur sont obtenues avec les différents potentiels pré-sélectionnés. Ces dernières sont ensuite comparées suivant leurs énergies de cœur, les vecteurs de Burgers des dislocations partielles, le plan de dissociation ou d'étalement, la distance de dissociation ou la présence d'étalements secondaires.

#### Structures obtenues avec le potentiel EAM #3

Ce potentiel retrouve des énergies de fautes pour les plans pyramidaux en adéquation avec celles obtenues par calculs *ab initio* comme vu dans le chapitre 4. Bien que le vecteur faute dans le plan pyramidal de première espèce ne soit pas exactement le même, on s'attend à ce que ce potentiel retrouve une structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce comme structure à l'état fondamental du fait que la faute stable dans le plan pyramidal de première espèce ait une énergie plus faible que dans le plan pyramidal de seconde espèce.

Les différentes structures métastables obtenues sont représentées par la Figure 5.3 par ordre de stabilité. La première chose que l'on peut remarquer est qu'aucune de ces structures n'est dissociée sur un seul plan. Toutes les structures ont une partie qui est dissociée suivant un plan pyramidal de première espèce, plan apparaissant oblique sur toutes les images. La structure à l'état fondamental est dissociée suivant deux plans pyramidaux de première espèce différents et comporte également dans sa partie centrale un étalement dans le plan prismatique.

La structure de cœur de l'état fondamental a été étudiée plus finement à l'aide de circuits de Burgers pour déterminer les vecteurs de Burgers des dislocations partielles et en regardant sa discontinuité dans ses plans de dissociation pour déterminer les positions des dislocations partielles. La Figure 5.4 montre les différents circuits de Burgers établis afin d'analyser les différents vecteurs de Burgers des dislocations partielles. Les circuits ici illustrés en rouge et en bleu ont permis de déterminer un vecteur de Burgers correspondant à  $0.32 \frac{1}{2} \langle 01\bar{1}2 \rangle$  qui correspond au vecteur faute de la faute d'empilement de plus basse énergie dans le plan pyramidal de première espèce. Les circuits jaunes et violet ont été créés afin de voir si oui ou non une dissociation dans le plan prismatique était présente. L'utilisation de ces circuits n'a néanmoins pas permis de déterminer une faute correspondant aux fautes connues dans le plan prismatique ( $1/2 \langle c \rangle$  ou  $1/2 \langle a \rangle + 0.16 \langle c \rangle$ ), le ruban de faute dans le plan prismatique n'étant pas suffisamment étendu pour permettre une telle analyse. Le vecteur de Burgers de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  se dissocie ainsi en trois dislocations partielles via la relation :

$$\vec{b} \rightarrow \vec{b}_1 + \vec{b}_2 + \vec{b}_3$$

où  $\vec{b}_1 = 0.32[01\bar{1}2]$ ,  $\vec{b}_2 = \frac{1}{3}[\bar{2}113] - 0.64[01\bar{1}2]$  et  $\vec{b}_3 = 0.32[01\bar{1}2]$ .  $\vec{b}_1$  est contenu dans le circuit bleu,  $\vec{b}_2$  dans la zone définie par le circuit jaune et violet et  $\vec{b}_3$  dans le circuit rouge.

Les distances de dissociations ont été estimées avec la différence de déplacement de part et d'autre du plan de dissociation. La distance de dissociation principale (la plus longue) est de 29.5 Å et la secondaire de 13.4 Å.

Ces mêmes analyses ont été réalisées sur les autres structures. La structure correspondant à la Figure 5.3b est la même que celle précédemment étudiée, seul l'étalement de la dislocation centrale varie.

Une structure particulièrement intéressante est la structure dissociée dans un plan pyramidal de première espèce et dans un plan prismatique, cette dernière correspondant à la structure

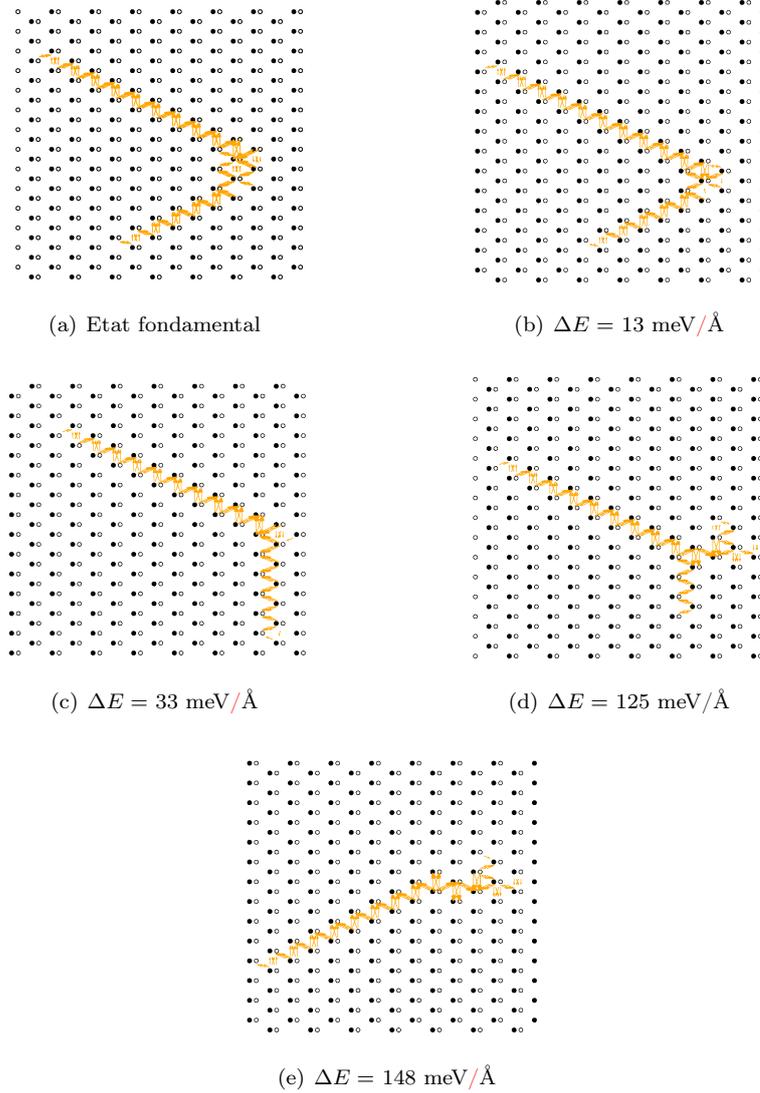


FIGURE 5.3 – Cartes de déplacements différentiels des différentes structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  vis obtenues en utilisant le potentiel EAM #3.

illustrée par la Figure 5.3c. En analysant via des circuits de Burgers la dissociation dans le plan prismatique, on remarque que le vecteur de la partielle en bas de la structure ne correspond pas parfaitement ni à une direction  $1/2 \vec{a}$  ni à une direction  $1/2 \vec{c}$ . Le vecteur déterminé de cette dislocation partielle est  $\vec{b}_3 = 0.35 [0001] + 0.06 [\bar{2}110]$ . Nous supposons donc que c'est une faute suivant la faute prismatique prédite par ce potentiel en  $1/2 \vec{c}$  qui a rendu cette seconde dissociation possible. Cette faute étant un artefact du potentiel comme vu dans la section 4.5.1, la structure de cœur la faisant intervenir n'est pas correcte et doit être évitée.

Il est à noter que ces types de structures vus en Figure 5.3 correspondent à toutes les structures possibles obtenues en variant les distances de dissociation initiales et qu'aucune structure

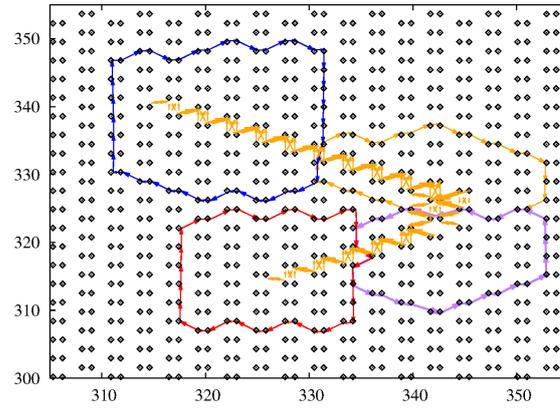


FIGURE 5.4 – Circuits de Burgers utilisés pour la détermination des vecteur de Burgers des partielles de la structure de cœur de plus basse énergie obtenue avec un potentiel EAM#3.

dissociée dans un unique plan n'a pu être obtenue.

Nous pouvons conclure de ces structures de cœur que les différentes configurations possibles de la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  sont toutes dissociées dans deux plans. Ce type de structure glisse apparemment difficilement : si l'on imagine la dislocation glisser dans un plan pyramidal de première espèce où elle est dissociée, l'autre brin dissocié dans un autre plan entraînerait une forte friction avec le réseau. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis étant observée expérimentalement comme plus glissile, un tel comportement n'est pas attendu. De plus, ce potentiel tend à favoriser une faute prismatique qui n'existe qu'avec ce potentiel. Il semblerait donc que ce potentiel, bien que reproduisant des énergies de fautes correctes, n'est pas adapté à l'étude de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis.

### Structures obtenues avec le potentiel EAM #2

Ce potentiel a été déterminé comme ayant une bonne hiérarchie énergétique entre les fautes dans les plans pyramidaux de première et de seconde espèce, les vecteurs fautes obtenus dans ces plans correspondent aux vecteurs fautes déterminés dans les calculs ab initio. Néanmoins les énergies de fautes sont surestimées (environ un facteur 2) et les distances de dissociations devraient apparaître plus courtes que les véritables distances si l'on en croit les énergies de fautes prédites par l'ab initio.

Les différentes structures de cœur métastables ont également été recherchées ici en changeant les positions des centres des dislocations et les types de dissociation introduites. Les différents types de structures de cœur stables obtenus sont illustrés sur la Figure 5.5. L'état de plus basse énergie (Figure 5.5a)) est composé d'une dissociation en deux dislocations partielles dans le plan pyramidal de première espèce et d'un étalement secondaire de la partielle ici représentée à gauche sur un plan prismatique. Cette structure est la plus stable.

Une étude en circuit de Burgers a été réalisée sur cette structure. Le vecteur faute déterminé dans l'étude des fautes d'empilement est retrouvé ( $0.21 [01\bar{1}2]$ ) et correspond à la dislocation partielle la moins étalée (à gauche sur la figure).

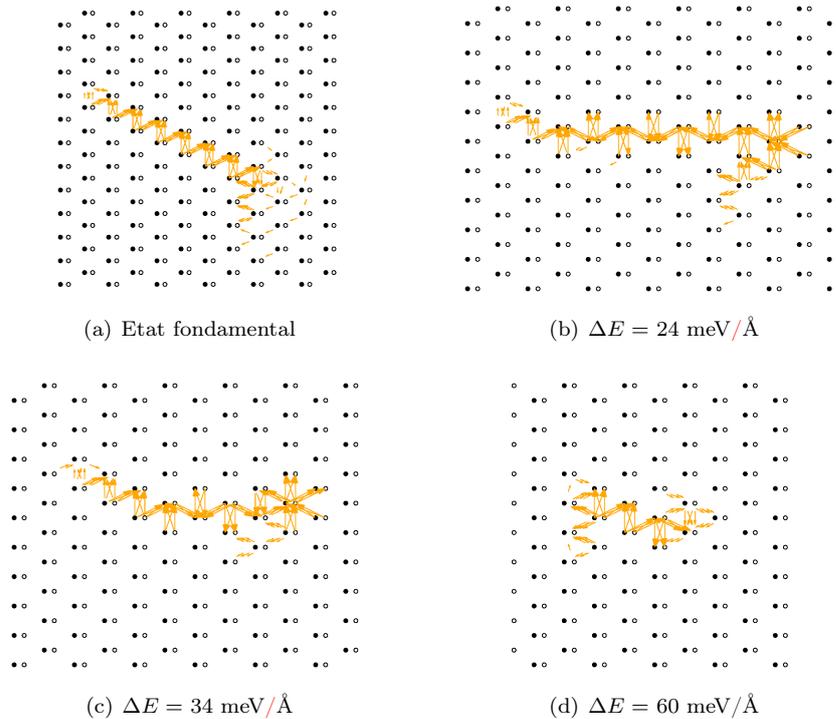


FIGURE 5.5 – Cartes de déplacements différentiels des différentes structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  vis obtenues en utilisant le potentiel EAM 2.

Partant d'une configuration initiale déjà étalée dans ce plan pyramidal, la distance de dissociation n'évolue pas après relaxation jusqu'à une valeur limite environ égale à 35 Å. La Figure 5.5a) montre la structure ayant l'énergie la plus basse. La distance de dissociation déterminée pour cette structure est de 20 Å ce qui est plutôt proche de ce que prévoit la théorie élastique (25 Å, section 4.5.1).

L'évolution de l'énergie de cœur des différentes structures de cœur stabilisées avec ce potentiel est décrite par la Figure 5.6. On remarque que l'on trouve bien un minimum pour une structure dissociée initialement sur environ 20 Å correspondant à la structure de plus basse énergie illustrée par la Figure 5.5. La droite représente la variation énergétique prédite par la théorie élastique et l'on remarque que le même comportement est bien retrouvé, bien que décalé.

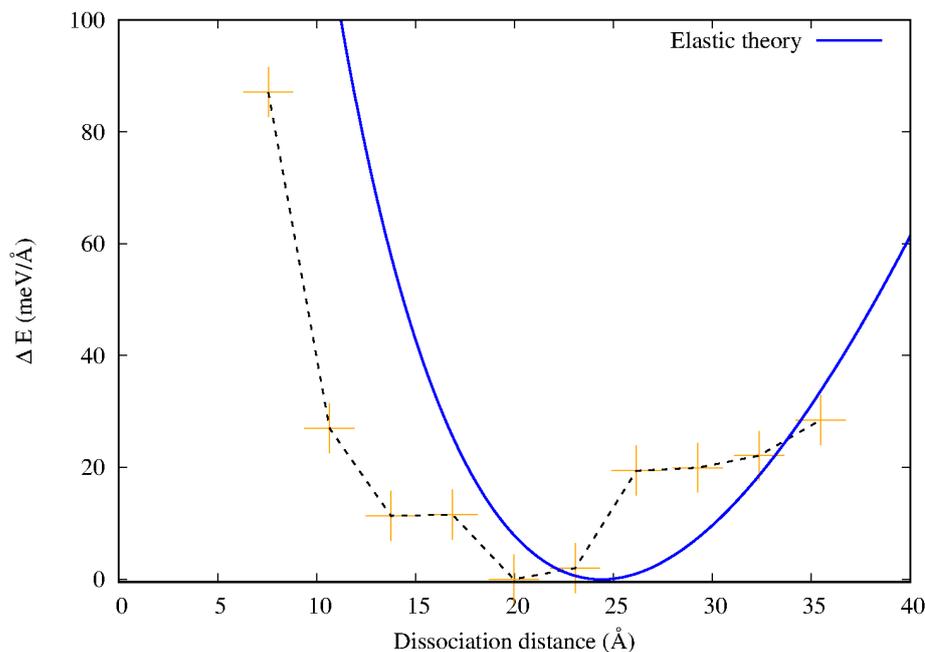


FIGURE 5.6 – Évolution de l'énergie de cœur d'une structure relaxée initialement dissociée dans un plan pyramidal de première espèce en fonction de la distance de dissociation. La ligne bleue représente la variation d'énergie prédite par la théorie élastique.

Une structure métastable est également obtenue pour une dissociation planaire dans le plan pyramidal de seconde espèce (Fig. 5.5b). Ce type de structure est énergétiquement moins stable et, comme la dislocation dissociée dans le plan pyramidal de première espèce, cette structure de cœur admet plusieurs configurations stables variant en longueur de dissociation. La distance de dissociation à l'équilibre de cette structure est de 24 Å ce qui est bien plus élevée que celle prédite par la théorie élastique (14 Å). La structure de cœur est non planaire, cette dernière étant le fruit d'une dissociation en deux partielles colinéaires non égales, l'une correspondant à  $0.45 \langle c + a \rangle$  et l'autre à  $0.55 \langle c + a \rangle$  en accord avec l'étude des fautes d'empilement qui s'étalent ensuite dans des plans pyramidaux de première espèce.

Contrairement au potentiel EAM #3, des structures de cœur quasi-compactes ont pu être obtenues. Elles disposent d'une structure étalée sur plusieurs plans non définis sur de courtes distances comme le montre la Figure 5.5d). Ces dernières disposent d'une énergie de cœur élevée.

La structure la plus stable obtenue avec le potentiel EAM #3 a été étudiée en utilisant le potentiel EAM #2 mais n'a pas pu donner naissance à une nouvelle configuration stable, cette dernière retournant vers une structure du même type que la structure de l'état fondamental.

De ces structures cœur obtenues avec le potentiel EAM #2, nous pouvons conclure que ce potentiel est un bon candidat pour modéliser le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis : la structure de cœur la plus stable est dissociée principalement dans le plan pyramidal de première espèce. Le fait que cette structure de cœur soit quasi planaire entrainera moins de friction avec le réseau rendant un glissement plutôt facile, a priori en accord avec nos observations expérimentales. Néanmoins, l'étalement secondaire de cette dislocation pourrait compliquer le glissement.

### Structures obtenues avec le potentiel MEAM

Le potentiel MEAM conduit aux mêmes structures de cœur dissociées dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan pyramidal de seconde espèce que celles obtenues avec le potentiel EAM #2. La structure de cœur dissociée dans le plan pyramidal de seconde espèce correspond à l'état fondamental, en accord avec la hiérarchie des énergies des fautes d'empilements obtenues avec ce potentiel (section 4.5.1). Pour cette raison, ce potentiel ne sera pas utilisé pour modéliser le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  : l'activation thermique conduirait la dislocation à la structure de cœur dissociée dans le plan pyramidal de seconde espèce et glisserait ainsi dans ce plan, en désaccord donc avec nos observations expérimentales montrant un glissement uniquement dans les plans pyramidaux de première espèce. Ce potentiel ne semble pas adéquat pour modéliser le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  vis dans le zirconium.

### Sélection du potentiel

Les différentes structures de cœur stables ayant été déterminées en fonction des trois potentiels à notre disposition, le potentiel EAM #2 semble être le plus adapté pour reproduire le glissement de la dislocation vis observé expérimentalement dans le zirconium, soit un glissement exclusivement dans les plans pyramidaux de première espèce. C'est donc ce potentiel qui sera choisi pour réaliser le reste de l'étude sur le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis.

La structure de plus basse énergie admet une partielle faiblement étalée dans un plan prismatique ce qui n'avait pas été observé dans les précédentes études atomistiques réalisées sur la dislocation vis avec des potentiels Lennard-Jones [53,61] ou dans le titane [59] où une dissociation en deux dislocations partielles dans le plan pyramidal de première espèce de vecteur de Burgers égaux avait été observé. Hormis cet étalement secondaire la structure de la dislocation de plus basse énergie obtenue avec le potentiel EAM #2 ressemble fortement aux structures de cœur obtenues par Numakura et al. [61,62]. Elle semble glissile et un comportement asymétrique pourrait être retrouvé comme observé dans les travaux de Numakura et al. à cause de la différence entre ces deux dislocations partielles.

La double dissociation prononcée observée avec le potentiel EAM #3 est, quant à elle, nouvelle. Cette double dissociation est sûrement due au faible vecteur faute dans le plan pyramidal de première espèce et une étude en élasticité devrait être réalisée pour expliquer cette double dissociation si prononcée. Cette double dissociation n'a pas été reconnue comme stable avec le potentiel EAM #2.

## 5.2 Effet d'une contrainte appliquée

### 5.2.1 Dislocation sous contrainte

Le potentiel EAM #2 a été choisi pour étudier le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis. La première étape est d'étudier le comportement de la dislocation sous contrainte à 0 K afin de déterminer la contrainte de Peierls, contrainte à laquelle la dislocation peut avancer dans son plan de glissement sans activation thermique.

Afin d'appliquer une contrainte aux dislocations, le dispositif introduit pour les simulations en dynamique moléculaire est utilisé (section 4.1.3). Afin que le rapport de Schmid soit maximal, la boîte est réorientée via une rotation par rapport à l'axe de la dislocation et le plan pyramidal de première espèce  $(10\bar{1}1)$  où le glissement opère pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  apparaît maintenant horizontal (dans le plan  $(XY)$ ).

La structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis de plus basse énergie obtenue avec le potentiel EAM #2 est non symétrique : elle est composée d'une dislocation partielle étalée à gauche, de vecteur  $\vec{b}_1 = \frac{1}{3}[\bar{2}113] - 0.42[01\bar{1}2]$  et d'une partielle plus planaire à droite de vecteur de Burgers  $\vec{b}_2 = 0.42[01\bar{1}2]$ . Le fait que ces partielles ne correspondent pas à une direction cristallographique équivalente induit que le glissement de la dislocation ne sera pas le même si la contrainte est positive ou négative.

Les contraintes appliquées dans un premier temps sont positives et visent à faire avancer la dislocation de gauche à droite. La Figure 5.7 illustre la structure de la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  sous différentes contraintes. Jusqu'à 400 MPa la structure de cœur n'évolue pas. Au-delà de 400 MPa, la partielle de tête "planaire" avance d'une vallée de Peierls dans le plan pyramidal de première espèce. Pour une contrainte encore supérieure, à 550 MPa la longueur de dissociation augmente à nouveau, montrant que la contrainte de Peierls a bien été atteinte pour la dislocation partielle de tête et que seule la partielle de queue retient la dislocation totale. À partir de 600 MPa, la partielle de queue se restructure pour prendre une forme plus planaire et la distance de dissociation s'étend encore d'une vallée de Peierls. Cette restructuration est un indice que l'on se rapproche de la contrainte de Peierls de la dislocation totale qui est atteinte à 633 MPa. Cette contrainte est bien supérieure à la contrainte de Peierls obtenue pour la dislocation  $\langle a \rangle$  qui varie suivant les potentiel mais est de l'ordre de la vingtaine de MPa [3,94] (soit un facteur 30) montrant ainsi la forte anisotropie plastique du zirconium.

La structure de cœur a également été étudiée sous une contrainte de signe opposé. La Figure 5.8 représente les différentes structures de cœur rencontrées en fonction des incréments de contrainte appliquée à la dislocation afin de la faire avancer dans l'autre direction. On remarque premièrement que la distance de dissociation diminue, avec la partielle planaire qui se rapproche de la partielle étalée. Ce mécanisme souligne encore une fois la mobilité plus facile de la partielle planaire par rapport à celle de la partielle étalée. À partir d'une contrainte de 950 MPa la structure de cœur subit un changement prononcé : la dislocation prend maintenant une configuration étalée sur plusieurs plans dont deux plans prismatiques différents. Cette structure néanmoins ne bloque pas entièrement la dislocation car la contrainte de Peierls est retrouvée à 1370 MPa : au-delà, le cœur de la dislocation se transforme en une dislocation quasi planaire qui glisse indéfiniment dans un plan pyramidal. Il est à noter que ce plan pyramidal de première espèce est différent du plan où l'on souhaite premièrement voir la dislocation avancer : il se situe deux rangées atomiques en dessous. Ceci montre donc que pour passer en dislocation glissile, la structure stable obtenue pour une contrainte  $\sigma > 950$  MPa s'est restructurée de manière compliquée.



FIGURE 5.7 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  en fonction de la contrainte appliquée. La direction de glissement est de la gauche vers la droite de l'image.

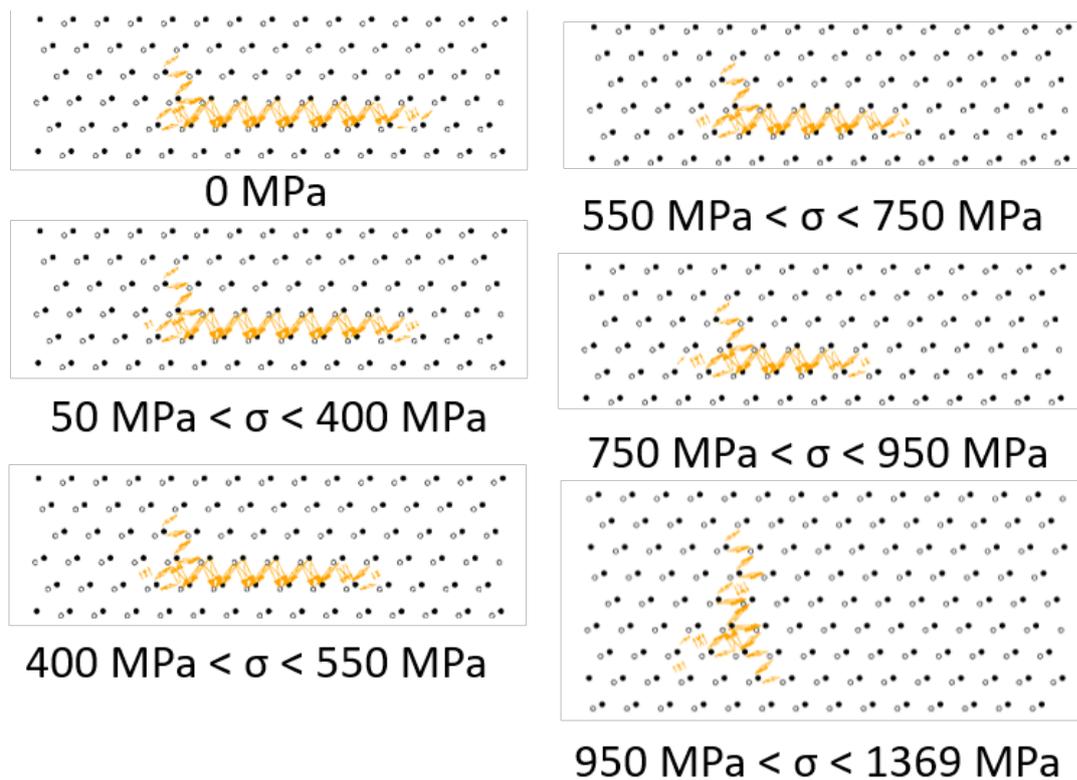


FIGURE 5.8 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  en fonction de la contrainte appliquée afin de faire glisser la dislocation dans sa direction difficile. La direction de glissement est de la droite vers la gauche de l'image.

### 5.2.2 Barrière énergétique de glissement

Les simulations sous contraintes appliquées ont permis de montrer le caractère asymétrique de la dislocation avec la partielle "planaire" plus glissile que la partielle étalée. Nous avons alors réalisé des calculs NEB afin d'établir le profil énergétique de la dislocation lorsqu'elle glisse dans le plan pyramidal de première espèce. Le calcul NEB est réalisé à partir de la structure de cœur à l'état fondamental comme état initial et d'une structure de cœur à l'état fondamental mais décalée d'une vallée de Peierls dans le plan pyramidal de première espèce comme image finale.

Le profil énergétique de la dislocation glissant entre ces deux structures est décrit par la Figure 5.9. On remarque premièrement son asymétrie. En particulier le premier maximum énergétique rencontré est bien moins important que le second. Ce premier col correspond à la barrière à franchir pour faire avancer la partielle de tête "planaire" montrant ainsi qu'elle glisse plus facilement que la partielle de queue. Pour avancer d'une vallée de Peierls, la partielle de queue nécessite une énergie d'activation plus importante. Le glissement de cette dernière est plus complexe : elle nécessite de se réorganiser localement comme on peut le voir entre les coordonnées de réaction  $\xi = 0.22, 0.66$  et  $1$ .

L'énergie d'activation correspond à la différence entre l'énergie la plus haute et l'énergie de l'état initial. Cette énergie d'activation correspond à l'énergie qu'il faut fournir à la dislocation totale pour qu'elle avance dans le plan pyramidal de première espèce.

Des calculs NEB ont également été réalisés sous contrainte. Les barrières ont été obtenues pour des contraintes inférieures à 400 MPa. On peut remarquer en regardant la Figure 5.10 que le profil de la barrière garde la même forme mais se penche avec la contrainte, la pente correspondant au travail de la force de Peach-Koehler exercée sur la dislocation par la contrainte appliquée.

L'énergie d'activation issue de ces nouvelles barrières ne correspond plus à la différence entre l'énergie la plus haute et l'énergie de l'état initial mais à la différence entre l'énergie la plus haute et l'énergie correspondant au minimum énergétique le plus bas de coordonnées de réaction inférieure. En étudiant l'évolution de l'enthalpie d'activation en fonction de la contrainte représentée par la Figure 5.11, on peut remarquer que plus la contrainte augmente plus l'énergie d'activation diminue que ce soit pour une contrainte positive ou négative. Cette diminution est plus rapide dans le sens facile ( $\sigma > 0$ ) que dans l'autre.

L'étude sous une contrainte appliquée d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  a montré premièrement que le glissement de la dislocation était plus facile dans une direction que dans l'autre. Le glissement de cette dislocation dans le plan pyramidal de première espèce et suivant la direction la plus facile nécessite de franchir une barrière énergétique considérable. Cette barrière s'annule sous une contrainte très importante ( $\sigma_P = 633$  MPa) et il apparaît alors nécessaire de faire intervenir l'activation thermique afin de permettre le glissement pour une contrainte plus basse que cette contrainte de Peierls.

Afin d'implémenter l'activation thermique dans les simulations de glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  vis, des calculs en dynamique moléculaire ont été réalisés en fonction de différents couples contrainte/température.

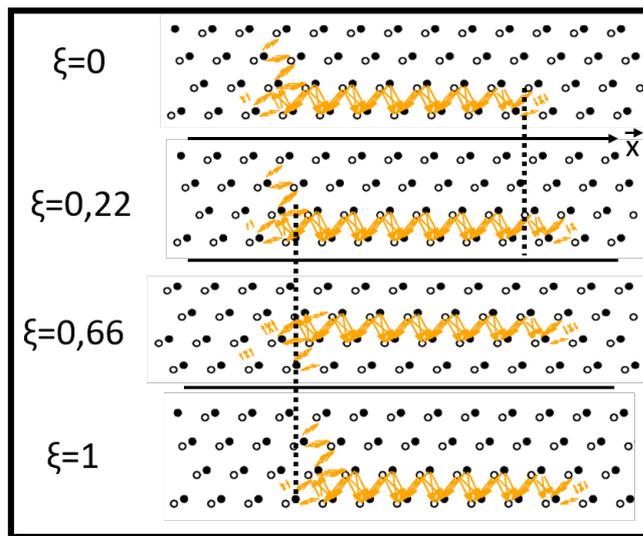
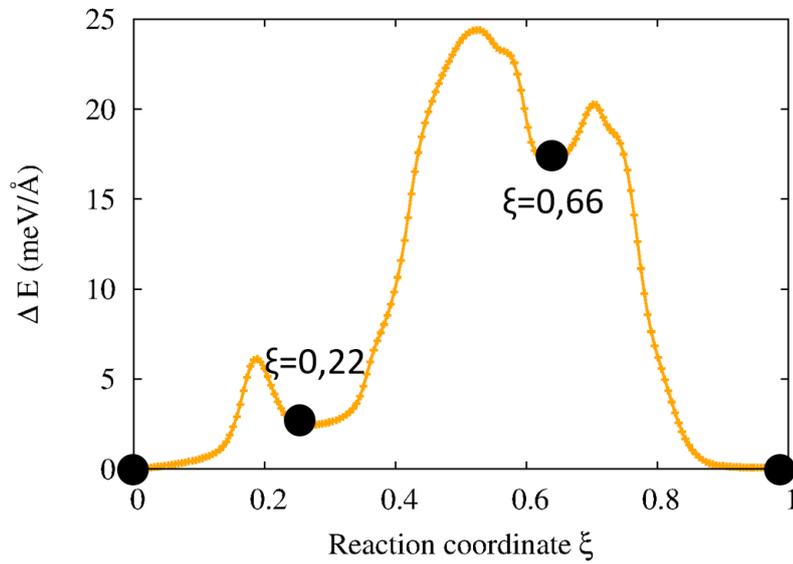


FIGURE 5.9 – Profil énergétique de la dislocation glissant dans le plan pyramidal de première espèce  $\pi_1$  entre deux configurations dans leur état fondamental espacées d'une vallée de Peierls ( $\xi = 0$  et  $\xi = 1$ ). Les structures de cœurs des configurations initiales et finales et celles correspondant aux minima énergétiques ( $\xi = 0,22$  et  $\xi = 0,66$ ) sont représentées sous la barrière énergétique.

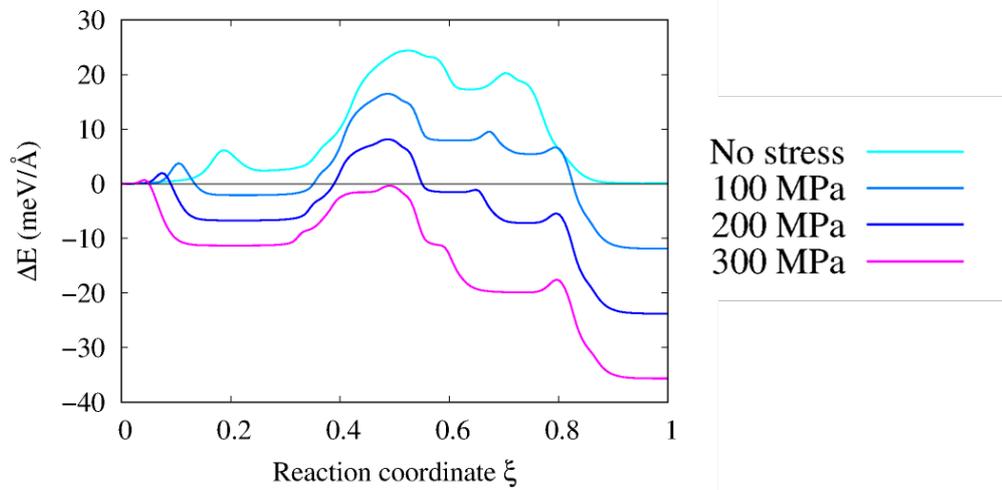


FIGURE 5.10 – Profil énergétique de la dislocation glissant dans le plan pyramidal de première espèce  $\pi_1$  entre deux configurations dans leur état fondamental espacées d'une vallée de Peierls ( $\xi = 0$  et  $\xi = 1$ ) sous 4 différentes contraintes positives.

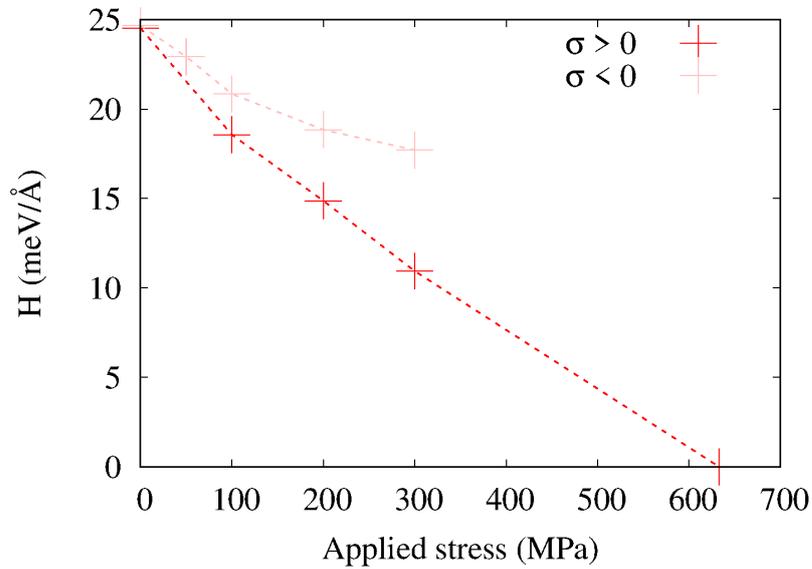


FIGURE 5.11 – Enthalpie d'activation en fonction de la contrainte appliquée pour faire glisser une dislocation  $\langle c + a \rangle$  entière. L'annulation de l'énergie d'activation pour une contrainte positive se fait à la contrainte de Peierls ( $\sigma_P = 633$  MPa).

## 5.3 Glissement thermiquement activé

### 5.3.1 Paramètres des simulations

Comme décrit dans le chapitre précédent, les calculs de dynamique moléculaire permettent d'étudier le glissement de la dislocation en fonction de la température et du temps. Le temps d'une simulation peut aller de la picoseconde à la nanoseconde et les vitesses de déformation qu'il est possible de simuler comparées à celles obtenues expérimentalement diffèrent généralement de plusieurs ordres de grandeur. Le but de ces simulations est de retrouver un mécanisme de glissement pouvant expliquer le glissement observé expérimentalement et d'établir une loi permettant de décrire l'évolution de la vitesse d'une dislocation en fonction de la contrainte et de la température. Cette loi pourra, par la suite, être utilisée pour obtenir une loi de mobilité des dislocations dans des conditions expérimentales.

Afin d'étudier le glissement de la dislocation sous ces conditions, le dispositif décrit dans la section 4.1.3 est utilisé. À une simulation correspond une température  $T$  et une contrainte  $\sigma$ . La position de la dislocation est estimée en fonction du temps d'où en découle une vitesse de glissement.

Les vitesses des dislocations extraites de ces simulations sont calculées lorsque la dislocation a avancé de plus de 20 vallées de Peierls en divisant la distance parcourue par le temps de simulation après l'étape initiale de thermalisation. Comme la vitesse de la dislocation extraite d'une simulation courte est dépendante de la "graine" ayant généré aléatoirement les vitesses des dislocations en fonction de la température, 5 simulations utilisant des "graines" différentes de génération de nombre aléatoire sont réalisées afin d'avoir une statistique convenable. Une vitesse déterminée pour un couple contrainte-température est donc décrite par une vitesse moyenne et un écart type.

En étudiant la convergence de la vitesse en fonction de la taille de la boîte de simulation, il a été remarqué qu'une transition est observée en changeant la dimension de la boîte dans la direction parallèle à la ligne de dislocation. En effet, plus la longueur de la ligne de la dislocation simulée est grande plus la vitesse est grande comme le montre la Figure 5.12. Néanmoins, cette vitesse n'augmente pas indéfiniment : à partir d'une longueur limite, la vitesse de la dislocation n'évolue plus et converge vers une vitesse limite. Un tel comportement est rationnel dans le cas de glissement par germination et propagation de doubles décrochements. En effet, plus la longueur de la ligne est grande, plus le nombre de sites où un double décrochement peut germer est grand conduisant donc à une dépendance linéaire de la vitesse de dislocation avec sa longueur tel qu'observé dans nos simulations sur la Fig. 5.12 pour des longueurs de lignes comprises entre 20 et 60 normes de vecteurs de Burgers. Quand la ligne devient trop grande, on se trouve alors dans un régime où, à un instant donné, la probabilité d'avoir plusieurs décrochements sur la ligne n'est plus négligeable. Le libre parcours moyen de chaque décrochement qui germe n'est alors plus égal à la longueur totale de la ligne. Des collisions entre les décrochements doivent alors être pris en compte. La vitesse ne dépend alors plus de la longueur de la ligne [10,13]. Ce mécanisme opère à un régime de forte contrainte. Si l'on souhaite obtenir une loi de mobilité valable dans le régime des basses contraintes rencontré expérimentalement, il faut rester dans un régime de mobilité contrôlée par la germination.

Si la longueur de la ligne est trop courte (inférieure à  $20b$ ), la longueur de la ligne n'est pas suffisante pour faire germer un double décrochement et la vitesse de la dislocation en est donc impactée.

Afin de déterminer une loi thermiquement activée dans le régime de germination d'un seul

double décrochement (*i.e.* suivant les conditions expérimentales), la longueur de la ligne doit être suffisamment grande pour avoir la possibilité de faire germer un décrochement et inférieure à une longueur limite où un régime de germination de plusieurs décrochements opérerait. La longueur de la ligne de dislocation simulée a donc été choisie comme étant égale à  $40 b$ .

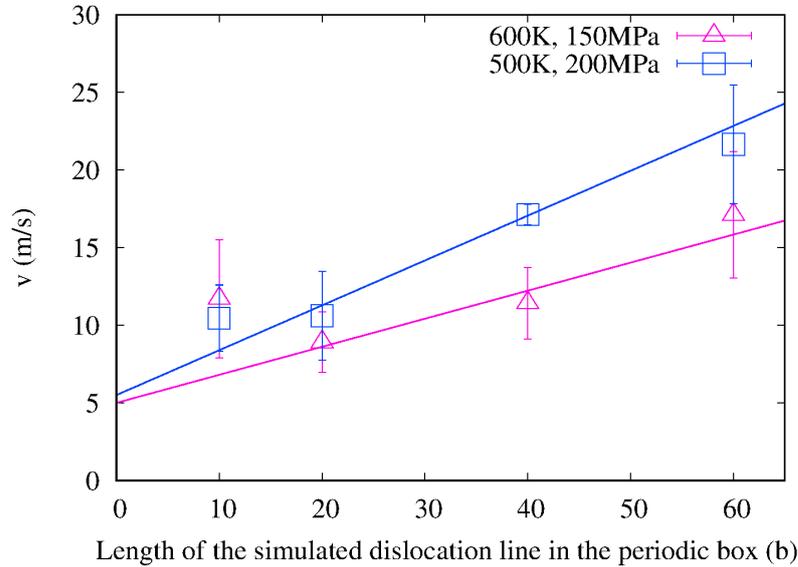


FIGURE 5.12 – Évolution de la vitesse de la dislocation en fonction de la longueur de ligne de dislocation pour deux couples contraintes / température situés dans le domaine où le mécanisme de glissement thermiquement activé est observé. La longueur de la ligne de la dislocation correspond à la largeur  $Y$  de la boîte normalisée par la norme du vecteur de Burgers de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ . Les droites continues représentent l'augmentation linéaire de la vitesse de la dislocation avec la longueur de la ligne.

### 5.3.2 Évolution de la vitesse de la dislocation en fonction du couple contrainte-température

En regardant de plus près la dislocation, on peut comprendre le mécanisme de glissement. En effet, on observe que la dislocation de tête (la partielle la plus glissante) avance et recule souvent dans le plan de glissement au cours de la simulation. La partielle de queue, moins glissante et contrôlant la mobilité de la dislocation totale dans les calculs à 0K, demeure plus longtemps à sa position avant d'avancer dans le plan de glissement. Pour avancer dans son plan de glissement, la partielle de queue glisse par germination et propagation de double-décrochement. La Figure 5.13 représente une dislocation glissant dans un plan pyramidal de première espèce. Les atomes ici représentés sont les atomes n'ayant pas un environnement hexagonal compact, s'apparentant majoritairement aux atomes compris dans le cœur de la dislocation. La partielle de tête apparaît à la droite du ruban décrivant la dislocation et la partielle de queue à sa gauche. En noire est représentée la partielle de queue à sa position initiale. On remarque ainsi qu'entre  $t=0$  et  $t=600$  fs, la dislocation a avancé via un double décrochement qui germe premièrement puis se propage le long de la dislocation jusqu'à amener toute la dislocation dans la position stable suivante.

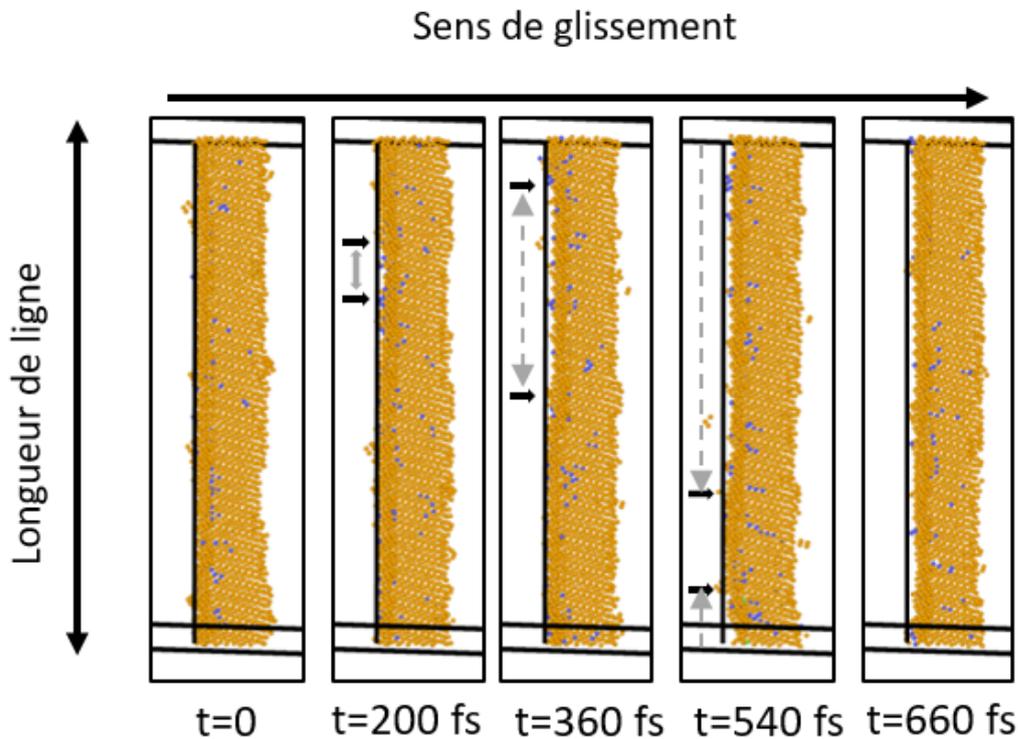


FIGURE 5.13 – Représentation d’atomes ayant un environnement différent de l’hexagonal compact proche du centre de la dislocation à différentes étapes de son glissement ( $t=0, 200, 360, 540$  et  $660$  fs). La position initiale de la dislocation partielle de queue est représentée par une droite noire permettant d’observer le double décrochement de la dislocation, dont la position est également repéré par une flèche grise entre deux flèches noires.

La vitesse de la dislocation a été obtenue pour différentes contraintes et températures. La Figure 5.14 décrit la vitesse de la dislocation en fonction de ces deux paramètres. À chaque contrainte correspond une couleur de courbe qui évolue en fonction de la température. Pour chaque contrainte en dessous d’une certaine température, la vitesse de la dislocation évolue suivant une loi thermiquement activée : nous traçons alors les vitesses sur une échelle logarithmique en fonction de l’inverse de la température. Plus la contrainte diminue pour une température donnée, plus la vitesse de la dislocation diminue : la contrainte appliquée permet de diminuer la hauteur de la barrière énergétique à franchir pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis comme l’ont montré les calculs NEB sous contraintes précédents. On peut également remarquer que pour une contrainte de signe opposé, visant à faire avancer la dislocation dans sa direction moins facile, la dislocation glisse moins vite. Les points décrivant la vitesse de la dislocation pour ces contraintes négatives sont représentés par des symboles inversés.

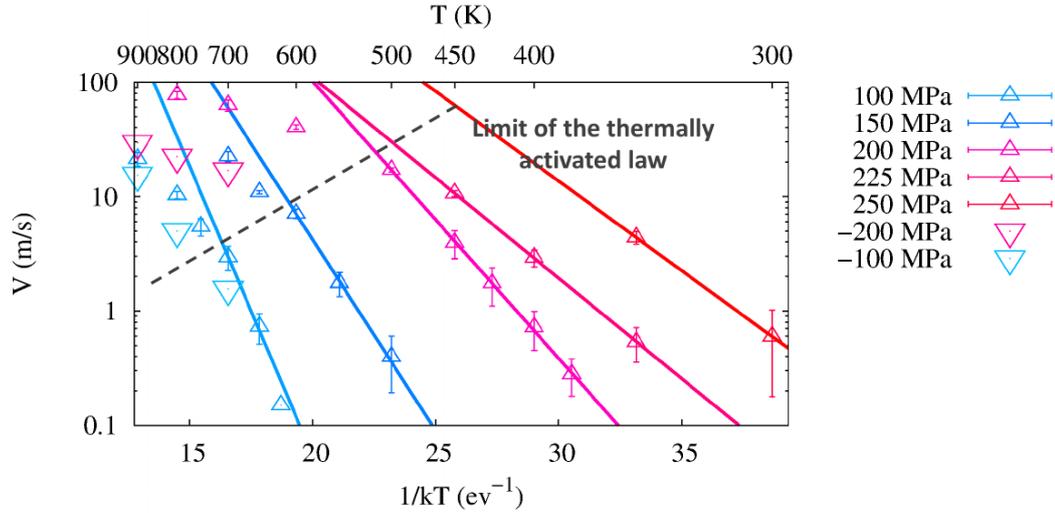


FIGURE 5.14 – Vitesse de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis en fonction de la température pour différentes contraintes appliquées et différentes températures. Les triangles pointés vers le haut sont associés à des contraintes positives visant à faire avancer la dislocation dans sa direction facile et pointés vers le bas à des contraintes négatives. Aux lignes correspondent des lois thermiquement activées  $v(\sigma, T)$  ajustées aux points afin de pouvoir établir une loi de mobilité. La droite segmentée isole les valeurs utilisées pour ajuster les précédentes droites, délimitant ainsi les température et contraintes où la loi thermiquement activée s'applique.

### 5.3.3 Loi de mobilité

Nous avons cherché à déterminer une loi de mobilité afin de décrire la vitesse de la dislocation en fonction de la contrainte et de la température. Nous nous sommes concentrés sur le domaine où la vitesse de la dislocation est contrôlée par la germination et la propagation d'un seul double décrochement. Les points hors de ce domaine semblent pouvoir se relier également par une droite mais dépendant d'un autre mécanisme non déterminé (probablement dans un régime de collision entre double décrochements). Afin d'établir une telle loi nous avons ajusté sur les vitesses des fonctions  $v(T, \sigma) = v_0(\sigma) \exp\left(-\frac{\Delta H(\sigma)}{k_B T}\right)$  avec le pré-facteur  $v_0(\sigma)$  de la vitesse donnant avec  $\ln(v_0(\sigma))$  l'ordonnée à l'origine des droites tracées sur la Figure 5.14 et l'enthalpie  $\Delta H(\sigma)$  correspondant à la pente des droites comme paramètres ajustables.

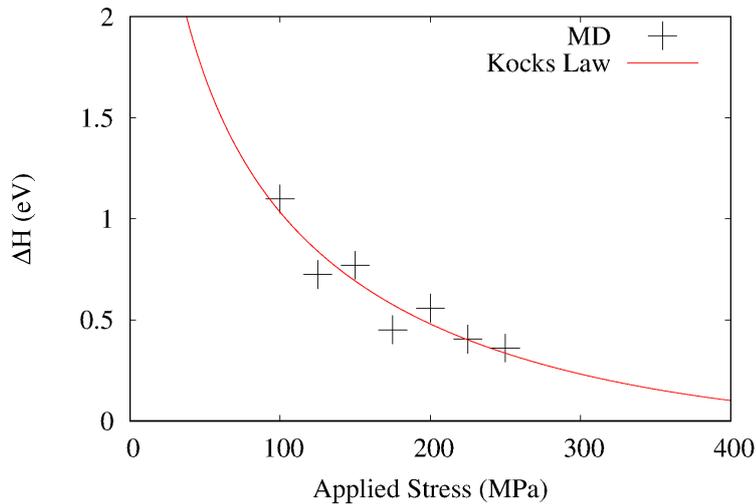
La Figure 5.15(a) décrit l'évolution de l'énergie d'activation  $\Delta H(\tau)$  obtenue à partir des vitesses de glissement observées dans le régime thermiquement activé dans les simulations de dynamique moléculaire en fonction de la contrainte appliquée. La ligne ici représentée est obtenue après avoir fait un ajustement d'une loi de Kocks [13, 100, 101] afin de décrire cette évolution. Cette loi a été originellement proposée pour modéliser phénoménologiquement la dépendance à la contrainte de l'enthalpie de formation d'un double décrochement. La loi de Kocks est décrite par

$$\Delta H(\sigma) = H_0 \left(1 - \left(\frac{\sigma}{\sigma_P}\right)^p\right)^q$$

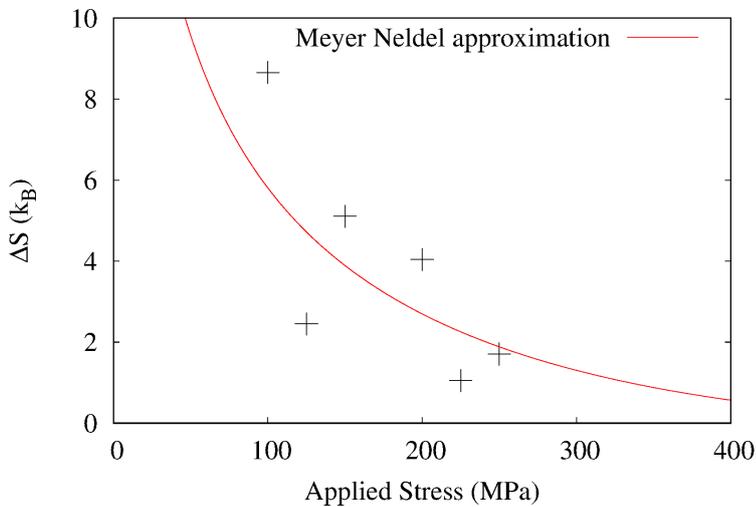
où  $\sigma_P$  est la contrainte de Peierls obtenue précédemment (633 MPa),  $H_0$  est l'enthalpie de germination à contrainte nulle de deux décrochements infiniment séparés ici égale à 3.05 eV,  $p$

et  $q$  sont des paramètres permettant de décrire la courbure avec la contrainte appliquée étant respectivement égaux à 0.108 et 1.763.

On peut remarquer que la droite issue de cet ajustement suivant une loi de Kocks se recoupe plutôt bien avec les valeurs issues des courbes  $v(\sigma, T)$  et que cette fonction semble adaptée à une telle description de l'évolution de l'énergie d'activation de glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis.



(a) Évolution en fonction de la contrainte de l'énergie d'activation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ .



(b) Évolution en fonction de la contrainte de l'entropie associée à la germination du double décrochement, les points représentent les valeurs extraites des ajustement des fonctions  $f(T)$  et les lignes des lois utilisées pour décrire ces deux variables.

FIGURE 5.15 – Valeurs et ajustements de l'enthalpie et de l'entropie associée à la germination du double décrochement.

L'autre paramètre ajustable  $v_0(\sigma)$  peut s'exprimer comme le produit de différents paramètres contrôlant la vitesse de la dislocation dans le régime où la dislocation glisse via la germination et la propagation d'un double décrochement. Dans l'hypothèse où au plus un seul germe est présent sur la ligne de dislocation à un instant donné, cette loi est donnée par [13] :

$$v_0(\sigma) = \nu_0 \lambda_P \frac{L}{b} \exp\left(\frac{\Delta S(\sigma)}{k_B}\right)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence de Debye (prise égale à 10.1 THz) et caractérise les vibrations des atomes,  $\lambda_P$  est la distance entre deux vallées de Peierls voisines,  $L$  est la longueur de la ligne (dans nos calcul égale à  $40 b$ ), et  $b$  la norme du vecteur de Burgers de la dislocation.  $\Delta S(\sigma)$  est ici un paramètre ajustable représentant l'entropie associée à la germination du double décrochement. Ce dernier a été ajusté à une loi de type Meyer-Neldel corrélant l'entropie d'activation à l'enthalpie d'activation :

$$\Delta S(\tau) = \frac{1}{T_m} \Delta H(\tau)$$

où  $T_m$  est un paramètre ajustable. La valeur attendue pour cette température est voisine de la température de fusion du matériau (expérimentalement 2123 K). Cette loi établit que la réduction de l'énergie d'activation est compensée par une réduction de la barrière entropique [102, 103]. La Figure 5.15(b) illustre les entropies obtenues des fonctions  $v(\sigma, T)$ . En rouge est représenté l'ajustement par une loi de type Meyer-Neldel, reposant sur l'ajustement précédent par une loi de Kocks pour l'enthalpie d'activation.

On peut remarquer que bien que l'ordre de grandeur soit respecté, l'ajustement ne correspond pas très bien au nuage de points, le problème étant dû à la dispersion de ces points.

D'autres modèles ont été essayés pour ajuster cette variable : entropie constante, linéaire avec la contrainte mais le meilleur ajustement est obtenu avec une loi de Meyer-Neldel.

Ces modèles ayant une description raisonnable, ils sont alors intégrés dans une seule et même fonction qui est ajustée directement sur toutes les vitesses déterminées.

La loi finale décrivant la vitesse de la dislocation en fonction de la température et de la contrainte appliquée est donc finalement donnée par l'équation :

$$v(T, \tau) = \nu_0 l_0 \frac{L}{b} \exp\left(\left[H_0 \left(1 - \left(\frac{\tau}{\tau_P}\right)^p\right)^q\right] \left(\frac{1}{k_B T_m} - \frac{1}{k_B T}\right)\right), \quad (5.2)$$

où les différents paramètres sont  $\nu_0=10,1$  THz,  $H_0=1.32$  eV,  $p=0.745$ ,  $q=3.43$  et  $T_m=4581$  K. La température  $T_m$  est élevée par rapport à la température réelle de fusion du zirconium mais reste dans un ordre de grandeur acceptable. Cette loi est illustrée sur la Figure 5.16 par les lignes. Les points remplis représentent les vitesses qui ont été utilisées pour faire l'ajustement. On peut remarquer que cette loi finale décrit bien l'évolution de la vitesse de la dislocation à ces différentes contraintes et températures.

Cette loi pourra donc être utilisée dans des modèles à plus grande échelle visant à reproduire le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  en fonction de la température et de la contrainte appliquée, dans la limite où le couple contrainte température est compris dans le domaine thermiquement activé correspondant au régime contrôlé par la germination d'un seul double décrochement se propageant sur toute la ligne, sans collision entre décrochements.

De toutes ces simulations, on peut conclure que la dislocation vis peut glisser. Ce glissement est observé pour des contraintes assez importantes. Le glissement en dynamique moléculaire n'a pas été observé à une température plus basse que 300K (250 MPa) du fait qu'elles demandent des

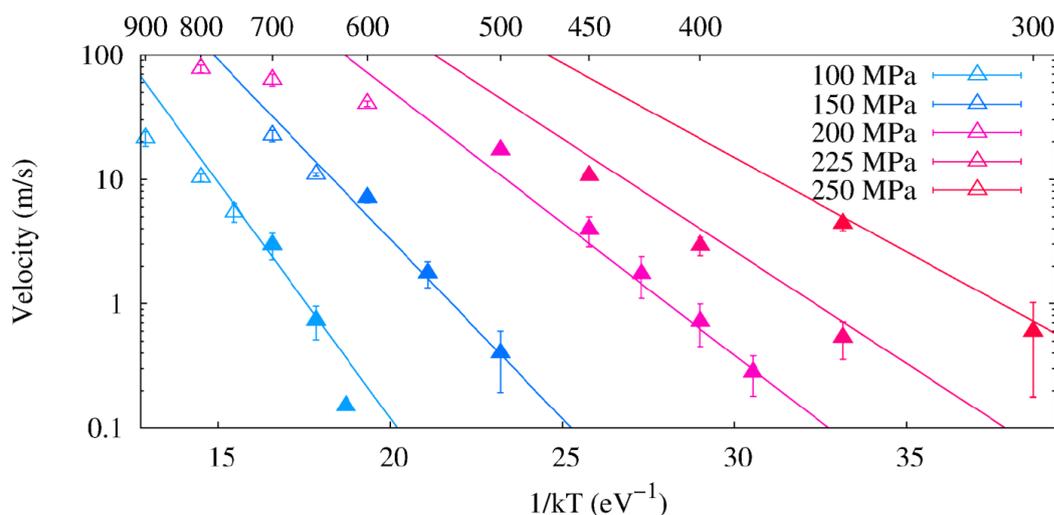


FIGURE 5.16 – Évolution de la vitesse de glissement de la dislocation vis pour différentes contraintes appliquées et différentes températures, les triangles représentent les valeurs issues des simulations et les lignes la loi thermiquement activée obtenue pour décrire la vitesse (Eq. 5.2)

temps de simulations importants du fait que la germination d'un double décrochement demande un temps d'attente conséquent mais restent néanmoins à la portée des simulations en dynamique moléculaire.

Le glissement ici observé opère sans aucun événement de glissement dévié qui peut en dynamique moléculaire être observé bien que la direction de la contrainte appliquée soit optimisée de manière à ne faire glisser la dislocation que dans un seul plan. Le glissement reste ici confiné dans le plan pyramidal de première espèce où la dislocation est dissociée. Ce dernier point est en accord avec les observations expérimentales où les événements de glissement dévié n'apparaissent que dans le cas où la dislocation rencontre un obstacle la faisant changer de plan de glissement, ce qui n'a pas été modélisé dans ces simulations.

La structure de cœur de la dislocation vis est asymétrique et admet deux dislocations partielles non équivalentes, la partielle la plus étalée hors du plan pyramidal de première espèce contrôlant le mouvement de la dislocation entière. Le mécanisme de glissement par double décrochement s'applique à la dislocation vis  $\langle c + a \rangle$  et a été étudié précisément seulement pour un glissement dans la direction facile du fait que la dislocation partielle contrôlant la mobilité totale de la dislocation dispose d'une asymétrie de mobilité. Ce dernier comportement est responsable du comportement observé dans les simulations de Numakura et al. à 0K [61, 62] où la dislocation glisse pour une contrainte positive dans un plan pyramidal de première espèce et sous une contrainte négative dans un plan pyramidal de seconde espèce bien que le facteur de Schmid soit favorable au glissement de la dislocation vis.

## Conclusion

LA structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis dans son état fondamental a été étudiée dans ce chapitre. Cette étude a mené au choix du potentiel (EAM #2) qui conduit à une structure de cœur quasi planaire composée d'une dislocation dissociée en deux partielles non équivalentes dans un plan pyramidal de première espèce.

À cette structure de cœur a été ensuite appliquée une contrainte visant à faire avancer la dislocation dans un plan pyramidal de première espèce. Une contrainte de Peierls a pu être déterminée pour des contraintes visant à faire avancer la dislocation dans les deux sens (+633 MPa et -1369 MPa). Ces valeurs sont importantes et montrent que la dislocation nécessite de l'activation thermique pour avancer dans son plan de glissement.

Cette étude, accompagnée de calculs de barrière énergétique soulignent l'asymétrie de la structure de cœur de la dislocation. Cette dernière explique pourquoi la dislocation est plus glissile dans un sens que dans l'autre.

En dynamique moléculaire (sous contrainte et en température), le glissement de la dislocation a été observé pour différentes contraintes et températures : il s'opère via la germination et la propagation de double décrochement sur la dislocation partielle moins glissile. La vitesse de la dislocation a été étudiée pour différents couples contrainte-température conduisant à une loi thermiquement activée pouvant être utilisée à des échelles supérieures de modélisation.

## Chapitre 6

# Modélisation des dislocations $\langle c + a \rangle$ à direction $\langle a \rangle$

Il a été déterminé expérimentalement que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  est la portion de la ligne de dislocation qui contrôle le glissement de la dislocation entière. Deux mécanismes de glissement ont été observés. Le premier type de glissement observé est un glissement visqueux où la dislocation glisse en bloc (en gardant sa forme) ou via la création de macro-décrochements alignés dans la direction  $\langle a \rangle$  de la dislocation. Le second type de glissement observé est un mouvement saccadé, beaucoup plus rapide que le mouvement visqueux. Dans le but de mieux comprendre ces mécanismes, les structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  sont étudiées dans ce chapitre.

Idéalement, le même potentiel inter-atomique utilisé pour la modélisation du glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis devrait être utilisé. Mais, comme nous allons le voir dans ce chapitre, ce n'est pas aussi simple. Aucun potentiel inter-atomique disponible pour le zirconium ne dispose de tous les ingrédients physiques nécessaires pour décrire tout le spectre des propriétés qui nous intéressent. Le choix du potentiel à utiliser pour modéliser le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  orientée dans la direction  $\langle a \rangle$  doit se faire suivant des critères différents que ceux utilisés pour choisir le potentiel pour modéliser la dislocation vis.

La dislocation vis était attendue comme glissile dans le plan pyramidal de première espèce, c'est-à-dire dissociée dans le plan pyramidal de première espèce, la dislocation glissant sans force de friction. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$ , quant à elle, est attendue comme glissile dans le plan pyramidal de première espèce mais avec des configurations glissant moins facilement que la dislocation vis. Le mouvement saccadé pourrait s'expliquer par l'existence d'une configuration bloquante ou par une configuration qui glisse très difficilement. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  étant une dislocation mixte, elle est contrainte à ne glisser que dans le plan défini par sa direction ligne et le vecteur de Burgers qui est ici un plan pyramidal de première espèce. Bien qu'il existe une contrainte géométrique forte sur une dislocation à composante coin, nous allons voir que trois potentiels différents donnent des structures différentes et donc des propriétés différentes. Les trois précédents potentiels (EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland [64] et MEAM développé par Kim et al. [96]) seront utilisés à nouveau pour décrire le cœur de cette dislocation.

Ce chapitre décrit, dans une première section, l'orientation utilisée pour représenter les cœurs de dislocation obtenus et comment sont estimées leur énergie de cœur. Les trois sections suivantes

décrivent respectivement pour les potentiels EAM #2, EAM #3 et MEAM les structures de cœur obtenues pour la dislocations  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  ainsi que leurs comportements sous une contrainte appliquée à température nulle.

## 6.1 Orientation du cristal et estimation de l'énergie de cœur

Dans ce chapitre, est décrite en premier lieu, l'orientation du cristal utilisée afin d'introduire et de visualiser les structures de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans sa direction  $\langle a \rangle$ . Dans un second lieu sont décrits les méthodes utilisées afin de réaliser l'étude des dislocations  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$ .

Le cristal parfait a été réorienté de manière à ce que la direction ligne de la dislocation soit parallèle à une direction du repère cartésien : le vecteur ligne de la dislocation  $\vec{l} = \frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$  est ici parallèle à la direction  $\vec{x}$ . La boîte est orientée de telle manière à ce que la direction  $\vec{y}$  soit orthogonale à la direction  $\vec{x}$  et soit contenue dans le plan pyramidal de première espèce  $\pi_1$ , plan de glissement de la dislocation. L'orientation de la boîte ainsi obtenue est illustrée par la Figure 6.1. La cellule élémentaire est composée de deux atomes et est définie par ses trois vecteurs élémentaires  $\vec{u}_1 = \frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $\vec{u}_2 = \frac{1}{3}[1\bar{2}13]$  et  $\vec{u}_3 = \frac{1}{3}[11\bar{2}0]$ . Cette dernière est représentée par un parallélépipède gris segmenté.

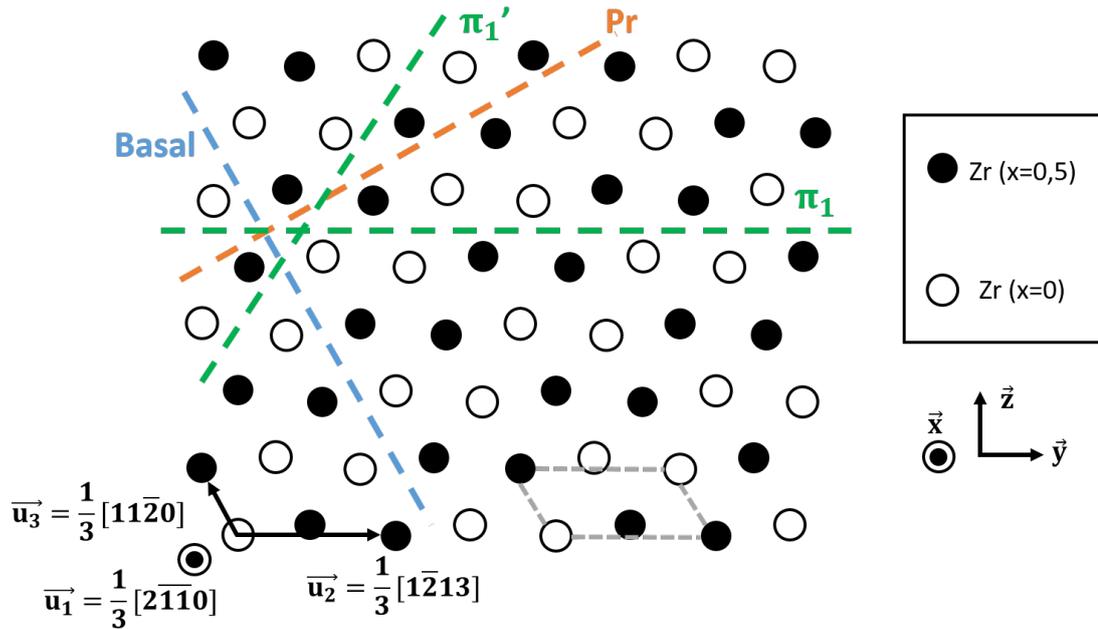


FIGURE 6.1 – Schéma représentant la projection dans la direction  $\frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$  de la structure hexagonale compacte orientée de manière à ce que le vecteur de Burgers de la dislocation introduite soit compris dans le plan  $(XY)$ . La cellule élémentaire est contenue dans le parallélépipède segmenté gris. Les différentes projections des plans d'intérêt (deux plans pyramidaux de première espèce, plan prismatique (Pr) et plan de base) sont représentées par des droites segmentées de différentes couleurs. Les atomes sont représentés par des ronds vides ou remplis en fonction de leur hauteur dans la direction  $\frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$ .

Les structures de cœur vont, en premier lieu, être étudiées à 0 K en cherchant le maximum de structures stables. Pour ce faire, et afin de déterminer l'énergie de dislocations isolées, l'approche agrégat est utilisée.

La cellule élémentaire décrite par la Figure 6.1 a été dupliquée 10 fois dans la direction  $\vec{u}_1$ , 160 fois dans la direction  $\vec{u}_2$  et 320 fois dans la direction  $\vec{u}_3$  composant ainsi une boîte de 1 024 000 atomes. Le rayon  $R_I$  du cylindre définissant la zone où les atomes sont autorisés à relaxer est égal à 370 Å, rayon supérieur à celui utilisé pour l'étude des dislocations vis. On s'attend ainsi à ce que l'énergie de cœur soit correctement estimée via la différence entre l'énergie d'excès et l'énergie estimée par la théorie élastique.

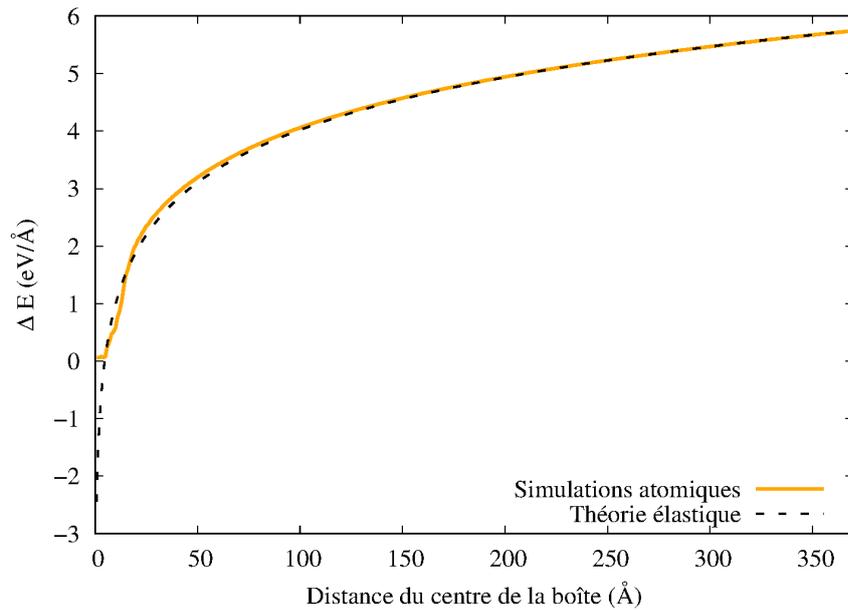
La Figure 6.2(a) décrit l'évolution de l'énergie d'excès par unité de longueur introduite par la dislocation dans un cylindre de rayon  $r$  en fonction de son rayon avec l'estimation de l'énergie d'excès introduite selon la théorie élastique (Équation 1.1) :

$$\Delta E(r) = \frac{1}{2} b_i K_{ij} b_j \ln\left(\frac{r}{r_c}\right) + E_{cœur}$$

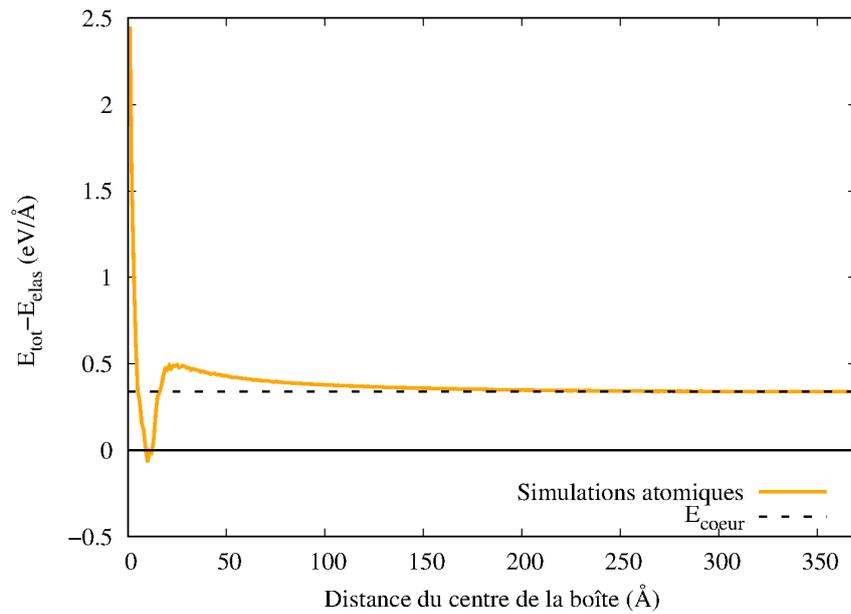
où le rayon de cœur  $r_c$  est pris égal à la norme du vecteur de Burgers de la dislocation et l'énergie de cœur  $E_{cœur}$  a été ajustée de manière à reproduire au mieux les énergies d'excès  $\Delta E(r)$  données par les simulations atomiques.

Sur cette Figure on peut remarquer que pour un cylindre de grand rayon, l'énergie d'excès extraite de la simulation atomique est fidèlement reproduite par la théorie élastique. La Figure 6.2(b) représente la différence entre l'énergie d'excès extraite des simulations atomiques et l'énergie estimée par la théorie élastique convergeant bien vers une constante  $E_{cœur}$ . Ces différentes évolutions sont issues de la structure de cœur illustrée par la Figure 6.3(a). De ces figures, nous pouvons conclure que la boîte de simulation est de dimensions suffisantes pour modéliser les dislocations et estimer leur énergie de cœur.

Pour étudier le comportement de la dislocation sous contrainte et/ou en température, l'arrangement périodique de dislocations dans les direction  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  décrits dans la section 4.1.3 est utilisé.



(a) Variation de l'énergie d'excès  $\Delta E$  avec le rayon  $r$ . Les valeurs extraites des simulations atomiques sont représentées par une ligne continue orange. La droite segmentée représente l'énergie d'excès théorique prédite par la théorie élastique (Éq. 1.1).



(b) Évolution de la différence d'énergie entre l'énergie d'excès et l'énergie élastique de la dislocation.

FIGURE 6.2 – Évolution des énergies d'excès et de cœur au sein de boîte de simulation. Ces énergies ont été calculées pour un rayon de cœur  $r_c$  égal à la norme du vecteur de Burgers en considérant une énergie de cœur  $E_{cœur}$  égale à  $340 \text{ meV}/\text{Å}$ .

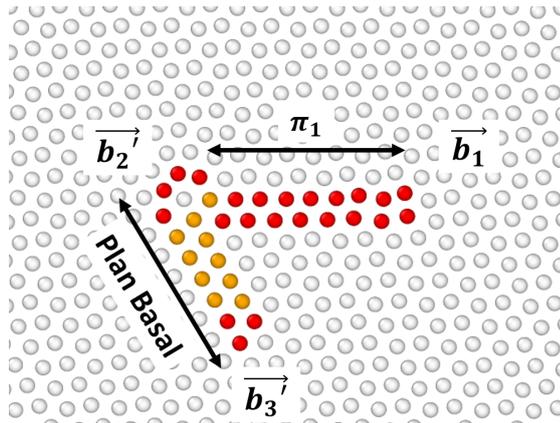
## 6.2 Structures obtenues avec le potentiel EAM #2

### 6.2.1 Structures de cœur obtenues à 0K

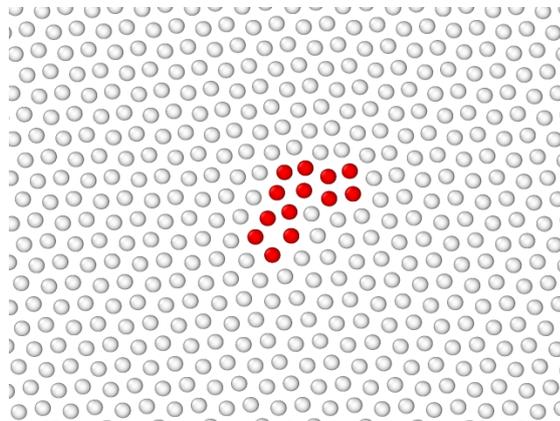
Le potentiel EAM #2 est le potentiel qui a été retenu pour modéliser le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis. Il permet de retrouver une hiérarchie énergétique proche de celle obtenue avec des calculs DFT entre l'énergie de faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce et celle obtenue dans le plan pyramidal de seconde espèce. Néanmoins les énergies de fautes sont élevées conduisant à des distances de dissociation sous-estimées. La structure de la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce obtenue avec ce potentiel correspond à celle issue de calculs ab initio. De plus, ce potentiel sous estime l'énergie de la faute dans le plan de base par rapport à celle dans le plan prismatique pour la dislocation  $\langle a \rangle$ .

Afin d'obtenir la configuration la plus stable de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$ , une dislocation parfaite a premièrement été introduite dans le cristal puis des dislocations dissociées dans le plan pyramidal de première espèce ont été introduites avec des distances de dissociation initiales qui varient. Des ces simulations, ont été extraits trois différents types de structure stable : une structure quasi compacte (Figure 6.3(b)), une structure composée de deux dissociations, l'une dans un plan pyramidal de première espèce et l'autre dans le plan basal (Figure 6.3(a)) et une structure dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce avec une partielle ayant un cœur étalé dans différents plans non définis (Figure 6.3(c)). Les énergies de ces structures ont été estimées et la structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan basal est la structure la plus stable des trois. Pour chacune de ces structures, différentes distances de dissociation sont obtenues en fonction de la configuration initiale avant relaxation. Les différentes structures illustrées par la Figure 6.3 sont les structures correspondant aux distances de dissociations les plus stables.

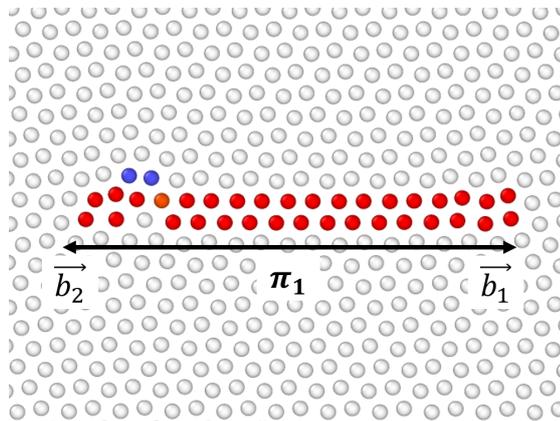
La structure de plus basse énergie (Figure 6.3(a)) a été étudiée plus finement avec des circuits de Burgers. Cette étude a permis de caractériser les vecteur de Burgers des dislocations partielles et les fautes conduisant à ces dissociations. La dissociation dans le plan pyramidal de première espèce est bien stabilisée par une faute suivant un vecteur  $\vec{f}=0.21 [01\bar{1}2]$  et la faute d'empilement dans le plan basal est une faute  $I_2$ , le vecteur de Burgers de la dislocation partielle  $\vec{b}_3$  correspondant à  $1/3[10\bar{1}0]$ . La dislocation partielle  $\vec{b}_2$  est une dislocation "stair-rod" qui maintient la dislocation à sa position : elle dispose d'une composante hors du plan de glissement d'où le fait que la dislocation a besoin de se recombinaison pour glisser. Ajoutés ensemble,  $\vec{b}_3$  et  $\vec{b}_2$  correspondent à la dislocation  $\vec{b}_2$  illustrée par la Figure 6.3(c).



(a) Etat fondamental



(b)  $\Delta E = 63 \text{ meV}/\text{\AA}$



(c)  $\Delta E = 64 \text{ meV}/\text{\AA}$

FIGURE 6.3 – Structures de cœur stables des dislocations  $\langle c + a \rangle$  obtenues après relaxation avec le potentiel EAM #2. Les atomes colorés sont les atomes ayant leur environnement atomique différent de l’environnement hexagonal compact (en orange FCC, en bleu BCC et en rouge autre) et, de ce fait, représentent les colonnes atomiques fortement déplacées dues à la présence d’une faute d’empilement ou au cœur de la dislocation.

### 6.2.2 Évolution sous contrainte

Des simulations sous contrainte et à 0K ont été réalisées à partir de la dislocation de plus basse énergie (illustrée par la Figure 6.3(a)). En ajoutant des incréments de contrainte, l'évolution de la structure de cœur a pu être observée pour des contraintes positives visant à faire avancer la dislocation vers la gauche et négatives vers la droite.

La Figure 6.4 illustre l'évolution de la structure de cœur la plus stable dissociée dans un plan pyramidal de première espèce et dans le plan basal (Figure 6.3(a)) sous différentes contraintes positives visant à faire avancer la dislocation vers la gauche. Dans les premiers incréments de contrainte on peut remarquer que la dissociation dans le plan basal se résorbe petit à petit jusqu'à disparaître à -800 MPa, retrouvant la structure de cœur de l'état planaire dissocié dans le plan pyramidal de première espèce illustré en Figure 6.3(c). Sous des contraintes encore supérieures, la dislocation ne glisse pas mais crée une macle de hauteur monoatomique. Seule la distance parcourue par la pointe de cette macle évolue avec la contrainte, sans désépingler la dislocation. Lors de cette étude, des contraintes allant jusqu'à 5 GPa ont été atteintes mais la boîte ne se déforme plus via la modification du cœur de la dislocation pour hautes contraintes mais via la création d'une macle aux niveaux de ses extrémités suivant  $z$ .

Le comportement de cette structure a également été étudié sous des contraintes négatives et montrent le comportement illustré par la Figure 6.5. Comme pour une contrainte positive, on peut remarquer que c'est la partie gauche c'est-à-dire la dissociation dans le plan basal de la structure de cœur qui contrôle le comportement de la dislocation entière. En effet, aux premiers incréments de contraintes, la distance de dissociation dans le plan de base augmente avec la contrainte. Le reste de la dislocation n'évolue pas. Sous des contraintes très importantes (de quelques GPa), la distance de dissociation augmente tellement que la dislocation partielle rencontre le bord de la boîte formant ainsi une faute d'empilement. La contrainte appliquée conduit à une cission résolue non nulle dans le plan basal car le facteur de Schmid est non nul. Comme les dislocations partielles de Shockley dans le plan de base glissent facilement, cette contrainte augmente ou diminue (suivant le signe) la distance de dissociation, mais sans parvenir à émettre au niveau de la jonction la seconde partielle qui conduirait à l'émission d'une dislocation  $\langle a \rangle$ .

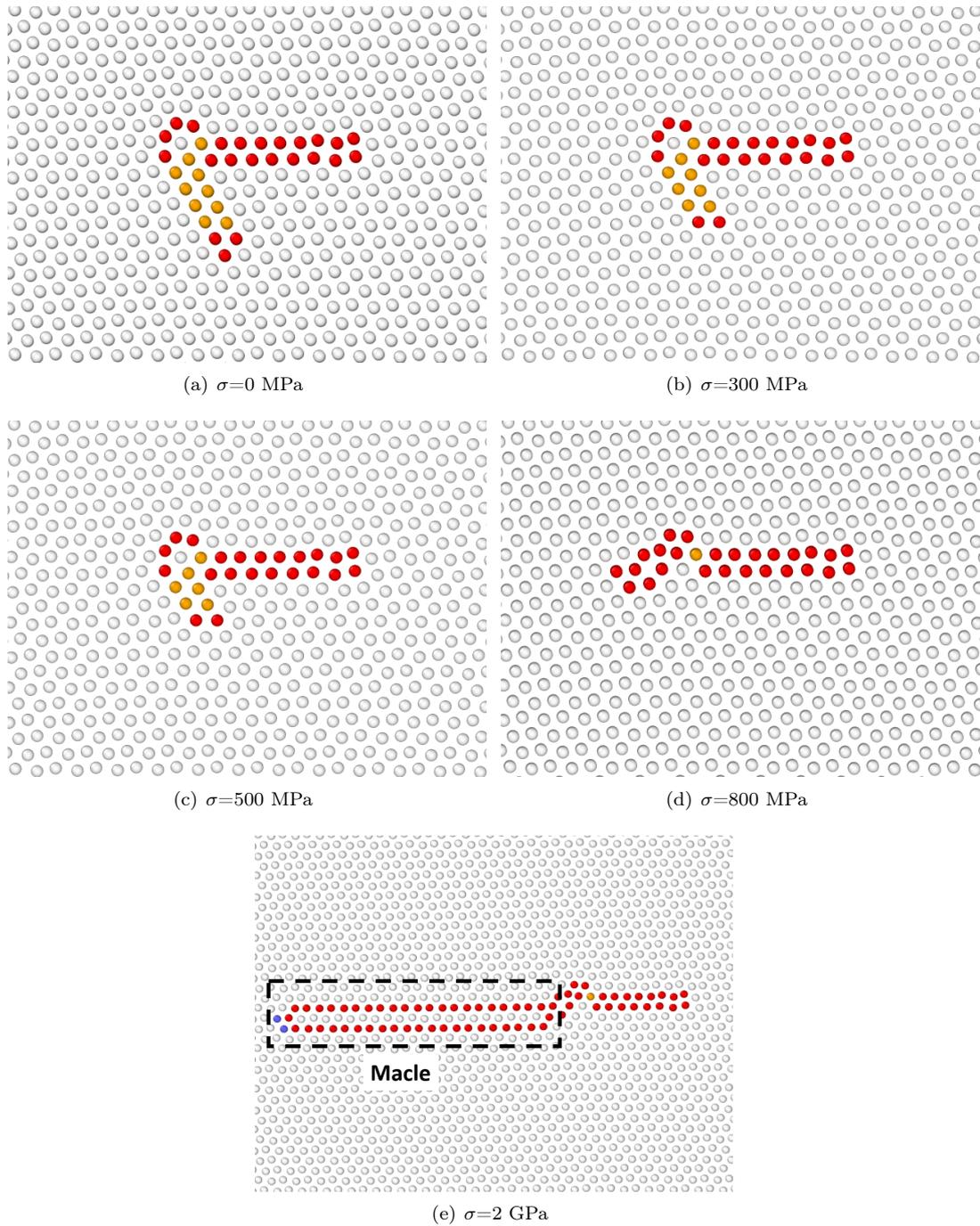


FIGURE 6.4 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  en fonction de contraintes appliquées positives visant à faire glisser la dislocation vers la gauche de l'image. Ces structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été obtenues avec le potentiel EAM #2.

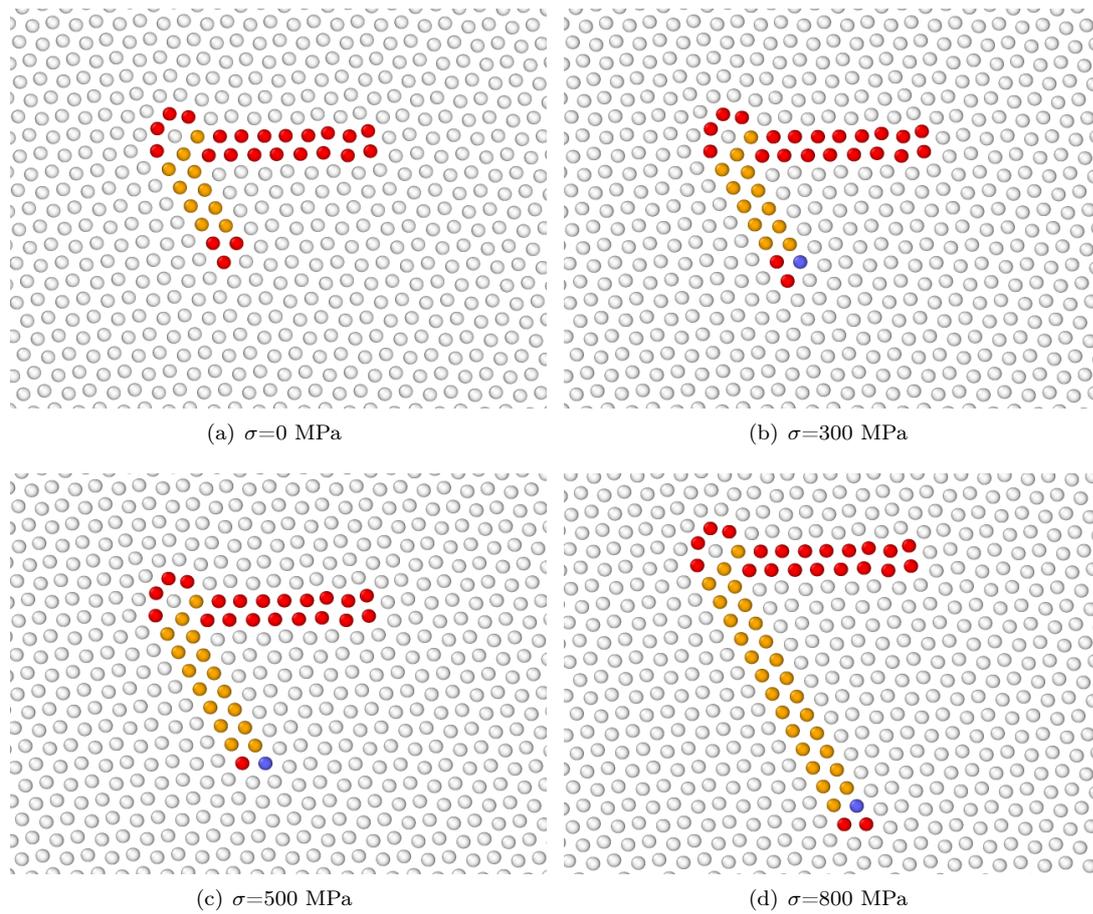


FIGURE 6.5 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  en fonction de contraintes appliquées négatives visant à faire glisser la dislocation vers la droite de l'image. Ces structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été obtenues avec un potentiel EAM #2.

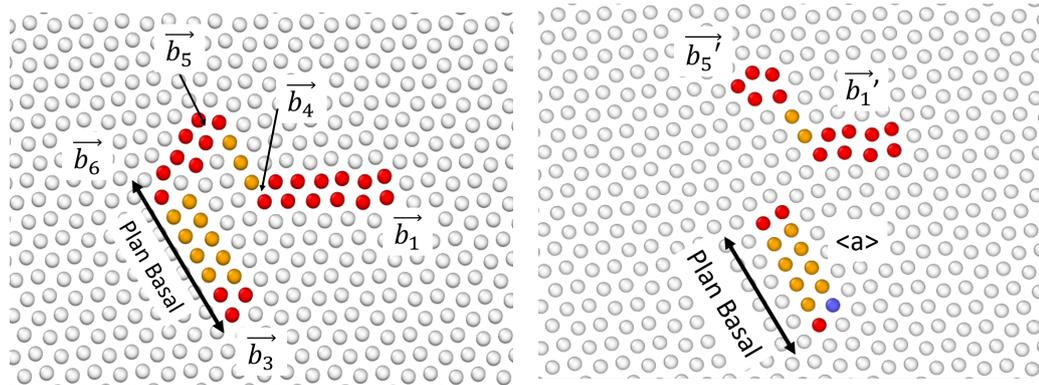
### 6.2.3 Structures obtenues en température

Afin de s'assurer que la structure de cœur de plus basse énergie soit celle imagée par la Figure 6.3(a), des simulations de dynamique moléculaire avec donc une température non nulle ont été réalisées. En effet, avec de l'agitation thermique, la dislocation peut franchir des barrières énergétiques la maintenant dans une position métastable pour partir vers un minimum énergétique plus bas. Des simulations à des températures de 300 K, 500 K et 700 K ont été réalisées afin d'obtenir de nouvelles structures à partir de la dislocation dans son état fondamental à 0 K (illustrée par la Figure 6.3(a)). Afin de vérifier, si un basculement vers une nouvelle structure est observé, 10 simulations avec des "graines" différentes pour le générateur de nombres aléatoires ont été réalisées.

Pour une température de 300 K, la structure de cœur n'évolue pas après 200 ns et reste dissociée dans un plan pyramidal de première espèce et dans le plan basal (configuration décrite par la Figure 6.3(a)).

Pour la totalité des simulations à une température de 500 K, la structure a évolué vers une nouvelle forme illustrée par la Figure 6.6(a). On y observe que la dislocation partielle  $\vec{b}_2$  s'est réarrangée en trois nouvelles dislocations partielles :  $\vec{b}_2 \rightarrow \vec{b}_4 + \vec{b}_5 + \vec{b}_6$ . Ce réarrangement a été possible par la présence d'une faute  $I_1$  entre  $\vec{b}_4$  et  $\vec{b}_5$ . La stabilité de cette structure a ensuite été vérifiée à 0 K et dispose d'une énergie plus faible que la structure initiale.

Pour une température de 700 K, deux types de structures ont été obtenues. La première structure, obtenue dans 30% des simulations, est identique à celle issue des simulations à 500 K. La deuxième structure, obtenue dans 70% des simulations, est similaire à cette dernière mais la dislocation s'est séparée en deux dislocations : une dislocation  $\langle c \rangle$ , dissociée dans le plan de base par une faute du type  $I_1$  et une dislocation  $\langle a \rangle$  dissociée également dans le plan de base mais via une faute d'empilement de type  $I_2$ . Cette dislocation  $\langle a \rangle$  a glissé dans le plan de base montrant ainsi un caractère plus mobile que la dislocation  $\langle c \rangle$ . La stabilité de cette structure à 0 K a également été étudiée et décrit une structure encore plus stable que la précédente. Ce même phénomène a déjà été observé dans l'étude des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le magnésium [76].



(a) Structure de cœur obtenue avec un potentiel EAM #2 après ajout de température (500 K et 700 K).  
 (b) Structure de cœur obtenue avec un potentiel EAM #2 après ajout de température (700 K).

FIGURE 6.6 – Structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  obtenues avec un potentiel EAM #2 après activation thermique.

La configuration la plus stable correspond à une dissociation  $\langle c + a \rangle \rightarrow \langle c \rangle + \langle a \rangle$ . Il y a une barrière énergétique à franchir mais a priori faible puisque cette réorganisation a pu être observée à 700 K sur des temps courts pour des petites longueurs de dislocations. Pour glisser dans le plan pyramidal de première espèce, la dislocation devrait se recombinaison ce qui est peu probable en connaissance du comportement sous contrainte de cette structure de cœur.

La structure de plus basse énergie correspondant à la dissociation complète  $\langle c + a \rangle \rightarrow \langle c \rangle + \langle a \rangle$  (Figure 6.6(b)) a été étudiée sous contrainte appliquée négative (-500 MPa) et à 700 K. Sous ce type de contrainte, la dislocation  $\langle a \rangle$  s'étend (la distance de dissociation entre les partielles augmente) et glisse indéfiniment dans le plan de base jusqu'à s'annihiler au bord de la boîte laissant la dislocation  $\langle c \rangle$  immobile. Ce mécanisme montre que ces deux dislocations ne s'attirent pas suffisamment pour rester proches et ensuite se re-associer pour conserver le vecteur de Burgers  $\langle c + a \rangle$ . Ce mécanisme est contraire aux observations MET où nous n'observons pas de débris sessile  $\langle c \rangle$ .

L'étude s'est alors portée sur le glissement de la dislocation non séparée en deux dislocations  $\langle c \rangle$  et  $\langle a \rangle$  (celle illustrée par la Figure 6.6(a)) sous les mêmes conditions. La structure évolue de la même manière : elle se sépare en deux, puis la dislocation  $\langle a \rangle$  part dans le plan de base loin de la dislocation  $\langle c \rangle$ . Cette observation a été faite pour une contrainte appliquée négative visant à faire glisser la dislocation vers la droite. La dislocation  $\langle a \rangle$  a glissé dans le plan basal car une cission résolue existe, le facteur de Schmid dans le plan de base étant non nul.

Bien que le potentiel EAM #2 stabilise des configurations en partie dissociées dans le plan pyramidal de première espèce de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ , il ne s'agit pas de la structure la plus stable et nos simulations en température montrent que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  est en réalité instable pour cette orientation conduisant à l'émission d'une dislocation  $\langle a \rangle$ .

Les fautes basales  $I_1$  et  $I_2$  sont des artefacts du potentiel EAM #2. Comme la réaction  $\langle c + a \rangle \rightarrow \langle c \rangle + \langle a \rangle$  fait intervenir ces fautes, on ne peut pas exclure que cette réaction prédite par le potentiel soit un artefact, d'autant qu'elle conduit à un blocage complet de la dislocation, en désaccord avec les observations expérimentales.

## 6.3 Structures obtenues avec le potentiel EAM #3

Le potentiel EAM #3 a été écarté de la modélisation de la mobilité de la dislocation vis du fait qu'il prédisait pour cette orientation une double dissociation comme structure de plus basse énergie sans admettre de structure planaire glissile. Ce ne sera pas le cas ici à moins d'avoir une dissociation complexe comme avec le précédent potentiel (du type  $\langle c + a \rangle \rightarrow \langle c \rangle + \langle a \rangle$ ). Contrairement au potentiel EAM #2, les valeurs des énergies de fautes d'empilement dans le plan de base ( $I_2$ ) correspondent aux valeurs prédites par les calculs ab initio (EAM #2 : 110 mJ/m<sup>2</sup>, EAM #3 198 mJ/m<sup>2</sup> et ab initio 213 [97]) et les distances de dissociations prédites par ce potentiel devraient ainsi être plus représentative des calculs ab initio.

### 6.3.1 Structures de cœur obtenues à 0 K

Trois différents types de dissociation ont pu être obtenus avec le potentiel EAM #3. Les structures illustrées par la Figure 6.7 sont les plus stables pour ces trois types de cœur.

La structure de cœur la plus stable, illustrée par la Figure 6.7(a) est composée de deux dissociations : une dissociation dans le plan pyramidal de première espèce et une dissociation dans le plan prismatique. Après analyse via circuit de Burgers, il a été remarqué que la dissociation

dans le plan pyramidal de première espèce était stabilisée par une faute de vecteur  $0.16 [01\bar{1}2]$  correspondant à la partielle  $\vec{b}_1$  commune à toutes les structures de cœur illustrées par la Figure 6.7. La dissociation dans le plan prismatic est stabilisée par une faute de vecteur  $1/2 \langle a \rangle + 0.22 \langle c \rangle$  proche du vecteur faute d'empilement dans le plan prismatic ( $1/2 \langle a \rangle + 0.16 \langle c \rangle$ ) correspondant à  $\vec{b}_3''$ . Cette dissociation prismatic semble stabilisée par la faible énergie de faute dans le plan prismatic.

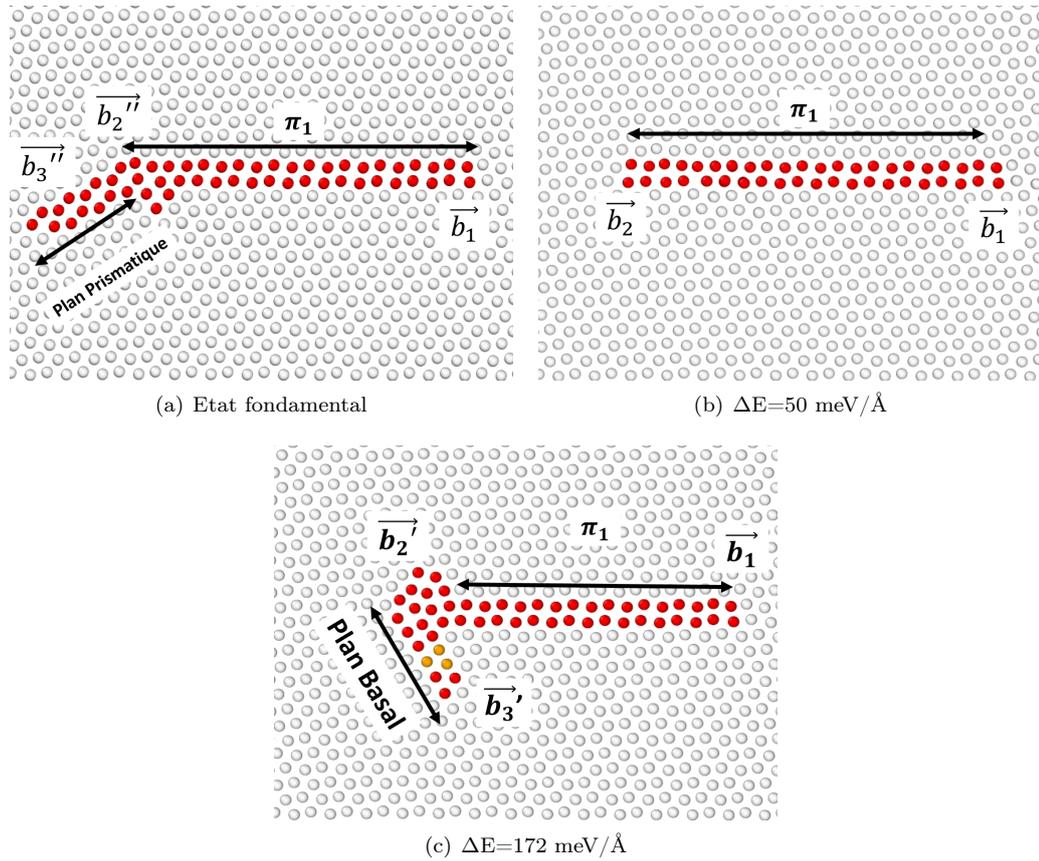


FIGURE 6.7 – Structures de cœur stables des dislocations  $\langle c + a \rangle$  obtenues après relaxation avec le potentiel EAM #3. Les atomes colorés sont les atomes ayant leur environnement atomique différent de l'environnement hexagonal compact et, de ce fait, représentent les colonnes atomiques fortement déplacées dues à la présence d'une faute d'empilement ou d'un cœur de dislocation.

Le second type de structure illustré (Figure 6.7(b)) montre une dislocation  $\langle c + a \rangle$  dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce. Contrairement à la structure obtenue avec le potentiel EAM #2 quasi-planaire, la dislocation partielle  $\vec{b}_2$  ne s'étale pas hors du plan de glissement. Cette structure métastable présente une énergie un peu plus élevée que celle de l'état fondamental.

Le troisième type de structure stable est la dislocation dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan basal (type de structure la plus stable avec le potentiel EAM #2). On peut remarquer que son énergie est très haute ( $172 \text{ meV}/\text{\AA}$ ), comparée à l'énergie

de la dislocation à l'état fondamental. La dissociation dans le plan basal se fait également de manière conservative via une faute d'empilement  $I_2$ . Cette différence de stabilité observée avec les potentiels EAM #2 et #3 pour les mêmes types de structure est la conséquence de l'écart sur les énergies de faute basale.

### 6.3.2 Évolution sous contrainte

La dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan prismatic a été étudiée sous une contrainte appliquée positive et négative.

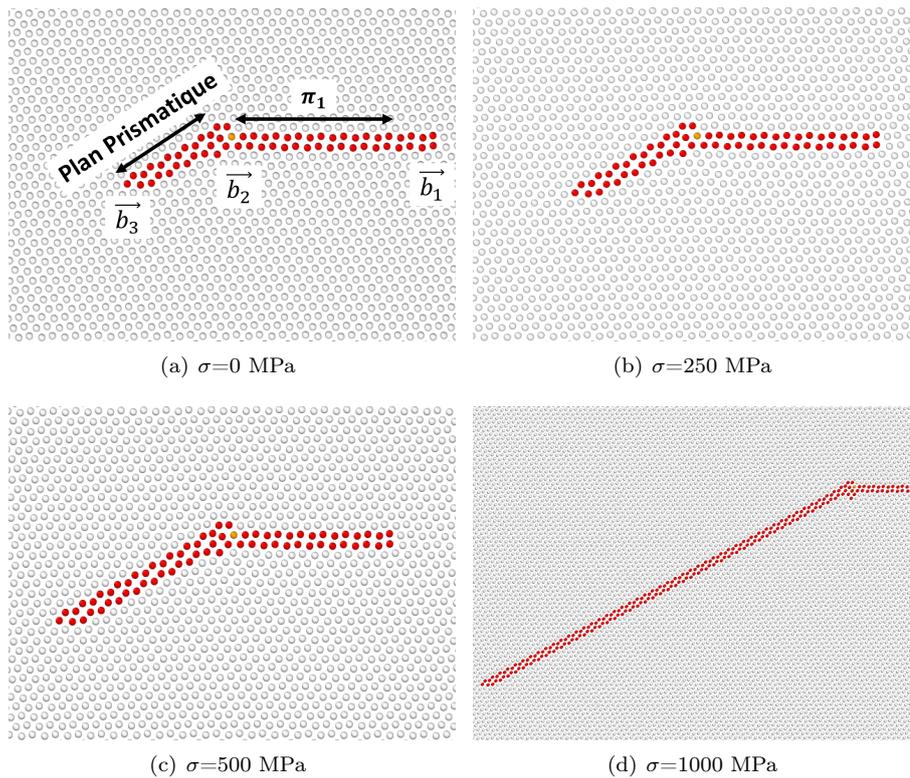


FIGURE 6.8 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  obtenue avec le potentiel EAM #3 en fonction de contraintes appliquées positives visant à faire glisser la dislocation vers la gauche de l'image.

Sous une contrainte positive visant à faire avancer la dislocation dans son plan pyramidal de première espèce dans la direction  $-\vec{y}$  *i.e.* vers la gauche, la structure de cœur évolue comme illustré par la Figure 6.8. Sous les premiers incréments de contrainte, on peut remarquer que la dislocation se contracte dans son plan pyramidal de première espèce et la distance de dissociation augmente dans le plan prismatic. La dislocation suit cette évolution jusqu'à atteindre une distance de dissociation minimale critique dans le plan pyramidal de première espèce. La distance de dissociation dans le plan prismatic augmente ensuite après d'autres incréments de contrainte de manière infinie : la dislocation partielle  $b_3$  avance dans le plan prismatic jusqu'à rencontrer les bords de la boîte de simulation créant ainsi une faute d'empilement dans la boîte. On peut

ainsi remarquer que la dislocation partielle issue de la dissociation dans le plan prismatique ne peut glisser dans le plan pyramidal de première espèce et ancre ainsi la dislocation totale. De plus, il n'y a pas d'observation d'émission de dislocation  $\langle a \rangle$ , de l'activation thermique est probablement nécessaire pour observer un tel mécanisme.

Sous une contrainte négative visant à faire avancer la dislocation dans la direction  $\vec{y}$ , la dislocation suit premièrement un comportement opposé à celui observé sous une contrainte positive. La dislocation, comme imagé par la Figure 6.3.2, se contracte le long du plan prismatique et la partielle de droite  $\vec{b}_1$  avance petit à petit dans le plan pyramidal de première espèce. La dissociation le long du plan prismatique se résorbe petit à petit et, après une certaine contrainte appliquée, s'annule et laisse la dislocation se re-dissocier dans le plan basal. La dislocation planaire ne semble ainsi pas stable sous de telles conditions.

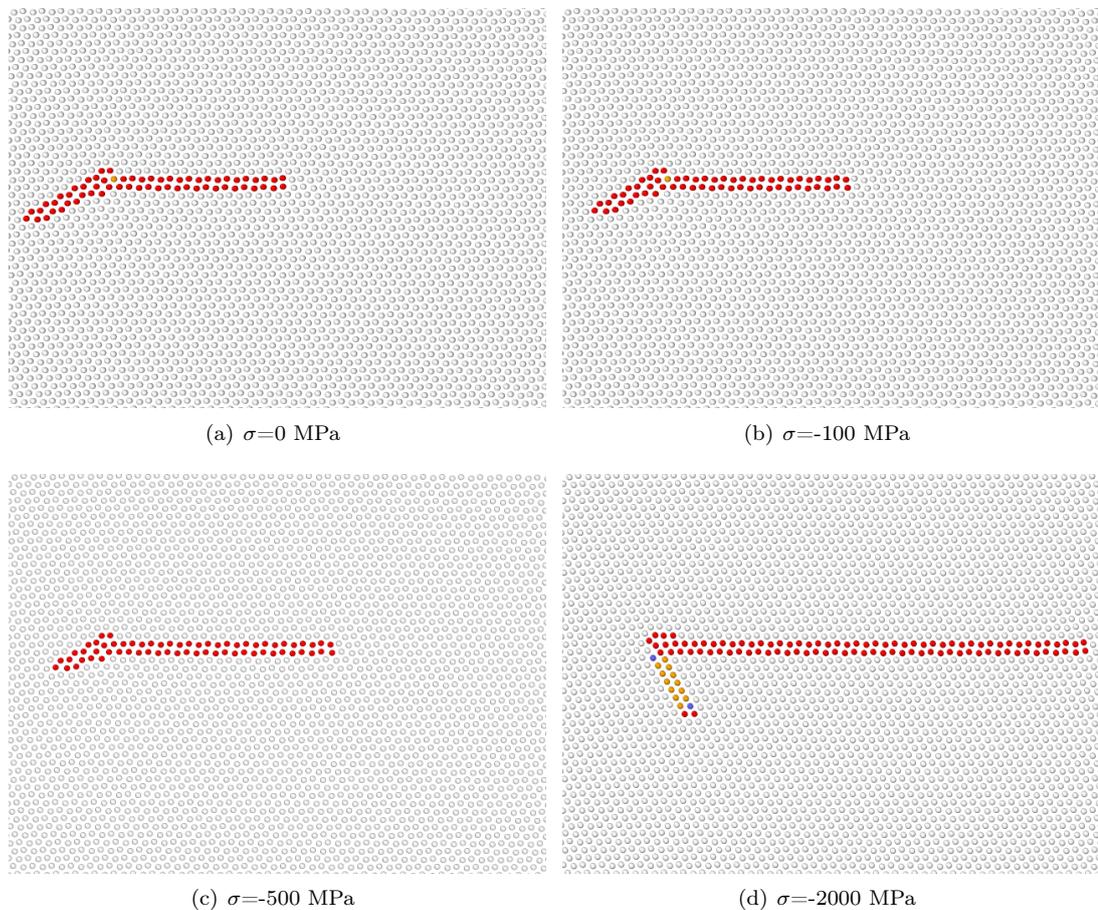


FIGURE 6.9 – Évolution de la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  obtenue avec le potentiel EAM #3 en fonction de contraintes appliquées négatives visant à faire glisser la dislocation vers la droite de l'image.

La configuration dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce a également été étudiée sous contrainte. Pour une contrainte appliquée positive, la distance de dissociation augmente petit à petit avec la partielle  $\vec{b}_2$  qui avance. Néanmoins la dislocation totale n'est

pas observée avancer, pour une contrainte de 2 GPa, la dislocation partielle  $\vec{b}_2$  se dissocie dans le plan prismatique amenant à la création avec la contrainte d'une faute d'empilement comme observé pour la dislocation dans son état fondamental. Pour une contrainte négative, la distance de dissociation augmente également et la dislocation partielle  $\vec{b}_2$  se dissocie faiblement dans le plan basal de la même manière qu'avec la précédente configuration.

Sous de telles conditions, la dislocation n'est pas observée glisser dans le plan pyramidal de première espèce. Ainsi le potentiel EAM #3 ne semble pas permettre le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  sans activation thermique.

### 6.3.3 Structures obtenues en température

Les précédentes structures ont été utilisées dans des simulations de dynamique moléculaire implémentant des températures de 300 K, 500 K et 700 K. Dans tous les cas, après un temps de 200 ps toutes les structures ont convergé vers une structure dissociée dans deux plans : le plan pyramidal de première espèce correspondant au plan de glissement et le plan prismatique (de même type qu'illustré en Figure 6.7(a)). Une séparation en deux dislocations  $\langle a \rangle$  et  $\langle c \rangle$  n'a pas été obtenue avec ce potentiel.

La structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan prismatique a donc été observée comme étant la structure à l'état fondamental après activation thermique. Le fait que la dissociation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  en deux dislocations  $\langle c \rangle$  et  $\langle a \rangle$  n'a pas été observée ici n'équivaut pas à dire qu'elle n'existe pas. En effet, le temps simulé par la dynamique moléculaire n'a pas forcément permis de franchir la barrière énergétique entre ces deux états. La stabilisation de cette structure avec ce potentiel devrait être l'objet d'une prochaine étude. Celle-ci s'intéressera à la stabilité d'un ensemble de deux dislocations  $\langle c \rangle$  et  $\langle a \rangle$  : l'énergie de ces deux dislocations sera alors comparée à l'énergie d'une dislocation  $\langle c + a \rangle$  non séparée en deux.

## 6.4 Structures obtenues avec le potentiel MEAM

La Figure 6.10 illustre les deux types de structures de cœur obtenues avec le potentiel MEAM.

La structure à l'état fondamental est uniquement dissociée dans un plan pyramidal de première espèce. La structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan basal est stable mais de plus haute énergie. Une structure de cœur dissociée dans le plan pyramidal de première espèce et dans le plan prismatique n'est pas stable (état fondamental avec EAM #3). Les distances de dissociations dans le plan pyramidal de première espèce sont ici courtes, ce qui s'explique par le fait que l'énergie de la faute d'empilement dans le plan pyramidal de première espèce avec le potentiel MEAM a une énergie trois fois plus élevée que celle obtenue avec des calculs *ab initio* et les potentiels EAM #2 et #3.

La structure dissociée dans le plan pyramidal de première espèce a été étudiée sous contrainte. Dans le cas d'une contrainte appliquée positive, la distance de dissociation augmente peu (trois vallées de Peierls maximum) jusqu'à des contraintes de plus de 4 GPa. Pour une contrainte négative, la structure de cœur de la dislocation n'évolue pas, la distance de dissociation étant très faible. Ces observations laissent penser que le glissement de la dislocation avec le potentiel MEAM nécessite de l'activation thermique. Néanmoins, le fait qu'il n'y ait pas de reconstruction sous contrainte vers des structures non planaires est plutôt encourageant.

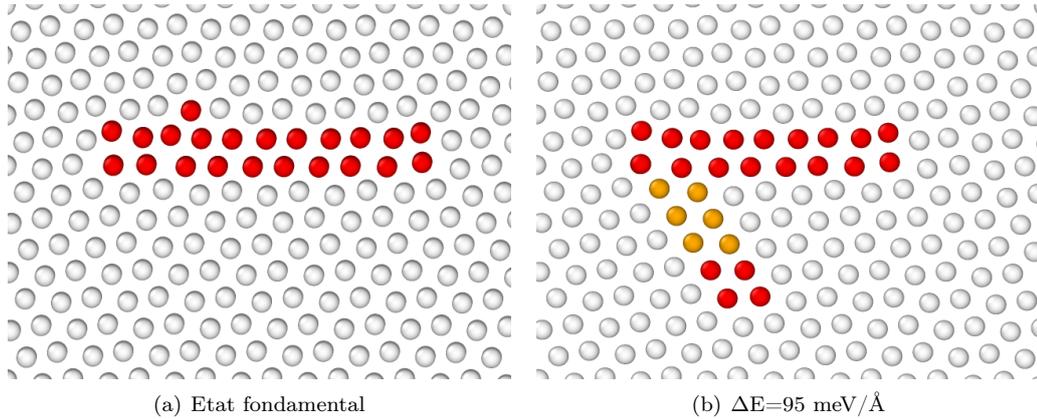


FIGURE 6.10 – Structures de cœur stables des dislocations  $\langle c + a \rangle$  obtenues après relaxation avec le potentiel MEAM. Les atomes colorés sont les atomes ayant leur environnement atomique différent de l'environnement hexagonal compact et, de ce fait, représentent les colonnes atomiques fortement déplacées dues à la présence d'une faute d'empilement ou du cœur de la dislocation.

## 6.5 Discussion

Les potentiels EAM #2 et #3 conduisent tous les deux à une structure composée de deux dissociations, l'une dans un plan pyramidal de première espèce et l'autre dans un second plan, un plan basal ou prismatique, en accord avec les énergies de faute d'empilement existant dans ces plans pour la dislocation  $\langle a \rangle$ .

Le potentiel EAM #2 montre une réaction  $\langle c + a \rangle \rightarrow \langle c \rangle + \langle a \rangle$  qui immobilise complètement la dislocation. Ce potentiel est donc inutilisable du fait que ce type de réaction ne peut correspondre au comportement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  observé expérimentalement. Bien que cette réaction n'ait pas été observée avec le potentiel EAM #3, il faudrait vérifier qu'elle ne soit pas énergétiquement favorable avec des simulations dédiées.

Une structure planaire existe à plus haute énergie pour le potentiel EAM #3 mais elle ne glisse pas sous contrainte à 0 K et des simulations en température sous contrainte devraient être réalisées. Il est difficile de voir comment les dislocations  $\langle c + a \rangle$  pourraient glisser avec ces structures. Il faudrait alors faire une étude en dynamique moléculaire de mobilité avec le potentiel EAM #3 comme faite pour la dislocation vis. Cette étude pourrait conduire à l'observation soit d'une reconstruction vers une structure plus glissile soit à l'observation de germination et propagation de double décrochements malgré sa structure non planaire.

Le potentiel MEAM semble finalement plus raisonnable. Bien que la structure à son état fondamental semble glissile, elle n'a pas été observée glisser sous de très forte contrainte à température nulle, montrant ainsi un coût d'activation élevé en accord avec les observations expérimentales.

Numakura et al. [61,62] ont, avec un potentiel Lennard-Jones adapté aux métaux hexagonaux compacts, obtenus trois types de structure de cœur pour la dislocation  $\langle c + a \rangle$  mixte à orientation  $\langle a \rangle$ . La structure de type I est dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce et peut glisser dans le plan pyramidal de première espèce. La structure de type II est dissociée dans le plan pyramidal de première espèce sur une faible distance et dissociée dans le plan basal sur une

distance bien plus importante. Sous contrainte cette dernière dislocation résorbe sa dissociation dans le plan basal puis se met à glisser dans le plan pyramidal de première espèce. Ce même type de structure complexe n'a pas été observé avec nos simulations, nos simulations prédisant une dissociation dans le plan pyramidal de première espèce bien définie. Néanmoins, nous nous attendons à observer un comportement similaire avec la dissociation secondaire dans le plan prismatique ou basal qui se résorberait pour laisser la dislocation glisser via la reconstruction en une dislocation planaire glissile.

Différentes structures de cœur ont été obtenues ici, ces dernières étant plus ou moins stables en fonction des énergies et des fautes d'empilement propres aux potentiels utilisés. Une étude en élasticité doit être faite afin de voir si ces stabilités relatives peuvent être rationalisées grâce aux énergies correspondant à ces dissociations (gain d'énergie élastique et coût de sa faute), puis de prédire la stabilité de ces mêmes structures à partir des énergies de faute calculées *ab initio*.

## Conclusion

Nous avons dans ce chapitre étudié différentes structures de cœur des dislocations  $\langle c + a \rangle$  à orientation  $\langle a \rangle$  avec trois différents potentiels (EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland et MEAM développé par Kim et al.).

Le potentiel EAM #2 qui a été utilisé pour modéliser le glissement de la dislocation vis prédit une séparation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  en dislocations  $\langle c \rangle$  et  $\langle a \rangle$ . Cette séparation conduirait à un blocage total de la dislocation lors de son glissement ce qui n'a pas été observé expérimentalement. Le potentiel EAM #2 ne contient alors pas les ingrédients physiques pour modéliser le glissement de cette orientation de la ligne de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ .

L'état fondamental obtenu pour le potentiel EAM #3 est dissocié sur le plan pyramidal de première espèce de définition ainsi que sur un plan prismatique et n'est pas observé glisser sous contrainte à température nulle. Un état métastable de cette dislocation planaire issu d'une simple dissociation dans le plan pyramidal de première espèce a été obtenu et est attendu comme plus facilement glissile sans avoir observé la dislocation glisser à température nulle. Des simulations en dynamique moléculaire sous contrainte et température sont ainsi prévues pour chercher à observer le glissement de cette configuration avec ce potentiel.

Une très forte sensibilité au modèle énergétique a été observée, a priori à cause des structures et des énergies de fautes possibles.

Comme cette direction  $\langle a \rangle$  est commune à plusieurs plans où des dissociations sont possibles, cela conduit à une richesse des structures possibles de cette dislocation  $\langle c + a \rangle$  qu'il faudra continuer d'explorer avec des modèles énergétiques plus robustes, ces derniers devant avoir une description physique plus fine de la liaison inter-atomique dans le zirconium.

# Conclusions et Perspectives

Le but général de cette thèse était de compléter les connaissances concernant les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium. Cette thèse a premièrement cherché à obtenir des données expérimentales non disponibles dans la littérature sur la mobilité des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium. Le deuxième axe de la thèse s'est orienté autour de la modélisation du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  via des simulations à l'échelle atomique.

Dans la littérature, les études expérimentales focalisées sur les dislocations  $\langle c + a \rangle$  sont rares. Ces dernières sont souvent observées mais notées comme événements concomitants aux mécanismes d'intérêt, comme le glissement de dislocations  $\langle a \rangle$  ou les défauts d'irradiation. Le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  étant un mécanisme de déformation secondaire, afin d'observer ces dernières, des conditions expérimentales spécifiques doivent être réunies telles qu'une texture prononcée. Cette texture permet d'imposer une contrainte uni-axiale suivant la direction  $\langle c \rangle$  des grains. Les précédentes observations des dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été réalisées en post-mortem (*i.e.* après une sollicitation mécanique) donc au repos.

Afin de compléter ces données expérimentales, des observations en microscopie électronique à transmission des dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont été ici réalisées. Le choix du matériau s'est porté sur le Zircaloy-4 TREx pour sa texture prononcée et la possibilité d'en extraire des éprouvettes de traction ayant la direction  $\langle c \rangle$  des grains majoritairement alignée avec la direction de traction. Ces éprouvettes ont permis l'observation de microstructures obtenues après essai de traction sur des échantillons massifs contenant des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . Ces observations ont permis d'obtenir les mêmes conclusions que les précédentes études post-mortem réalisées dans la littérature : les dislocations  $\langle c + a \rangle$  glissent dans des plans pyramidaux de première espèce et sont alignées préférentiellement suivant une direction  $\langle a \rangle$ , direction à l'intersection du plan de glissement et du plan basal. Ces dislocations sont souvent constituées de plusieurs macro-décrochements alignés suivant une direction  $\langle a \rangle$ . Bien que la texture est favorise fortement l'activation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  grâce à un facteur de Schmid élevé, un faible nombre de grains a réellement activé le glissement de dislocation  $\langle c + a \rangle$  soulignant ainsi un fort contraste entre la contrainte d'activation des dislocations  $\langle c + a \rangle$  et celle du glissement des dislocations  $\langle a \rangle$ . Ajouté à cette compétition entre le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  et le glissement des dislocations  $\langle a \rangle$ , du maclage a également été observé démontrant ainsi la compétition avec le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  pour accommoder la déformation suivant la direction  $\langle c \rangle$  des grains.

Le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  ayant été démontré comme observable dans nos échantillons, des essais de traction *in situ* en MET ont été réalisés dans les mêmes conditions sur des lames minces électropolies. Ces expériences ont permis de mettre évidence un glissement confiné dans le plan pyramidal de première espèce et, le facteur de Schmid des grains activés étant proche pour tous les systèmes  $\langle c + a \rangle$  pyramidaux, du glissement dans différents plans pyramidaux de première espèce a été observé. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  glisse en conservant son alignement selon

sa direction  $\langle a \rangle$ . Les autres directions apparaissent courbes, s'équilibrant avec la contrainte imposée. Le glissement difficile de cette orientation  $\langle a \rangle$  a été confirmé en étudiant la vitesse des portions de dislocations  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  et celles des autres directions. Cette étude a montré que la direction  $\langle a \rangle$  était plus lente. Ceci témoigne donc du fait que c'est cette portion de la ligne de la dislocation qui contrôle le glissement de la dislocation entière. Cette dernière avance soit via un glissement visqueux soit de manière plus rapide via un glissement saccadé : la dislocation avance très vite sur un temps très court puis se stabilise. L'épinglage localisé de la dislocation conduit à la création de macro-décrochements avec les portions qui glissent s'alignant suivant la direction  $\langle a \rangle$ . Ces expériences ont également souligné des événements de glissement dévié fréquents dans nos échantillons de Zircaloy-4, le glissement dévié étant toujours observé entre deux plans pyramidaux de première espèce sans glissement dans un plan pyramidal de seconde espèce. Ce dernier n'a été observé dans la littérature de façon marginale que dans des alliages de zirconium contenant du niobium. Comme pour les études post-mortem, du maclage a également été observé. Une propagation de macles a pu être capturée par la caméra lors de nos essais. Après analyse, il a été confirmé que la vitesse de propagation est bien plus grande que la vitesse d'épaississement. Les macles, comme les joints de grain ou les précipités/hydrures, ont été déterminées comme étant des sources possibles pour la germination des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . La majorité des dislocations  $\langle c + a \rangle$  a été observée comme provenant de joints de grain.

Les mécanismes de glissement ayant été obtenus avec ces observations expérimentales, la modélisation du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium avec des simulations atomistiques a été réalisée. La première étape de cette modélisation est la sélection d'un modèle énergétique pour décrire le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ . Les calculs *ab initio* ne pouvant pas être réalisés avec des boîtes de simulation assez grandes pour des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , des potentiels empiriques ont été sélectionnés pour cette étude. Deux potentiels empiriques à forces centrales dénotés EAM #2 et #3 développés par Mendeleev et Ackland en 2007 [64] ont été sélectionnés pour leur bonne reproduction des constantes élastiques ainsi qu'un potentiel de type MEAM [96] implémentant une dépendance angulaire de la liaison interatomique qui est, a priori, plus adapté à la description d'un métal de transition comme le zirconium. Ces potentiels ont été testés pour vérifier s'ils reproduisaient bien les fautes d'empilement dans les plans possibles de glissement. La structure de la faute d'empilement dans le plan principal de glissement prédite par ces potentiels correspond bien à celle donnée par les calculs *ab initio* bien que le potentiel EAM #2 et MEAM conduisant à une énergie environ deux fois plus élevée. De plus, le potentiel MEAM prédit une faute d'empilement plus stable dans le plan pyramidal de seconde espèce.

Ces différences entre potentiels conduisent à des structures de cœur différentes pour la dislocation vis. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  étant observée expérimentalement glisser dans le plan pyramidal de première espèce sans de fortes forces de friction dans sa direction vis, on s'attend alors à ce que la dislocation vis soit dissociée uniquement dans le plan pyramidal de première espèce. Seuls les potentiels EAM #2 et MEAM décrivent une telle configuration comme stable ainsi, le potentiel MEAM prédisant néanmoins une configuration dissociée dans le plan pyramidal de seconde espèce encore plus stable. Le potentiel EAM #2 a donc été sélectionné pour étudier la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis. Cette structure de cœur est asymétrique, les deux dislocations partielles étant non équivalentes. À cause de cette asymétrie, la dislocation est sujette à une asymétrie de glissement : la contrainte de Peierls n'est pas la même pour une contrainte appliquée visant à faire avancer la dislocation dans le plan pyramidal de première espèce dans une direction ou une autre. La contrainte de Peierls dans les deux directions possibles est égale à 633 et 1369 MPa, valeurs très importantes soulignant que de l'activation thermique est nécessaire pour voir la dislocation avancer dans son plan de glissement. Des simulations de dynamique moléculaire ont été réalisées pour différentes contraintes et températures et ont permis d'observer un glissement par germina-

tion et propagation de double décrochements, mécanisme de glissement thermiquement activé. Une loi analytique de glissement thermiquement activé a ainsi été établie pour le glissement de la dislocation vis permettant d'exprimer la vitesse de la dislocation en fonction de la contrainte appliquée et de la température. Cette loi a été obtenue pour des vitesses de glissement relativement importantes par rapport aux vitesses estimées expérimentalement du fait de contraintes inhérentes à la dynamique moléculaire. Cette dernière permet néanmoins l'extrapolation à plus basse vitesse si le même mécanisme régit toujours le glissement de la dislocation.

La structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à direction  $\langle a \rangle$  a été ensuite étudiée avec les mêmes potentiels. Diverses structures de cœur ont été obtenues, ces dernières étant composées soit uniquement d'une seule dissociation dans le plan pyramidal de première espèce, soit, en plus de cette dissociation, d'une dissociation dans le plan basal ou prismatique. La stabilité de cette seconde dissociation dépend du potentiel et probablement des énergies et structures des fautes d'empilement prédites par ces potentiels dans le plan basal et dans le plan prismatique. Le potentiel EAM #2 qui avait été retenu pour modéliser la dislocation vis ne peut pas être utilisé pour modéliser cette orientation de la ligne de la dislocation  $\langle c + a \rangle$ . En effet, la dislocation  $\langle c + a \rangle$  de direction  $\langle a \rangle$  évolue après activation thermique en deux dislocations, une dislocation  $\langle c \rangle$  sessile et une dislocation  $\langle a \rangle$ , en désaccord avec les observations expérimentales. Le glissement de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  n'a pas pu être obtenu pour cette orientation de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  à 0K avec aucun des potentiels mais l'existence d'une structure métastable planaire glissile et d'une structure de plus basse énergie composée d'une dissociation secondaire (a priori dans le plan prismatique pour le zirconium) pourrait expliquer le glissement difficile de manière saccadée observé expérimentalement.

Expérimentalement, cette thèse s'est concentrée sur des expériences à température ambiante. Néanmoins, les alliages de zirconium étant utilisés à une température de 330°C dans les centrales nucléaires, une étude à cette température serait nécessaire. On s'attend à ce qu'à cette température, le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  soit plus fluide, la structure de cœur de la dislocation se réorganisant plus souvent vers la configuration glissile avec une telle température. Du glissement dévié serait également plus fréquent.

Cette thèse a également permis d'étudier l'influence des éléments d'alliages avec une comparaison de nos expériences dans le Zircaloy-4 avec les travaux de D. Caillard [80] réalisé dans du zirconium pur. Cela a permis de voir l'effet des éléments d'alliage sur la mobilité des dislocations  $\langle c + a \rangle$ . On remarque ainsi que dans le Zircaloy-4, le glissement dévié des dislocations  $\langle c + a \rangle$  est plus fréquent et que les dislocations  $\langle c + a \rangle$  ont tendance à former plus de macro-décrochements suivant la direction  $\langle a \rangle$ , soulignant un probable effet d'ancrage des dislocations à direction  $\langle a \rangle$  sur des éléments d'alliage en solution. Afin d'améliorer cette discussion, une étude sur différents alliages en isolant un à un les éléments en solution devrait être réalisée pour déterminer la contribution de chacun de ces éléments. Cette comparaison pourrait s'appuyer également sur des simulations atomistiques en étudiant l'interaction de la dislocation avec de tels éléments en solution.

L'effet du niobium a également été souligné dans de rares observations comme pouvant stabiliser le glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le plan pyramidal de seconde espèce. Son effet devrait être, de la même manière, étudié par le biais du même type d'observations et pourrait également être étudié via des simulations à l'échelle atomique moyennant un modèle énergétique adéquat. Cet élément d'alliage est particulièrement important : il entre dans la composition chimique de certaines famille d'alliages de zirconium utilisés dans l'industrie nucléaire.

Le glissement de la dislocation vis a été largement étudié dans cette thèse et son interaction avec des éléments en solution pourrait être une probable ouverture pour expliquer un épinglage

plus fréquent. La sensibilité de la dislocation au facteur de Schmid devrait être étudiée de manière à enrichir la loi de mobilité obtenue. L'activation du glissement dévié pourrait également être étudiée avec des simulations atomiques. Néanmoins, c'est plutôt sur le glissement de la dislocation à direction  $\langle a \rangle$  que les simulations suivantes devraient se concentrer. Différentes structures de cœur ont été obtenues mais l'identification via des calculs d'élasticité basés sur les fautes d'empilement de la structure de plus basse énergie en calcul *ab initio* n'a pas été réalisée. Contrairement au magnésium, les dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium ne sont observées glisser que dans le plan pyramidal de première espèce et la dislocation ne se bloque pas indéfiniment dans nos observations expérimentales, ne permettant pas ainsi d'admettre que la dislocation  $\langle c + a \rangle$  se dissocie en dislocations  $\langle c \rangle$  sessile et  $\langle a \rangle$ . L'existence de deux types de structures dont une sessile mais de plus basse énergie convient mieux à la description des événements, mais un glissement très difficile de type double décrochements de la configuration dissociée dans deux plans différents impliquant une forte force de friction est également possible.

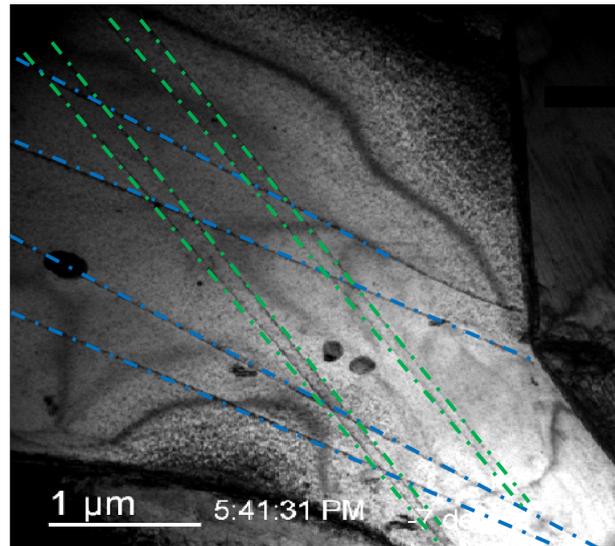
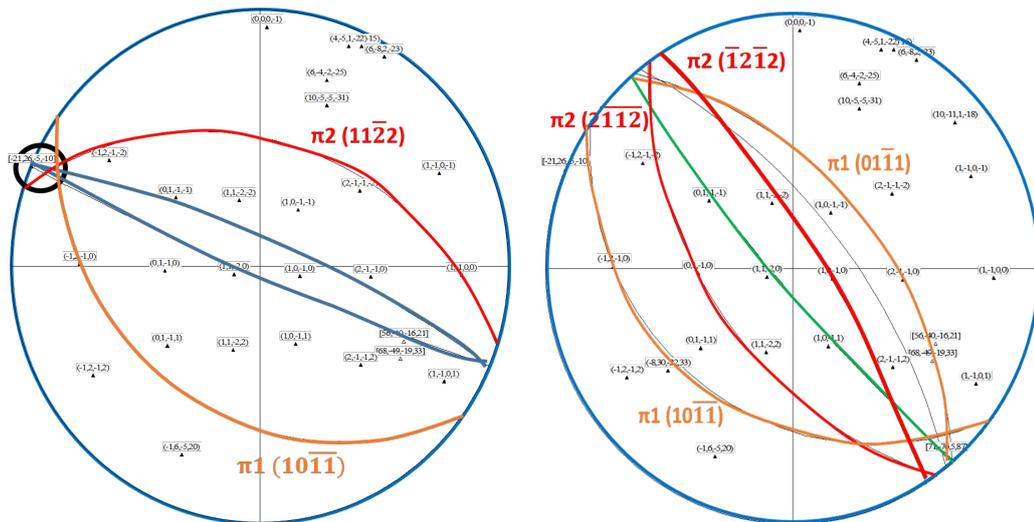
Les simulations atomistiques, particulièrement celles sur les dislocations  $\langle c + a \rangle$  de direction  $\langle a \rangle$ , ont mis en évidence une très forte dépendance au potentiel et que les différents potentiels utilisés ne peuvent pas permettre une étude poussée du glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$ , les prédictions des fautes d'empilement ne reproduisant pas suffisamment bien les résultats *ab initio*. Le potentiel MEAM qui implémente une dépendance angulaire des liaisons inter-atomiques pourrait avoir la physique nécessaire pour décrire la liaison chimique dans le zirconium et demanderait une étape d'ajustement/paramétrisation supplémentaire pour mieux décrire les fautes d'empilement. Le développement d'un nouveau potentiel plus reproductifs de l'*ab initio* pourrait également être une solution, ce dernier pouvant bénéficier de l'essor du machine-learning.

# Annexe A : Identification de plan via les traces de glissement

Bien que les observations sur des lames MET de traction en *in situ* ne puissent que se faire qu'avec un porte-objet simple tilt, les traces de glissement fournissent des informations supplémentaires permettant d'indexer le plan de glissement de la dislocation.

Après avoir déterminé l'orientation du grain, les traces de glissement et la projection stéréographique sont étudiées à tilt nul. En effet, pour ces conditions d'imagerie, la lame est à plat et les traces de glissement sont ainsi parallèles à la direction à l'intersection du rond extérieur de la projection stéréographique (plan de la lame) et du plan de glissement. Cette première information permet, avec l'erreur liée aux conditions d'imagerie, d'avoir une première estimation des plans possibles de glissement. En parallèle de ce protocole est associé un exemple d'indexation des plans de glissement. Sur la Figure 6.11(a), on peut observer qu'un grain s'est déformé via le glissement de dislocations  $\langle c + a \rangle$  avec des traces de glissement résiduelles. Sur cette Figure sont identifiées deux paires de traces vertes et deux paires de traces bleues. Ces paires de traces ne sont pas parfaitement parallèles entre elles. Cela est dû au fait que les deux surfaces de la lame ne sont pas parallèles. La Figure 6.11(b) montre l'identification des différents plans possibles pour les traces bleues. À l'intersection du cercle externe (plan de la lame) et des traces de glissement, deux plans pyramidaux s'y intersectent également : un plan pyramidal de première espèce et un plan pyramidal de seconde espèce. Pour l'identification des traces vertes, l'identification est plus complexe avec quatre plans pyramidaux possibles comme imagé en Figure 6.11(c).

Après avoir effectué cette identification, il est possible de déterminer de quel plan il s'agit réellement en étudiant avec différents tilts l'écart entre les traces de glissement. En effet, si l'écart est nul *i.e.* que les traces se confondent, le plan contenant ces deux traces *e.g.* le plan de glissement est ici vu debout (c'est à dire contenant le faisceau d'électron) levé et apparaît sur la projection stéréographique à cette orientation comme une droite. Néanmoins il n'est pas toujours possible d'obtenir un tel angle d'observation dans les gammes de tilt accessible avec le microscope (ici  $\pm 40^\circ$ ). C'est le cas de l'observation illustrée ici. Sur la Figure 6.12 sont représentées deux images de la même zone avec deux angles d'observation différents et un schéma représentant les traces étudiées ainsi que les distances spécifiques qui ont été mesurées. En mesurant les distances entre ces traces de glissement on peut remarquer que, proche de  $-31^\circ$ , les traces vertes sont proches de se superposer et on s'attend ainsi à ce que leur plan soit vu debout. Pour ce qui est des traces bleues, on observe une réduction de cette distance aux plus hauts angles. Ici à  $10^\circ$  l'écart entre les traces diminue bien que faiblement. De ce fait, en observant juste si l'écart entre les traces augmente ou diminue en observant avec différents angles d'observation il est possible d'éliminer ou non des plans possibles de glissement, en fonction de s'ils s'approchent de leur position "debout" ou non. Dans le cas où il n'est toujours pas possible d'avoir éliminé assez de

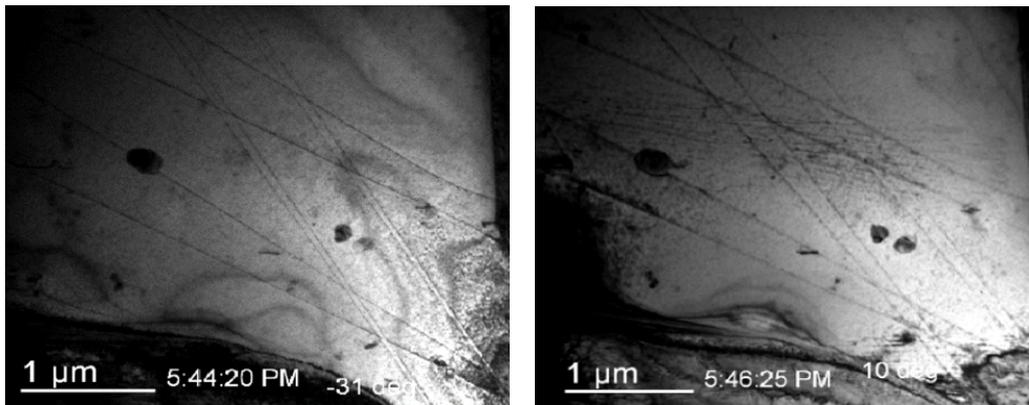
(a) Observation MET de traces de glissement pour un tilt de  $-7^\circ$ 

(b) Projection stéréographique du grain à  $0^\circ$  avec les plans pyramidaux identifiés comme pouvant correspondre aux traces bleues. (c) Projection stéréographique du grain à  $0^\circ$  avec les plans pyramidaux identifiés comme pouvant correspondre aux traces vertes.

FIGURE 6.11 – Première étape d'indexation des plans de glissement : identification des plans pyramidaux possibles.

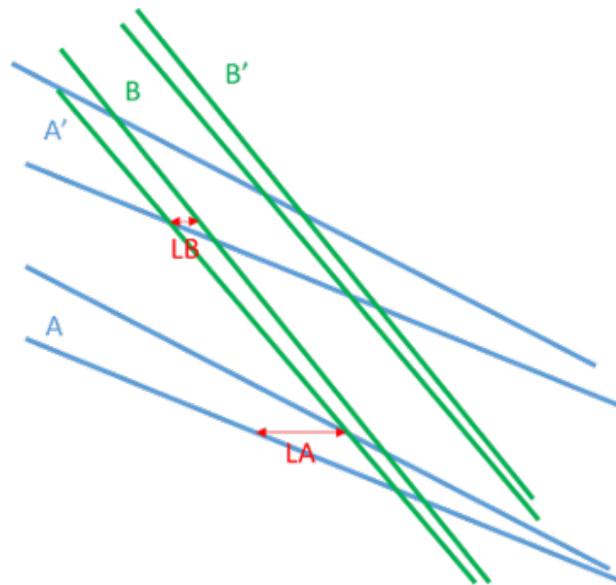
plans avec ces deux méthodes, il est possible de décrire l'évolution de ces distances entre les traces de glissement avec une fonction sinusoïdale permettant d'estimer quand elle devrait s'annuler et quand elle atteint son maximum. Pour se faire, il est nécessaire d'être méthodique et de prendre des points références pour la mesure de l'écart entre les plans de glissement. Nous avons dans notre expérience utilisé l'intersection entre les traces de glissement pour effectuer ces mesures.

L'écart entre les traces de glissement étant dû à l'épaisseur de la lame et de l'angle d'obser-



(a) Observation MET de traces de glissement pour un tilt de  $-31^\circ$

(b) Observation MET de traces de glissement pour un tilt de  $10^\circ$



(c) Représentation des traces de glissement étudiées avec indiquées les distances mesurées pour vérifier l'écart entre les traces.

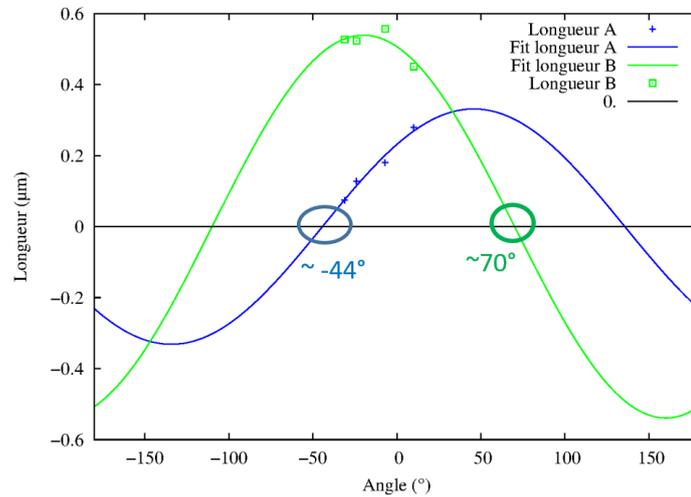
FIGURE 6.12 – Deuxième étape d'indexation des plans de glissement : mesure de l'écart entre les plans de glissement. Les distances mesurées "LA" et "LB" sont mesurées suivant l'horizontale de l'image car perpendiculaires à l'axe de rotation qui est vertical.

vation, l'écart entre les traces de glissement suit une fonction de type sinusoïdale avec un écart maximal entre les traces variant en fonction du lieu de mesure. Ainsi des fonctions de types

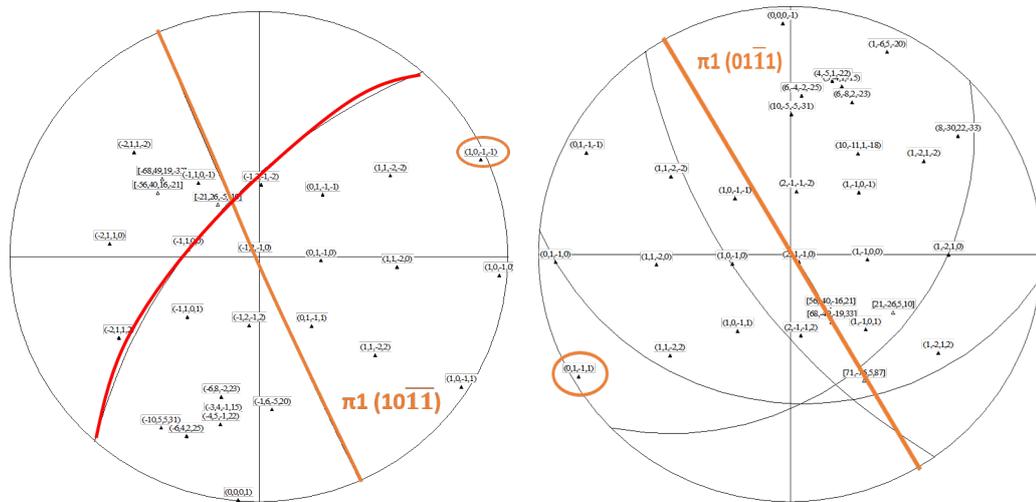
$$d(\theta) = d_0 \sin(\theta - \theta_0)$$

ont été ajustées sur les écarts mesurés en ajustant leurs paramètres  $\theta_0$  et  $d_0$ .  $\theta_0$  est l'angle à lequel la distance entre les traces sont nulles e.g. que le plan est vu "debout" et  $d_0$  est la distance réelle entre ces points. De cette manière, il a été possible d'établir le graphique illustré en Figure 6.13(a). Avec ces fonctions, les angles auxquels les traces de glissement s'annulent ont

été identifiés. Une fois ces paramètres obtenus les projections stéréographiques sont étudiées à ces angles comme illustré en Figure 6.13(b) et 6.13(c) où l'on remarque bien les plans apparaissant ici sur la projection stéréographique comme debout car rectiligne (leur pôle associé étant sur le cercle extérieur).



(a) Évolution des distances  $LA$  et  $LB$  observées entre les traces de glissement pour différents angles d'observation.



(b) Projection stéréographique pour un tilt de  $70^\circ$ . (c) Projection stéréographique pour un tilt de  $-44^\circ$ .

FIGURE 6.13 – Troisième étape d'indexation des plans de glissement : étude de l'évolution de l'écart entre les traces de glissement.

On remarque ainsi que pour un tilt de  $70^\circ$  le plan  $\pi_1(10\bar{1}\bar{1})$  est bien levé et que c'est donc celui-ci qui correspond à la trace A. Pour les traces de glissement de type B on remarque que seul le plan  $\pi_1(01\bar{1}1)$  est bien debout à  $44^\circ$  entre les quatre plans identifiés et qu'il s'agit donc bien de ce plan dans lequel une dislocation  $\langle c + a \rangle$  a glissé.

Il existe une dernière méthode qui permet d'indexer les plans de glissement dans le cas où du glissement dévié est observé. Celle-ci consiste à : 1) premièrement d'identifier les plans possibles pour les deux plans de glissement d'une même dislocation 2) puis d'identifier si un vecteur  $\langle c + a \rangle$  est commun à ces plans.

L'indexation des plans a été montrée ici comme étant facilitée en traction *in situ* par l'étude des traces de glissement. Ainsi il est bien plus simple d'estimer tous les types de systèmes de glissement activés contrairement aux observations post-mortem où l'évolution de l'orientation de chaque ligne de dislocation doit être prise en compte pour estimer tous les systèmes de glissement activés dans un même grain.



# Bibliographie

- [1] N. Chaari. Modélisation ab initio de la plasticité dans les métaux hexagonaux purs, zirconium et titane, et effet de l'oxygène. PhD thesis, Univ. Grenoble Alpes, 2015.
- [2] Olivier MacKain. Modelisation du maclage a l'échelle atomique dans les métaux hexagonaux : germination et migration de disconnections dans le zirconium, le titane et le magnesium. PhD thesis, École Doctorale de Physique et Astrophysique de Lyon, 2017. Thèse de doctorat dirigée par Rodney, David et Clouet, Emmanuel Physique Lyon 2017.
- [3] Emmanuel Clouet. Screw dislocation in zirconium : An ab initio study. Phys. Rev. B, 86 :144104, 2012.
- [4] Nermine Chaari, Emmanuel Clouet, and David Rodney. First order pyramidal slip of 1/3  $\langle 1\bar{2}10 \rangle$  screw dislocations in zirconium. Metall. Mater. Trans. A, 45 :5898–5905, 2014.
- [5] Marine Gaumé. Étude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation. PhD thesis, École Doctorale Science de la Matière (Toulouse), 2017. Thèse de doctorat dirigée par Mompiau, Frederic Centre d'Elaboration de Materiaux et d'Etudes Structurales (CEMES).
- [6] D. Hull and D.J. Bacon. Introduction to Dislocations (Fifth Edition). Butterworth-Heinemann, 2011.
- [7] Friedel. Dislocations. Elsevier, 1964.
- [8] John Price Hirth and Jens Lothe. Theory of Dislocation Second Edition. Krieger, 1982.
- [9] M. Peach and J. S. Koehler. The forces exerted on dislocations and the stress fields produced by them. Physical Review, 80(3) :436–439, nov 1950.
- [10] Kubin L. P. Dislocations, mesoscale simulations and plastic flow, oxford series on materials modelling 5. Contemporary Physics, 54(6) :302–303, nov 2013.
- [11] R Peierls. The size of a dislocation. Proceedings of the Physical Society, 52(1) :34–37, jan 1940.
- [12] F R N Nabarro. Dislocations in a simple cubic lattice. Proceedings of the Physical Society, 59(2) :256–272, mar 1947.
- [13] D. Caillard and Martin J. L. Thermally Activated Mechanisms in Crystal Plasticity, Volume 8. Pergamon, Amsterdam, 2003.
- [14] Pierre Guyot and John E. Dorn. A critical review of the peierls mechanism. Canadian Journal of Physics, 45(2) :983–1016, feb 1967.
- [15] J. E. Dorn and S Rajnal. Nucleation of kink pairs and the peierls mechanism of plastic deformation. Transactions of the Metallurgical Society of AIME, 1964.

- [16] A. Couret and D. Caillard. Prismatic slip in beryllium. Philosophical Magazine A, 59(4) :783–800, apr 1989.
- [17] R.L. Fleischer. Cross slip of extended dislocations. Acta Metallurgica, 7(2) :134–135, feb 1959.
- [18] B. Escaig. Sur le glissement dévié des dislocations dans la structure cubique à faces centrées. Journal de Physique, 29(2-3) :225–239, 1968.
- [19] Pujol C. Etude des mécanismes de déformation en traction et fluage du Zr  $\alpha$  entre 20 et 300°C. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1994.
- [20] Bell R. L. and Cahn R. W. The dynamics of twinning and the interrelation of slip and twinning in zinc crystals. Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences, 239(1219) :494–521, apr 1957.
- [21] E. J Rapperport. Room temperature deformation processes in zirconium. Acta Metall., 7 :254–260, 1959.
- [22] Franck Ferrer. Etude des mécanismes de déformation du zirconium entre 25°C et 400°C. Influence d’une faible teneur en soufre. PhD thesis, École Polytechnique, France, 2000.
- [23] A. Akhtar. Prismatic slip in zirconium single crystals at elevated temperatures. Metall. Mater. Trans. A, 6 :1217–1222, 1975.
- [24] A. Akhtar. Schmid’s law and prismatic slip of zirconium. Scripta Metall., 9 :859–861, 1975.
- [25] A Akhtar and A Teghtsoonian. Plastic deformation of zirconium single crystals. Acta Metall., 19 :655–663, 1971.
- [26] R Brenner, J.L Béchade, O Castelnau, and B Bacroix. Thermal creep of zr–nb1%–o alloys : experimental analysis and micromechanical modelling. Journal of Nuclear Materials, 305(2-3) :175–186, oct 2002.
- [27] Martin Rautenberg, Xavier Feaugas, Dominique Poquillon, and Jean-Marc Cloué. Microstructural characterization of creep anisotropy at 673K in the M5(R) alloy. Acta Mater., 60 :4319–4327, 2012.
- [28] D. Caillard, M. Gaumé, and F. Onimus. Glide and cross-slip of a-dislocations in zr and ti. Acta Materialia, 155 :23–34, aug 2018.
- [29] G.G. Yapici, C.N. Tomé, I.J. Beyerlein, I. Karaman, S.C. Vogel, and C. Liu. Plastic flow anisotropy of pure zirconium after severe plastic deformation at room temperature. Acta Mater., 57 :4855–4865, 2009.
- [30] Marko Knezevic, Irene J. Beyerlein, Thomas Nizolek, Nathan A. Mara, and Tresa M. Pollock. Anomalous basal slip activity in zirconium under high-strain deformation. Mater. Res. Lett., 1 :133–140, 2013.
- [31] G. W. Groves and A. Kelly. Independent slip systems in crystals. Philosophical Magazine, 8(89) :877–887, may 1963.
- [32] R. V. Mises. Mechanik der plastischen formänderung von kristallen. ZAMM - Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, 8(3) :161–185, 1928.
- [33] Taylor G. I. Plastic strain in metals. Institute of Metals, Journal, v62 p 307-324, 1938.
- [34] E. Tenckhoff. Operation of dislocations with  $\langle c+a \rangle$  type burgers vector during deformation of zirconium single-crystals. Z. Metallkde., 63 :192, 1972.
- [35] P. Merle. Evidence of pyramidal slip mode in cold-rolled zircaloy-4 sheets. J. Nucl. Mater., 144 :275–277, 1987.

- [36] A. Akhtar. Compression of zirconium single crystals parallel to the  $c$ -axis. J. Nucl. Mater., 47 :79–86, 1973.
- [37] J.A. Jensen and W.A. Backofen. Deformation and fracture of alpha zirconium alloys. Canadian Metallurgical Quarterly, 11(1) :39–51, jan 1972.
- [38] Y. Minonishi, S. Morozumi, and H. Yoshinaga. Accommodation around  $\{10\bar{1}1\}$  twins in titanium. Scripta Metallurgica, 19(10) :1241–1245, oct 1985.
- [39] L. T. Miyada-Naborikawa, R. De Batist, and P. Delavignette. Low-temperature relaxation peaks in zirconium deformed at 8 k. physica status solidi (a), 90(1) :277–283, jul 1985.
- [40] Iu. N. Sokurskii and L. N. Protsenko. Deformation systems of  $\alpha$ -zirconium. Atomic Energy, 4 :579–582, 1958.
- [41] H. Numakura, Y. Minonishi, and M. Koiwa.  $\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle\{10\bar{1}1\}$  slip in zirconium. Philos. Mag. A, 63 :1077–1084, 1991.
- [42] Fei Long, Josh Kacher, Zhongwen Yao, and Mark R. Daymond. A tomographic TEM study of tension-compression asymmetry response of pyramidal dislocations in a deformed zr-2.5nb alloy. Scripta Materialia, 153 :94–98, aug 2018.
- [43] Jicheng Gong, T. Benjamin Britton, Mitchell A. Cuddihy, Fionn P.E. Dunne, and Angus J. Wilkinson.  $\langle a \rangle$  prismatic,  $\langle a \rangle$  basal, and  $\langle c + a \rangle$  slip strengths of commercially pure Zr by micro-cantilever tests. Acta Mater., 96 :249–257, 2015.
- [44] Fei Long, Feng Xu, and Mark R. Daymond. Temperature dependence of the activity of deformation modes in an HCP zirconium alloy. Metall. Mater. Trans. A, 44 :4183–4193, 2013.
- [45] J. Besson. Matériaux pour l'ingénieur, chapter 13. Ecoles des Mines, 2006.
- [46] O.T. Woo, G.J.C. Carpenter, and S.R. MacEwen.  $\langle c \rangle$  component dislocations in zirconium alloys. Journal of Nuclear Materials, 87(1) :70–80, nov 1979.
- [47] Fei Long, Mark R. Daymond, and Zhongwen Yao. Deformation mechanism study of a hot rolled Zr-2.5Nb alloy by transmission electron microscopy. i. dislocation microstructures in as-received state and at different plastic strains. J. Appl. Phys., 117 :094307, 2015.
- [48] Fei Long, Mark R. Daymond, Zhongwen Yao, and Marquis A. Kirk. Deformation mechanism study of a hot rolled zr-2.5nb alloy by transmission electron microscopy. II. in situ transmission electron microscopy study of deformation mechanism change of a zr-2.5nb alloy upon heavy ion irradiation. Journal of Applied Physics, 117(10) :104302, mar 2015.
- [49] F. Long, L. Balogh, and M. R. Daymond. Evolution of dislocation density in a hot rolled zr-2.5nb alloy with plastic deformation studied by neutron diffraction and transmission electron microscopy. Philosophical Magazine, 97(31) :2888–2914, jul 2017.
- [50] B. Legrand. Relations entre la structure électronique et la facilité de glissement dans les métaux hexagonaux compacts. Philosophical Magazine B, 49(2) :171–184, feb 1984.
- [51] D. Rodney, L. Ventelon, E. Clouet, L. Pizzagalli, and F. Willaime. Ab initio modeling of dislocation core properties in metals and semiconductors. Acta Materialia, 124 :633 – 659, 2017.
- [52] Zhaoxuan Wu, Binglun Yin, and W.A. Curtin. Energetics of dislocation transformations in hcp metals. Acta Materialia, 119 :203–217, oct 2016.
- [53] Y. Minonishi, S. Ishioka, M. Koiwa, S. Morozumi, and M. Yamaguchi. The core structure of a  $1/3 \langle\bar{1}\bar{1}23\rangle$  screw dislocation in h.c.p. metals. Philosophical Magazine A, 44(6) :1225–1237, dec 1981.

- [54] Y. Minonishi, S. Ishioka, M. Koiwa, S. Morozumi, and M. Yamaguchi. The core structure of  $1/3\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle\{11\bar{2}2\}$  edge dislocations in h.c.p. metals. Philosophical Magazine A, 43(4) :1017–1026, apr 1981.
- [55] Y. Minonishi, S. Ishioka, M. Koiwa, and S. Morozumi. Motion of a  $1/3\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle$  screw dislocation in a model h.c.p. lattice. Philosophical Magazine A, 46(5) :761–770, nov 1982.
- [56] Y. Minonishi, S. Ishioka, M. Koiwa, S. Morozumi, and M. Yamaguchi. The core structures of a  $1/3\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle\{11\bar{2}2\}$  edge dislocation under applied shear stresses in an h.c.p. model crystal. Philosophical Magazine A, 45(5) :835–850, may 1982.
- [57] V. Vitek. Intrinsic stacking faults in body-centred cubic crystals. Philosophical Magazine, 18(154) :773–786, oct 1968.
- [58] D. J. Bacon and M. H. Liang. Computer simulation of dislocation cores in h.c.p. metals i. interatomic potentials and stacking-fault stability. Philosophical Magazine A, 53(2) :163–179, feb 1986.
- [59] M. H. Liang and D. J. Bacon. Computer simulation of dislocation cores in h.c.p. metals II. core structure in unstressed crystals. Philosophical Magazine A, 53(2) :181–204, feb 1986.
- [60] M. H. Liang and D. J. Bacon. Computer simulation of dislocation cores in h.c.p. metals III. the effect of applied shear strain. Philosophical Magazine A, 53(2) :205–220, feb 1986.
- [61] H. Numakura, Y. Minonishi, and M. Koiwa. Atomistic study of  $\frac{1}{3}\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle\{10\bar{1}1\}$  dislocations in h.c.p. crystals. i. structure of the dislocation cores. Philosophical Magazine A, 62(5) :525–543, nov 1990.
- [62] H. Numakura, Y. Minonishi, and M. Koiwa. Atomistic study of  $\frac{1}{3}\langle\bar{1}\bar{1}23\rangle\{10\bar{1}1\}$  dislocations in h.c.p. crystals. II. motion of the dislocations. Philosophical Magazine A, 62(5) :545–556, nov 1990.
- [63] Cong Dai, Peyman Saidi, Laurent Karim Béland, Zhongwen Yao, and Mark R. Daymond. Asymmetrical response of edge pyramidal dislocations in HCP zirconium under tension and compression : A molecular dynamics study. Computational Materials Science, 170 :109183, dec 2019.
- [64] M. I. Mendeleev and G. J. Ackland. Development of an interatomic potential for the simulation of phase transformations in zirconium. Philosophical Magazine Letters, 87(5) :349–359, may 2007.
- [65] M. A. W. Lowden and W. B. Hutchinson. Texture strengthening and strength differential in titanium-6al-4v. Metallurgical Transactions A, 6(3) :441–448, mar 1975.
- [66] Kristián Máthys, Jan Čapek, Zuzana Zdražilová, and Zuzanka Trojanová. Investigation of tension–compression asymmetry of magnesium by use of the acoustic emission technique. Materials Science and Engineering : A, 528(18) :5904–5907, jul 2011.
- [67] T. Obara, H. Yoshinga, and S. Morozumi.  $\{11\bar{2}3\}$  slip system in magnesium. Acta Metallurgica, 21(7) :845–853, jul 1973.
- [68] Bo-Yu Liu, Fei Liu, Nan Yang, Xiao-Bo Zhai, Lei Zhang, Yang Yang, Bin Li, Ju Li, Evan Ma, Jian-Feng Nie, and Zhi-Wei Shan. Large plasticity in magnesium mediated by pyramidal dislocations. Science, 365(6448) :73–75, jul 2019.
- [69] Kelvin Y. Xie, Zafir Alam, Alexander Caffee, and Kevin J. Hemker. Pyramidal slip in c-axis compressed mg single crystals. Scripta Materialia, 112 :75–78, feb 2016.
- [70] Jean François Stohr and Jean Paul Poirier. Etude en microscopie électronique du glissement pyramidal  $\{11\bar{2}2\}\langle 11\bar{2}3\rangle$  dans le magnésium. Philosophical Magazine, 25(6) :1313–1329, jun 1972.

- [71] W.W. Hu, Z.Q. Yang, and H.Q. Ye.  $\langle c + a \rangle$  dislocations and their interactions with other crystal defects in a mg alloy. *Acta Materialia*, 124 :372–382, feb 2017.
- [72] Mitsuhiro Itakura, Hideo Kaburaki, Masatake Yamaguchi, and Tomohito Tsuru. Novel cross-slip mechanism of pyramidal screw dislocations in magnesium. *Physical Review Letters*, 116(22), jun 2016.
- [73] M. Ghazisaeidi, L.G. Hector, and W.A. Curtin. First-principles core structures of edge and screw dislocations in mg. *Scripta Materialia*, 75 :42–45, mar 2014.
- [74] Zhaoxuan Wu and W. A. Curtin. The origins of high hardening and low ductility in magnesium. *Nature*, 526(7571) :62–67, sep 2015.
- [75] Z Wu, M F Francis, and W A Curtin. Magnesium interatomic potential for simulating plasticity and fracture phenomena. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 23(1) :015004, dec 2014.
- [76] Zhaoxuan Wu and W.A. Curtin. Intrinsic structural transitions of the pyramidal  $\langle c + a \rangle$  dislocation in magnesium. *Scripta Materialia*, 116 :104–107, apr 2016.
- [77] David B. Williams and C. Barry Carter. *Transmission Electron Microscopy*. Springer, 2009.
- [78] Nesrine Gharbi. *Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose*. PhD thesis, École doctorale Sciences et Ingénierie des Matériaux, Mécanique, Énergétique et Aéronautique (Poitiers 2009-2018), 2015. Thèse de doctorat dirigée par Feaugas, Xavier Génie des matériaux La Rochelle 2015.
- [79] Fabien Onimus and Jean-Luc Béchade. A polycrystalline modeling of the mechanical behavior of neutron irradiated zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 384(2) :163–174, feb 2009.
- [80] Thomas Soyez, Daniel Caillard, Fabien Onimus, and Emmanuel Clouet. Mobility of  $\langle c+a \rangle$  dislocations in zirconium. *Acta Materialia*, 197 :97–107, sep 2020.
- [81] Dalong Zhang, Lin Jiang, Xin Wang, Irene J. Beyerlein, Andrew M. Minor, Julie M. Schoenung, Subhash Mahajan, and Enrique J. Lavernia. In situ transmission electron microscopy investigation on  $\langle c + a \rangle$  slip in mg. *Journal of Materials Research*, 34(9) :1499–1508, feb 2019.
- [82] Graeme Henkelman and Hannes Jónsson. Improved tangent estimate in the nudged elastic band method for finding minimum energy paths and saddle points. *The Journal of Chemical Physics*, 113(22) :9978–9985, dec 2000.
- [83] Loup Verlet. Computer "experiments" on classical fluids. i. thermodynamical properties of lennard-jones molecules. *Physical Review*, 159(1) :98–103, jul 1967.
- [84] Vasily Bulatov and Wei Cai. *Computer simulations of dislocations*, volume 3. Oxford University Press on Demand, 2006.
- [85] A. N. Stroh. Dislocations and cracks in anisotropic elasticity. *Philosophical Magazine*, 3(30) :625–646, jun 1958.
- [86] Alan N. Stroh. Force on a moving dislocation. *Physical Review*, 128(1) :55–61, oct 1962.
- [87] D. Rodney and G. Martin. Dislocation pinning by glissile interstitial loops in a nickel crystal : A molecular-dynamics study. *Physical Review B*, 61(13) :8714–8725, apr 2000.
- [88] Alexander Stukowski. Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the open visualization tool. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 18(1) :015012, dec 2009.

- [89] Emmanuel Clouet. Ab initio models of dislocations. In Handbook of Materials Modeling, pages 1–22. Springer International Publishing, 2018.
- [90] Murray S. Daw and M. I. Baskes. Embedded-atom method : Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals. Physical Review B, 29(12) :6443–6453, jun 1984.
- [91] Murray S. Daw, Stephen M. Foiles, and Michael I. Baskes. The embedded-atom method : a review of theory and applications. Materials Science Reports, 9(7-8) :251–310, mar 1993.
- [92] M. I. Baskes. Application of the embedded-atom method to covalent materials : A semiempirical potential for silicon. Physical Review Letters, 59(23) :2666–2669, dec 1987.
- [93] M.I. Baskes. Determination of modified embedded atom method parameters for nickel. Materials Chemistry and Physics, 50(2) :152–158, sep 1997.
- [94] H. A. Khater and D. J. Bacon. Dislocation core structure and dynamics in two atomic models of alpha-zirconium. Acta Mater., 58 :2978–2987, 2010.
- [95] W. Szewc, L. Pizzagalli, S. Brochard, and E. Clouet. Onset of plasticity in zirconium in relation with hydrides precipitation. Acta Mater., 114 :126–135, 2016.
- [96] Young-Min Kim, Byeong-Joo Lee, and M. I. Baskes. Modified embedded-atom method interatomic potentials for ti and zr. Physical Review B, 74(1), jul 2006.
- [97] Céline Varvenne, Olivier Mackain, and Emmanuel Clouet. Vacancy clustering in zirconium : An atomic-scale study. Acta Materialia, 78 :65–77, oct 2014.
- [98] E. S. Fisher and C. J. Renken. Single-crystal elastic moduli and the hcp  $\rightarrow$  bcc transformation in ti, zr, and hf. Physical Review, 135(2A) :A482–A494, jul 1964.
- [99] J. R. Morris, J. Scharff, K. M. Ho, D. E. Turner, Y. Y. Ye, and M. H. Yoo. Prediction of a  $\{11\bar{2}2\}$  hcp stacking fault using a modified generalized stacking-fault calculation. Philos. Mag. A, 76 :1065–1077, 1997.
- [100] Lucile Dezerald, David Rodney, Emmanuel Clouet, Lisa Ventelon, and François Willaime. Plastic anisotropy and dislocation trajectory in BCC metals. Nature Communications, 7(1), may 2016.
- [101] U.F. Kocks, A.S. Argon, and M.F. Ashby. Thermodynamics and Kinetics of Slip. Progress in materials science. Pergamon Press, 1975.
- [102] W v Meyer and H Neldel. Relation between the energy constant and the quantity constant in the conductivity–temperature formula of oxide semiconductors. Z. tech. Phys, 18(12) :588–593, 1937.
- [103] G. Esteban-Manzanares, R. Santos-Güemes, I. Papadimitriou, E. Martínez, and J. LLorca. Influence of the stress state on the cross-slip free energy barrier in al : An atomistic investigation. Acta Materialia, 184 :109–119, feb 2020.



**Titre :** Glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  dans le zirconium

**Mots clés :** Dislocation, Plasticité, Zirconium, Microscopie électronique à transmission, Simulation Atomique

**Résumé :** Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire pour la fabrication des assemblages combustibles (tube guides, gaines et grilles). Afin de correctement prédire le comportement de ces alliages au cours de leur utilisation, il est nécessaire de connaître leur comportement mécanique. La déformation des métaux s'effectue généralement par glissement des dislocations et par maillage. Le zirconium présentant une structure hexagonale compacte, le développement de la déformation plastique est anisotrope. Pour une sollicitation suivant la direction  $\langle c \rangle$  du cristal, le mode de déformation principal correspondant au glissement de dislocations de vecteur de Burgers  $\langle a \rangle$  ne permet pas d'accommoder la déformation et le glissement de dislocations à vecteur de Burgers  $\langle c + a \rangle$  ou le maillage doit s'activer. Cette thèse a pour but d'étudier les propriétés de ces dislocations  $\langle c + a \rangle$  en se basant sur deux approches complémentaires, des observations en microscopie électronique à transmission (MET) et des simulations atomiques.

Les observations MET ont permis de mettre en évidence le système de glissement des dislocations  $\langle c + a \rangle$  : ces dernières ne glissent que dans des plans pyramidaux de première espèce. Le glissement dévié est fréquemment observé entre plans pyramidaux de première espèce. Les dislocations  $\langle c + a \rangle$  apparaissent rectilignes et orientées préférentiellement dans leur orientation  $\langle a \rangle$ , soit l'intersection entre le plan de glissement et le plan de base. Lors d'essais de traction in situ en MET, le glissement de ces dislocations a été observé et un

glissement plus difficile de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  dans son orientation  $\langle a \rangle$  a été démontré. Deux types de glissement ont été observés : un glissement rigide où la dislocation avance en bloc dans son plan de glissement et un glissement visqueux des segments  $\langle a \rangle$  conduisant à la création de macro décrochements.

Les simulations atomiques ont permis d'expliquer le glissement dans le plan pyramidal de première espèce via une étude des fautes d'empilement dans les plans possibles de glissement et via la détermination de la structure de cœur de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  vis dans son état fondamental. Cette structure est pilotée par une dissociation en deux partielles non équivalentes dans le plan pyramidal de première espèce. L'étude de l'évolution de la structure de cœur dans son état fondamental sous une contrainte appliquée met en évidence une contrainte de Peierls différente en fonction du sens de la contrainte et démontre un glissement difficile de la dislocation  $\langle c + a \rangle$  avec une contrainte de Peierls trente fois plus élevée que celle nécessaire pour le glissement de la dislocation  $\langle a \rangle$ . L'activation thermique est donc nécessaire pour permettre à la dislocation vis d'avancer. En température, un glissement par germination de double décrochements a été observé dans des simulations de dynamique moléculaire et a été décrit par une loi thermiquement activée. La dislocation  $\langle c + a \rangle$  alignée dans une direction  $\langle a \rangle$  présente, quant à elle, une structure non planaire, se dissociant dans son plan de glissement pyramidal, mais également dans un second plan. La nature de ce second plan de dissociation, basal ou prismatique, varie avec le modèle énergétique choisi.

**Title :** Study of  $\langle c + a \rangle$  dislocations glide in zirconium

**Keywords :** Dislocation, Plasticity, Zirconium, Transmission Electron Microscopy, Atomic Simulation

**Abstract :** Zirconium alloys are used in the nuclear industry as fuel cladding tubes and structural components of the fuel assemblies. In order to properly predict the mechanical behavior of those alloys throughout their usage time, it is necessary to understand the physical mechanisms controlling plasticity. Deformation in metals is usually accommodated by dislocation glide and twinning. Zirconium has a hexagonal close packed structure and its plastic deformation is anisotropic. For a mechanical loading along the  $\langle c \rangle$  axis of the crystal, the principal deformation mode corresponding to  $\langle a \rangle$  dislocation glide cannot accommodate the deformation and  $\langle c + a \rangle$  dislocation glide and twinning have to be activated. This thesis aims to study properties of  $\langle c + a \rangle$  dislocations based on two complementary approaches, Transmission Electron Microscopy (TEM) observations and atomic simulations.

TEM observations underlined the glide system of the  $\langle c + a \rangle$  dislocations, which exclusively glide in first order pyramidal planes even, with cross slip between different first order pyramidal planes being activated at room temperature.  $\langle c + a \rangle$  dislocations appear rectilinear, with a preferential orientation along the  $\langle a \rangle$  direction which is the intersection between the glide plane and the basal plane. TEM in

situ tensile test experiments show that this  $\langle a \rangle$  orientation glide with difficulty. Two types of glide mechanism were observed : a rigid motion where the dislocation keeps its shape while gliding and a viscous motion of these  $\langle a \rangle$  segments leading to the creation of macro-kinks.

Atomic simulations rationalize the glide of  $\langle c + a \rangle$  dislocations in first order pyramidal plane with the existence of stacking faults in the possible glide planes and with a ground state structure of the  $\langle c + a \rangle$  screw dislocation which dissociates in two non-equivalent partial dislocations in a first order pyramidal plane. The evolution of this structure under an applied stress allowed to obtain the Peierls stress which depends on the direction of the applied stress and underlined a difficult glide : the Peierls stress of this  $\langle c + a \rangle$  screw dislocation is thirty times greater than the one of the  $\langle a \rangle$  dislocation. Thermal activation appears therefore necessary for  $\langle c + a \rangle$  dislocation glide. Molecular dynamics simulations evidence a glide of the screw dislocation operating by double kinks nucleation. The structure of the  $\langle c + a \rangle$  dislocation oriented in its  $\langle a \rangle$  direction is dissociated in its glide plane, i.e. a first order pyramidal plane, and also a secondary plane whose nature varies with the energetic model. This secondary dissociation is expected to explain the difficult glide of this  $\langle a \rangle$  orientation.

