



**HAL**  
open science

# Modélisation multi-échelle de la plasticité de UO<sub>2</sub> sous influence des défauts d'irradiation

Marion Borde

► **To cite this version:**

Marion Borde. Modélisation multi-échelle de la plasticité de UO<sub>2</sub> sous influence des défauts d'irradiation. Physique [physics]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2022. Français. NNT : 2022LYO10124 . tel-04289256

**HAL Id: tel-04289256**

**<https://theses.hal.science/tel-04289256>**

Submitted on 16 Nov 2023

**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.



# THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD LYON 1

École Doctorale N°52  
Physique et Astrophysique

**Discipline** : Physique

Soutenue publiquement le 28/11/2022, par :  
**Marion Borde**

---

## Modélisation multi-échelle de la plasticité de $UO_2$ sous influence des défauts d'irradiation

---

Devant le jury composé de :

San Miguel, Alfonso	Professeur des Universités	Univ. Lyon 1	Président
Carrez, Philippe	Professeur des Universités	Univ. Lille	Rapporteur
Ribeiro, Fabienne	Ingénieure de Recherche	IRSN	Rapporteuse
Onofri, Claire	Ingénieure de Recherche	CEA Cadarache	Examinatrice
Ventelon, Lisa	Ingénieure de Recherche	CEA Saclay	Examinatrice
Dupuy, Laurent	Ingénieur de Recherche	CEA Saclay	Invité
Pivano, Adrien	Ingénieur de Recherche	CEA Cadarache	Invité
Rodney, David	Professeur des Universités	Univ. Lyon 1	Directeur de thèse
Amodeo, Jonathan	Chargé de Recherche CNRS	Aix-Marseille Univ.	Encadrant de thèse
Michel, Bruno	Directeur de Recherche	CEA Cadarache	Encadrant de thèse



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury en commençant par Alfonso San Miguel pour son rôle de président de jury, Fabienne Ribeiro et Philippe Carrez pour avoir pris le temps de lire avec attention mon manuscrit et Lisa Ventelon et Claire Onofri en tant qu'examinatrices. Merci à vous tous pour cette discussion qu'a suivi la soutenance, très intéressante et enrichissante.

Laurent, je tiens à te remercier pour ta présence durant mon projet, pour ta patience à m'expliquer comment fonctionne GIT et pour donner suite à mes mails de demande à l'aide lorsque j'ai des soucis avec Numodis.

Adrien, merci d'avoir été présent, même qu'une partie durant ce projet, j'ai apprécié te connaître et tous les échanges qu'on a eu qui ont été enrichissants pour tous les deux (et merci aussi pour tous les cafés!).

Bruno, merci pour ta présence, même de loin, tu as su me suivre tout au long du projet.

Enfin, merci Émeric de m'avoir fait découvrir la recherche pendant mon stage de fin d'études, mais aussi de m'avoir donné l'opportunité de faire cette thèse. Je te félicite pour ta « nouvelle » prise de poste même si cela t'a un peu éloigné de mon projet.

Jonathan, bien que la thèse n'est pas été un long fleuve tranquille, je te remercie d'avoir été présent.

Enfin David, je te remercie pour ta présence dans ce projet, qui m'a permis de bien évoluer, et aussi pour ta patience et ta pédagogie lors des échanges qu'ils soient en visio ou en présentiel.

À tous mes encadrants, je vous remercie pour votre « présence », bien que souvent seulement par visio, cela m'a permis de ne pas m'isoler malgré la crise du Covid. Également, je vous remercie de m'avoir permis de rester les trois années de thèse à Lyon, ce qui me tenait à cœur.

Ensuite, je tiens à remercier les différents laboratoires/services.

Côté CEA, merci à mes collègues doctorants que j'ai pu retrouver pendant plusieurs conférences, Théo, Gatien et Julia. Théo, particulièrement je tenais à te remercier tous nos échanges qui sont toujours très intéressants pour nous deux, je te souhaite que ta thèse se finisse aussi bien qu'elle s'est déroulée. Merci aussi aux collègues du laboratoire LM2C, Michel F., Julien, Johann, Jean-Marie, bien sur merci à Régine et Josiane pour leur patience (parce qu'il faut bien reconnaître que j'étais souvent en retard dans les ordres de missions) et leur bienveillance. Un merci tout particulier à Régine qui prend soin des thésards même s'ils ne sont pas sur place (je pense notamment au coffret de Noël!). Merci aussi à l'équipe du LSC qui m'a toujours bien accueillie.

Côté Matéis, je remercie bien sûr toute l'équipe métal qui a su bien m'accueillir dans les locaux, bien que mon sujet de recherche puisse être assez éloigné des autres. Malgré les nombreux déménagements et les confinements, l'équipe sait toujours être dynamique et sait prendre soin de

## Remerciements

---

ses membres. Metal : ne lâchez pas ça et continuez de le perpétuer à travers les permanents et aussi les doctorants/stagiaires. Merci à Pierre-Antoine et Joël L., « mes référents informatiques », pour leurs conseils et aides en Linux! Christophe, Xavier, Sylvain et Jean-Yves merci pour ces heures de TP où j'ai pu découvrir l'encadrement des étudiants et pour les discussions toujours constructives (j'ai même appris à polir un échantillon!). Michel P. merci pour ton oreille attentive, de veiller sur chacun des membres de l'équipe, ta fonction de chef d'équipe te va si bien. Arnaud A. merci d'avoir été un point de repère de modélisation au labo et aussi un pote de conférence! Merci à mon premier co-bureau Javier, on a quasiment fini en même temps, nous avons pu toujours bien discuter et partager nos expériences de thèse. Merci aussi au bureau du bonheur, Lucile, Laurabelle et Quentin, auquel je vais ajouter Marion C. et Justine T., toujours de bons conseils et le mot pour rire, merci à vous tous. Marion et Lucile, je vous ai connues moins longtemps mais merci d'avoir été là que ce soit au 2<sup>o</sup> ou pendant le repas de la salle café. Quentin, j'ai pu mieux te connaître par la suite et, bien que j'étais dans le rush de la fin de la thèse/conférence, tu as toujours été là pour discuter et réussir à me changer les idées. J'espère que tu vas te plaire à Cluse, ou ailleurs, et que les cookies du Crous ne te manqueront pas trop! Justine T. merci pour ta bonne humeur et ton oreille toujours attentive. Louis et Florian S. mes co-bureaux de courte durée, je vous souhaite de bien finir votre thèse. Laurabelle, mon « organisatrice de soutenance de thèse », tu as été au top pour le 28 novembre mais aussi les autres jours, tu connais si bien le labo que tu sais répondre à toutes les questions administratives organisationnelles, tu disais dans ton propre manuscrit que tu serais là en cas de stress ou de peur lors de la fin de ma thèse et tu as très bien rempli cette mission, alors un grand merci à toi. Je te souhaite de continuer à être aussi impliquée dans une future équipe aussi cool, qu'elle soit à Grenoble ou ailleurs, du moment que la situation vous plaise avec Alexandre.

Je tiens également à remercier ma famille, mes marraines, mes grands-parents qui ont toujours eu une pensée pour moi tout au long de cette thèse. Ma belle-famille qui a été à mes côtés durant la soutenance mais aussi durant de nombreux week-ends. Merci à vous de m'avoir supporté et de m'avoir changé les idées entre les parties de Molky et le cinéma à Manosque!

Papa et Maman, à vous, à qui j'ai dit que je ne voulais pas faire de longues études, qui m'avez amenée à Orléans il y a 8 ans maintenant. Merci. Merci d'avoir toujours été là, en présentiel mais aussi par téléphone, Whattaps, Skype et autres! Merci de m'avoir toujours soutenue dans tous mes choix (même le choix farfelu de faire une thèse!). Merci de m'avoir donné ce coup de pied lorsque j'en avais besoin. Merci d'être montés me voir lorsque j'en avais besoin, de nous avoir acceptés durant les week-ends et là aussi de me changer les idées entre les parties de golf, de rami et les sorties au lac!

Auriane, ma sœur, j'ai toujours voulu éviter le fait qu'on nous compare, pourtant tous les monde nous dit qu'on se ressemble! Toi, qui m'as toujours supportée et soutenue. Merci d'avoir été là tout au long de cette thèse. On est quasiment voisine, malgré le COVID qui nous a empêché de nous voir nous avons quand même réussi (en marchant chacune 1 km dans la direction de l'autre;) ). Merci à Alexis et toi pour les soirées repas/jeux qui permettent de se changer les idées.

Baptiste, mon mari, merci. Je pense que je te l'ai déjà beaucoup dit mais je te remercie encore pour tout ce que tu m'as apporté (et tu continues!), ce projet n'aurait pas abouti sans toi, tu as été ma force au quotidien. Ce projet n'a pas été facile pour nous deux, sans parler du Covid qui nous a fait décaler notre voyage mais qui nous a permis de rester confinés ensemble (avec

Krypton)! Merci de m'avoir supportée et soutenue dans chacune des épreuves, merci de m'avoir aidé à répéter chacun des oraux! Tu as su me redonner ma force et me remotiver lorsque j'en avais besoin. Tu m'as toujours protégée mais aussi soutenue et maintenant, j'ai hâte de voir la suite.



# Résumé

Le dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ) est le principal combustible nucléaire utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée. La compréhension de son comportement mécanique est d'un intérêt majeur pour la sûreté nucléaire. Dans des conditions de fonctionnement accidentelles, la température augmente considérablement ( $T > 1900$  K) et favorise la déformation par fluage, qui doit être prise en compte dans l'évaluation de l'intégrité du combustible. Tout au long de l'irradiation les pastilles de combustible  $\text{UO}_2$  sont soumises à des changements microstructuraux dus à des défauts induits par l'irradiation tels que les boucles de dislocation prismatiques générées par l'accumulation d'atomes interstitiels pouvant influencer le comportement viscoplastique des pastilles. Le premier objectif de ce travail de thèse est d'étudier les cœurs et la mobilité des dislocations dans les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ , le mode de glissement principal de  $\text{UO}_2$ . Tout d'abord, les différents cœurs (neutres et chargés) de la dislocation coin sont étudiés par statique moléculaire à l'aide d'un potentiel interatomique de type ion rigide. Plusieurs structures de cœurs stables sont identifiées, dont le cœur neutre asymétrique d'Ashbee. Néanmoins, cette structure de cœur n'est pas stable en température, où une configuration en « zig-zag » apparaît. Cette structure est davantage étudiée avec le même potentiel, ainsi qu'avec un potentiel à charges variables et des calculs *ab initio* sont réalisés au CEA de Cadarache. La mobilité de la dislocation coin dans  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  est ensuite étudiée à différentes températures et contraintes, grâce à des simulations de dynamique moléculaire, les régimes athermique et thermiquement activé sont identifiés et une température de transition athermique est estimée. Par la suite nous examinons comment les dislocations mobiles  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  interagissent avec les boucles prismatiques  $1/2\langle 110 \rangle$  dans le but de construire un cadre de plasticité cristalline pour  $\text{UO}_2$ . Tout d'abord, des simulations de dynamique moléculaire sont réalisées pour caractériser les réactions de contact local entre les dislocations  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  glissiles et diverses configurations de boucles prismatiques  $\{110\}$  à 2000 K sous une contrainte de cisaillement constante. Une attention particulière est accordée à l'influence de la taille d'une boucle d'irradiation sur la réaction. En parallèle, des simulations de dynamique des dislocations discrètes, informées par la dynamique moléculaire, sont effectuées afin de vérifier la reproductibilité des résultats atomistiques en utilisant la théorie élastique. Alors que certaines réactions des dislocations présentent des similitudes avec des observations courantes dans les métaux, des configurations originales apparaissent également, nécessitant un traitement spécifique dans la dynamique des dislocations discrètes. Pour finir, des simulations massives sont réalisées par dynamique des dislocations discrètes pour quantifier le durcissement induit par une population statistique de boucles d'irradiation dont la densité est ajustée sur les expériences. Les réactions locales de contact sont étudiées et le durcissement induit par l'irradiation est comparé à d'autres contributions au renforcement de  $\text{UO}_2$ , comme par exemple le durcissement de la forêt.



# Abstract

Uranium dioxide ( $\text{UO}_2$ ) is the main nuclear fuel used in pressurized water reactors. Thus, understanding its mechanical behaviour is of great interest for nuclear safety. Under accidental operating conditions, the temperature increases considerably ( $T > 1900$  K) and favors creep deformation, which must be taken into account in the assessment of fuel integrity. Under irradiation  $\text{UO}_2$  fuel pellets are then subjected to microstructural changes due to irradiation induced defects such as the prismatic dislocation loops (generated by the accumulation of interstitial atoms) that can influence the viscoplastic behaviour of the pellets. The first objective of this thesis work is to study the cores and mobility of dislocations in  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  systems, the main slip mode of  $\text{UO}_2$ . First, the different core structures (neutral and charged) of the edge dislocation are studied using molecular statics and a rigid ion interatomic potential. Several stable core structures are identified, including the asymmetric neutral Ashbee core. Nevertheless, this core structure is not stable at temperature, where a "zig-zag" configuration appears. This structure is further studied with the same potential, as well as with a variable charge potential and *ab initio* simulations as performed at the CEA Cadarache. The mobility of the edge dislocation in  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  is then investigated at various temperatures and stresses using molecular dynamics simulations, the athermal and thermally activated regimes being identified as well as an athermal transition temperature. Subsequently we examine how the primary  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  dislocations interact with the  $1/2\langle 110 \rangle$  prismatic loops with the goal of building a crystal plasticity framework for  $\text{UO}_2$ . First, molecular dynamics simulations are performed to characterize the local contact reactions between the  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  mobile dislocations and various  $\{110\}$  prismatic loop configurations at 2000 K under constant shear stress. Particular attention is paid to the influence of the irradiation loop radius on the reaction. In parallel, atomistically-informed discrete dislocation dynamics simulations are performed to verify the reproducibility of atomistic results using elastic theory. While some dislocation reactions show similarities with common observations in metals, original configurations also appear, requiring a specific treatment in discrete dislocation dynamics. Finally, massive simulations are performed in discrete dislocation dynamics to quantify the hardening induced by a large population of irradiation loops fitted to the experiments. Local contact reactions are studied and irradiation-induced hardening is compared to other contributions to  $\text{UO}_2$  strengthening, such as forest hardening.



# Abréviations

CC : Cubique Centré  
CEA : Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives  
CFC : Cubiques à Faces Centrées  
CLP : Conditions aux Limites Périodiques  
CRSS : *Critical Resolved Shear Stress*/Contrainte de cisaillement critique  
DDD : Dynamique des Dislocations Discrète  
DFT : *Density functional theory*/Théorie de la fonctionnelle de la densité  
DXA : *Dislocation Extraction Algorithm*  
EAM : *Embedded Atom Model*  
FIRE : *Fast Inertial Relaxation Engine*  
GC : Gradient conjugué  
HC : Hexagonal Compact  
MD : Dynamique Moléculaire  
PF : Produits de Fission  
PFG : Produits de Fission Gazeux  
PKA : *Primary Knock-on Atom*/Premier atome déplacé (par un produit de fission)  
PTM : *Polyhedral Template Matching*  
REP : Réacteurs à Eau Pressurisée  
SM : Statique Moléculaire



# Table des matières

Remerciements	i
Résumé	v
Abstract	vii
Abréviations	ix
Table des matières	xi
Introduction	1
<b>1 Revue bibliographique</b>	<b>5</b>
1.1 Propriétés macroscopiques de l'UO <sub>2</sub>	6
1.1.1 Élaboration du combustible : les pastilles d'UO <sub>2</sub>	6
1.1.2 Évolution structurale de la pastille en fonctionnement	7
1.1.3 Propriétés mécaniques du polycristal d'UO <sub>2</sub>	9
1.2 Propriétés microscopiques de l'UO <sub>2</sub>	12
1.2.1 Structure cristalline et élasticité	12
1.2.2 Systèmes de glissements et dislocations	16
1.2.3 Défauts d'irradiation	27
<b>2 Méthodes et protocoles de simulation</b>	<b>35</b>
2.1 Simulations atomistiques	36
2.1.1 Introduction à la statique et à la dynamique moléculaire	36
2.1.2 Potentiels interatomiques	36
2.1.3 Protocoles de simulation	41
2.2 Dynamique des dislocations discrètes	48
2.2.1 Introduction à la dynamique des dislocations discrètes	48
2.2.2 Protocoles de simulations	50
<b>3 Atomic-scale modeling of 1/2&lt;110&gt;{100} edge dislocations in UO<sub>2</sub> : core properties and mobility</b>	<b>55</b>
3.1 Introduction	56
3.2 Simulation methods	57
3.2.1 Dislocation dipole configuration	57
3.2.2 Dislocation core relaxation and equilibration	58

---

3.2.3	Dislocation velocity . . . . .	59
3.3	Results . . . . .	59
3.3.1	$1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ edge dislocation core : neutral vs. charged configurations . . . . .	59
3.3.2	High-temperature $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ edge dislocation : the zigzag core . . . . .	61
3.3.3	$1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ edge dislocation mobility . . . . .	63
3.4	Discussion . . . . .	63
3.4.1	Dislocation cores . . . . .	63
3.4.2	Dislocation mobility . . . . .	67
3.5	Conclusion . . . . .	69
<b>4</b>	<b>Interaction entre dislocations <math>1/2\langle 110 \rangle\{100\}</math> et boucles d'irradiation <math>1/2\langle 110 \rangle</math></b>	<b>71</b>
4.1	Symétries et méthodes d'analyse . . . . .	72
4.2	Interactions dislocation coin/boucle d'irradiation . . . . .	74
4.2.1	Cas n°1 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers parallèles . . . . .	74
4.2.2	Cas n°2 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers perpendiculaires . . . . .	78
4.2.3	Cas n°3 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers orientés à $120^\circ$ . . . . .	81
4.3	Interaction dislocation vis/boucle d'irradiation . . . . .	83
4.3.1	Cas n°4 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers parallèles . . . . .	83
4.3.2	Cas n°5 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers perpendiculaires . . . . .	84
4.3.3	Cas n°6 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers orientés à $120^\circ$ . . . . .	86
4.4	Influence de la contrainte . . . . .	88
4.5	Discussion . . . . .	89
<b>5</b>	<b>Durcissement induit par les boucles d'irradiation <math>1/2\langle 110 \rangle</math></b>	<b>93</b>
5.1	Généralités sur le durcissement dans $\text{UO}_2$ . . . . .	93
5.2	Résultats . . . . .	94
5.2.1	Tableau récapitulatif des différents cas . . . . .	94
5.2.2	Durcissement faible . . . . .	94
5.2.3	Durcissement intermédiaire . . . . .	96
5.2.4	Durcissement fort . . . . .	96
5.3	Discussion . . . . .	98
5.3.1	Modélisation du durcissement . . . . .	98
5.3.2	Scénario formation bande claire . . . . .	100
	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>103</b>
	<b>A Supplementary material</b>	<b>107</b>
A.1	Influence of the charge summation method : Ewald <i>vs.</i> Wolf . . . . .	107
A.2	Unrelaxed edge $\{100\}$ core structures . . . . .	107
	<b>Références bibliographiques</b>	<b>109</b>

# Introduction

Il existe trois types de sources d'énergies sur Terre. Tout d'abord, les énergies fossiles (*e.g.* pétrole, charbon) issues des matières organiques enfouies sous terre. Ces ressources sont épuisables et fortement émettrices de gaz à effet de serre. Ensuite, les énergies renouvelables (*e.g.* solaire, éolien), elles sont des sources d'énergies inépuisables générées à partir d'éléments naturels tels que le vent ou le soleil. Ces ressources sont intermittentes due à une production qui ne peut pas être continue et sont faiblement émettrices de gaz à effet de serre. Enfin, l'énergie fissile (ou énergie nucléaire) est le résultat de la fission nucléaire. Cette ressource permet d'alimenter les réseaux électriques en continu et elle est également faiblement émettrice de gaz à effet de serre. En 2019, plus de 90% de la production française d'électricité était couverte par le nucléaire et les énergies renouvelables. A elle seule, l'énergie nucléaire représentait plus de 70% (soit 379.5 TWh) de la production. Ce sont néanmoins les énergies fossiles qui restent les plus utilisées à l'échelle mondiale alors que l'énergie nucléaire recouvre un peu plus de 10% de la production d'électricité ce qui en fait la troisième source de production. Enfin, on notera que les États-Unis (841 TWh), la France (413 TWh) et la Chine (295 TWh) sont les trois principaux pays producteurs d'électricité provenant d'énergie fissile (données EDF 2018). Une forte augmentation de la consommation d'électricité mondiale est prévue dans la prochaine décennie et les parcs de centrales nucléaires ne cessent de croître dans le monde. Une meilleure compréhension du vieillissement des centrales et des risques associés est donc nécessaire afin de gagner en productivité tout en assurant une sécurité optimale.

Aujourd'hui, les centrales les plus utilisées en France sont les centrales à Réacteur à Eau Pressurisée (REP) (figure 1). Une centrale de type REP fonctionne grâce à trois circuits indépendants. Le circuit primaire est le cœur du réacteur où est situé l'assemblage composé de crayons de combustible, eux-même composés des gaines de protection en alliage de zirconium et des pastilles de combustible. C'est l'endroit où le phénomène de fission a lieu, processus qui induit une augmentation de la température de l'eau dans la cuve. Cette chaleur est récupérée dans le générateur de vapeur pour être transmise au circuit secondaire. Le circuit secondaire (auss appelé salle des machines) permet de transformer l'énergie thermique obtenue par le générateur de vapeur du circuit primaire en énergie électrique grâce au groupe turbine/alternateur. Enfin, le circuit de refroidissement permet d'alimenter en eau froide le condenseur du circuit secondaire, relié au générateur de vapeur du circuit primaire.

Le dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ) est le combustible majoritairement utilisé dans l'industrie du nucléaire en France. La compréhension de son comportement mécanique dans des conditions nominales, transitoires de puissance ou accidentelles est d'un intérêt majeur pour la sûreté nucléaire. En fonctionnement normal, les pastilles de combustible sont portées à  $\sim 1300\text{K}$  et subissent de

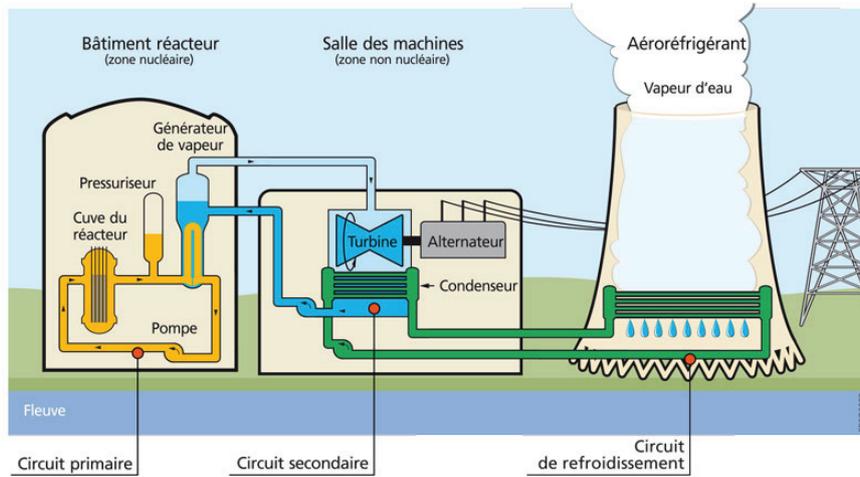


FIGURE 1 – Schéma d'une centrale nucléaire à réacteur à eau pressurisée. La centrale est composée de 3 circuits interconnectés : les circuits primaire, secondaire et de refroidissement.

fortes sollicitations thermomécaniques dues aux gradients de températures avec des déformations irréversibles couplées aux effets d'irradiation. Dans des conditions de fonctionnement accidentelles, la température augmente considérablement dans le combustible ( $T > 1900\text{K}$ ) et favorise la déformation par fluage, qui doit faire l'objet de recherches pour comprendre l'évolution et la dégradation du combustible. Dans ces conditions, les pastilles de combustible  $\text{UO}_2$  sont soumises à des changements microstructuraux dus à des défauts induits pendant l'irradiation, tels que les boucles prismatiques de dislocation générées par l'accumulation d'atomes interstitiels, qui peuvent modifier la stabilité mécanique de la pastille et induire du durcissement. Néanmoins, peu d'études publiées dans la littérature permettent aujourd'hui de bien comprendre le lien entre les microstructures de dislocations dans  $\text{UO}_2$  et le comportement mécanique avec notamment le durcissement induit par les défauts d'irradiation.

Ce travail de thèse s'inscrit dans une démarche globale dont l'objectif est de développer des lois de comportement décrivant le comportement collectif des dislocations, l'écoulement plastique et le durcissement induit par les défauts d'irradiation (défauts ponctuels, boucles d'irradiation, bulles de gaz) dans le combustible. Cette approche est nécessaire pour quantifier les déformations irréversibles du combustible à haute température et sous irradiation. Pour ce faire, nous avons étudié dans un premier temps le comportement de dislocations glissiles isolées dans  $\text{UO}_2$  afin de mieux appréhender, ensuite, leurs interactions avec des boucles d'irradiation en Dynamique Moléculaire (DM) et en Dynamique des Dislocations Discrètes (DDD). Des calculs en DDD informés par l'échelle atomique ont ensuite permis de quantifier le durcissement induit par les défauts d'irradiation. Ces simulations permettront de prendre en compte le phénomène dans une loi de comportement en cours d'implémentation dans un modèle d'éléments finis en développement au CEA de Cadarache.

Le manuscrit est composé de cinq chapitres :

- Le premier chapitre fournit une synthèse de l'état de l'art qui permet de mieux appréhender la plasticité du dioxyde d'uranium en abordant ses propriétés mécaniques aux

échelles microscopiques et macroscopiques. Une attention particulière est portée à la notion de systèmes de glissement, aux structures de cœur de dislocation et à la mobilité de ces dernières. Le chapitre est ponctué par une section dédiée aux défauts d'irradiation et notamment aux boucles de dislocations formées sous irradiation.

- Le deuxième chapitre décrit les méthodes de simulation utilisées dans le cadre de la thèse. Deux méthodes de modélisations sont présentées : les simulations moléculaires réalisées à l'échelle atomique et la DDD, à l'échelle mésoscopique. Les potentiels utilisés pour les simulations atomistiques sont présentés et justifiés. La construction des volumes de simulation et l'insertion des dislocations et des boucles d'irradiation y sont également décrites.
- Le troisième chapitre, correspond au premier article soumis dans le cadre de ce travail de thèse. Il décrit les résultats obtenus lors de l'étude des structures de cœur de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$  et sa mobilité qui contrôle la plasticité dans les plans  $\{001\}$  de  $\text{UO}_2$ . Plusieurs énergies de cœurs calculées en Statique Moléculaire (SM) à l'aide de différents potentiels sont comparées à des calculs DFT réalisés en collaboration avec M. Freyss du CEA Cadarache. Ce chapitre présente aussi des calculs de vitesse de dislocation réalisés en DM en fonction de la température et de la contrainte et des lois de mobilité sont ajustées dans les deux régimes de déformation de l' $\text{UO}_2$  : le régime thermiquement activé (à basse température et/ou faible contrainte) et le régime athermique (à haute température et/ou forte contrainte). Ces lois de mobilité sont nécessaires pour utiliser rigoureusement la DDD par la suite.
- Le quatrième chapitre décrit les interactions de contact entre dislocations mobiles et boucles d'irradiation en DM et en DDD. Cette étude permet d'analyser les différents produits de réaction entre dislocations glissiles et boucle d'irradiation en fonction de l'orientation de leurs vecteurs de Burgers respectifs. Une attention particulière est portée ici à l'influence de la taille de boucle et à la contrainte sur l'interaction entre les défauts.
- Le dernier chapitre présente une étude statistique des interactions dislocation-boucle et leur implication sur le comportement plastique et le durcissement du combustible via des simulations de DDD réalisées à plus grande échelle.



# Chapitre 1

## Revue bibliographique

*Ce chapitre bibliographique a pour but de réunir des informations de la littérature permettant de mieux appréhender la plasticité du dioxyde d'uranium ( $UO_2$ ). Ce matériau utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée est soumis à de fortes contraintes thermo-mécaniques. Une bonne compréhension de la plasticité de ce matériau, notamment avec la prise en compte des défauts d'irradiation, permettrait d'améliorer les codes de modélisation des pastilles à l'échelle cristalline en conditions de fonctionnement du réacteur. Afin d'englober la plasticité de l' $UO_2$ , ce chapitre est divisé en deux parties traitant des propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique et microscopique. Dans un premier temps, une synthèse sur l'élaboration des pastilles de combustible est faite, pour ensuite mieux appréhender l'évolution de la structure de la pastille au cours du fonctionnement en réacteur. Certaines propriétés mécaniques à l'échelle du polycristal sont également recensées telles que les propriétés à rupture, les comportements élastiques et viscoplastiques. Dans un second temps, on s'intéressera aux propriétés mécaniques à l'échelle microscopique de l' $UO_2$ , en commençant par sa structure cristalline et l'élasticité d'un monocristal. Les systèmes de glissement, la structure de cœur et les vitesses des dislocations font l'objet d'une nouvelle sous-partie. Pour finir, une sous-partie est dédiée aux défauts d'irradiation et notamment les boucles de dislocations formées sous irradiation qui seront plus étudiées dans le cadre de la thèse.*

### Sommaire

---

<b>1.1 Propriétés macroscopiques de l'<math>UO_2</math></b>	<b>6</b>
1.1.1 Élaboration du combustible : les pastilles d' $UO_2$	6
1.1.2 Évolution structurale de la pastille en fonctionnement	7
1.1.3 Propriétés mécaniques du polycristal d' $UO_2$	9
1.1.3.1 Propriétés élastiques du combustible non irradié	9
1.1.3.2 Propriétés à la rupture du combustible non irradié	9
1.1.3.3 Comportement viscoplastique	11
<b>1.2 Propriétés microscopiques de l'<math>UO_2</math></b>	<b>12</b>
1.2.1 Structure cristalline et élasticité	12
1.2.1.1 Structure cristalline	12
1.2.1.2 Élasticité	14
1.2.2 Systèmes de glissements et dislocations	16
1.2.2.1 Observations expérimentales	16
1.2.2.2 Structures de cœur de dislocation coin $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ dans $UO_2$	19

1.2.2.3	Mobilité des dislocations . . . . .	25
1.2.2.4	Plasticité cristalline . . . . .	26
1.2.3	Défauts d'irradiation . . . . .	27
1.2.3.1	Généralités sur l'irradiation en réacteur . . . . .	27
1.2.3.2	Les boucles d'irradiation . . . . .	28

---

## 1.1 Propriétés macroscopiques de l'UO<sub>2</sub>

### 1.1.1 Élaboration du combustible : les pastilles d'UO<sub>2</sub>

Le dioxyde d'uranium (UO<sub>2</sub>) est le combustible majoritairement utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée sous la forme de pastilles de taille centimétrique (figure 1.1.a). Initialement, la poudre d'UO<sub>2</sub> enrichi est élaborée à partir de l'hydrolyse d'une poudre de fluorure d'uranium UF<sub>6</sub> (équation 1.1) qui est ensuite transformée en dioxyde d'uranium par un procédé de conversion par voie sèche (équation 1.2) [GUI 08].

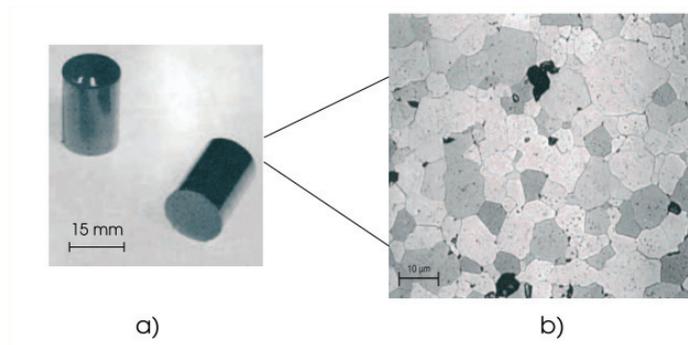
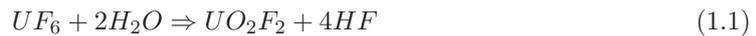


FIGURE 1.1 – Pastille d'UO<sub>2</sub> et microstructure. (a) micrographie de pastilles d'UO<sub>2</sub> après frittage-compaction, (b) Micrographie de la surface d'une pastille. D'après Ref. [PAT 12]

La poudre d'UO<sub>2</sub> est ensuite pressée pour obtenir des pastilles crues qui sont ensuite frittées pendant 4h à 1700°C sous atmosphère réductrice. Un agent porogène est ajouté avant l'étape de pressage afin d'obtenir des pastilles dont la densité est proche de 95% de la valeur théorique. Une valeur élevée de densité permet de garantir la stabilité thermo-mécanique de la pastille. Cependant, il est nécessaire de conserver une fraction de porosité significative afin que le gonflement de la pastille lors de l'irradiation du combustible en réacteur puisse être accommodé. Après le frittage, les pastilles polycristallines ont une forme de diabolo qui est rectifiée pour obtenir un diamètre constant sur l'ensemble de l'échantillon. La figure 1.1.b illustre la surface d'une pastille de combustible après attaque chimique. Les pastilles possèdent une microstructure relativement homogène avec une taille de grain proche de 10 µm (figure 1.1.b). Pour finir, les pastilles sont

*crayonnées* ; c'est à dire introduites dans le crayon qui est principalement composé d'une gaine en alliage de zirconium (figure 1.2.a). L'ensemble des crayons et composants annexes constituent l'assemblage (figure 1.2.b) [GUI 08].

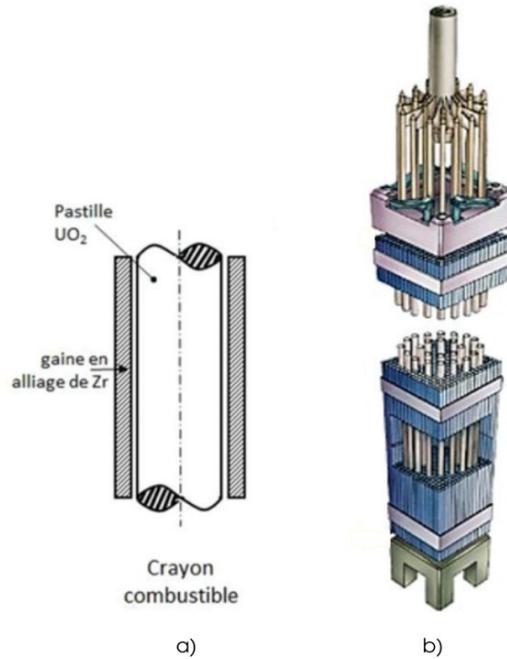


FIGURE 1.2 – Assemblage des pastilles d'UO<sub>2</sub> : (a) illustration d'un crayon composé d'une pastille d'UO<sub>2</sub> entourée d'une gaine en alliage de zirconium [PIP 20], (b) illustration d'un assemblage combustible [POR 18a].

### 1.1.2 Évolution structurale de la pastille en fonctionnement

En fonctionnement nominal en réacteur, l'évolution d'une pastille de combustible en cours d'irradiation peut être décrite de la manière suivante. Dès la première montée en puissance du réacteur, la pastille fissure du fait des dilatations différentielles entraînées par les gradients thermiques entre le centre et la périphérie de la pastille, puis elle se déforme : initialement cylindrique, elle prend peu à peu une forme de diabolo (figure 1.3).

En parallèle, la pastille gonfle sous l'effet de l'irradiation dû au phénomène de fission : bombardement des atomes d'uranium par des neutrons qui génère des isotopes  $^{236}_{92}\text{U}$ . Dans un état d'excitation élevé, l'isotope se fragmente en différents noyaux. L'équation 1.3 généralise le phénomène de fission. Les équations 1.4 et 1.5 sont des exemples de réactions fréquentes au cours desquelles l'uranium va se diviser soit en krypton et baryum soit en strontium et xénon.

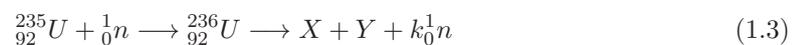




FIGURE 1.3 – Évolution d’une pastille d’ $\text{UO}_2$  sous irradiation. Après fissuration, elle prend la forme d’un diabolo et comble, au fur et à mesure, l’espace entre la gaine et sa périphérie. D’après [PAT 12].



La présence des produits de fission (PF) et le déplacement des atomes consécutifs à la fission vont entraîner une modification du paramètre de maille de  $\text{UO}_2$ . L’augmentation du volume dû aux PF est évaluée à 0.06% par GWj/tM en condition nominale (unité de l’énergie fournie, en gigawatt-jour par tonne de combustible). Le diamètre de la pastille de combustible va alors augmenter et le jeu entre la pastille et la gaine va être comblé pour des taux de combustion de 30 GWj/tM. En situation de transitoire de puissance, l’absence de jeu peut conduire à une interaction mécanique entre la pastille et la gaine entraînant des contraintes de traction dans la gaine ainsi qu’un phénomène de corrosion sous contrainte par l’iode issu des PF volatiles du combustible.

Les produits de fission gazeux (PFG) entraînent une évolution microstructurale du combustible au cours de l’irradiation, caractérisée par différents processus :

- la formation de bulles intragranulaires dues à la précipitation d’une partie des PFG en solution dans la maille  $\text{UO}_2$ ,
- le transport des produits de fission (en solution et dans les bulles) vers les joints de grains et les sous-joints de grains et la formation de bulles intergranulaires/intersousdomaines. Les joints et les sous-joints de grain constituent des chemins préférentiels pour la diffusion des gaz de fission vers les volumes libres,
- la percolation éventuelle des bulles intergranulaires qui engendre un réseau permettant le relâchement des PFG vers les volumes libres du crayon et donc un accroissement de la pression interne.

Ces différents phénomènes dépendent de la température et du taux de combustion d’où la présence de différentes microstructures dans le combustible irradié en fonction du rayon et du taux de combustion. De plus, une interaction spécifique entre les bulles de gaz de fission et les défauts d’irradiation (lacunes, interstitiels et dislocations) conduit à une restructuration avec une subdivision des grains d’ $\text{UO}_2$  qui passent de 10 à 0.3 microns environ, avec une très forte porosité. Cette restructuration, appelée en anglais High Burnup Structure (HBS) ou structure

rim se produit uniquement en périphérie de la pastille et à fort taux de combustion supérieur à 60 GW<sub>j</sub>/tM.

### 1.1.3 Propriétés mécaniques du polycristal d'UO<sub>2</sub>

#### 1.1.3.1 Propriétés élastiques du combustible non irradié

Depuis les années 60, plusieurs tests mécaniques ont été effectués sur des polycristaux de dioxyde d'uranium non irradiés dont des tests de flexion [CAN 71] et de compression [BYR 68a, TAC 76, DHE 02]. Deux comportements ont été caractérisés avant rupture :

- un comportement purement élastique et réversible (le matériau revient à sa géométrie initiale après la suppression de la sollicitation),
- un comportement viscoplastique caractérisé par un régime de déformation plastique irréversible.

Martin *et al.* [MAR 89] ont synthétisé les résultats obtenus pour des études sur les polycristaux d'UO<sub>2</sub> grâce aux définitions du module d'Young  $E$  et du module de cisaillement  $G$  ci-dessous (équation 1.6),

$$\begin{aligned} E &= (2,27.10^2 - 1,54.10^{-2} T - 9,60.10^{-6} T^2)(1 - 2,5p) \\ G &= (85,83 - 5,16.10^{-3} T - 3,75.10^{-6} T^2)(1 - 2,5p) \end{aligned} \quad (1.6)$$

avec  $T$  la température variant de 273 K à 2610 K et  $p$  la porosité (sans unité) variant de 0 à 0,3. Ces formules empiriques (valables seulement pour un matériau stœchiométrique) mettent en évidence la diminution des deux modules élastiques lors de l'accroissement de la température et de la porosité : le matériau devient plus mou lorsque ces deux paramètres augmentent. Nous reviendrons plus tard sur les constantes élastiques dans UO<sub>2</sub>, notamment dans le cadre du monocristal.

#### 1.1.3.2 Propriétés à la rupture du combustible non irradié

Différents modes de rupture de l'UO<sub>2</sub> polycristallin peuvent être observés lors d'essais mécaniques (figure 1.4). La rupture est fragile à basse température et s'effectue soit par clivage pour de faibles contraintes soit par rupture dynamique à hautes contraintes. Lorsque la rupture est fragile, le matériau ne subit pas de déformation plastique. A l'inverse, la rupture est dite ductile lorsqu'elle intervient après une déformation plastique importante. Lors d'expériences en flexion à trois [EVA 69b] et quatre points [CAN 71], trois régimes de déformation dépendant de la température ont été identifiés dans les polycristaux d'UO<sub>2</sub>.

(1) Pour  $T < T_c$  avec ( $T_c = 1300\text{K}$ ) : la contrainte à la rupture est inférieure à la limite d'élasticité. La rupture est fragile (zone *cleavage* sur la figure 1.4) et se produit par extension des pores de grandes tailles pré-existants. Comme montré dans les travaux d'Evans *et al.*, il existe une région de température intermédiaire ( $T=1000\text{K}$ , non montré sur la figure 1.4) où la contrainte à la rupture et la limite d'élasticité sont similaires [EVA 69b]. Bien qu'encore fragile, la fracture est initiée dans ce régime au niveau des dislocations.

(2) Pour  $T_c < T < T_t$  (avec  $T_t = 1800\text{K}$ ), une certaine déformation plastique est mesurée et une forte augmentation du module de rupture est observée. La fracture est considérée comme semi-fragile.

(3) À  $T > T_t$ , la résistance diminue de façon continue et une déformation plastique importante est observée : la fracture est complètement ductile. Grâce à une étude sur une plage de températures

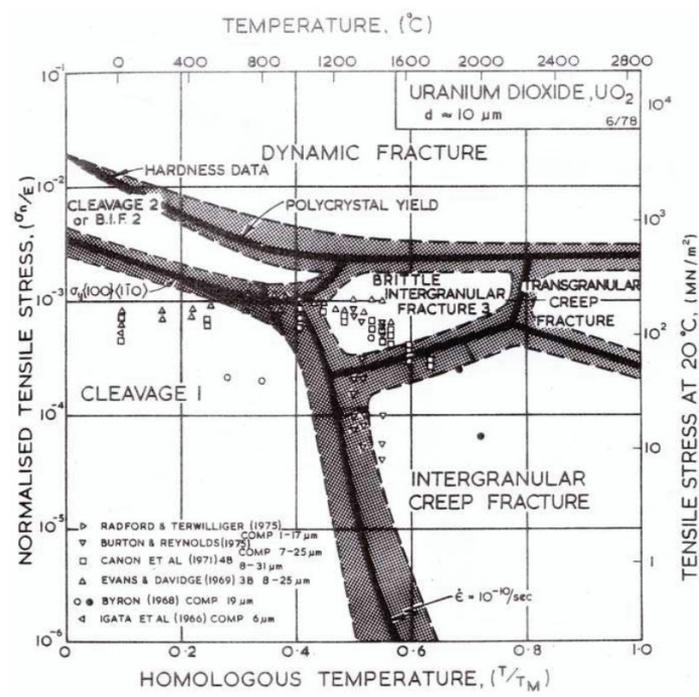


FIGURE 1.4 – Carte des modes de rupture de  $UO_2$  en fonction de la température et de la contrainte appliquée [GAN 83].

plus large, ce phénomène a seulement été observé par Canon *et al.* [CAN 71].  $T_t$  correspond donc au régime ductile où la propagation de la fissure a lieu soit de manière intergranulaire (*intergranular creep fracture*), soit de manière transgranulaire (*transgranular creep fracture*) dépendant du niveau de contrainte. Les essais en compression de Guerin *et al.* révèlent une température de transition fragile-ductile plus faible, de l'ordre de 1300K [GUE 75]. Les incertitudes sur ces expériences sont nombreuses, notamment liées à la mesure de la porosité, la taille des grains *etc.* A très hautes contraintes ( $\approx 10^9$  GPa), la rupture est dynamique [CAN 71].

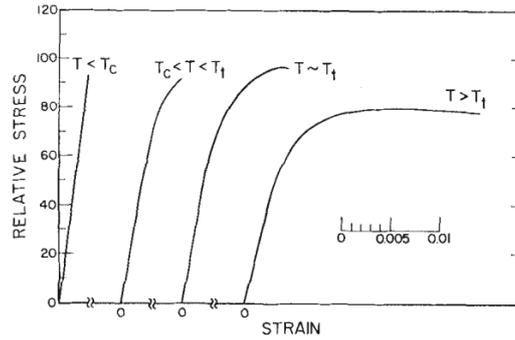


FIGURE 1.5 – Courbes contrainte-déformation obtenues pour des tests de flexion quatre points sur des polycristaux de UO<sub>2</sub> [CAN 71].

### 1.1.3.3 Comportement viscoplastique

En conditions normales de fonctionnement, le combustible irradié subit des contraintes thermomécaniques qui correspondent à des conditions de déformation en fluage. Dans la littérature, différents mécanismes de fluage ont été identifiés dans UO<sub>2</sub> [CAN 83, DHE 02, COL 03]. Ils dépendent des conditions de contrainte et de la microstructure (comme la porosité ou la taille de grains). L'irradiation affecte également les mécanismes de fluage. Le fluage primaire correspond à une diminution de la vitesse de déformation, cela traduit une augmentation de la résistance du matériau. On parle de fluage stationnaire ou secondaire lorsque la vitesse de déformation est constante dans le temps. De manière générale, la vitesse de fluage secondaire est exprimée sous la forme :

$$\dot{\epsilon} = \frac{AN_aGb}{RT} D \left(\frac{b}{g}\right)^p \left(\frac{\sigma}{G}\right)^n \quad (1.7)$$

avec  $A$  une constante dépendante du matériau,  $N_a$  le nombre d'Avogadro,  $b$  le vecteur de Burgers,  $R$  la constante des gaz parfaits,  $g$  la taille de grains,  $\sigma$  la contrainte appliquée,  $D$  le coefficient de diffusion, écrit sous la forme  $D = D_0 \exp(-Q/RT)$  et  $G$  le module de cisaillement. Le triplet de valeurs  $(p, n, Q)$  caractérise les modèles théoriques des mécanismes de déformation avec :  $Q$  l'énergie d'activation,  $n$  la sensibilité à la contrainte et  $p$  la sensibilité à la taille de grain. Sans irradiation, le fluage est d'autant plus grand que la température est élevée. Deux régimes composent ce fluage thermique. A faible contrainte, le fluage est piloté par diffusion [TSI 11]. Si la migration de lacunes s'effectue dans le volume du grain on parle de fluage Nabarro-Herring [HER 50] ou fluage intra-granulaire, il est dominant pour des températures élevées. Si la

migration se passe dans les joints de grain, c'est le fluage de type Coble [COB 63] ou fluage intergranulaire, dominant pour des températures plus basses. A hautes contraintes, le mécanisme principal implique le mouvement de dislocations [CAN 83].

En réacteur, un fluage induit par irradiation intervient dans le comportement plastique de l'UO<sub>2</sub>. Entre 770 et 1270 K, celui-ci est indépendant de la température, de la taille des grains et du taux de combustion. Dans ce cas, la vitesse de fluage ne dépend que de la contrainte appliquée et de la densité de fission. Pour un régime de températures supérieures, l'irradiation amplifie le fluage thermique [GUE 75, GUÉ 85]. L'équation 1.8 rend compte de façon phénoménologique de la vitesse de déformation visco-plastique sous irradiation [MIC 12b].

$$\dot{\epsilon}_{vp} = C\sigma^n \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) (1 + \alpha\dot{\Phi}_{irr}) + B\sigma_{eq}\dot{\Phi}_{irr} \quad (1.8)$$

Le premier terme rend compte du fluage thermique secondaire ou fluage stationnaire (vitesse de déformation constante).  $C$  et  $n$  sont des constantes dépendantes du matériau et  $Q$  est l'énergie d'activation.  $\alpha\dot{\Phi}_{irr}$  est l'accélération de la vitesse de déformation par irradiation.  $B\sigma_{eq}\dot{\Phi}_{irr}$  est le terme de fluage induit par irradiation avec  $\dot{\Phi}_{irr}$  la densité de fission par seconde. Le fluage dépend de plusieurs propriétés du matériau telles que la taille de grains, la porosité et la stœchiométrie et pendant ce dernier, la vitesse de déformation plastique augmente avec la température et la taille de grain [CAN 71].

Les courbes de fluage révèlent qu'avec une granulométrie standard (10 µm), un régime primaire est suivi d'un régime de vitesse de déformation stationnaire [DHE 02]. Dans les échantillons d'UO<sub>2</sub> déformés avec des tailles de grains plus grandes, le fluage secondaire nécessite plus de déformation avant d'être clairement établi, comme le montre la figure 1.6.b). Une déformation de fluage primaire inférieure à 1 % est mesurée pour des tailles de grains de 10 µm, au lieu d'environ 14 % pour une granulométrie de 36 µm. Sur la figure 1.6, on peut observer la différence des microstructures pour trois granulométries différentes ainsi que la variation de la durée du fluage primaire en fonction de la taille des grains.

Des études en compression [BYR 68a, NAD 69, SEL 70, GAR 21] et en flexion [ARM 62, SCO 59] ont montré que le dioxyde d'uranium non-stœchiométrique UO<sub>2+x</sub> se déforme plus facilement (contrainte d'écoulement plus faible) que son homologue stœchiométrique.

## 1.2 Propriétés microscopiques de l'UO<sub>2</sub>

### 1.2.1 Structure cristalline et élasticité

#### 1.2.1.1 Structure cristalline

Le dioxyde d'uranium est un matériau à structure cubique de type fluorite CaF<sub>2</sub> représentée sur la figure 1.7. Dans cette structure, les atomes d'uranium (en bleu) forment un réseau Cubique à Faces Centrées (CFC) et les atomes d'oxygène (en rouge) occupent tous les sites tétraédriques du réseau. Chaque atome d'uranium dispose de huit atomes d'oxygène premiers voisins alors que les atomes d'oxygène ont chacun quatre atomes d'uranium premiers voisins (tétraèdre). En plus d'être chimiquement stable et compatible avec l'eau, l'UO<sub>2</sub> est un matériau adapté aux conditions de vie en réacteur du fait de ses propriétés intrinsèques, telles que son haut point de fusion égal à 2847 °C [PAT 12].

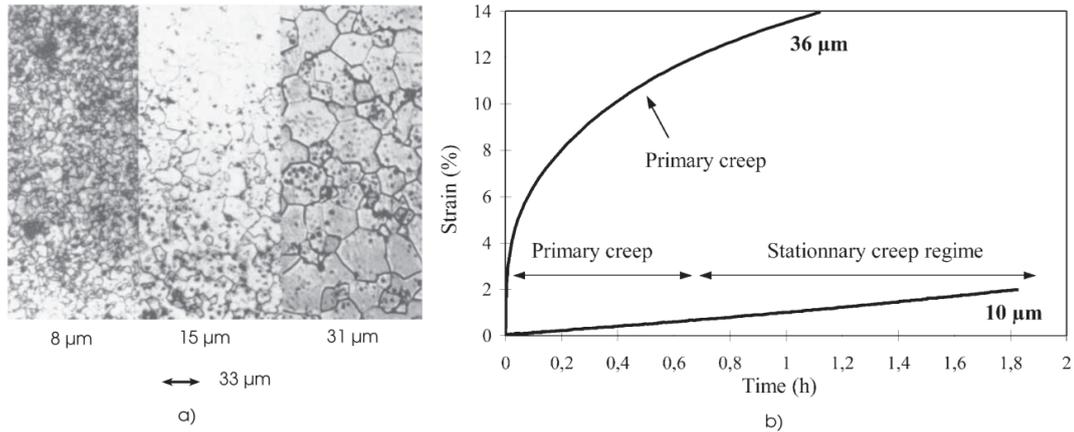


FIGURE 1.6 – Influence de la taille de grains sur la réponse mécanique en fluage de UO<sub>2</sub> polycristallin. (a) Microstructures des échantillons d'une pastille avec trois granulométries différentes [CAN 71], (b) Réponse en fluage des pastilles de granulométrie 10 et 36  $\mu\text{m}$  où  $\sigma = 60 \text{ MPa}$  et  $T = 1465 \text{ }^\circ\text{C}$ . La portion de courbe montrée pour 36  $\mu\text{m}$  ne correspond qu'au fluage primaire. D'après Ref. [DHE 02].

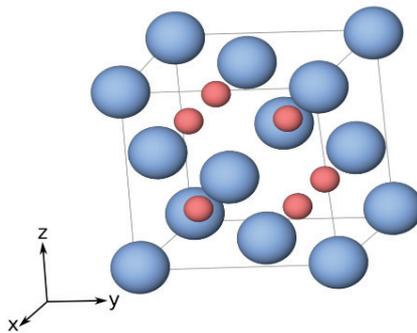


FIGURE 1.7 – Représentation de la structure fluorite de l'UO<sub>2</sub>. Les atomes d'oxygène sont représentés en rouge et les atomes d'uranium sont en bleu.

À température ambiante, le paramètre de maille  $a_0$  est égal à 5,47 Å [BOU 17]. Ce paramètre varie avec la température et la stœchiométrie. Plusieurs travaux expérimentaux et de modélisation ont étudié l'évolution du paramètre de maille en fonction de la température jusqu'à la température de fusion (figure 1.8) [HOK 02, YAM 97, GRØ 55]. Yamada *et al.* ont fait ces calculs par Dynamique Moléculaire (DM) en utilisant le potentiel empirique de Busing-Ida qui tient compte du caractère covalent des liaisons [YAM 00]. Quelques années plus tard, Basak *et al.* ont également fait des calculs pour voir l'évolution du paramètre de maille en utilisant le même potentiel et en y ajoutant un terme de type Morse [BAS 03].

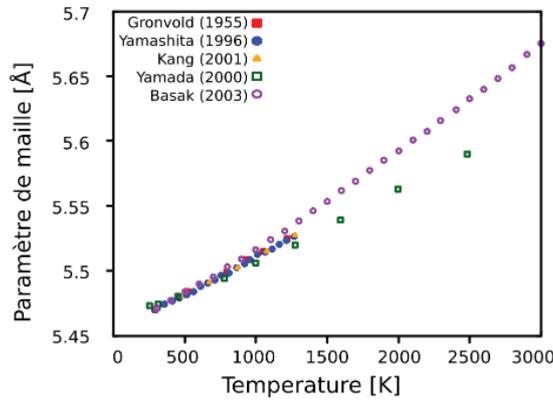


FIGURE 1.8 – Évolution du paramètre de maille en fonction de la température. Les symboles pleins représentent les études expérimentales [HOK 02, YAM 97, GRØ 55] alors que les symboles vides représentent les travaux de simulation [YAM 00, BAS 03].

### 1.2.1.2 Élasticité

L'élasticité du monocristal d' $\text{UO}_2$  peut être décrite à l'aide de la loi de Hooke (équation 1.9)

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (1.9)$$

En utilisant les symétries du cristal, le tenseur des constantes élastiques  $C_{ijkl}$  peut-être défini par trois termes indépendants.

$$C_{ij} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}$$

Les constantes élastiques obtenues de façon expérimentale à température ambiante sont présentées dans le tableau 1.1 [WAC 65, FRI 76].

La figure 1.9 montre l'évolution des constantes élastiques en fonction de la température jusqu'à la température de fusion. Elle regroupe les travaux expérimentaux de Hutchings *et al.*

Références	$C_{11}$ [GPa]	$C_{12}$ [GPa]	$C_{44}$ [GPa]
Wachtman	396	121	64
Fritz	389	119	60

TABLE 1.1 – Constantes élastiques [GPa] de l'UO<sub>2</sub> à température ambiante, déterminés par Wachtman et al. [WAC 65] et Fritz *et al.* [FRI 76]

[HUT 87] et les travaux par simulation de Jackson *et al.*, utilisant le potentiel de Catlow *et al.* [CAT 76], basé sur des ions déformables [JAC 86]. Les constantes élastiques varient de façon linéaire avec la température. L'évolution des constantes  $C_{12}$  et  $C_{44}$  observée dans l'expérience est bien reproduite par la simulation, ce qui n'est pas le cas de  $C_{11}$ . A hautes températures, des comportements anormaux de  $C_{11}$  ont été observés pour d'autres composés de structure fluorine. Ce comportement est attribué à la contribution des défauts.

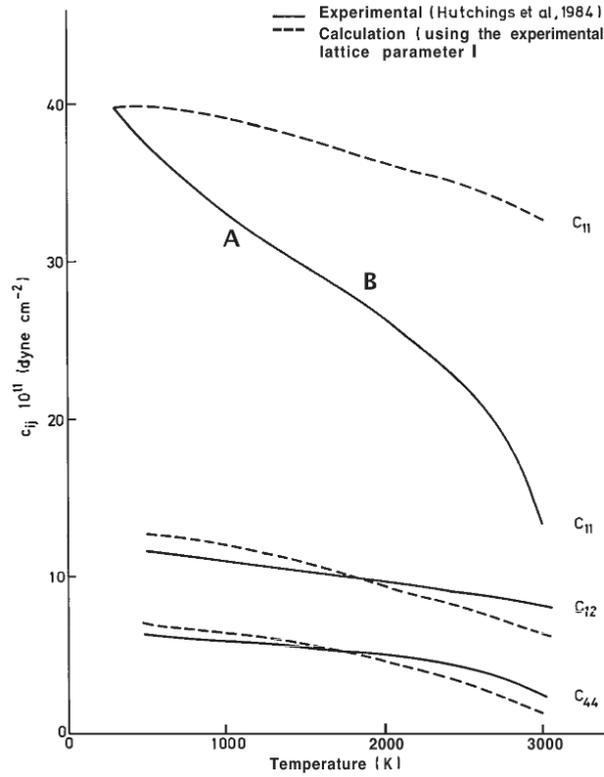


FIGURE 1.9 – Evolution des constantes élastiques d'un monocristal d'UO<sub>2</sub> en fonction de la température [HUT 87, JAC 86].

## 1.2.2 Systèmes de glissements et dislocations

### 1.2.2.1 Observations expérimentales

Les dislocations sont des défauts linéaires, vecteurs de la plasticité dans les matériaux cristallins. Elles sont caractérisées par leur vecteur de Burgers, noté  $\vec{b}$ , et leur plan de glissement. Le cisaillement local induit par une dislocation est proportionnel à  $\vec{b}$  et peut être quantifié en suivant un chemin autour de la ligne de dislocation, appelé circuit de Burgers, représenté par les lettres MNOP sur la figure 1.10. Les dislocations glissent dans un plan de glissement comprenant leur vecteur de Burgers  $\vec{b}$  et leur vecteur ligne  $\vec{l}$  (figure 1.10). Un système de glissement s'écrit sous la forme :  $[\vec{b}](\vec{n})$ , où  $\vec{n}$  est la normale au plan de glissement.

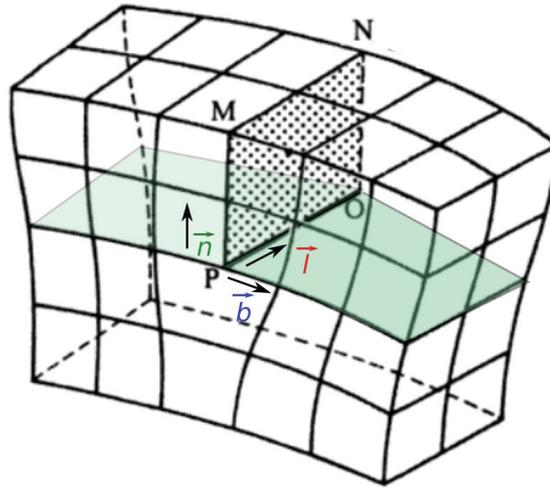


FIGURE 1.10 – Schéma d'une dislocation coin avec : MNOP le circuit de Burgers,  $\vec{l}$  le vecteur ligne,  $\vec{n}$  la normale au plan de glissement (surface verte) et  $\vec{b}$  le vecteur de Burgers (adaptée de [MAR 00]).

D'après la littérature, des dislocations dans  $\text{UO}_2$  ont été observées dans 3 familles de systèmes de glissement :  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ ,  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$  aussi appelé ou mode I, II et III [BYR 68b, NAD 69, YUS 69, SAW 71, ALA 78, KEL 88a, KEL 88b, RAP 60, SEL 70, LEF 76]. Ashbee *et al.* ont montré que le vecteur de Burgers des dislocations était de type  $1/2\langle 110 \rangle$ , soit le plus petit vecteur de périodicité de la maille fluorite. Les valeurs de contraintes de cisaillement critique ou *Critical Resolved Shear Stress* (CRSS) en fonction de la température sont plus faibles pour le système  $1/2\langle 110 \rangle 100$  et confirment une activation plus facile pour ce dernier ; on parle alors de mode mou. La figure 1.11 représente les CRSS pour les modes  $\{100\}$  et  $\{110\}$  en fonction de la température. Une forte dépendance de la CRSS à la température permet de mettre en évidence le comportement thermiquement activé des mécanismes de déformation. Inversement, lorsque la CRSS ne dépend plus de la température le régime est dit athermique. Pour le mode  $\{100\}$ , la température de transition athermique  $T_a$  a été estimée à 1750 K par Portelette *et al.* à partir du post-traitement de plusieurs jeux de données expérimentales [POR 18b].

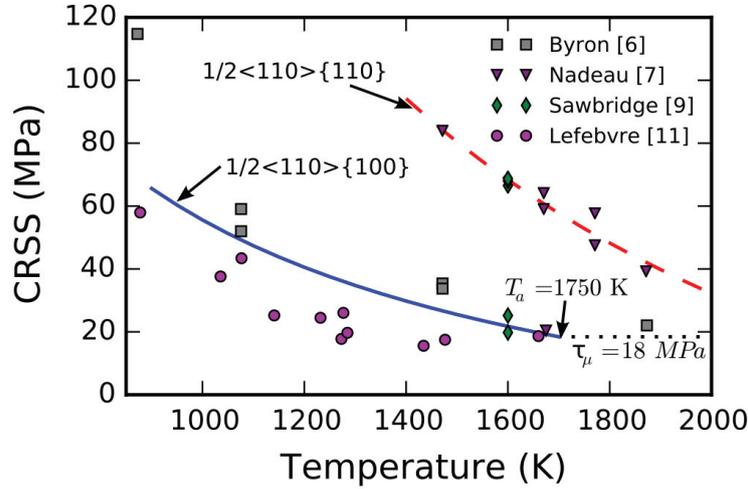


FIGURE 1.11 – CRSS en fonction de la température pour les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle \{110\}$  [POR 18b].

Lors de tests de compression sur monocristaux stoechiométriques, Sawbridge *et al.* ont observé que les modes  $\{100\}$  et  $\{110\}$  pouvaient être activés indépendamment (figure 1.12) contrairement au mode  $\{111\}$  qui n'a été observé qu'en conditions de glissement multiple avec  $\{100\}$  et/ou  $\{110\}$  [SAW 71, KEL 88b].

Dans un monocristal orienté, Yust *et al.* ont confirmé par microscopie que le plan de glissement principal est le plan  $\{100\}$  à basse température [YUS 69]. A haute température, ils concluent que la montée des dislocations est activée avant le glissement dans les plans  $\{110\}$  et  $\{111\}$ . Des études en simulations atomistiques ont été réalisées et montrent, comme l'expérience, que les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$  sont les plus mous, les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle \{110\}$  sont les plus durs et les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle \{111\}$  ont une activation intermédiaire. Les études de Lunev *et al.* et de Soulié *et al.* révèlent que dans un régime de glissement par double décrochement les dislocations les moins mobiles sont la dislocation coin dans 100 et la dislocation vis dans 110 [LUN 17, SOU 18b]. Par ailleurs les calculs des contraintes de Peierls (contrainte minimum pour laquelle une dislocation se déplace dans un réseau à température nulle) réalisés par Skelton sont assez cohérents avec ces conclusions [SKE 17].

La friction de réseau et le glissement combiné entre systèmes de glissement seraient responsables des formes *zigzag* des dislocations du mode  $\{111\}$ . Le glissement combiné dans UO<sub>2</sub> suit le plan de cisaillement maximum, le Maximum Resolved Shear Stress Plane (MRSSP). La figure 1.13 met en évidence le mécanisme de glissement dévié impliquant le mode  $\{111\}$  combiné au mode  $\{001\}$  et le mode  $\{111\}$  combiné au mode  $\{110\}$  où des réseaux hexagonaux apparaissent [ALA 78, SOU 77]. Le fait que le glissement du mode  $\{111\}$  doit être combiné à d'autres modes implique qu'il n'est pas possible de mesurer les CRSS  $\{111\}$  expérimentalement. Nadeau *et al.* émettent l'hypothèse que le glissement des dislocations se fait par doubles décrochements [NAD 69]. Plusieurs études montrent que, dans des matériaux de type fluorine, les dislocations vis ont une mobilité plus importante que les dislocations coins dans les plans  $\{100\}$

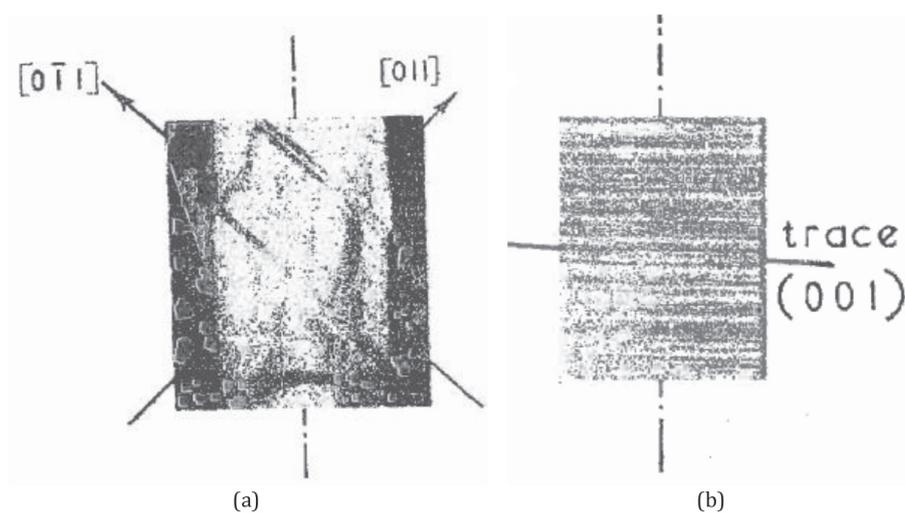


FIGURE 1.12 – Traces de glissement observées en surface d'échantillon lors de tests de compression sur monocristaux : (a) mode  $\{110\}$  (b) mode  $\{100\}$ . D'après [SAW 71].

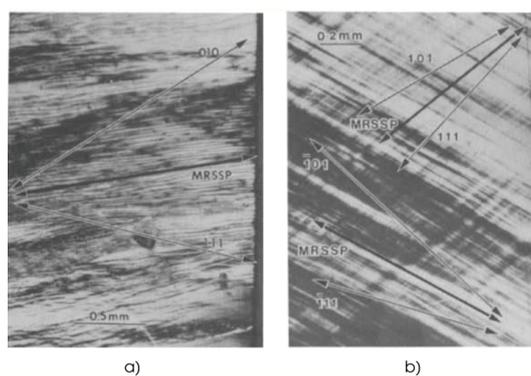


FIGURE 1.13 – Observation du glissement combiné suivant le plan de cisaillement maximum entre le mode  $\{111\}$  : (a) et le mode  $\{100\}$  (b) et le mode  $\{110\}$ . D'après [KEL 88b].

([EVA 69a, KEI 68, LIU 64]). Par ailleurs, les dislocations observées dans les modes  $\{100\}$  et  $\{110\}$  ne sont pas dissociées dans UO<sub>2</sub>. Seuls Alamo *et al.* ont observé des dislocations dissociées mais dans des échantillons non-stœchiométriques [ALA 78]. Les essais réalisés à vitesse de déformation contrôlée et à différentes températures engendrent diverses structures de dislocations lorsque le glissement  $\{100\}$  est activé [YUS 69]. A faible déformation, les auteurs observent des boucles de dislocations, des dipôles de dislocations et de longues dislocations en forme de *zigzag* (formation de jog). La figure 1.14 représente plusieurs dislocations et dipôles illustrant divers mécanismes de formation : un dipôle de dislocations (A), la formation d'un cran (B) et du *pinching off* qui est le terme désignant une dislocation qui interagit avec des impuretés (C).

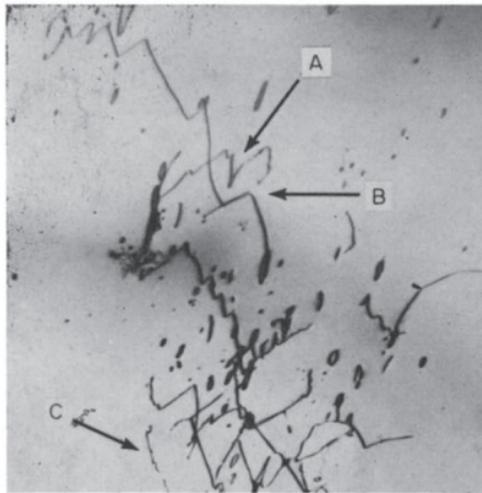


FIGURE 1.14 – Vue dans le plan de glissement d'un échantillon déformé à 1.1 % et à 750 C, représentant : (A) un dipôle, (B) un cran, (C) une dislocation ayant réagi avec des impuretés [YUS 69].

La section suivante s'attachera à décrire plus en détails les structures de cœurs des dislocations dans UO<sub>2</sub>.

### 1.2.2.2 Structures de cœur de dislocation coin $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ dans UO<sub>2</sub>

Pour UO<sub>2</sub>, les structures de cœur de dislocation les plus discutées dans la littérature sont celles de la dislocation coin dans le système  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  car elle fait référence au caractère dur dans le système de glissement le plus facilement activé. Construits de façon purement géométrique dans l'analogie CaF<sub>2</sub>, les premiers cœurs proposés sont ceux de Amelinckx *et al.* et Evans *et al.* qui sont des cœurs non-stœchiométriques chargés. Le cœur introduit par Amelinckx *et al.* est chargé positivement dû à une rangée de lacunes d'oxygène suivant la ligne de dislocation sur un des deux demi-plans introduits par la dislocation (cf. figure 1.15.a) [AME 58]. Inversement, celui introduit par Evans *et al.* est chargé négativement dû à une rangée d'intersitiels d'atomes d'oxygène (représenté sur la figure 1.15.b) [EVA 69a]. L'étude de Brantley *et al.* montre qu'une dislocation chargée crée un champ électrostatique important [BRA 70]. Ashbee *et al.* et Brantley *et al.* ont proposé deux structures de cœur coin neutres dans  $\{100\}$ , respectivement asymétrique et symétrique par rapport à la direction perpendiculaire au vecteur de Burgers  $\vec{b}$  (figures 1.15.c

et 1.15.d respectivement) [ASH 70, BRA 70]. Enfin, la dernière structure proposée pour la dislocation coin  $1/2\langle 110\rangle\{100\}$  est celle de Blank *et al.*, représentée sur la figure 1.15.e) [BLA 69]. Cette représentation asymétrique a la particularité d’avoir une périodicité double. En effet, un des deux demi-plans ajoutés se termine (selon la longueur de ligne de la dislocation) une fois par un atome d’oxygène et une autre fois par un atome d’uranium, ce qui permet de rendre cette structure neutre. Il existe moins d’information dans la littérature sur les structures possibles pour les autres modes de glissement. La figure 1.16.a représente le cœur neutre asymétrique d’Evans pour la dislocation coin  $1/2\langle 110\rangle\{110\}$  [EVA 69a]. Enfin, les figures 1.16.b et 1.16.c représentent les deux structures de la dislocation coin  $1/2\langle 110\rangle\{111\}$  de Keller *et al.* ; l’une est symétrique et l’autre est asymétrique [KEL 88a].

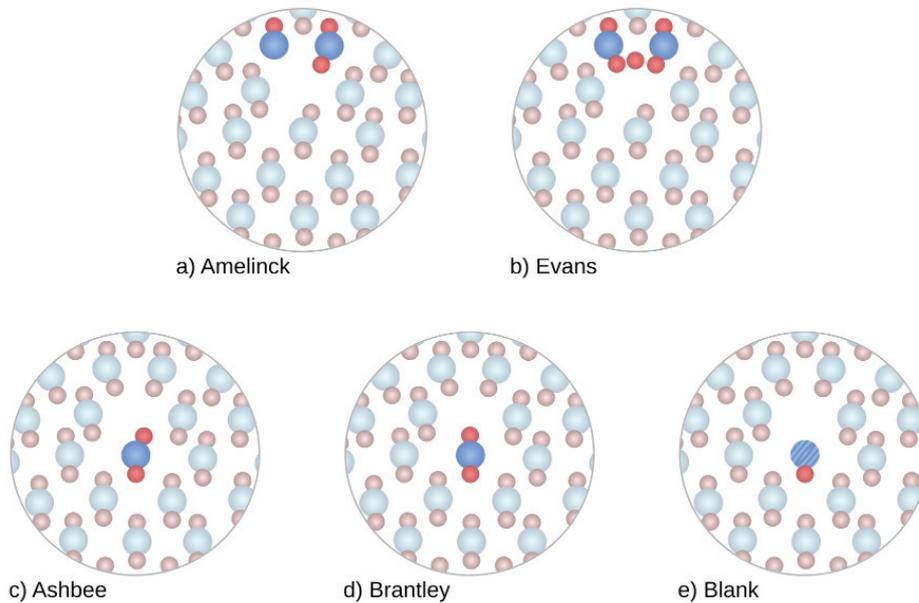


FIGURE 1.15 – Structures de cœurs de la dislocations coin  $1/2\langle 110\rangle\{100\}$ . Les colonnes atomiques d’uranium sont représentées en bleu et celles des atomes d’oxygène sont représentées en rouge. L’atome d’uranium hachuré en bleu sur le cœur de Blank n’occupe qu’un site sur deux par rapport aux atomes en bleu selon la longueur de ligne. a) Structure d’Amelinck : chargée positivement due à une rangée lacunaire d’atomes d’oxygène, b) structure d’Evans : chargée négativement due à une rangée d’instersitiels d’atomes d’oxygène, c) structure d’Ashbee : neutre et asymétrique, d) structure de Brantley : neutre et symétrique, e) structure de Blank : neutre, asymétrique et de périodicité double.

Il existe un certain nombre d’études de simulation à l’échelle atomique centrées sur les structures de cœur de dislocations coin dans le dioxyde d’uranium. Ces modélisations utilisent des potentiels empiriques qui servent à décrire les interactions entre atomes. Fossati *et al.* ont utilisé le potentiel de Morelon pour modéliser un dipôle de dislocations coin dans les trois modes de glissement avec des vecteurs de Burgers de signes opposés afin d’imposer des conditions tri-périodiques [FOS 13]. Pour le cœur des dislocations  $1/2\langle 110\rangle\{100\}$ , les auteurs obtiennent un

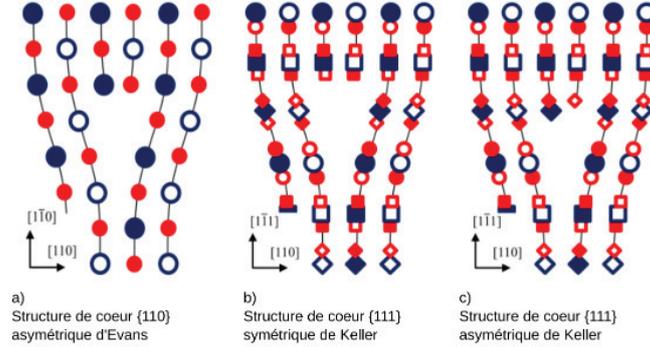


FIGURE 1.16 – Structures de cœurs stœchiométriques de dislocations coin dans  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$ . Les colonnes atomiques d'uranium sont représentées en bleu et celles des atomes d'oxygène sont représentées en rouge. Les différents symboles correspondent à des colonnes atomiques qui n'occupent pas les mêmes positions le long de l'axe perpendiculaire au plan de la figure [SOU 18a].

cœur identique à celui de Brantley (figure 1.15.d). Le cœur  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  est quant à lui semblable à celui d'Evans (figure 1.16.a). Les deux structures obtenues sont électriquement neutres. La structure du cœur  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$  est également neutre et est proche de la structure symétrique de Keller (figure 1.16.b). Elle présente un étalement dans le plan de glissement qui augmente avec la température (figure 1.17).

Murphy *et al.* ont comparé les structures de cœur des dislocations coin obtenues avec plusieurs potentiels [MUR 14]. Ils ont utilisé des quadripôles de dislocations avec une distance de 140 Å entre chaque défaut et une longueur de ligne comprise entre 30 et 40 Å. Les structures pour la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  modélisées avec les potentiels de Busker [ABR 99], Jackson [JAC 86], Yakub [YAK 07], Potashnikov [POT 11], Morelon [MOR 03], Skomurski [SKO 06] et Meis [MEI 05] mènent toutes à la structure de cœur d'Ashbee (figure 1.15.c). Les structures obtenues avec les potentiels de Cooper [COO 14], Catlow(1 & 2) [CAT 76], Read [REA 10] et Grimes [GRI 91] sont également semblables à celle d'Ashbee mais présentent un léger dédoublement des atomes d'oxygène près du cœur de la dislocation. Les modélisations utilisant les potentiels d'Arima [ARI 05] et Goel[GOE 08] donnent des structures ne faisant pas référence à celles de la littérature, malgré une structure de cœur proche de celle d'Ashbee, beaucoup d'atomes autour du cœur présentent des dédoublements suivant la longueur de ligne (figures 1.18.a et 1.18.h). Toutes les structures sont représentées en figure 1.18. La structure de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  modélisée avec les potentiels de Busker, Jackson et Potashnikov est identique à celle d'Evans (figure 1.16.a). Les cœurs modélisés avec Catlow (1& 2), Cooper, Grimes, Meis, Read, Morelon, Skomurski et Yakub ont une structure proche de celle d'Evans malgré un dédoublement d'atomes d'oxygène sur une rangée particulière visible sur les images données par l'auteur. Les potentiels de Goel, Basak et Arima donnent des cœurs désordonnés présentant beaucoup de dédoublements d'atomes. Murphy *et al.* ne montrent pas les cœurs des dislocations coins  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$ , ni les dislocations vis. Le tableau 1.2 permet de récapituler les structures obtenues et les énergies de cœur.

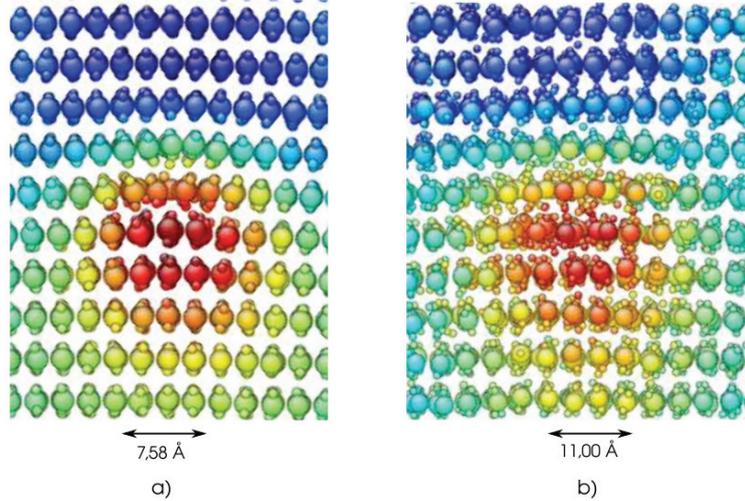


FIGURE 1.17 – Structure de cœurs de dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{111\}$ . La couleur indique le champ de densité d'énergie : la zone bleue ayant une énergie locale plus basse que le cristal parfait et la zone rouge plus élevée. Le cœur présente un étalement dans le plan de glissement, qui augmente avec la température : a) à 300 K et b) à 1000 K. D'après [FOS 12].

Galvin *et al.* [GAL 16] ont modélisé des dislocations en utilisant les potentiels Cooper et Basak [BAS 03]. La structure de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$  ne ressemble pas à une structure connue, elle présente des dédoublements d'atomes, particulièrement la rangée d'oxygène au-dessus de l'uranium central (figure 1.19.a). De la même manière, la structure de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{110\}$  se rapproche de la structure d'Evans mais présente du désordre (figure 1.19.b). La structure de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{111\}$  est identique à la structure symétrique de Keller (figure 1.16.b).

Soulié *et al.* ont utilisé le potentiel à charges variables SMTB-Q pour recalculer les structures de cœur de dislocation dans  $\text{UO}_2$  [SAT 13, SOU 18b]. Les résultats montrent respectivement (i) une configuration stable mais avec un dédoublement d'un atome d'oxygène au centre du cœur, (ii) un cœur identique à la configuration de Brantley (figure 1.15.d) (avec une énergie légèrement plus haute) et (iii) un cœur alterné qui possède une énergie de cœur plus importante que les deux premières structures. Après des chauffés successives à 300 K et 1000 K suivies de trempes à 10 K avant minimisation, Soulié *et al.* ont conclu que la barrière d'énergie entre le cœur obtenu à partir du cœur d'Ashbee (figure 1.15.d) et celui à partir de Brantley (figure 1.15.e) est très basse [SOU 18a].

Ils ont obtenu deux structures pour la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{110\}$  : une structure stable qui ne ressemble pas à celles déjà observées : neutre et symétrique (représentée sur la figure 1.20) et une structure métastable qui est identique au cœur d'Evans (figure 1.16.a).

Soulié *et al.* ont observé que le cœur symétrique de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{111\}$  de Keller a une énergie plus basse que le cœur asymétrique de Keller (figures 1.16.b et 1.16.c) qui est métastable. Deng *et al.* ont utilisé le potentiel de Busker et la méthode de sommation d'Ewald afin de calculer la structure de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{110\}$ . Ils observent le même cœur

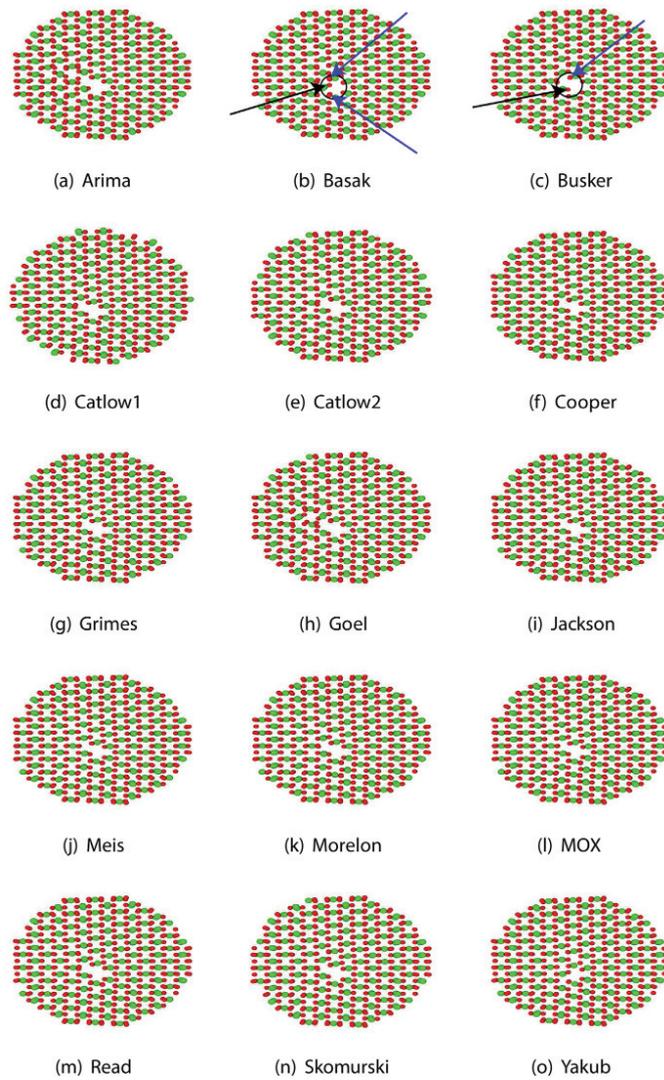


FIGURE 1.18 – Représentations schématiques des structures de cœurs la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$  dans le plan  $(x,y)$  pour tous les potentiels de paire testés. Les sphères vertes et rouges représentent respectivement les atomes uranium et oxygène [MUR 14].

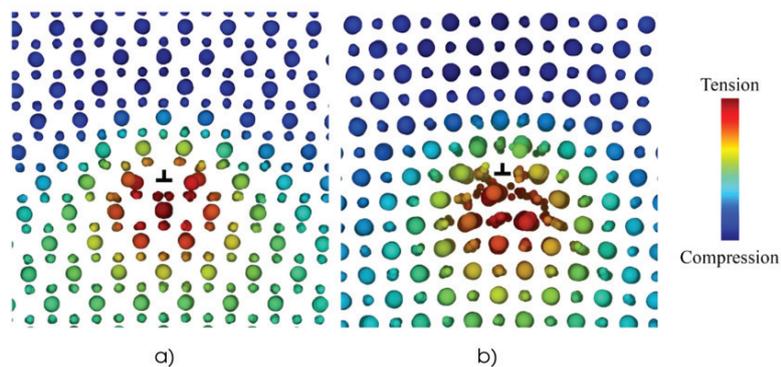


FIGURE 1.19 – Structures de cœur des dislocations coins à 300 K obtenues à l'aide du potentiel CRG : a)  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  et b)  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  [GAL 16].

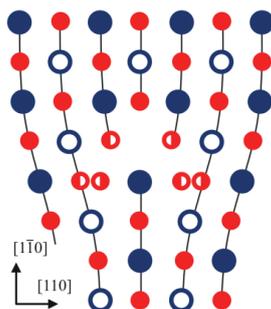


FIGURE 1.20 – Structure de cœur de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  neutre et symétrique obtenue en statique moléculaire à l'aide du potentiel SMTB-Q [SOU 18a].

que décrit précédemment sur la figure 1.20 obtenu par Soulié *et al.* [SOU 18a]. Le tableau 1.2 résume les différentes énergies et structures de cœurs commentées dans la littérature. Certains auteurs qui n'ont pas communiqué sur les valeurs d'énergies de cœur ou sur l'apparence des structures de cœurs ne sont pas cités dans le tableau [GAL 16, SOU 18b, MUR 14]. Pour tous les potentiels utilisés, on peut constater que les dislocations coins dans les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ ,  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$  ont pour structures préférentielles les cœurs d'Ashbee, d'Evans et de Keller, respectivement. De plus, on remarque que ce sont les simulations avec le potentiel SMTB-Q qui présentent les énergies de cœurs les plus basses [SOU 18b].

Potentiels		$1/2\langle 110 \rangle\{100\}$		$1/2\langle 110 \rangle\{110\}$		$1/2\langle 110 \rangle\{111\}$			
		$E_{cœur}$ (eV/Å)	Structure	$E_{cœur}$ (eV/Å)	Structure	$E_{cœur}$ (eV/Å)	Structure		
Soulié [SOU 18b]	SMTB-Q	1.599	Ashbee *	1.803	figure 19	1.794	Keller sym.		
		1.620	Brantley			2.060	Evans	1.844	Keller asym.
		1.753	Blank			-	Evans	-	Keller étale- ment
Fossati [FOS 13]	Morelon	-	Brantley	-	Evans	-	Keller étale- ment		
Galvin [GAL 16]	Cooper	4.325	figure 18.a	4.868	Evans *	4.563	Keller sym.		
	Basak	3.988		1.575		4.307			
Murphy [MUR 14]	Arima	3.552	Désordre	4.221	Désordre	3.822			
	Basak	2.701		3.384	Désordre	3.267			
	Busker	4.612	Ashbee	5.621	Evans	4.984			
	Catlow 1	4.290	Ashbee *	4.939	Evans *	4.561			
	Catlow 2	3.649	Ashbee *	4.436	Evans *	3.952			
	Cooper	2.572	Ashbee *	3.533	Evans *	3.065			
	Goel	2.535	Désordre	3.043	Désordre	2.804			
	Grimes	5.319	Ashbee *	6.391	Evans *	5.597			
	Jackson	4.469	Ashbee	5.041	Evans	4.582			
	Meis	4.176	Ashbee	4.762	Evans *	4.331			
	Morelon	2.462	Ashbee	2.711	Evans *	2.497			
	Potashnikov	2.487	Ashbee	2.793	Evans	2.550			
	Read	4.040	Ashbee *	4.622	Evans *	4.207			
	Skormurski	4.014	Ashbee	4.535	Evans *	4.090			
	Yakub	2.726	Ashbee	3.483	Evans *	3.072			

TABLE 1.2 – Énergies et structures de cœurs de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle$  issues de la littérature. Les structures marquées d'une \* sont proches d'une structure de référence mais présentent un dédoublement d'atomes.

### 1.2.2.3 Mobilité des dislocations

Lunev *et al.* ont effectué des simulations de DM pour calculer la mobilité de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  [LUN 17] et de la dislocation vis  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  [LUN 18] en utilisant un potentiel ions rigides paramétré par Potashnikov [POT 11]. La figure 1.21 représente la vitesse de glissement de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  en fonction de la contrainte et à différentes

températures. On notera que les auteurs n'ont pas analysé la structure ni la stœchiométrie des cœurs obtenus. Néanmoins la configuration qu'ils ont employée qui ne contient qu'une seule dislocation avec des bords libres suggère une structure chargée. On observe que seule la courbe de vitesse à 2000 K (trait en pointillé) a une tendance linéaire que les auteurs décrivent en utilisant une courbe de forme exponentielle (trait plein), comme c'est le cas pour toutes les températures inférieures. Cela permet d'estimer la température de transition athermique entre 1750 K et 2000 K, en adéquation avec les estimations expérimentales mesurées autour de 1750 K sur la figure 1.11. De plus, les auteurs concluent que la dislocation vis  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  est plus mobile que la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  en dessous de 1250 K. En revanche, la tendance s'inverse pour une température supérieure à 1250 K. Ils en concluent que le système de glissement primaire pourrait changer à partir de 1250 K (la vis étant connue pour être le caractère lent dans  $\{110\}$ ). L' $\text{UO}_2$  est caractérisé par un comportement fragile pour  $T < 1300$  K, davantage accentué lorsque les systèmes  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  sont sollicités. De ce fait, aucune mesure expérimentale de vitesse de dislocation dans le dioxyde d'uranium n'a été publiée jusqu'à présent dans ce régime de températures.

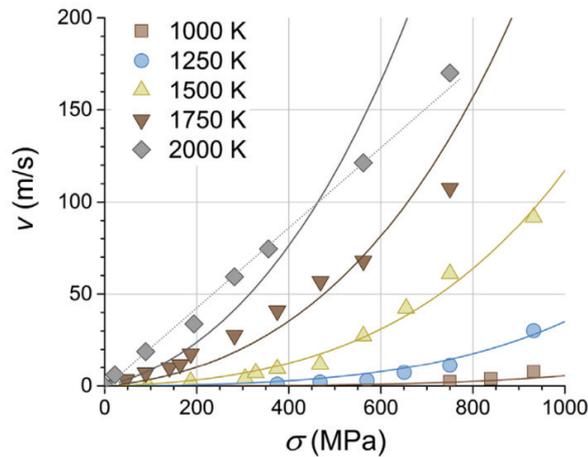


FIGURE 1.21 – Vitesse de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  en fonction de la contrainte de cisaillement et de la température calculée en DM grâce au potentiel de Potashnikov. Le trait en pointillé a été rajouté pour mettre en évidence la tendance linéaire pour 2000 K. Inspiré de [LUN 17].

#### 1.2.2.4 Plasticité cristalline

Sauter *et al.* ont utilisé des équations à base physique pour étudier la plasticité cristalline dans  $\text{UO}_2$  polycristallin en fonction de l'orientation des grains et de la température [SAU 03]. Cependant, les auteurs ont utilisé une approche polycristalline simplifiée considérant le glissement sur  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  uniquement sans identification préalable de paramètres d'activation sur le monocristal. Plus récemment, Portelette *et al.* ont étudié l'évolution de la contrainte d'écoulement de monocristaux d' $\text{UO}_2$  suivant différentes orientations de l'axe de compression du cristal (anisotropie plastique) ainsi que les systèmes de glissement impliqués [POR 18b]. Après avoir ajustés les paramètres d'activation des systèmes de glissement  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$ , les

auteurs ont effectué plusieurs tests de compression pour différentes orientations mais les résultats obtenus ne permettent pas de totalement reproduire les essais de Sawbridge *et al.* bien que les auteurs aient observé une amélioration des prédictions lorsque les trois modes de glissements sont considérés. Les auteurs ont amélioré leur modèle en tenant compte du durcissement anisotrope attribué aux différentes populations de dislocation par Dynamique des Dislocations Discrète (DDD) [POR 20]. Le but de l'étude est d'utiliser la DDD pour étudier le durcissement du monocristal de UO<sub>2</sub> dans le régime athermique afin de mieux comprendre le comportement mécanique du matériau en conditions accidentelles. Les auteurs ont calculé les coefficients de durcissement de la matrice d'interaction ainsi que l'évolution de coefficients moyens et leurs variations avec l'orientation de l'échantillon. Les résultats sont en meilleur accord avec les expériences de Sawbridge et Sykes [SAW 71]. Les auteurs ont également mis en évidence que, lorsqu'un seul mode de glissement est activé (mode {100} ou mode {110}), les coefficients de durcissement ont une amplitude intermédiaire tandis que ceux du mode {111} sont plus élevés. Les valeurs les plus importantes sont obtenues lors d'interactions croisées entre deux modes de glissement, en particulier dans le cas d'interactions colinéaires entre dislocations.

### 1.2.3 Défauts d'irradiation

L'objectif principal de ce travail de thèse est d'étudier l'évolution du comportement plastique en présence de boucles d'irradiation dans UO<sub>2</sub>. Cette sous-section débute par une introduction au mécanisme d'irradiation (collision et cascade de déplacements) et une description générale des défauts générés. Enfin, la dernière partie de ce chapitre traitera plus en détails les boucles d'irradiation.

#### 1.2.3.1 Généralités sur l'irradiation en réacteur

En cours de fonctionnement en réacteur, le combustible est irradié et est soumis à des contraintes thermo-mécaniques. Pendant ce processus, de nombreuses collisions entre atomes et neutrons sont observées : c'est la fission, mécanisme principal de production d'énergie des centrales nucléaires. Au tout début du processus, un neutron impacte un atome d'uranium 235 et cette réaction va alors scinder le noyau d'U et produire de l'énergie. L'énergie se décompose en énergie cinétique associée aux neutrons et produits de fissions (participant à hauteur de 80 %) et en rayonnements  $\gamma$  et  $\beta$ . 30% des produits de fission sont émis sous forme de gaz et espèces volatiles dont 15% sont du xénon, du krypton et de l'hélium. L'insertion de ces atomes modifie également la chimie du combustible et entraîne une évolution microstructurale. De plus, les dommages causés par les produits de fission dissipent leur énergie, accélèrent la diffusion des espèces et modifient la cinétique de nombreux processus de transport. L'accumulation des défauts d'irradiation sur la partie périphérique de la pastille, soumise à un taux de combustion local plus élevé et combinée à une température plus faible qu'au centre, entraîne l'apparition d'une *high burnup structure* dans cette région radiale [NOI 08]. Plusieurs auteurs ont étudié les bulles dans les matériaux irradiés aux ions dont nous ne parlerons pas davantage ici [DJO 13, Bè 15, SAB 14, MIC 12a, SON 02, WHA 66, ONO 16b] et des études se sont intéressées plus spécifiquement à la diffusion des atomes de krypton et xénon dans UO<sub>2</sub>, ainsi que sur la nucléation et la croissance des cavités et bulles [DJO 13, Bè 15]. On retiendra que les PFG se regroupent pour former des bulles ou, selon les températures, ils s'incorporent dans des

défauts de Schottky (une lacune d'uranium et deux lacunes d'oxygène) [DJO 13, Bè 15]. Par ailleurs, l'insertion de ces gaz participe au gonflement de la pastille [DEV 10, VAN 19]. Concernant la production de défauts par les produits de fission énergétiques, le premier atome déplacé par un produit de fission, appelé *Primary Knock-on Atom* (PKA), est éjecté de son site d'équilibre s'il reçoit une énergie supérieure à l'énergie du seuil de déplacement  $E_d$  : environ 20 eV pour l'oxygène et 40 eV pour l'uranium [SOU 77, SOU 85]. Le PKA entraîne (si son énergie est suffisante) par collision d'autres atomes qui sont mis en mouvement à leur tour. Ils créent alors une cascade de déplacements atomiques (figures 1.22 et 1.23). Au cours du temps, les atomes, le PKA et les produits de fission vont perdre leur énergie et les atomes s'arrêtent finalement en position interstitielle.

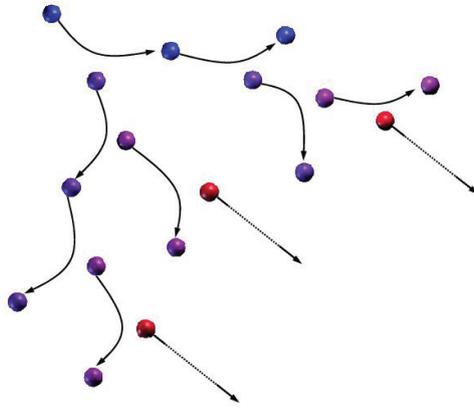


FIGURE 1.22 – Schéma d'une cascade de déplacement [LHU 10].

Les simulations atomiques peuvent être utilisées pour étudier les mécanismes élémentaires associés à l'irradiation comme le processus de cascade. Martin *et al.* ont superposé 36 cascades générées à partir d'une énergie incidente de 10 keV et ont montré que les défauts s'agrègent sous forme d'amas [MAR 10]. Les atomes en position interstitielle sont regroupés sous forme de boucles de dislocation interstitielles, appelées "boucle d'irradiation" (si les boucles prismatiques sont fautées elles sont alors appelées "boucle de Frank"), alors que des amas de lacunes sont observés au centre de la boîte de simulation (figure 1.24).

Devanathan *et al.* [DEV 10] se sont intéressés à l'apparition et au rôle des défauts primaires et des défauts d'irradiation dans  $\text{UO}_2$  en utilisant la DM et le potentiel de Morelon. Sous l'effet d'un transfert d'énergie linéaire de 66 keV/nm sur un défaut primaire, des désalignements de la maille cristalline sont observés et conduisent à l'apparition de boucles de dislocation stables (représentées figure 1.25) caractérisées par des dislocations coins nanométriques avec un vecteur de Burgers porté par  $\langle 110 \rangle$ .

### 1.2.3.2 Les boucles d'irradiation

Les travaux expérimentaux d'Onofri *et al.* portent sur l'étude des défauts étendus induits par l'irradiation aux ions dans  $\text{UO}_2$  [ONO 17]. L'évolution des boucles d'irradiation peut être décrite en quatre étapes (figures 1.26 et 1.27). La première est la phase de nucléation des boucles. A

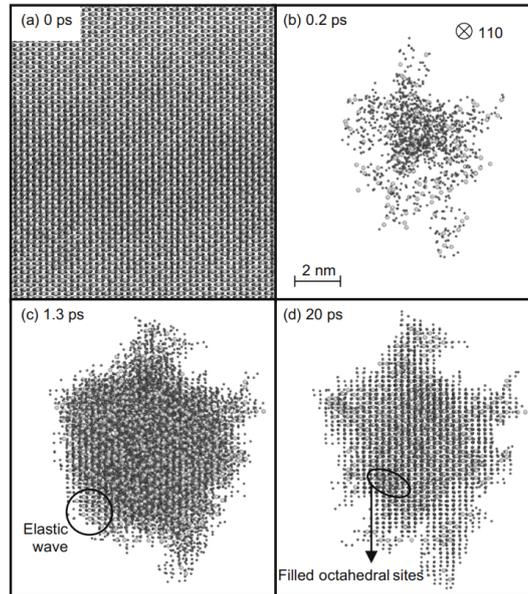


FIGURE 1.23 – Simulation par dynamique moléculaire d'une cascade de déplacements provoquée par un PKA d'uranium de 10 keV à 700 K, (a) Boîte de simulation initiale. Déplacements de tous les atomes de plus de 0,2 nm : (b) pendant la phase de tir, (c) pendant la phase thermique et (d) pendant la phase de relaxation. Les atomes noirs sont les atomes d'oxygène et les atomes d'uranium sont en gris. D'après [MAR 09].

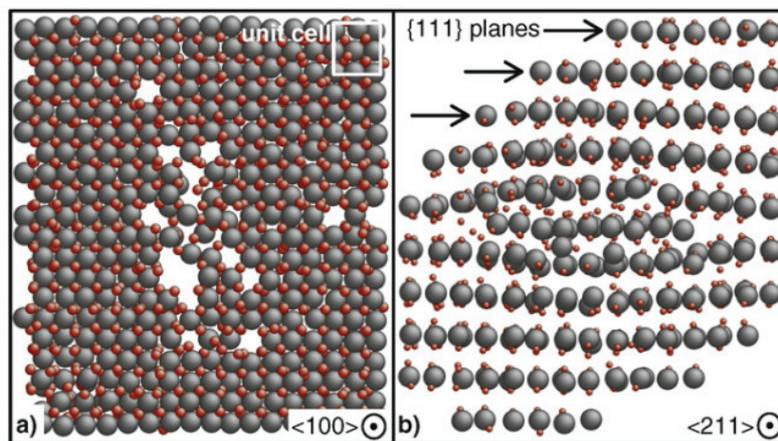


FIGURE 1.24 – Défauts étendus obtenus après la superposition de cascade simulés par DM : (a) amas de lacunes au centre de la boîte de simulation et (b) boucle de dislocation dans un plan {111}. Les ions uranium et oxygène sont représentés respectivement par des grandes et petites sphères [MAR 10].

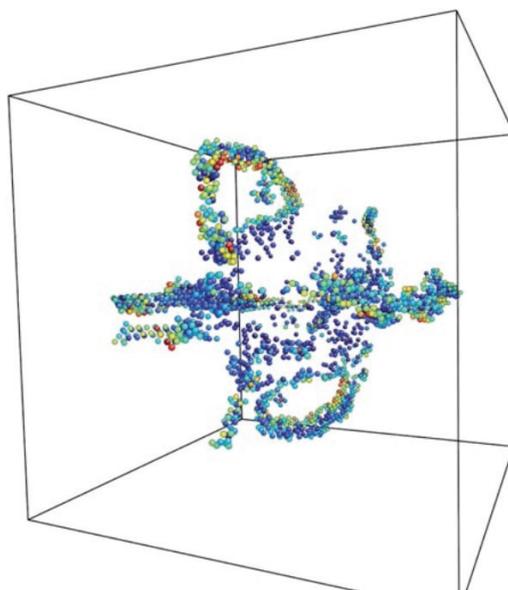


FIGURE 1.25 – Simulation de DM d'un défaut primaire après un pic thermique avec un transfert d'énergie de 66 keV / nm. Seuls les atomes à énergie potentielle supérieure à celle du bulk sont montrés. Apparition de boucles de dislocation avec un vecteur de Burger suivant  $\langle 110 \rangle$  [DEV 10].

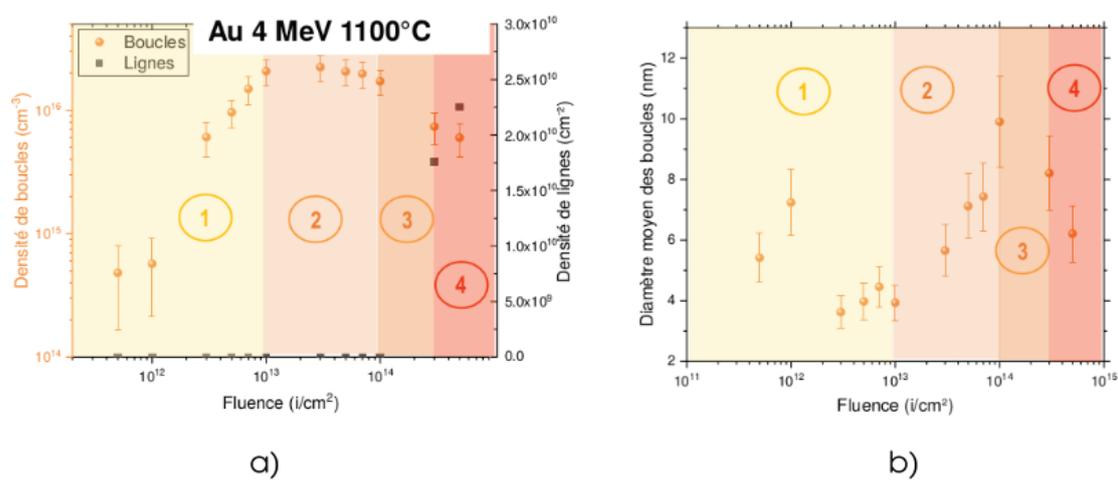


FIGURE 1.26 – Évolution de la densité et du diamètre des boucles d'irradiation dans  $UO_2$  en fonction de la fluence (4 MeV aux ions Au à 1100 °C). a) Evolution de la densité des boucles et lignes de dislocations en fonction de la fluence b) Evolution du diamètre des boucles en fonction de la fluence. D'après [ONO 20].

ce stade, la taille moyenne des boucles est de l'ordre de 5 nm et reste constante. Les boucles grossissent ensuite, avec la fluence, et à ce stade, la densité de boucles semble se stabiliser sous irradiation aux ions alors que celles de plus grand diamètre coalescent et deviennent des lignes de dislocation. Enfin, un équilibre dynamique se met en place de manière concomitante à une nucléation continue de boucles, que l'on peut observer entre les lignes de dislocation au microscope (ces dernières évoluent vers un réseau de lignes enchevêtrées).

Les travaux expérimentaux de He *et al.* et Ye *et al.* confirment que l'irradiation entraîne la nucléation en continu de boucles de dislocation [HE 14, YE 11], ce qui justifie pourquoi il y a une première phase d'augmentation du nombre de boucles. Lorsque la densité des boucles atteint son maximum, on voit sur la figure 1.26 que le diamètre des boucles a tendance à augmenter. Cette tendance peut être expliquée par plusieurs mécanismes notamment la *migration-coalescence* telle qu'observée *in situ* à 800 °C par He *et al.* [HE 14] et suggérée par Ye *et al.* [YE 11] et Jonnet *et al.* [JON 08]. Les boucles sont mobiles et interagissent pour devenir des boucles de plus grand diamètre [HE 14]. Onofri *et al.* ont montré que le grossissement des boucles se faisait plutôt par mûrissement d'Ostwald à 600 °C [ONO 16a]. Le mécanisme du mûrissement consiste à remettre en solution les interstitiels d'une petite boucle pour faire croître une boucle plus grande. Enfin la phase de décroissance de la densité de boucles est due à l'interaction des boucles entre elles et avec des dislocations glissiles. Néanmoins, lors de cette étape, He *et al.* n'ont pas observé de diminution du diamètre des boucles [HE 14].

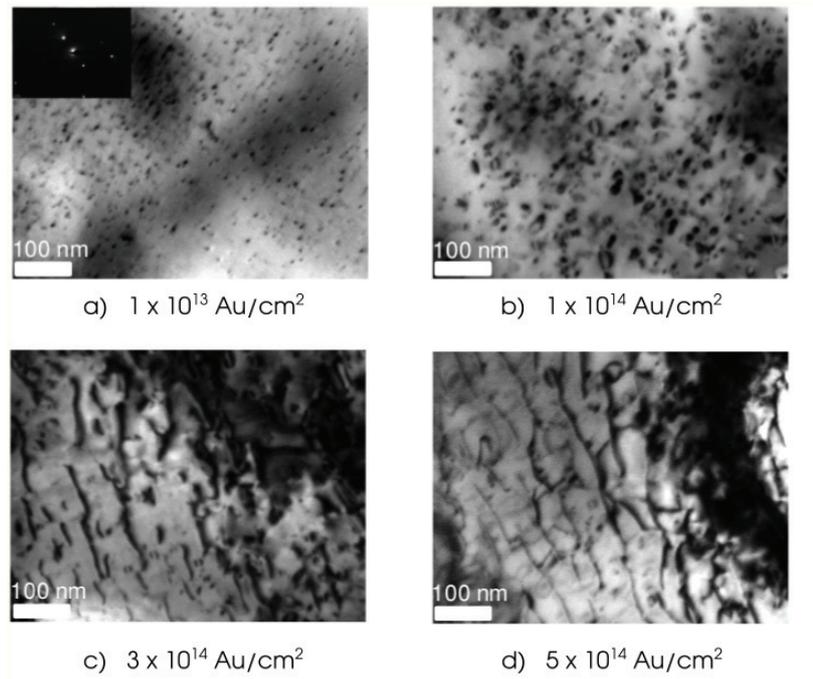


FIGURE 1.27 – Micrographies MET de boucles d'irradiation dans UO<sub>2</sub> pendant irradiation en fonction de la fluence [ONO 20].

Parmi les processus décrits précédemment, certains sont indépendants des conditions d'irradiation (type d'ions bombardés : Au, Xe, Kn, à différentes énergies et pour des tempéra-

tures comprises entre  $-180^{\circ}\text{C}$  et  $1100^{\circ}\text{C}$ ) et ne dépendent que de l'augmentation de la fluence [ONO 16b] :

- la nucléation de petites boucles (diamètre inférieur à 5 nm) qui est un phénomène récurrent car elles sont issues des cascades de déplacement.
- le grossissement des boucles (lorsque la saturation de la densité de boucle est atteinte et pour des températures de  $25^{\circ}\text{C}$  à  $1100^{\circ}\text{C}$ ).
- la transformation des boucles en lignes (lignes, essentiellement de type coin ou mixte, dans les systèmes de glissement primaire  $1/2\langle 110\rangle\{100\}$  ou secondaire  $1/2\langle 110\rangle\{111\}$ ).
- le régime stationnaire, où les lignes s'enchevêtrent avec de petites boucles entre les lignes, même si les conditions d'irradiation affectent néanmoins la cinétique d'évolution.

Le Prioux *et al.* ont également étudié en DM la structure d'une boucle prismatique (vecteurs de Burgers perpendiculaire au plan d'habitat) dans  $\text{UO}_2$  en utilisant le potentiel de Morelon [LEP 16]. Les auteurs ont étudié la stabilité des boucles de dislocation prismatiques interstitielles en fonction des directions des vecteurs de Burgers  $\langle 110\rangle$  et  $\langle 111\rangle$ . Les boucles de dislocation  $\langle 110\rangle$  les plus stables sont celles ne présentant pas de défaut d'empilement. Elles comportent deux plans  $\{110\}$  supplémentaires et ont un vecteur de Burgers  $\vec{b} = 1/2\langle 110\rangle$  (représentée sur la figure 1.28). Inversement aux boucles  $\langle 110\rangle$ , les boucles de dislocation  $\langle 111\rangle$  les plus stables présentent une faute d'empilement. Elles montrent un triplet composé d'un plan d'uranium entre deux plans d'oxygène, et ont un vecteur de Burgers  $\vec{b} = 1/3\langle 111\rangle$  (représentée sur la figure 1.29). Le Prioux *et al.* ont montré que les boucles de dislocation de forme circulaire  $\langle 111\rangle$  sont plus stables que les boucles  $\langle 110\rangle$  si la taille de la boucle vaut moins de 156 molécules d' $\text{UO}_2$  [LEP 16]. Au delà, ce sont les boucles de dislocation  $\langle 110\rangle$  qui sont plus stables. Onofri *et al.* ont illustré les deux boucles de plus basses énergies (figures 1.28, 1.29 [ONO 17, ONO 16b]).

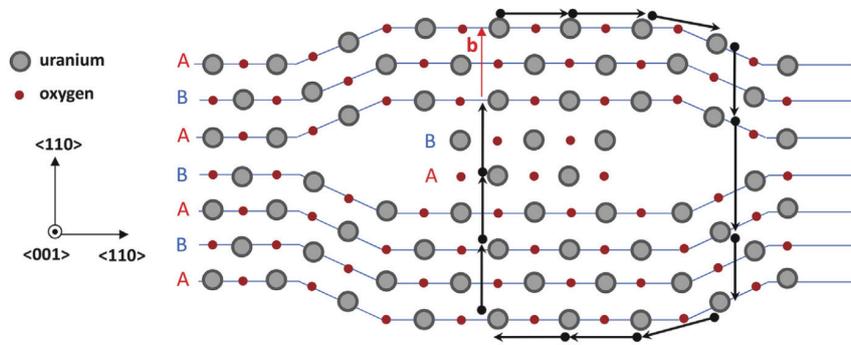


FIGURE 1.28 – Boucle prismatique parfaite  $1/2\langle 110\rangle$ . Les sphères grises et rouges représentent respectivement les atomes d'uranium et d'oxygène. Les flèches noires indiquent le circuit de Burgers et le vecteur de Burgers est perpendiculaire au plan d'habitat [ONO 17].

D'autres calculs de simulations par DM ont été effectués par Van Brutzel *et al.* avec le potentiel de Morelon [VAN 08]. Ils ont montré que les cascades de déplacements mènent à une pointe thermique de quelques picosecondes. Durant ces calculs, des boucles de dislocation interstitielles apparaissent directement sous irradiation. Deux études supplémentaires toujours réalisées en DM ont montré que les boucles d'irradiation sont créées par un mécanisme de *loop punching* [RUB 91, MAR 10]. Les simulations faites par Martin *et al.* pour étudier les boucles de dislocation créées suite à une cascade de déplacements montrent que les boucles sont prismatiques,

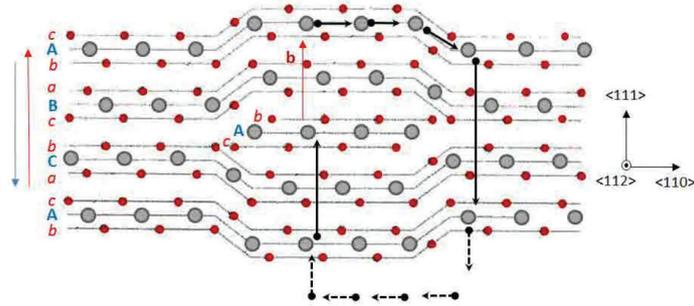


FIGURE 1.29 – Boucle prismatique imparfaite (boucle de Franck) :  $1/2\langle 110 \rangle$  de plan d'habitat  $\{111\}$  [ONO 16b].

de vecteurs de Burgers porté par  $\langle 111 \rangle$  et de diamètre inférieur au nanomètre [MAR 15b]. Cependant, ces boucles sont trop petites pour être vues au MET et leur vecteur de Burgers a une direction différente de celle observée expérimentalement par Onofri *et al.* [ONO 17]. Ils suggèrent alors que les boucles  $\langle 111 \rangle$  créées par irradiation sont des boucles imparfaites comme décrit dans le travail de Le Prioux *et al.* [LEP 16] et qu'elles évoluent vers des boucles parfaites de Burgers  $\langle 110 \rangle$  lorsque leur diamètre augmente au cours de l'irradiation. Cette évolution s'effectue par mécanisme de défautement faisant intervenir une dislocation partielle de Shockley [CHA 16]. Cette hypothèse est en bon accord avec les travaux de Le Prioux qui a révélé que la stabilité des boucles dépend de leur diamètre. En effet dans leur étude, les auteurs montrent que les petites boucles (diamètre  $< 2$  nm) les plus stables sont celles dont le Burgers est  $\langle 111 \rangle$  et pour des diamètres plus grands ce sont les boucles  $\langle 110 \rangle$  qui deviennent les plus stables.

### Résumé

Ce premier chapitre est une revue bibliographique qui permet de réunir des informations de la littérature permettant de mieux appréhender la plasticité du dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ). Grâce à différentes échelles, nous avons pu caractériser les propriétés du monocristal ainsi que le matériau polycristalin. Les éléments importants pour la suite de l'étude sont résumés ci-dessous : *Systèmes de glissements*

- dislocation : caractérisée par  $\vec{b}$  et leur plan de glissement et mobile dans un système de glissement noté  $[\vec{b}](\vec{n})$
- 24 systèmes de glissements :  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ ,  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$
- matériau à friction de réseau : les CRSS dépendent de la température pour les modes  $\{100\}$  et  $\{110\}$  ( $T_a \approx 1750$  K pour le mode  $\{100\}$ )
- CRSS les plus basses dans  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$
- Dislocations vis plus rapides que les dislocations coins dans  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$

#### *Structure de cœurs et vitesses des dislocations*

- plusieurs propositions de cœurs de dislocations théoriques créés de façon géométrique
- plusieurs structures de cœurs étudiées par DM avec différents potentiels
- le cœur d'Ashbee est la structure de cœur de dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  la plus observée
- le cœur d'Evans est la structure la plus observée pour la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$
- le cœur symétrique de Keller est la structure la plus observée pour le cœur de dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$
- courbe des vitesses fonction de la contrainte de la dislocation coin dans  $\{100\}$  où les régimes athermique et thermiquement activé sont identifiés

#### *Boucle d'irradiation*

- de nature prismatique et interstitielle, sans faute d'empilement
- de vecteurs de Burgers :  $1/2\langle 110 \rangle$
- de diamètre moyen de 50 Å,
- mobile dans le cylindre perpendiculaire au plan d'habitat (suivant  $\vec{b}$ ),
- mobile due aux champs de contraintes des objets voisins *e.g.* lignes de dislocations, boucles.

## Chapitre 2

# Méthodes et protocoles de simulation

*Ce chapitre a pour but de décrire les méthodes utilisées pour étudier le comportement des dislocations et des boucles d'irradiation dans  $UO_2$ . Les différents outils de simulation utilisés tels que le logiciel Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS) [THO 22] pour les simulations en statique et en dynamique moléculaire et le code Numodis [DRO 14, SHI 15] pour les simulations par DDD sont présentés. Le choix du potentiel empirique utilisé pour les simulations atomiques ainsi que les protocoles de simulations y sont détaillés et justifiés. Enfin, une dernière section est dédiée à la construction des volumes de simulations utilisés en DM et DDD.*

*Les résultats de simulations de DM sont analysés à l'aide d'outils d'analyses cristallographiques tels que Dislocation Extraction Algorithm (DXA) [STU 10, STU 12] et Polyhedral Template Matching (PTM) [LAR 16] implémentés dans Ovitto [STU 09] et interfacés via des scripts Python. Les résultats de simulations de DDD sont quant à eux analysés grâce au programme de visualisation Paraview [AHR 05, SQU 07].*

### Sommaire

---

<b>2.1 Simulations atomistiques</b> . . . . .	<b>36</b>
2.1.1 Introduction à la statique et à la dynamique moléculaire . . . . .	36
2.1.2 Potentiels interatomiques . . . . .	36
2.1.2.1 Potentiels ions rigides . . . . .	37
2.1.2.2 Potentiel à charges variables SMTB-Q . . . . .	39
2.1.3 Protocoles de simulation . . . . .	41
2.1.3.1 Structure de cœur de dislocation . . . . .	41
2.1.3.2 Mobilité des dislocations . . . . .	44
2.1.3.3 Interaction entre dislocation et boucle d'irradiation . . . . .	46
<b>2.2 Dynamique des dislocations discrètes</b> . . . . .	<b>48</b>
2.2.1 Introduction à la dynamique des dislocations discrètes . . . . .	48
2.2.2 Protocoles de simulations . . . . .	50

---

## 2.1 Simulations atomistiques

### 2.1.1 Introduction à la statique et à la dynamique moléculaire

Les simulations atomistiques permettent d'étudier le comportement collectif d'atomes en interaction et peuvent être classées en deux grandes catégories. Premièrement, la Statique Moléculaire (SM) est utilisée pour minimiser l'énergie d'un système en parcourant l'espace des configurations via un algorithme de minimisation (*e.g.* Gradient Conjugué (GC)). Chaque configuration étudiée est décorrélée des autres dans le temps : les atomes n'ont pas de vitesse et la simulation est par conséquent réalisée à 0 K. Deuxièmement, la Dynamique Moléculaire (DM) permet d'étudier l'évolution dans le temps et en température d'un ensemble d'atomes dans différents ensembles thermodynamiques : l'ensemble microcanonique NVE (N : nombre d'atomes à l'équilibre, V : volume à l'équilibre et E : énergie à l'équilibre), l'ensemble canonique NVT (T : température à l'équilibre) ou encore l'ensemble isotherme-isobare NPT (P : pression à l'équilibre). Quel que soit l'ensemble thermodynamique de simulation, le mouvement des atomes est décrit par l'algorithme de Verlet (ou Verlet-vitesse) [VER 67] qui permet une résolution itérative de la position et de la vitesse des atomes au cours du temps. La DM requiert un pas de temps  $\Delta t$  dont la valeur est à ajuster : trop haut, l'énergie et l'équilibre du système sont amenés à diverger, trop bas, le calcul sera correctement résolu mais au détriment de coûts cpu élevés.  $\Delta t$  est généralement de l'ordre de 0,1 à quelques femtosecondes.

Plusieurs paramètres importants sont à considérer dans les simulations atomistiques. De façon générale, elles nécessitent un potentiel empirique ou semi-empirique qui est une fonction mathématique permettant de calculer l'énergie d'interaction entre plusieurs atomes. Par exemple en DM, le potentiel est utilisé afin d'intégrer la seconde loi de Newton via l'algorithme de Verlet. La définition de la boîte de simulation est une donnée d'entrée (dimensions, conditions aux limites). Les Conditions Limites Périodiques (CLP) consistent à créer des images du volume simulé autour de ce dernier permettant aux atomes d'interagir par delà les limites de la boîte. Les atomes peuvent alors sortir d'une extrémité de la boîte et être réintégrés de l'autre extrémité, reproduisant les conditions d'un espace infini. Si la boîte n'est pas périodique, on peut définir des bords fixes : les atomes n'interagissent pas avec leurs voisins de l'autre extrémités, ou des bords libres : les atomes qui sortent du volume simulé sont supprimés. Généralement, les données brutes de sortie des calculs de DM sont les positions atomiques et les vitesses au cours du temps. Plusieurs variables intrinsèques au calcul telles que les forces, l'énergie potentielle, les vitesses et le volume de simulation permettent de calculer des grandeurs statistiques comme l'énergie interne, la température ou la pression du système. Lorsqu'une simulation est lancée, le système va évoluer vers un état d'équilibre imposé par l'ensemble thermodynamique utilisé et par les contraintes imposées par l'utilisateur (exemples : une température, une énergie ou une pression cible). Les calculs de DM peuvent être coûteux en temps de calculs en fonction du nombre d'atomes ou du potentiel interatomique utilisés.

### 2.1.2 Potentiels interatomiques

Dans ce travail de thèse, les dislocations dans  $\text{UO}_2$  sont étudiées à l'échelle atomique à l'aide du logiciel LAMMPS. Les cœurs de dislocations sont étudiés en SM et en DM *i.e.*, à 0 K et en température, alors que les vitesses de dislocation sont uniquement étudiées en DM. Plusieurs potentiels interatomiques ont été utilisés : des potentiels de type ions rigides à charges fixes mais

aussi le potentiel à charges variables Second Moment Tight-Binding with charge eQuilibration (SMTB-Q). Cette section vise à détailler les différents formalismes utilisés au cours de la thèse.

### 2.1.2.1 Potentiels ions rigides

Il existe un grand nombre de potentiels pour  $\text{UO}_2$  testés dans plusieurs études comparatives [GOV 07, GOV 08, POT 11, COO 15, BOU 19, MUR 14, BOU 17]. Le formalisme ions rigides modélise l'atome comme un ion ponctuel associé à une charge fixe localisée sur l'ion. De manière générale, les fonctions décrivant le système ionique  $\text{UO}_2$  via le modèle ions rigides sont composées d'une contribution à longue portée, terme coulombien ( $E_{coul}$ ), et d'une contribution pour les interactions à courte portée ( $E_{cp}$ ). L'énergie coulombienne entre deux ions,  $i$  et  $j$ , est définie de la manière suivante :

$$E_{coul}(r_{ij}) = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \quad (2.1)$$

avec  $q_i$  et  $q_j$  les charges respectives des ions  $i$  et  $j$ ,  $r_{ij}$  la distance entre les deux ions et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide.

Il existe plusieurs formalismes pour décrire l'énergie à courte portée pour les potentiels ions rigides. Le formalisme de Buckingham est le plus fréquemment utilisé :

$$E_{cp} = \underbrace{A_{ij} \exp\left(\frac{-r_{ij}}{\rho_{ij}}\right)}_{\text{répulsif}} - \underbrace{\frac{C_{ij}}{r_{ij}^6}}_{\text{attractive}} \quad (2.2)$$

avec  $A_{ij}$ ,  $C_{ij}$ ,  $\rho_{ij}$  des paramètres du potentiel. Le premier terme de l'équation est un terme répulsif qui intègre le principe d'exclusion de Pauli. Le second terme est attractif et représente l'énergie de dispersion de van der Waals. Les paramètres  $A_{ij}$ ,  $C_{ij}$ ,  $\rho_{ij}$  ainsi que les charges  $q_i$  et  $q_j$  sont les paramètres ajustables des potentiels ions rigides.

Une étude du CEA [BOU 17] recense trente potentiels différents pour modéliser  $\text{UO}_2$  (datés de 1971 à 2015) contenant de nombreux potentiels à charges fixes. L'évolution des potentiels permet une transférabilité plus variée et plus de précisions. Certaines nouvelles paramétrisations ne sont que des améliorations d'anciens potentiels comme par exemple celui de Morelon [MOR 03] qui est une évolution du potentiel de Sindzingre publié en 1988 [SIN 88]. D'autres potentiels reposent sur des formalismes originaux comme le potentiel de Cooper [COO 14] qui utilise la méthode Embeded Atom Model (EAM) couplée à un terme d'interaction coulombienne. Une première comparaison porte sur les sept critères suivant :

- stabilité de la structure en température,
- énergie de formation de défauts,
- paramètre de maille en fonction de la température,
- enthalpie en fonction de la température,
- capacité calorifiques en fonction de la température,
- constantes élastiques,
- température de fusion.

Cette étude comparative montre que certains potentiels ne sont pas transférables à l'étude des défauts bien que les potentiels les plus récents n'aient pas encore été totalement testés sur l'ensemble de ces critères. Le premier critère, qui consiste à vérifier la stabilité de  $\text{UO}_2$  à 0 K, 300 K et 1000 K, permet d'éliminer les potentiels modélisant une instabilité de la structure fluorite en augmentant la température. De façon globale, on remarque que les potentiels de type ions rigides reproduisent bien les propriétés en température telle que la capacité calorifique. En comparant les résultats obtenus pour ces propriétés, cinq potentiels sont retenus par les auteurs pour calculer les propriétés mécaniques de  $\text{UO}_2$  à 0 K et en température ainsi que des défauts d'irradiation (*i.e.* bulles de fission, boucles d'irradiation) : Morelon (2003), Yakub (2009), Potashnikov (2011) (également appelé MOX-07), Cooper (2014) et Thompson (2014) [MOR 03, YAK 09, POT 11, COO 14, THO 14].

Trois grandeurs supplémentaires sont calculées par les auteurs :

- l'expansion thermique : augmentation du paramètre de maille en fonction de la température,
- les fréquences propres de vibration du cristal : modes de phonons,
- les énergies de défauts : comparaison de l'énergie d'un cristal parfait à un cristal fauté (défaut de Shottky lié).

Les résultats montrent que le potentiel de Thompson est le seul à ne pas reproduire correctement l'évolution en température du paramètre de maille. Inversement, c'est ce potentiel qui reproduit au mieux les fréquences propres de vibration du cristal de  $\text{UO}_2$  à 300 K, les potentiels de de Yakub et Cooper sur-estimant les deux fréquences les plus basses tandis que les potentiels de Morelon et de Potashnikov les sous-estiment. Enfin, c'est le potentiel de Morelon qui reproduit au mieux les valeurs d'énergies de défauts de Shottky (les valeurs de références ayant été calculées en *ab initio*) alors que les autres potentiels donnent des énergies au-dessus de la valeurs de référence. En résumé, aucun des potentiels n'est parfaitement transférable à l'ensemble des propriétés : le choix du potentiel à utiliser dépend fortement des applications visées et des compromis sont constamment à faire.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de travailler avec le potentiel de Potashnikov qui répond à plusieurs critères. Les paramètres du potentiel sont fournis dans le tableau 2.1 et on utilise un cutoff à courte distance de 11 Å.

$X_{OO}$ [eV]	50211.74	$X_{UO}$ [eV]	873.11
$Y_{OO}$ [1/Å]	5.52	$Y_{UO}$ [1/Å]	2.78
$Z_{OO}$ [eV/Å <sup>6</sup> ]	74.80		

TABLE 2.1 – Paramétrisation pour le potentiel Potashnikov dans  $\text{UO}_2$  [POT 11].

Bien qu'il ne décrive pas parfaitement les constantes élastiques (classique pour un potentiel ions rigides), il décrit bien  $C_v$ , la capacité thermique, et c'est le potentiel qui est au plus proche de la valeur expérimentale de  $\lambda$ , longueur d'onde de l'intensité maximale, et prend bien en compte l'expansion thermique. De plus, le potentiel de Potashnikov reproduit le paramètre de ionicité,  $Q$ , en accord avec les prédictions théoriques (voir tableau 2.2). Ce paramètre, déterminant la force de l'interaction coulombienne, est connu pour influencer la mobilité des dislocations dans  $\text{UO}_2$  [LUN 17]. Lunev *et al.* ont utilisé le potentiel de Potashnikov pour étudier la mobilité des dislocations dans  $\text{UO}_2$ . Les auteurs montrent que les potentiels de Yakub et Cooper (tous deux ayant  $Q \sim 0,55$ ) conduisent à des vitesses de dislocation de même ordre de grandeur à température et contrainte données tandis que les potentiels de Morelon et Potashnikov donnent des

vitesses plus grandes (jusqu'à un facteur 3), variations attribuées à leur facteur de ionicité plus grand et plus proche de la valeur théorique. C'est pourquoi nous avons choisi d'utiliser le potentiel Potashnikov qui apparaît comme une bonne alternative aux potentiels à charges variables plus coûteux. Cet argument du temps de calcul est encore plus justifié lorsque les simulations portent sur des propriétés de mobilité des dislocations qui nécessitent des boîtes de simulation de grande taille et des temps de simulation plus longs.

Potentiels	$Q$
Potashnikov	0.69
Morelon	0.81
Yakub	0.55
Cooper	0.55
Valeurs théorique [NAG 75]	0.67

TABLE 2.2 – Facteur d'ionicité  $Q$  : potentiels et valeurs théoriques. D'après [LUN 17].

### 2.1.2.2 Potentiel à charges variables SMTB-Q

Nous avons utilisé le potentiel à N-corps et à charges variables SMTB-Q pour confronter les structures de cœurs de dislocations obtenues à l'aide du potentiel de Potashnikov. Ce potentiel, développé par Tétot *et al.* [TÉT 08], a été paramétrisé pour  $\text{UO}_2$  par Sattouy *et al.* [SAT 13]. Avec SMTB-Q, l'énergie de cohésion totale est écrite comme suit :

$$E_{coh} = E_{ion} + E_{coul} + E_{cp}^{U-O}(q, r) + E_{cp}^{O-O}(r) \quad (2.3)$$

avec  $E_{ion}$  l'énergie ionique,  $E_{coul}$  l'interaction coulombienne et les interactions covalentes à courte portée entre atomes d'uranium et d'oxygène  $E_{cp}^{U-O}$  et entre atomes d'oxygène  $E_{cp}^{O-O}$  et  $q$  la charge des atomes.

$$E_{ion} = \sum_i (E_i^0 + \chi_i^0 q_i + \frac{1}{2} J_{ii}^0 q_i^2) \quad (2.4)$$

avec les paramètres ajustables des électronégativités  $\chi_i^0$  et des duretés ioniques  $J_{ii}^0$ .  $E_i^0$  est l'énergie de l'atome neutre  $U$  ou  $O$ .

$$E_{coul} = \sum_i \sum_{i < j} q_i q_j J_{ij} \quad (2.5)$$

avec  $J_{ij}$  l'intégrale de Coulomb entre les atomes  $i$  et  $j$ .

$$E_{cp}^{U-O}(q, r) = \underbrace{\sum_{j, r_{ij} < r_{cp}} A \exp \left[ -p \left( \frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right]}_{\text{répulsif}} - \underbrace{\left[ \sum_{j, r_{ij} < r_{cp}} \xi^2 \exp \left[ -2Q \left( \frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right] \Delta q_{cov}(q_j) \right]}_{\text{attractif}} \quad (2.6)$$

avec  $r_0$  la distance entre les premiers voisins du cristal,  $\Delta q_{cov}$  terme caractérisant la covalence des liaisons et les paramètres ajustables :  $A$ ,  $p$ ,  $Q$  et  $\xi$ .

$$E_{cp}^{O-O} = \sum_{j:r_{ij}<r_{cp}} B \exp\left(\frac{r_{ij}}{\rho}\right) \quad (2.7)$$

avec les paramètres ajustables  $B$  et  $\rho$ .

Dans l'étude de Sattonay, les auteurs ont ajusté le potentiel sur le paramètre de maille, le facteur de ionicité et les énergies de surface via des données expérimentales. Bien que le potentiel soit plus précis que les potentiels de paire, il ne reproduit pas rigoureusement les constantes élastiques (Tableau 2.3). Les travaux de Soulié *et al.* [SOU 18a] permettent d'obtenir une paramétrisation plus précise notamment sur le paramètre de maille et les constantes élastiques : c'est celle que nous utiliserons dans notre étude. Les paramètres du potentiel sont résumés dans le tableau 2.4.

	Exp.	SMTB-Q [SOU 18b]	SMTB-Q [SAT 13]
$E_{coh}$ [eV]	-22.3	-22.3	-22.3
$a_0$ [Å]	5.4550	5.4547	5.4597
$C_{11}$ [GPa]	389.3	388.6	388.1
$C_{12}$ [GPa]	118.7	116.6	119.7
$C_{44}$ [GPa]	59.7	60.1	88.7
$B_0$ [GPa]	209.0	207.0	209.3
$A$	0.44	0.44	
$Q$	0.67	0.70	0.64

TABLE 2.3 – Grandeurs physiques expérimentales et ajustées pour le potentiel SMTB-Q dans  $\text{UO}_2$  par Soulié *et al.* en 2018 [SOU 18b] et Sattonay *et al.* en 2013 [SAT 13] : avec  $E_{coh}$  l'énergie de cohésion du cristal,  $C_{ij}$  les constantes élastiques permettant de déterminer :  $B_0$  le module d'incompressibilité isostatique et  $A$  le coefficient d'anisotropie élastique.

paramètres U-U		paramètres O-O	
$\chi_U^0$ [eV]	0.903	$\chi_O^0$ [eV]	6.57
$J_{UU}$ [eV]	8.329	$J_{OO}$ [eV]	10.22
$r_{UU}$ [Å]	0.825	$r_{OO}$ [Å]	0.537
paramètres U-O		paramètres O-O	
$A$ [eV]	0.3144	$B$ [eV]	580.44
$p$	9.0955	$\rho$ [Å]	0.354
$\xi$	1.0893		
$q$	3.1491		

TABLE 2.4 – Paramétrisation de Soulié *et al.* pour le potentiel SMTB-Q dans  $\text{UO}_2$  [SOU 18b].

Pour réaliser des simulations atomiques dans les matériaux ioniques ou covalents, il est nécessaire d'utiliser une méthode de sommation des charges qui permet d'évaluer les interactions à longue portée. Pour la sommation des charges dans le cadre du potentiel de Potashnikov, nous avons testé les méthodes d'Ewald et de Wolf en relaxant une boîte de simulation avec un dipôle de dislocations (voir section suivante). Les deux méthodes de sommation ont montré

	Ewald	Wolf
$F_{norm}$ [eV/Å]	0.0097335848	0.009727465
$E_{pot}$ [eV]	-933379.38	-933064.32
$P_{xx}$ [MPa]	-274	80
$P_{yy}$ [MPa]	-312	21
$P_{zz}$ [MPa]	-279	58
Cpu [H :min]	03 : 42	00 : 04

TABLE 2.5 – Résultat d’une minimisation d’énergie de cœurs de dislocations et comparaison entre deux méthodes de sommation : Ewald et Wolf.

des résultats très similaires. Cependant, la méthode de sommation d’Ewald a demandé plus de temps de calcul (voir tableau 2.5). De plus, le potentiel SMTB-Q ne permet d’utiliser que la méthode de sommation de Wolf. C’est pourquoi nous avons choisi de travailler avec la méthode de sommation de Wolf dans toutes les simulations moléculaires qui suivent. Le rayon de coupure pour la sommation de Wolf et le coefficient d’amortissement sont fixés respectivement à 11 Å et 0,3 Å<sup>-1</sup> pour les potentiels Potashnikov et SMTB-Q et les  $\Delta t=1$  et 0,2 fs sont respectivement pour les potentiels de Potashnikov et SMTB-Q.

### 2.1.3 Protocoles de simulation

#### 2.1.3.1 Structure de cœur de dislocation

##### *Construction des configurations dipolaires*

Les volumes de simulation atomique sont construits à partir de l’outil AtomsK [HIR 15] et de scripts maison pour étudier les cœurs de dislocation et leur mobilité. Afin d’éviter les problèmes de surfaces chargées dans UO<sub>2</sub>, des dipôles de dislocations permettant l’utilisation de CLP sont générés. Par exemple, l’insertion d’une dislocation coin dans {100} introduit deux demi-plans supplémentaires d’un côté de la boîte (alors le nombre de plans reste identique sur la face opposée) ce qui génère un défaut d’empilement en limite de boîte. Ce problème est résolu en insérant deux dislocations dont les lignes sont suivant <110>, les vecteurs de Burgers suivant <110> et la normale aux plans de glissement des deux dislocations est suivant z. .

Techniquement, des cristaux parfaits de fluorite orientés selon  $x = [110]$ ,  $y = [\bar{1}10]$ ,  $z = [001]$  sont construits à l’aide d’AtomsK et deux dislocations de vecteurs de Burgers opposés de façon à créer un réseau quadrupolaire sont insérées (figure 2.1). Rodney *et al.* ont montré que cette configuration permet de minimiser les interactions élastiques [ROD 17].

L’insertion des deux dislocations coins se fait grâce aux formules des champs de déplacements écrites en 2.8 et 2.9.

$$U_x = \frac{b}{2\pi} \left( \arctan\left(\frac{z}{x}\right) + \frac{xz}{2(1-\nu)(x^2+z^2)} \right) \quad (2.8)$$

$$U_z = -\frac{b}{2\pi} \left( \left( \frac{(1-\nu)\ln(x^2+z^2)}{4(1-\nu)} \right) + \frac{x^2-z^2}{4(1-\nu)(x^2+z^2)} \right) \quad (2.9)$$

avec  $U_x$  et  $U_z$  les champs de déplacements suivant  $x$  et  $z$  respectivement,  $\nu$  le coefficient de Poisson et  $x$  et  $z$  les distances auxquelles les champs de déplacements sont calculés.

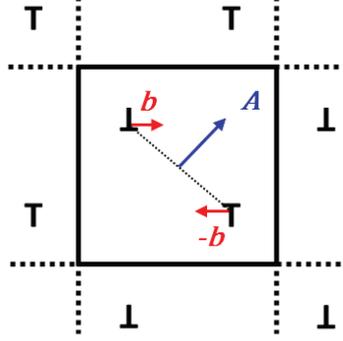


FIGURE 2.1 – Réseau quadrupolaire de dislocations représenté dans un plan perpendiculaire au vecteur ligne. Les traits pleins représentent la délimitation de la cellule de simulation et les traits pointillés représentent les images périodiques,  $A$  est le vecteur perpendiculaire au plan de coupe [SOU 18a].

L'insertion du dipôle de dislocations induit la formation d'une marche aux bords du système (induite par la compression d'une partie de la boîte) qui est supprimée afin de rétablir la périodicité dans la direction du vecteur de Burgers (Figure 2.2). Aussi, une extension de la cellule de simulation d'amplitude  $b/2$  est appliquée suivant la direction du vecteur de Burgers,  $\vec{x}$ , et un cisaillement de  $-b/2$  suivant  $xy$  pour tenir compte du cisaillement plastique induit par le dipôle de dislocations coins. Afin de préserver encore une fois la neutralité du système, les deux dislocations sont insérées respectivement à des positions  $(L_x/4 + \delta x, L_z/4 + \delta z)$  et  $(3L_x/4 + \delta x, 3L_z/4 + \delta z)$  avec  $\delta x = \delta z = 0.25 \text{ \AA}$ , de telle sorte que la marche supprimée soit neutre. La neutralité du système est vérifiée en fin de protocole en comptabilisant le nombre d'atomes d'uranium et d'oxygène.

Les interactions entre boucle d'irradiation et dislocation sont étudiées avec le même dipôle de dislocations coins ainsi qu'avec un dipôle de dislocations vis. De ce fait, un protocole similaire est utilisé pour le dipôle de dislocation vis, avec les vecteurs de Burgers cette fois orientés parallèlement aux vecteurs lignes, suivant  $y=[\bar{1}10]$ . Dans le cas vis, le champ de déplacement devient :

$$U_y = \frac{b}{2\pi} \arctan \frac{z}{x} \quad (2.10)$$

avec  $U_y$  le champ de déplacements suivant  $\vec{y}$  et  $z$  et  $x$  les coordonnées auxquelles le champ de déplacements est calculé.

#### *Calcul de la structure de cœur de la dislocation coin*

Pour les calculs d'énergie de structure de cœur de dislocation, la construction expliquée auparavant est appliquée et les dimensions des boîtes de calculs sont :  $L_x=244.3 \text{ \AA}$ ,  $L_y=92.3 \text{ \AA}$  ( $24b$ ),  $L_z=239.4 \text{ \AA}$  (402 336 atomes). Après construction de la cellule de simulation, l'énergie potentielle est minimisée par SM en utilisant les algorithmes de GC et Fast Inertial Relaxation

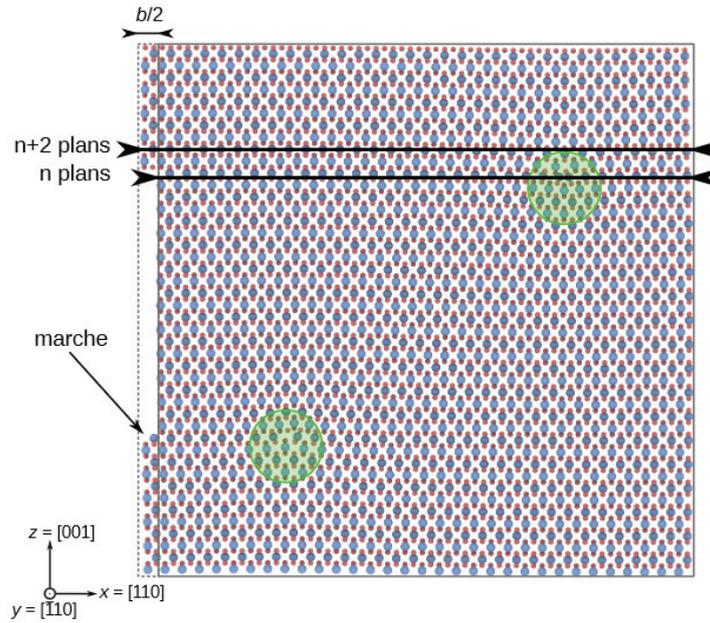


FIGURE 2.2 – Boîte de simulation après insertion du dipôle de dislocations coins. Les traits pleins représentent la boîte de simulation finale et les traits pointillés représentent la marche créée lors de l’insertion des deux dislocations. Les cœurs de dislocations sont mis en valeur par les cercles colorés en vert. Les atomes colorés en bleu et en rouge sont respectivement les atomes d’uranium et d’oxygène.

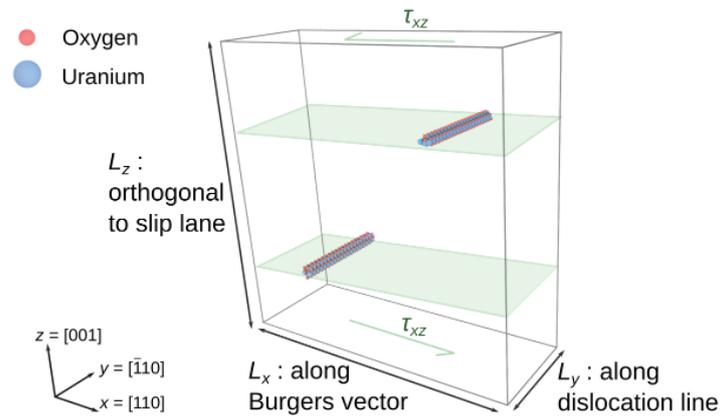


FIGURE 2.3 – Volume de simulation comprenant un dipôle de dislocations. Les plans verts correspondent aux plans de glissements des dislocations et les flèches vertes correspondent au sens de la contrainte appliquée.

Engine (FIRE) [BIT 06], sans relaxation de boîte, les dilatations et cisaillements macroscopiques induits par le dipôle de dislocations ayant été intégrés *a priori*. Les résultats de la simulation conduisent à des configurations de cœur de dislocation relaxées.

Après minimisation, l'énergie de dislocation  $E_{dislo}$  est calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$E_{dislo} = \frac{E - N \cdot E_{coh}}{2L_y} \quad (2.11)$$

avec  $E$  l'énergie après minimisation,  $N$  le nombre de molécules d'UO<sub>2</sub>,  $E_{coh}$  l'énergie de cohésion et  $L_y$  la longueur de ligne de la dislocation.

Par la suite, nous nous limiterons à comparer les énergies entre structures de cœur, de ce fait aucune correction élastique liée aux interactions entre les dislocations du dipôle et leurs images périodiques n'est nécessaire [ROD 17, CLO 09].

Les cellules de simulation sont ensuite chauffées jusqu'à 2200 K en DM pour étudier respectivement la stabilité des cœurs de dislocation et leur mobilité. Après une équilibration de 10 ps dans l'ensemble NVE, le système est progressivement chauffé jusqu'à la température souhaitée dans l'ensemble NPT à l'aide du formalisme de Nosé-Hoover [NOS 84a, HOO 85] avant une équilibration supplémentaire de 10 ps effectuée à  $T$  constante.

### 2.1.3.2 Mobilité des dislocations

Pour étudier la mobilité des dislocations coins, le système est d'abord chauffé dans l'ensemble NPT (avec une vitesse de chauffe de 50 K/ps) avant qu'une contrainte ne soit appliquée au volume de simulation via le barostat. Le protocole de simulation est présenté sur la figure 2.3. Pour déterminer la direction de sollicitation, on utilise la formule de Peach-Koehler 2.12 [PEA 50] :

$$\vec{F} = (\vec{\sigma} \cdot \vec{b}) \wedge \vec{l} \quad (2.12)$$

avec  $\vec{F}$  la force de Peach-Koehler agissant sur la ligne de dislocation par unité de longueur et  $\vec{\sigma}$  le tenseur des contraintes.  $\vec{b}$  et  $\vec{l}$  étant respectivement suivant  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ , on obtient l'équation 2.13.

$$\begin{pmatrix} F_x \\ F_y \\ F_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} b_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} 0 \\ l_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

$$\begin{pmatrix} F_x \\ F_y \\ F_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\sigma_{zx} b_x l_y \\ 0 \\ \sigma_{xx} b_x l_y \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

$\vec{F}$  dispose de deux composantes ; La première est suivant  $\vec{x}$  : c'est une composante de glissement perpendiculaire au vecteur ligne. La seconde, portée par  $\vec{z}$ , est une force de montée qui ne sera pas davantage prise en compte dans cette étude. A l'aide du barostat, on impose donc une contrainte  $\sigma_{xz}$  afin d'activer le glissement des dislocations, alors que les autres composantes du tenseur sont maintenues à 0 MPa.

Pour mesurer la vitesse des dislocations, deux méthodes ont été utilisées et comparées :

- La première consiste à isoler la dislocation en utilisant le DXA d'Ovito (appliqué au sous-réseau CFC d'uranium) et de calculer la vitesse instantanée en comparant deux images successives.
- La seconde méthode consiste à utiliser la loi d'Orowan (équation 2.16) prenant en compte le cisaillement de la boîte induit par le déplacement du dipôle de dislocations (schéma 2.4).

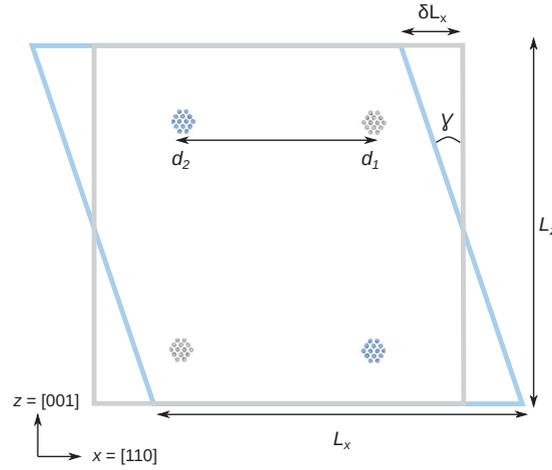


FIGURE 2.4 – Schéma représentant les dislocations à deux positions consécutives ( $d_1$  et  $d_2$ ) et le cisaillement de la boîte induit. Les dislocations à l'état initial et la boîte de simulation associée sont représentées en gris et l'état suivant est représenté en bleu.

D'après la géométrie du système (schéma 2.4), on a :

$$\gamma \approx \frac{\delta L_x}{L_z} \Rightarrow \dot{\gamma} \approx \frac{\delta \dot{L}_x}{L_z} \quad (2.15)$$

Aussi, d'après la loi d'Orowan (équation 2.16) permettant de relier la vitesse de cisaillement macroscopique, à la densité et la vitesse de glissement des dislocations mobiles, on a :

$$\dot{\gamma} = \rho_m b v \quad (2.16)$$

avec  $\dot{\gamma}$  la vitesse de cisaillement plastique,  $\rho_m = 2/(L_x L_z)$  la densité de dislocations mobiles et  $v$  la vitesse moyenne des dislocations mobiles.

Des équations 2.15 et 2.16, on déduit :

$$\Rightarrow \dot{\gamma} = 2b \frac{v}{L_x L_z} \quad (2.17)$$

Des équations 2.15 et 2.17, on obtient :

$$\Rightarrow \frac{\delta \dot{L}_x}{L_z} = 2b \frac{v}{L_x L_z} \quad (2.18)$$

On en déduit la vitesse moyenne des deux dislocations,  $v$  :

$$v = \frac{L_x \delta \dot{L}_x}{2b} \quad (2.19)$$

$L_x$  et  $b$  sont des constantes connues et la longueur  $\delta L_x$  est connue au fil du temps grâce aux fichiers de sortie de LAMMPS. *In fine*, les deux méthodes permettent d'obtenir des résultats similaires et la méthode d'Orowan a rapidement été favorisée pendant ce travail de thèse.

### 2.1.3.3 Interaction entre dislocation et boucle d'irradiation

#### *Boucle prismatique et volume de simulation*

Comme expliqué dans le chapitre 1, les boucles d'irradiation dans  $\text{UO}_2$  sont en majeure partie générées dans les plans  $\{110\}$ ; Elles sont parfaites (non-fautées, ce qui implique une épaisseur de boucle de deux plans cristallins, voir figure 1.28) et caractérisées par un vecteur de Burgers de type  $1/2\langle 110 \rangle$  normal au plan d'habitat [ONO 17, LEP 16]. Dans ce travail, on étudie des boucles prismatiques interstitielles et carrées afin de conserver la stœchiométrie de l'objet et de la boîte. Le diamètre moyen (comme observé dans l'expérience d'Onofri *et al.* [ONO 16a]) est de 50 Å, et fera l'objet d'une étude paramétrique dans le cadre des interactions dislocation-boucle. Pour les calculs atomistiques, on utilise l'outil Atomsk [HIR 15] afin d'insérer une boucle d'irradiation (en précisant l'orientation de  $\vec{b}$  normal au plan) dans le volume de simulation contenant le dipôle de dislocations. A partir de l'équation du champ de déplacement d'une boucle carrée (équation 2.20), Atomsk éloigne les atomes (création d'un espace vide) et le doublé de plans formant la boucle prismatique est inséré manuellement (figure 2.6). Dans Atomsk, le champ de déplacements  $\vec{u}_f$  associé à une boucle est définie à l'aide du formalisme de Barnett [BAR 85] :

$$\vec{u}_f = \vec{u}_{el} + \vec{b} \cdot \Omega \quad (2.20)$$

avec  $\Omega$  l'angle solide (normalisé par  $4\pi$ ), illustré par la figure 2.5, formé par une boucle de dislocation triangulaire ABC à l'origine [VAN 83] :

$$\vec{b} \cdot \Omega = \frac{\vec{b}}{4\pi} \arctan \left[ \frac{\vec{R}_a \cdot \vec{R}_b \cdot \vec{R}_c}{r_a r_b r_c + (\vec{R}_a \cdot \vec{R}_b) \cdot r_c + (\vec{R}_b \cdot \vec{R}_c) \cdot r_a + (\vec{R}_c \cdot \vec{R}_a) \cdot r_b} \right] \quad (2.21)$$

avec  $r_a, r_b, r_c$  les magnitudes des vecteurs  $\vec{R}_a, \vec{R}_b, \vec{R}_c$  représentés sur la figure 2.5 et avec  $\vec{u}_{el}$ , le déplacement créé par le segment de dislocation AB après suppression de la partie solide de l'angle (calculé en élasticité isotrope) :

$$\vec{u}_{el} = \left[ - (1 - 2\nu) (\vec{b} \wedge \vec{t}_{ab}) \ln \left( \frac{r_b(\vec{R}_b) \cdot \vec{t}_{ab}}{r_a(\vec{R}_a) \cdot \vec{t}_{ab}} \right) + \vec{b} \cdot \vec{n}_{ab} \left( \left( \frac{\vec{R}_b}{r_b} - \frac{\vec{R}_a}{r_a} \right) \wedge \vec{n}_{ab} \right) \right] \frac{1}{8\pi(1 - \nu)} \quad (2.22)$$

avec les notations  $\vec{n}_{ab}$  et  $\vec{t}_{ab}$  :

$$\vec{n}_{ab} = \frac{\vec{R}_a \wedge \vec{R}_b}{\|\vec{n}_{ab}\|} \quad , \quad \vec{t}_{ab} = \frac{\vec{R}_a \wedge \vec{R}_b}{\|\vec{t}_{ab}\|} \quad (2.23)$$

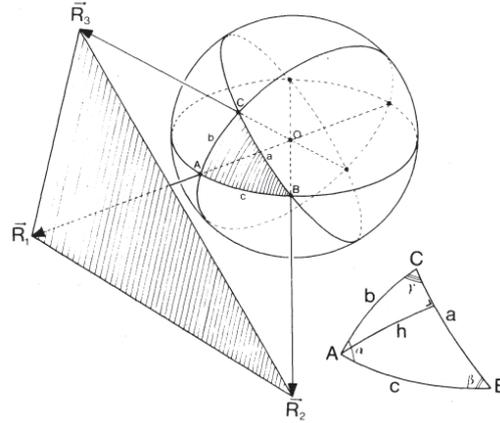


FIGURE 2.5 – Illustration du formalisme de Barnett pour définir le champ de déplacement associé à une boucle. Ici on montre l'angle solide sous-tendu par un triangle plan en un point arbitraire de l'espace [VAN 83].

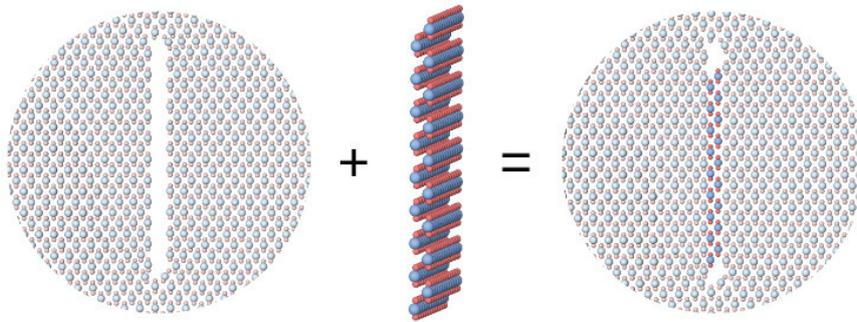


FIGURE 2.6 – Schémas de l'insertion d'une boucle d'irradiation dans le cadre d'une simulation atomistique.

Les simulations d'interaction entre une dislocation mobile (caractères coin et vis) et une boucle d'irradiation sont effectuées en DM et en DDD.

#### *Simulation de l'interaction dislocation-boucle*

Les boîtes de simulation utilisées pour étudier les interactions dislocation-boucle sont très similaires à celles déjà utilisées pour étudier le dipôle de dislocations. On utilise le même dipôle

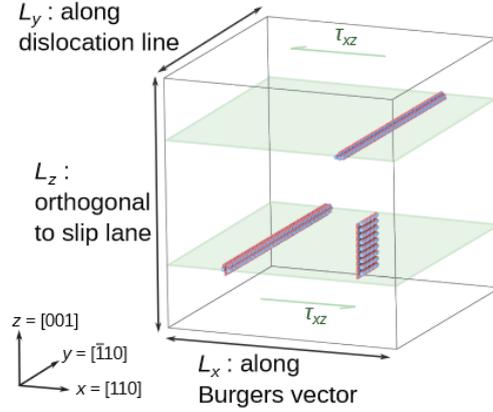


FIGURE 2.7 – Schéma de la boîte de simulation avec le dipôle de dislocations et une boucle d’irradiation dont le vecteur de Burgers est suivant  $x=[110]$ .

en CLP et une boucle d’irradiation est insérée face à l’une des dislocations mobiles (figure 2.7). L’orientation du système est inchangée, seule la dimension suivant la longueur de ligne des dislocations varie ( $L_x=244.3 \text{ \AA}$ ,  $L_y=246.3 \text{ \AA}$ ,  $L_z=239.4 \text{ \AA}$ ) afin que la boucle d’irradiation interagisse moins avec ses images périodiques. Afin d’étudier les interactions dislocation-boucle d’irradiation, l’énergie est d’abord minimisée, puis le système est chauffé jusqu’à 2000 K dans l’ensemble NPT avant d’être mis sous contrainte ( $\sigma_{xz}=900 \text{ MPa}$ ), de la même façon que dans le protocole pour étudier la mobilité des dislocations (section 2.1.3.2).

Des conditions supplémentaires sont appliquées pour les simulations réalisées en DDD, elles seront détaillées dans la section 2.2.2

## 2.2 Dynamique des dislocations discrètes

### 2.2.1 Introduction à la dynamique des dislocations discrètes

La DDD est une technique à l’échelle mésoscopique qui permet d’étudier le comportement collectif des dislocations. Ces simulations permettent de faire le lien entre l’échelle atomique et l’échelle macroscopique. La DDD se base sur la théorie de l’élasticité et permet de travailler avec des grandes boîtes de simulations (plusieurs centaines de nanomètres) et ainsi intégrer une population statistique de défauts. Il existe différents codes de DDD catégorisés selon la discrétisation utilisée : les codes à base de segments (*e.g.* microMegas [DEV 11]) et les codes nodaux (*e.g.* ParaDis [ARS 07] ou Numodis [DRO 14, SHI 15]) (Figure 2.8). La discrétisation nodale consiste à représenter les lignes de dislocation par une série de nœuds connectés entre eux par des segments et chaque segment va avoir son propre système de glissement alors que les codes à base de segments reposent sur une base de vecteur ou chaque portion de dislocation (dans chaque plan étudié) est prédéfinie. Les codes nodaux permettent de réaliser des calculs complexes d’interactions entre dislocations intégrant la formation de jonction. Dans ce travail, nous avons utilisé le code nodal Numodis qui repose sur le *workflow* général suivant :

- discrétisation des dislocations par des nœuds,

- calcul des forces subies sur chaque nœuds (expliqué par la suite),
- calcul de la vitesse de chaque nœud depuis l'utilisation d'une loi de mobilité,
- calcul du déplacement des nœuds pour le pas de temps considéré,
- gestion des collisions.

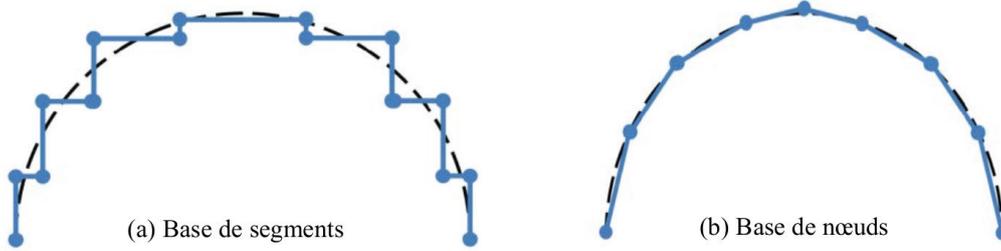


FIGURE 2.8 – Discretisation d'une dislocation dans : a) codes à base de segments et b) codes nodaux [SHI 14].

Dans cette thèse, le calcul de forces sur les nœuds sont réalisés en faisant l'hypothèse de l'élasticité isotrope et en utilisant la relation de Peach-Koehler (*cf* équation 2.12) avec une somme de contributions de contraintes :

$$\bar{\sigma} = \bar{\sigma}_{app} + \bar{\sigma}_{int} \quad (2.24)$$

avec  $\bar{\sigma}_{app}$  le champ de contrainte appliqué macroscopiquement et  $\bar{\sigma}_{int}$  le champ de contrainte produit par tous les nœuds présents dans la simulation.

Numodis est structuré en plusieurs fichiers permettant de créer les dimensions de la boîte, d'imposer les conditions aux bords, définir l'orientation du système, de définir le matériau, de définir les forces/contraintes appliquées à la boîte, de donner les conditions de simulations et enfin de discrétiser dans l'espace. Concernant le matériau, il est nécessaire de connaître les lois de mobilité à associer à chaque système de glissement et chaque caractère de dislocation. Dans cette thèse, les calculs de DDD sont réalisés dans le régime athermique de déformation ( $T > T_a$ ) et la loi visqueuse, décrite par l'équation 2.25, a été ajustée sur des résultats de DM (voir chapitre 4).

$$v(\tau) = \frac{\tau b}{B} \quad (2.25)$$

avec  $\tau$  la contrainte appliquée et  $B$  le coefficient de frottement.

Le code de la figure 2.9 permet d'imposer les sollicitations appliquées au volume de simulation et de définir la discrétisation. Il peut être décomposé en trois parties :

- *integration* : définition du temps initial de la simulation, du pas de temps (en ns) et de la fréquence de sauvegarde des fichiers. Comme en DM, la discrétisation temporelle est importante : si elle est trop grande on peut ne pas voir un évènement (tel que la formation d'une jonction), à l'inverse si elle est trop petite, le temps de calcul devient plus long et peut également engendrer des artefacts de déformation purement numériques.

```

<?xml version="1.0" encoding="UTF-8" standalone="no"?>
<root>
  <integration
    time="0"
    dtime="0.000001" dmax="1.2"
    saving_frequency="500" />
  <loading>
    <load name="ConstantStress" stress="PureShearStress"
      grain="0"
      nh="0" nk="0" nl="1"
      mh="1" mk="1" ml="0"
      amplitude="900">
      <stop name="nstep" nstep="200000" />
    </load>
  </loading>
  <discretization lmin="5" lmax="20" />
  <intersection captureradius="1.5" captureangle="0.25" ltiny="0.001" />
</root>

```

FIGURE 2.9 – Code pour imposer la contrainte appliquée à la boîte de simulation et la discrétisation dans l’espace avec Numodis.

- *loading* : application d’une contrainte de cisaillement constante (en MPa) ou d’une vitesse de cisaillement (en  $\text{ns}^{-1}$ )
- *discretization* : c’est l’objet de plus petite taille qui fixe la taille de la discrétisation, dans notre cas c’est la boucle d’irradiation qui mesure 50 Å de côté (figure 2.10). Afin d’avoir une discrétisation précise, il faut placer au moins trois nœuds par segments, la longueur moyenne,  $l_{\text{moy}}$ , entre chaque nœud est imposée entre 5 et 20 Å. Cette variation de longueur est gérée directement par le code Numodis en fonction de la discrétisation nécessaire à chaque pas de temps de calcul.

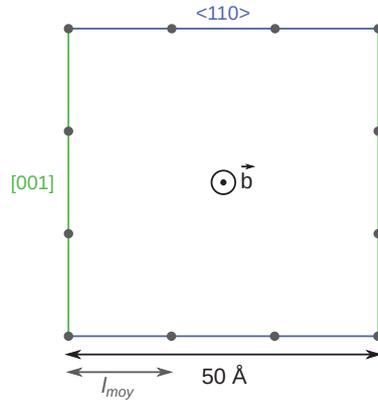


FIGURE 2.10 – Discrétisation d’une boucle d’irradiation de forme carrée dans Numodis.

### 2.2.2 Protocoles de simulations

Dans cette thèse, nous utilisons la DDD afin d’obtenir plus de statistiques sur les interactions dislocation-boucle d’irradiation. Tout d’abord, un premier protocole de simulation en DDD consiste à reproduire les interactions dislocation-boucle réalisées au préalable en DM pour vérifier

les paramètres introduits en DDD et vérifier le bon accord entre les deux modélisations. Afin d'être au plus proche des conditions utilisées en DM, les simulations de DDD sont réalisées en CLP, avec les mêmes dimensions de boîte, le même pas de temps et la même contrainte de cisaillement (900 MPa) qu'en DM. Le dipôle de dislocations et une boucle d'irradiation sont insérés au même endroit qu'en DM dans le volume (figure 2.11).

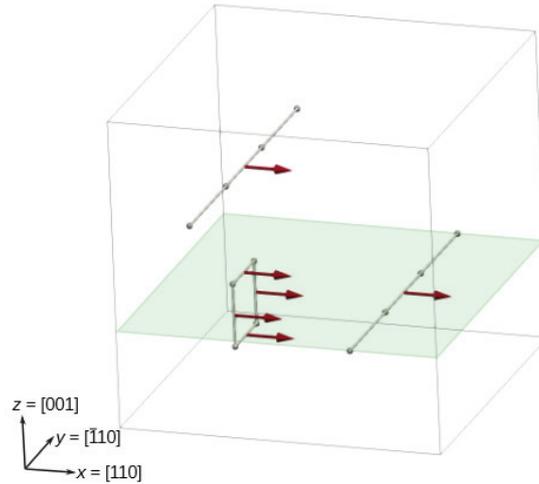


FIGURE 2.11 – Volume de simulation de DDD comprenant une ligne de dislocation et une boucle d'irradiation avec les sphères sur les lignes de dislocations représentant la discrétisation, les flèches rouges représentant les vecteurs de Burgers et le plan vert représentant le plan de glissement de la dislocation. Par mesure de clarté le plan de glissement de la dislocation placée au dessus de la boucle d'irradiation n'est pas représenté.

La dernière étude de cette thèse porte sur le durcissement induit par les boucles d'irradiation sur la plasticité de  $\text{UO}_2$ . Afin de quantifier le durcissement, on définit un second protocole de simulation en DDD. On utilise un volume de simulation élargi :  $200 \times 200 \times 50 \text{ nm}^3$  afin d'introduire plus de défauts, une étude uniquement possible par DDD. Nous imposons des conditions périodiques suivant  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  et des bords libres suivant  $\vec{z}$ . Comme illustrée à la figure 2.12, une densité de boucles d'irradiations égale à  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  (inspirée de l'expérience *cf* chapitre 1 et [ONO 16a]) et une ligne de dislocation infinie sont insérées dans la boîte de simulation. Dans cette étude on impose une vitesse de cisaillement constante égale à  $10^{-5} \text{ s}^{-1}$  (correspondant à une vitesse de dislocation de 2.5 m/s) comparable à des conditions classiques de déformation expérimentale.

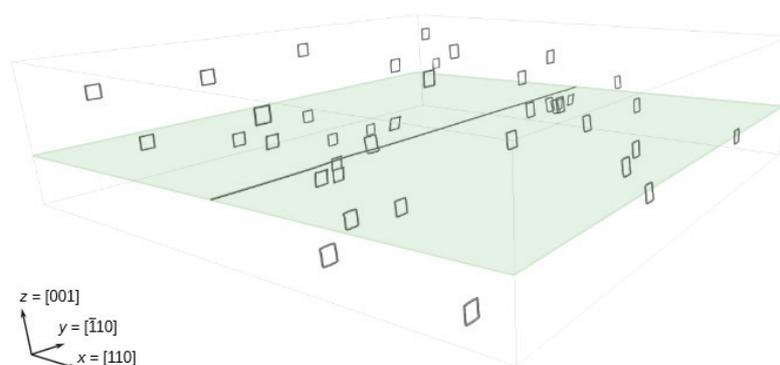


FIGURE 2.12 – Volume de simulation en DDD comprenant une ligne de dislocation et une densité de boucles d'irradiation.

**Résumé**

Dans ce chapitre nous avons introduit les calculs atomistiques et la DDD ainsi que les protocoles développés et utilisés au cours de la thèse.

Concernant la DM, les points à retenir sont :

- l'utilisation du potentiel ions rigides paramétrisé par Potashnikov et celui à charges variables SMTB-Q ainsi que la sommation de Wolf,
- l'insertion d'un dipôle de dislocations par les champs élastiques de déplacements,
- la minimisation du dipôle à l'aide des algorithmes GC et FIRE,
- l'utilisation d'un thermostat de Nosé-Hoover afin de chauffer le système dans l'ensemble NPT et un barostat de même type pour contrôler la pression,
- l'orientation du volume de simulation :  $x = [110]$ ,  $y = [\bar{1}10]$ ,  $z = [001]$  et l'utilisation des CLP

*Étude de la vitesse des dislocations :*

- les dimensions des cellules de simulation :  $L_x=244.3 \text{ \AA}$ ,  $L_y=92.3 \text{ \AA}$  (24b),  $L_z=239.4 \text{ \AA}$  (402 336 atomes)
- l'utilisation de la formule d'Orowan pour les mesures de vitesse de dislocation,

*Étude de l'interaction dislocation-boucle d'irradiation :*

- les dimensions des cellules de simulation :  $L_x=244.3 \text{ \AA}$ ,  $L_y=246.3 \text{ \AA}$  (72b),  $L_z=239.4 \text{ \AA}$  (1 073 106 atomes)
- l'insertion d'une boucle d'irradiation prismatique interstitielle parfaite dans le volume de simulation avec les deux dislocations : taille de  $50 \text{ \AA}$  et vecteurs de Burgers suivant  $\langle 110 \rangle$
- la température du système est de 2000 K et la contrainte de 900 MPa.

Pour la partie DDD, les points à retenir sont :

- l'utilisation du code nodal Numodis,
- la discrétisation, fixée entre 5 et  $20 \text{ \AA}$ ,
- le volume de simulation orienté :  $x = [110]$ ,  $y = [\bar{1}10]$ ,  $z = [001]$ ,

*Étude de l'interaction dislocation-boucle d'irradiation :*

- l'utilisation du même protocole qu'en DM : taille de boîte identique, CLP, dipôle de dislocations et une boucle d'irradiation, température de 2000 K, contrainte de 900 MPa

*Simulation du durcissement :*

- les dimensions :  $L_x=2000 \text{ \AA}$ ,  $L_y=2000 \text{ \AA}$ ,  $L_z=500 \text{ \AA}$  avec CLP en  $x$  et  $y$  et bords libres suivant  $z$ ,
- l'ajout d'une population de boucles d'irradiation ( $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) prismatiques interstitielles parfaites, de diamètres  $50 \text{ \AA}$ , de vecteurs de Burgers  $1/2\langle 110 \rangle$  et d'une ligne de dislocation infinie,
- la vitesse de cisaillement :  $10^5 \text{ s}^{-1}$  et la température du système de 2000 K



## Chapitre 3

# Atomic-scale modeling of $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ edge dislocations in $\text{UO}_2$ : core properties and mobility

*Ce chapitre est écrit sous forme d'article, soumis en septembre 2022. Le chapitre 3 permet de comprendre les structures de cœurs de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  grâce à différentes simulations atomiques en utilisant plusieurs potentiels empiriques et grâce à des calculs de DFT. Aussi, la vitesse de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$  est étudiée à différentes températures et contraintes. La section reprend, en partie, les protocoles décrits dans le chapitre 2. Les calculs DFT ont été réalisés par M. Freyss au CEA de Cadarache et les calculs NEB par D. Rodney et J. Amodeo. Le "supplementary material" est fourni en annexe 1 du manuscrit.*

*The dislocation properties of  $\text{UO}_2$ , the main nuclear fuel material, are important ingredients to model the mechanical properties and predict nominal and accidental operations of nuclear plant reactors. However, the plastic behaviour of  $\text{UO}_2$  is complex with little known about dislocations and other extended defects. In this study, we use a combination of interatomic potential-based atomistic simulations and ab initio calculations to investigate the core structure and mobility of the  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation, which controls the plasticity of  $\text{UO}_2$  single crystals. Various dislocation cores are obtained and compared, including the classical asymmetric Ashbee core and a so-far unreported core made of an alternation of both variants of the Ashbee core along the dislocation line. This new core, called here zigzag, is ubiquitous in molecular dynamics simulations at high temperature in the nominal-to-accidental transient regime (1600 to 2200 K). Molecular dynamics is also used to determine the velocity of the edge dislocation as a function of temperature and stress. A dislocation mobility law is adjusted from the simulations and provides an up-scaling ingredient central to the multi-scale modeling of  $\text{UO}_2$  nuclear fuel mechanical properties.*

### 3.1 Introduction

Uranium dioxide ( $\text{UO}_2$ , fluorite structure,  $a_0=5.47\text{\AA}$ ) is the most important fuel material used in pressurised water reactors. During nominal or accidental operations, the temperature in the fuel pellets varies significantly, in a range between 1200 and 2700 K. The induced thermal gradients can generate significant thermomechanical stresses responsible for the deformation and fracture of the pellets [OGU 83, MIC 08]. As a consequence, a better understanding of the material viscoplastic behaviour is crucial to provide a solid foundation for predictive multi-scale models of nuclear fuel under irradiation.

The primary slip system of  $\text{UO}_2$  single crystals is  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  for which deformation microstructures are typical of materials with a high-lattice friction *i.e.*, they are composed of dislocations with an anisotropic shape made of extended edge segments as well as zigzag portions [YUS 69, SEL 70, ALA 78]. As a consequence, the glide of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation is known as the rate-limiting process for the deformation of  $\text{UO}_2$  single crystals.

Several studies focused on measuring the Critical Resolved Shear Stress (CRSS) of  $\text{UO}_2$  single crystals as a function of temperature [NAD 69, SAW 71, LEF 77, BYR 68b]. Lefebvre and Byron described a typical thermally-activated non-linear decrease of the CRSS in the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  system down to an athermal stress plateau of about 20 MPa for temperatures above  $T_a=1750$  K. Plastic slip in the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{110\}$  system was also identified but at larger stresses than for primary slip systems [NAD 69, SAW 71]. Finally, a few evidence of  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{111\}$  dislocations were also reported [SAW 71, KEL 88b] but no CRSS are available as  $\{111\}$  slip is always activated together with  $\{001\}$  and/or  $\{110\}$  in  $\text{UO}_2$ .

To complement experimental investigations, atomistic simulations using semi-empirical potentials were performed. Up to now, they were used to characterize the lattice friction and Peierls barriers, the 0 K Peierls stress as well as to compute CRSS *vs.* temperature profiles [PAR 10, FOS 13, SKE 17, SOU 18b]. Concerning the various slip systems, CRSS computations at high strain-rate ( $\sim 10^8 \text{ s}^{-1}$ ) using Molecular Dynamics (MD) qualitatively confirmed the experimental evidence about slip systems *i.e.*, the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  slip is easier than in both other systems. Recently, Soulié *et al.* confirmed using a variable-charge SMTB-Q potential that the edge dislocation requires a larger stress than the screw component to glide in  $\{001\}$  [SOU 18b]. Also, Lunev *et al.* [LUN 17] investigated the mobility of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation using several rigid-ion pair potentials including the Yakub [YAK 07], Morelon [MOR 03] and Potashnikov parameterizations [POT 11] as well as the Cooper, Rushton and Grimes (CRG) many-body potential [COO 14]. While pair potentials are known to describe elastic constants in oxides with limited accuracy (Cauchy rule violation), the Potashnikov potential reproduces best the ionicity parameter  $Q = 1 - \exp(-\Delta x^2/4)$  where  $\Delta x$  is the electronegativity variation between U and O atoms [PAU 32].  $Q$  is believed to be a critical factor influencing the dislocation mobility in  $\text{UO}_2$  [LUN 17]. Indeed, Lunev and collaborators have shown that the Yakub and CRG potentials, which both have  $Q \sim 0.55$ , predict similar dislocation velocities at 2000 K, while larger velocities (up to a factor 3) are obtained with the Morelon and Potashnikov potentials that have a larger  $Q=0.689$ , closer to the theoretical value ( $Q_{th}=0.654$ ). However, the authors did not provide detailed information on the core configuration they modeled while the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation can potentially adopt different cores, either neutral or charged [EVA 69a, AME 58, ASH 70, BRA 70]. Thus, while the Potashnikov potential appears as a good alternative to more expensive variable-charge potentials, the question of the influence of the core configuration on the mobility of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation is still to be clarified.

In the present work, we investigate the core structure and mobility of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$  using first-principles calculations and classical interatomic potential-based simulations. Various core structures are obtained including neutral and charged configurations. Special attention is paid to the influence of temperature on the fine structure of the dislocation core. The dislocation mobility is computed in the 1600 to 2200 K temperature range characteristic of a nominal-to-accidental transient regime. Simulation results are discussed in light of recent investigations performed on  $\text{UO}_2$  dislocation core and mobility.

## 3.2 Simulation methods

Atomistic simulations in  $\text{UO}_2$  are performed using the Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS) package [PLI 95]. Interactions between atoms are modeled using the rigid-ion potential adjusted by Potashnikov *et al.* [POT 11] and the SMTB-Q potential [MAR 15a, SAL 16]. Both were recently used to model dislocations in  $\text{UO}_2$  [LUN 17, LUN 18]. To handle Coulombic interactions, Ewald summation [EWA 21] and Wolf truncation [WOL 99] methods were tested with the Potashnikov potential, leading to quantitatively similar results but a higher computational efficiency with Wolf truncation (see supplementary materials). Also, the SMTB-Q potential is compatible with only this method [MAR 15a]. We thus used Wolf's truncation for all molecular simulations presented in the following. The Wolf radius and damping coefficient are set respectively to 11 Å and  $0.3 \text{ Å}^{-1}$  for both Potashnikov and SMTB-Q potentials. Short-range interactions with the rigid-ion potential were also cut-off at 11 Å.

First principles density-functional theory (DFT) calculations are performed using the Projector Augmented Wave (PAW) formalism as implemented in the Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) [BLÖ 94, KRE 99] using the Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) exchange-correlation functional [PER 96]. An additional on-site Coulombic repulsion is added by including a Hubbard-like term in the Hamiltonian in the rotationally-invariant form proposed by Lichtenstein in order to account for the strong 5f electron correlations [LIC 98]. The on-site  $U$  and  $J$  parameters are set to  $U = 4.50 \text{ eV}$  and  $J = 0.54 \text{ eV}$ , consistent with the values used in previous works [WIK 14, BS 15, VAT 17, BRU 18]. We also use the Occupation Matrix Control (OMC) scheme to avoid convergence of the self-consistent calculations to metastable states [DOR 09]. Calculations are performed at the  $\Gamma$  point with a 500 eV cut-off energy. Spin-polarization is taken into account in a  $1 \vec{k}$  collinear antiferromagnetic order as an approximation of the  $3 \vec{k}$  non-collinear antiferromagnetic order of  $\text{UO}_2$  below  $T_N=31 \text{ K}$  [AMO 89], which is not computationally tractable for large supercells.

Atomic configurations are characterized using Ovito [STU 09] and the Polyhedral Template Matching (PTM) crystallographic algorithm [LAR 16] applied to the uranium Face-Centered Cubic (FCC) sublattice.

### 3.2.1 Dislocation dipole configuration

The  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation core structure is investigated using the dislocation dipole method [CAI 03, ROD 17]. First, perfect fluorite crystals of size  $(L_x, L_y, L_z)$  and oriented along  $x = [110]$ ,  $y = [\bar{1}10]$ ,  $z = [001]$  are built using ATOMSK [HIR 15]. As illustrated in Figure

3.1, two edge dislocations with opposite Burgers vectors ( $\vec{b}$  along  $x = [110]$ , dislocation line  $\vec{l}$  along  $y = [\bar{1}10]$ ) are then introduced respectively at  $(L_x/4 + \delta x, L_z/4 + \delta z)$  and  $(3L_x/4 + \delta x, 3L_z/4 + \delta z)$  using the isotropic elastic theory [HIR 82]. Dimensions up to  $L_x=244.3 \text{ \AA}$ ,  $L_y=92.3 \text{ \AA}$  (24b),  $L_z=239.4 \text{ \AA}$  (402 336 atoms) and  $L_x=21.2$ ,  $L_y=7.7 \text{ \AA}$  (2b),  $L_z=27.2 \text{ \AA}$  (330 atoms) are used respectively for classic and DFT simulations. The excess slice of atoms generated by the introduction of the dislocation dipole is removed in the  $x = L_x$  region before the box is adapted accordingly.  $\delta x=\delta z=0.25 \text{ \AA}$  keeps the neutrality of the excess slice of atoms and avoids the appearance of spurious defects during the introduction of the dislocation dipole. Thus, the charge neutrality of the whole simulation cell is maintained after excess atoms are removed and periodic boundary conditions (PBCs) are applied in the glide direction. In both classic and DFT simulations, the simulation cell is extended of  $b/2$  along the  $x$  direction and tilted by  $-b/2$  ( $xz$  orientation) to accommodate the plastic shear introduced by the edge dislocation dipole [BAC 09]. At this stage, the resulting configuration is made of two edge dislocations with charged cores, one positive and the other negative. To obtain neutral cores, an extra column of oxygen atoms in the negatively-charged core is moved to the positively-charged one. Unrelaxed configurations are shown in the supplementary materials. In both cases, the simulation cells are neutral and PBCs are used along the three directions of space.

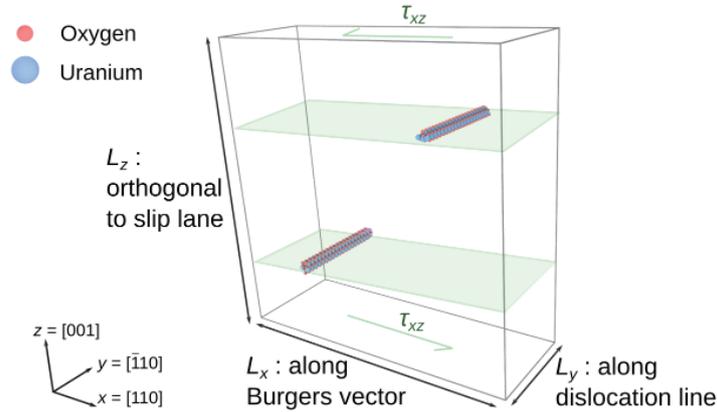


FIGURE 3.1 – Dislocation dipole simulation cell and crystallographic orientations. The edge dislocation dipole is aligned with the  $y=[\bar{1}10]$  direction, the Burgers vectors are along  $x=[110]$  and the glide plane has  $z=[001]$  normal. 3D periodic boundary conditions are applied. For velocity simulations, a shear stress  $\tau_{xz}$  is applied to the simulation cell using the Nosé-Hoover barostat.

### 3.2.2 Dislocation core relaxation and equilibration

After fabrication of the simulation cell, the internal energy is minimized using the conjugate gradient and FIRE [BIT 06] algorithms (the latter being used in molecular statics simulations only). Simulation convergence is obtained using a criterion on the total resulting net force on the system of  $f_n = 10^{-10}$ ,  $10^{-6}$  and  $10^{-2} \text{ eV/\AA}$  respectively for the Potashnikov potential, the SMTB-Q potential and DFT simulations. After energy minimization, the dislocation energy  $E_{dislo}^X$  is computed using :

$$E_{dislo}^X = \frac{E^X - N \cdot E_{coh}}{2l}, \quad (3.1)$$

where  $E^X$  is the energy of the cell containing a dislocation dipole after energy minimization,  $X$  will be used to denote the type of dislocation core (*e.g.*, Ashbee, Amelincks, ..., see below),  $N$  is the number of  $\text{UO}_2$  molecules and  $E_{coh}$  the cohesive energy. Since in the following, we will only discuss relative dislocation energies between dislocation cores, no elastic correction related to the interactions between the dislocations of the dipole and between these dislocations and their periodic images is needed [CLO 09, ROD 17].

To study the thermal stability of the dislocation cores, the relaxed simulation cells are heated up to 2000 K using MD. To that effect, atom velocities are initially randomly set using a gaussian distribution at a temperature of 5 K. After 10 ps equilibration in the NVE ensemble, the system is progressively heated up ( $\dot{T} = 50$  K/ps) in the NPT ensemble using the Nosé-Hoover formalism [NOS 84b] before running an additional 10 ps equilibration at constant  $T$ . In this study, simulation timesteps of 1 and 0.2 fs are used respectively for the Potashnikov and SMTB-Q potentials. The simulation cells are finally quenched again to investigate the dislocation core structures after returning at 0 K.

### 3.2.3 Dislocation velocity

To compute the dislocation velocity under constant stress and temperature,  $v(\tau, T)$ , the relaxed configuration of the neutral dipole with a dislocation line length of  $24b$  is first heated up to temperatures between 1600 to 2200 K using the NPT ensemble at a heating rate of 50 K/ps. For each temperature, a constant shear stress  $\tau = \tau_{xz}$  is applied using the Nosé-Hoover barostat after a short equilibration time of 10 ps while the other components of the stress tensor are maintained at zero. The dislocation velocity is derived from the Orowan's equation  $\dot{\gamma} = \rho_m b v(\tau, T)$  where  $\dot{\gamma}$  is the plastic shear rate here inferred from the simulation cell shape evolution and  $\rho_m = 2/(l_x l_z)$  is the mobile dislocation density.

## 3.3 Results

### 3.3.1 $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$ edge dislocation core : neutral vs. charged configurations

Figure 3.2 shows the relaxed configurations of the charged (positive and negative) edge dislocation cores obtained with the Potashnikov potential. The positively charged core presented in Figure 3.2a is characterized by two columns of  $\text{UO}_{1.5}$  molecules *i.e.* two UO columns of atoms that encompass an axis-aligned O column in the centre of the dislocation core region. For the negatively-charged core (Figure 3.2b), the additional charges force the reorientation of neighboring  $\text{UO}_2$  molecules repelling oxygen atoms. Also, the symmetry of parts of the O columns breaks during energy minimization leading to alternate positions of the O atoms along the dislocation line that better accommodate local charge variations.

The neutral relaxed configuration computed using the Potashnikov potential is shown in Figure 3.3a. It is characterized by a central  $\text{UO}_2$  motif asymmetrically tilted out from the  $[001]$  direction

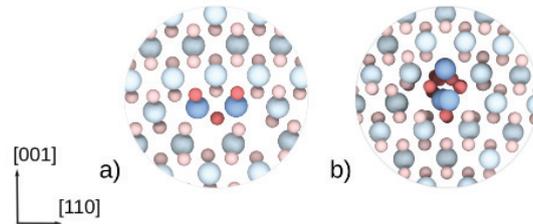


FIGURE 3.2 – Relaxed configurations of  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  charged dislocation edge cores computed at 0 K using the Potashnikov interatomic potential, (a) positively-charged dislocation core and (b) negatively-charged dislocation core. Atoms colored in red and blue refer respectively to oxygen and uranium.

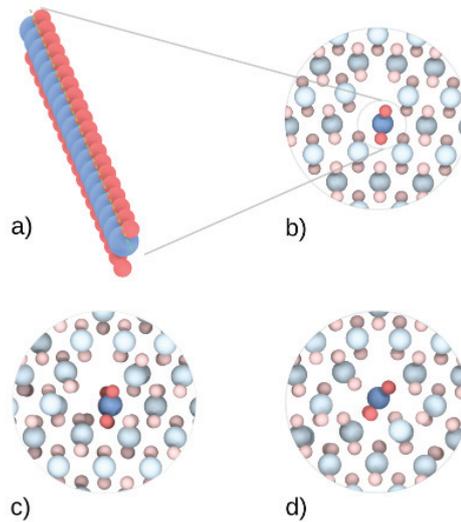


FIGURE 3.3 – Relaxed configuration of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  neutral dislocation edge core computed at 0 K : the Ashbee core, (a) Perspective view along the dislocation line, (b) Potashnikov fixed-charge potential, (c) SMTB-Q variable-charge potential, (d) DFT.

towards either the  $[110]$  or the  $[\bar{1}\bar{1}0]$  direction. There are thus two equivalent variants (left and right) for this core configuration, which corresponds to the asymmetrical Ashbee core detailed in [ASH 70]. Relaxed configuration obtained using the SMTB-Q potential and DFT are shown for comparison in Figures 3.3c and d, respectively. The configuration obtained with DFT is close to that obtained with the Potashnikov potential and differs only by larger rotations of the  $\text{UO}_2$  molecules away from the  $[001]$  direction. By way of contrast, the SMTB-Q potential still predicts an asymmetrical core but characterized by an alternation of the O atoms along the dislocation line. The Potashnikov potential thus predicts fairly well the Ashbee dislocation core compared to DFT calculations.

The energy difference between  $E_{dislo}^{Ashbee}$  and  $E_{dislo}^{charged}$  (average over the two charged cores) computed using the Potashnikov potential is  $\Delta E = E_{dislo}^{Ashbee} - E_{dislo}^{charged} = -1.66$  eV/b. This confirms the higher stability of the neutral Ashbee core when compared to the charged cores.

### 3.3.2 High-temperature $1/2\langle 110 \rangle \{100\}$ edge dislocation : the zigzag core

To investigate the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation core structure in conditions relevant for power transient or accidental conditions, the simulation cell is then heated up using Potashnikov potential. Simulation results show a reconstruction of the dislocation core for  $T > 450$  K and maintained at higher temperatures. As illustrated in Figure 3.4, the new dislocation core configuration breaks the translational symmetry of the Ashbee core. It is formed by an alternation of both left and right variants of the Ashbee core along the dislocation line, thus on average, restoring a symmetrical core. This new *zigzag* dislocation core structure remains stable after an energy minimization from  $T = 500$  K *i.e.*, the core does not revert back to the asymmetrical Ashbee configuration. Note that this structure obtained after energy minimization from a high-temperature configuration may contain defects in the periodic succession of both variants along the dislocation line (pseudo-period of  $2b$ ).

To further confirm the relevance of the *zigzag* core, the new configuration is further investigated using both potentials and DFT calculations. As an input, we use a handmade *zigzag* core configuration built from the Ashbee core in which O atoms are forced to alternate with a strict period of  $2b$  along the dislocation line. Relaxed *zigzag* core configurations are shown in Figure 3.5.

Results obtained with the Potashnikov potential confirm the stability of the *zigzag* core here described by the strict alternation of both Ashbee variants with a period of  $2b$  (without defects of alternation). While the SMTB-Q *zigzag* core is quantitatively comparable to the one computed with Potashnikov potential, DFT calculations find an even-less symmetrical core where not only the O but also the U atoms in the center of the dislocation core alternate in the  $\pm[110]$  directions as seen in Figure 3.5d.

The *zigzag* core is stable or metastable as no reverse transformation back to the Ashbee core was observed with all three interaction models. One reason for the stability of this core is that it increases the distance between the O atoms in the dislocation core and thus minimizes their Coulombic interaction. Using the Ashbee core energy as a reference, we find  $\Delta E = -0.05$  eV/b using Potashnikov potential, *i.e.* with this energy model, the *zigzag* core is the most stable configuration. With SMTB-Q and DFT calculations, the energy difference is positive,  $\Delta E = +0.10$  eV/b with the former and  $\Delta E = +0.25$  eV/b with the latter, and the *zigzag* core is only metastable.

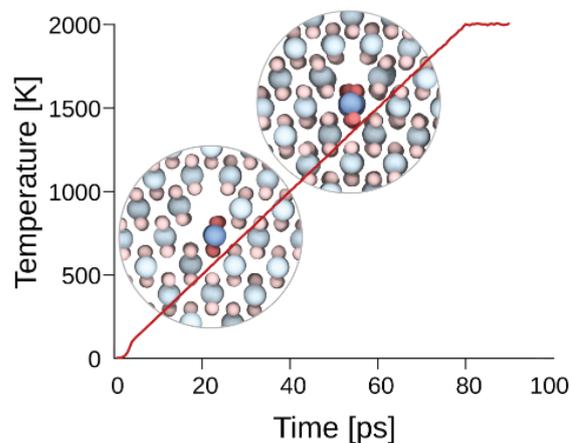


FIGURE 3.4 – Temperature-induced transformation of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation core in  $\text{UO}_2$  modeled using Potashnikov potential. The low-temperature Ashbee configuration transformed into a high-temperature *zigzag* configuration for  $T > 450$  K.

The energy of the *zigzag* core with strict  $2b$  period decreases by about  $52.5$  meV/ $b$  when compared to the configuration obtained from high-temperature quenching (pseudo-period of  $2b$ ).

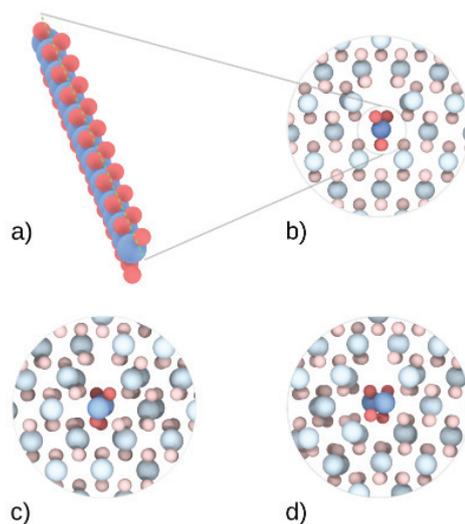


FIGURE 3.5 – The *zigzag*  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation core in  $\text{UO}_2$  computed at 0 K. (a) Illustration of the O atom alternation along the dislocation line, (b) Potashnikov fixed-charge potential, (c) SMTB-Q variable-charge potential, (d) DFT.

### 3.3.3 $1/2\langle 110\rangle\{100\}$ edge dislocation mobility

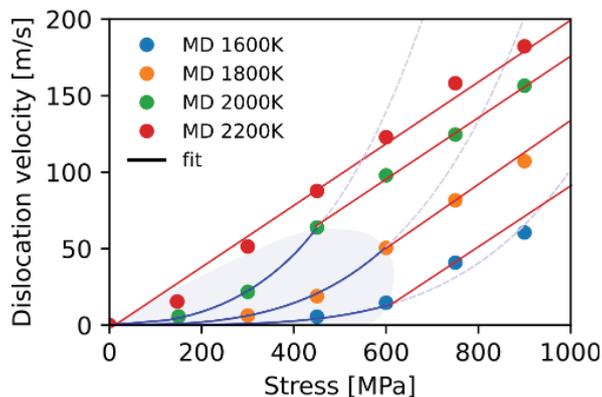


FIGURE 3.6 – Velocity of the edge  $\frac{1}{2}\langle 110\rangle\{001\}$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$  as function of an applied shear stress ( $\tau_{xz}$ ) and temperature. Symbols refer to MD data while theoretical adjustments are represented using solid curves. Blue and red solid curves refer to fit processes using the thermally-activated mobility law of Po *et al.* [PO 16] and an athermal viscous mobility law, respectively (Equation 3.2 and 3.5). Light-blue domain and dashed curves emphasize the thermally-activated regime and temperature-dependent adjustment extrapolations, respectively.

The mobility of the neutral  $\frac{1}{2}\langle 110\rangle\{001\}$  edge dislocation core is investigated using the Potashnikov potential at temperatures ranging from 1600 to 2200 K. In this temperature range, the neutral dislocation core adopts the *zigzag* configuration previously discussed. Constant-temperature MD simulations are performed in the NPT ensemble under shear stresses ranging from 150 to 900 MPa imposed using the Nosé-Hoover barostat. Dislocation velocity results are presented in Figure 3.6. Two mobility regimes are identified : a non-linear behaviour is observed for low temperatures and stresses, in the blue area highlighted in the figure, while a linear regime is observed at higher stresses and temperatures. Illustrations of typical dislocation glide processes observed in both regimes at 1600 and 2000 K are shown in Figure 3.7. Kink pairs are clearly visible at low temperature and stress, which is consistent with a Peierls regime of deformation typical of materials with a high lattice friction. By way of contrast, the high stress and temperature regime is characterized by a viscous process without clear evidence of kink-pairs. A transition towards a fully viscous regime is noticed from  $T$  of about 2200 K. These velocity curves are discussed below.

## 3.4 Discussion

### 3.4.1 Dislocation cores

Several  $\frac{1}{2}\langle 110\rangle\{001\}$  edge dislocation core structures are discussed in the literature for  $\text{UO}_2$  and other fluorite crystals. First proposed are the theoretical charged cores of Amelinck *et al.* [AME 58] and Evans *et al.* [EVA 69a] that are sketched in Figure 3.8a and b. The Amelinckx core is positively charged due to an extra column of O vacancies. It is similar to the core obtained with the Potashnikov potential shown in Figure 3.2a. Inversely, the Evans core shown in Figure

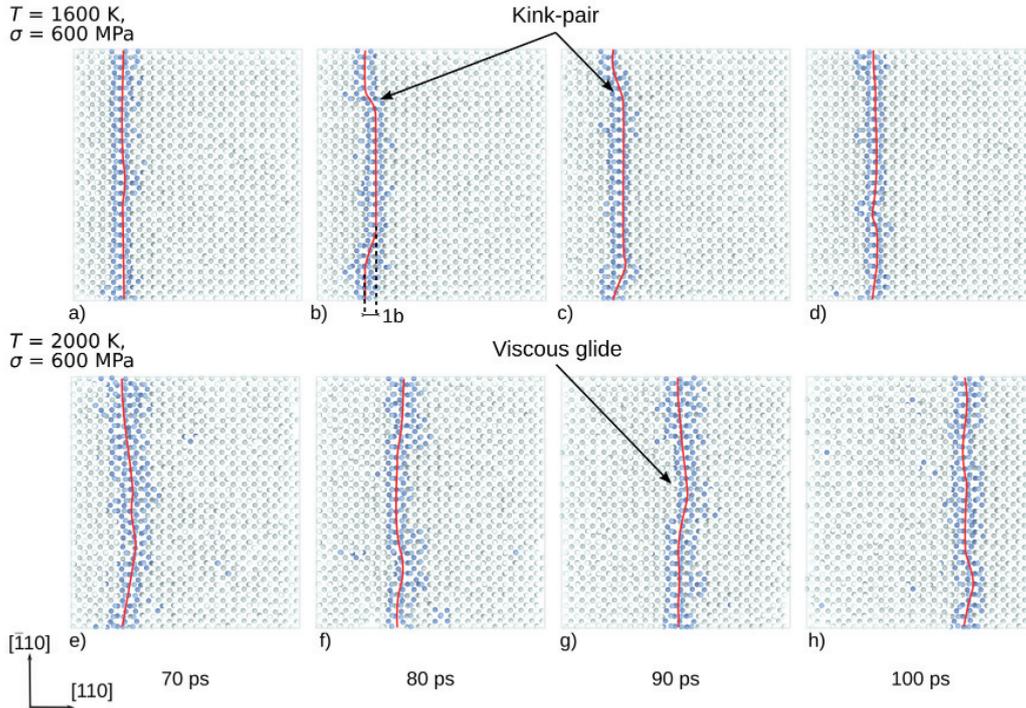


FIGURE 3.7 – Dislocation glide mechanisms for the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation ( $l = 24b$ ) computed using the Potashnikov interatomic potential. (a-d) Nucleation and propagation of a kink-pair ( $T = 1600$  K,  $\sigma = 600$  MPa) typical of the thermally-activated regime, (e-h) Viscous vibrating string behaviour ( $T = 2000$  K,  $\sigma = 600$  MPa). Only the U sublattice is shown for the sake of clarity. Perfect crystal and dislocation atoms are colored in light- and dark-blue, respectively. Red curves are guides for the eyes that emphasize the dislocation shape.

3.8b is negatively charged and is significantly different from the one obtained in Figure 3.2b. Brantley and Bauer [BRA 70] have shown that idealized non-stoichiometric edge dislocation cores in  $\text{UO}_2$  generate considerable electrostatic fields, which make them more energetic but possibly more mobile when compared to neutral cores. Also, two neutral configurations for the  $\{001\}$  edge dislocation respectively are reported in the literature [ASH 70, BRA 70]. As illustrated in Figure 3.8c and d, the Ashbee and Brantley configurations slightly differ due to the shift of an O column that breaks the symmetry of the Brantley core and results in the asymmetrical Ashbee (left- or right-variant, both being equivalent by symmetry). Here we confirm that the neutral Ashbee core is more stable than charged configurations using the Potashnikov potential.

But our study also shows that the *zigzag* core is a potential candidate for the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$ . When heating using the Potashnikov potential, the Ashbee core transforms into a *zigzag* configuration where parts of the O atoms along the dislocation line alternate positions with a pseudo-period of  $2b$ . While DFT and SMTB-Q show comparable energy bet-

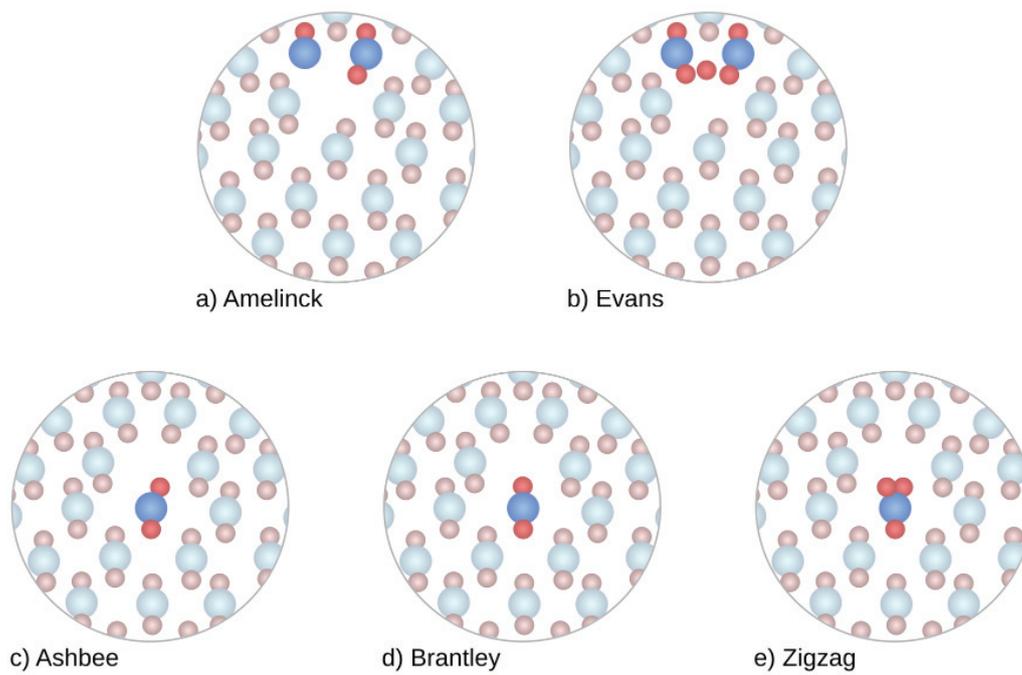


FIGURE 3.8 – Artworks of the various configurations of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation core in  $\text{UO}_2$  including the a) Amelincks (positive charge), b) Evans (negative charge), c) asymmetric Ashbee (neutral), d) symmetric Brantley (neutral) and e) the *zigzag* (neutral) core configurations.

ween the Ashbee and *zigzag* cores, both are more prone to stabilize the Ashbee core at 0 K. Nevertheless, additional simulations using the SMTB-Q variable charged potential show that the Ashbee core also evolves into the similar *zigzag* configuration with a pseudo-period of  $2b$  when heating in the same temperature range, confirming the reliability of the *zigzag* core at high temperature.

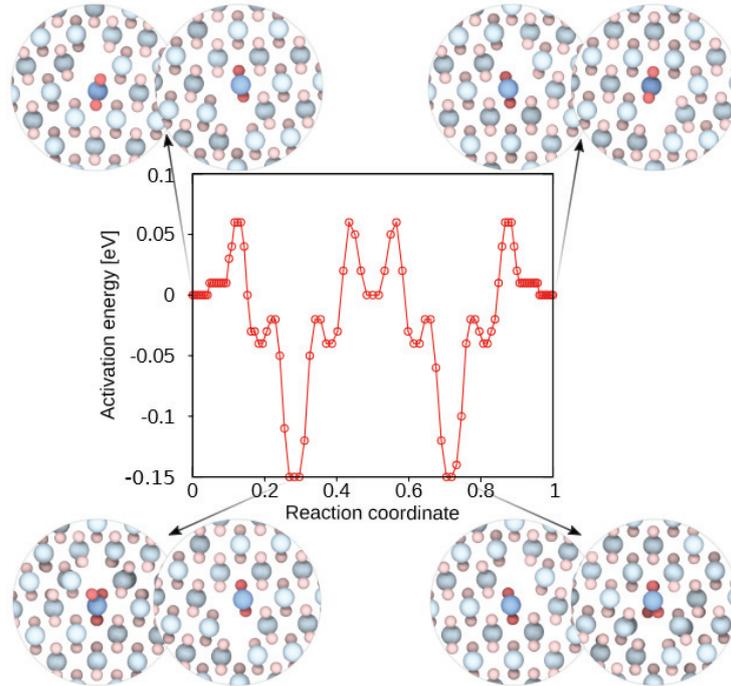


FIGURE 3.9 – Nudged Elastic Band calculation (Potashnikov potential) of the energy pathway between both variants of the Ashbee core. Inset show the atomic configurations of both dipole dislocations along the path.

It may be generally expected that a defected *zigzag* core is the stable core at any finite temperature with any energetic model. Indeed, the dislocation core can be viewed as a one-dimensional (1D) system made of  $\text{UO}_2$  molecules having two possible tilt directions towards  $\pm[110]$ . If the interactions between  $\text{UO}_2$  molecules are short-ranged (which is expected since the molecules are neutral), the dislocation core is analogous to a 1D Ising model, which is known to be disordered at any temperatures [KAD 00], *i.e.* it contains a disordered alternation of  $\pm 1$  spins, which correspond to the configurations seen here in the MD simulations with a disordered alternation of both Ashbee variants. A disordered state is in fact expected for any 1D system with short-ranged interactions [MER 68]. To check this analogy, we verified that the Ashbee to *zigzag* core transition temperature depends on the heating rate : it decreases from 450 K to 80 K when  $\dot{T}$  is decreased from 50 to 10 K/ps.

An additional proof of the *zigzag* core reliability was obtained using the Nudged Elastic Band (NEB) method [JÓN 98, HEN 00]. Using the left- and right-variants of the Ashbee core as initial and final configurations, we performed a NEB calculation in a dipole cell with a

dislocation length of  $4b$  to investigate the possible existence of additional configurations with the Potashnikov potential. The calculation is built using 96 replicas of the dislocation dipole with initial and final configurations made of relaxed asymmetric Ashbee cores. A spring constant of  $1 \text{ eV}/\text{\AA}^{-1}$  was used with a force tolerance for convergence of  $0.01 \text{ eV}/\text{\AA}$ . Figure 3.9 shows the relaxed transition path as well as selected atomic configurations in the insets. For each inset, two dislocation cores corresponding to both dislocation cores of the dislocation dipole are illustrated. As presumed, the final configuration shows the exact same energy than the initial configuration, which confirms that right- and left-side Ashbee cores are strictly identical. Along the NEB path, both dipole cores do not transition simultaneously. One core transits between images 0 to 48 and the other core, between images 48 and 96. During both transitions, the transforming core passes through a *zigzag* core as illustrated by both atomic configuration at the bottom of Figure 3.9. This results in two local energy minima at images 24 and 72. The energy of  $-0.15 \text{ eV}$  is slightly larger than the  $-0.20 \text{ eV}$  (for a  $4b$  length) expected from the energy difference between Ashbee and the *zigzag* cores found in Section 3.3.2. This is due to the NEB constraint which does not allow the image to fully reach the energy minimum. Interestingly, the initial energy path was obtained from a linear interpolation between the initial and final configurations and thus contained a saddle configuration close to a symmetrical Brantley core. But this core spontaneously transforms into a *zigzag* core during the energy minimization, which confirms the instability of the Brantley core and the stability of the *zigzag* core, at least with the Potashnikov potential.

### 3.4.2 Dislocation mobility

The mobility of the *zigzag* core is investigated using the Potashnikov potential in Figure 3.6. The velocities computed here are about 25 to 50% slower than those reported by Lunev *et al.* with the same potential, slip system and dislocation character [LUN 17]. We attribute this difference to the dislocation core that is probably charged in Lunev's study since the authors used a simulation cell containing a single dislocation. If true, this might confirm Brantley's hypothesis about primary dislocations in  $\text{UO}_2$  : charged dislocations are energetically less favorable but glide more easily. Nevertheless, no experimental data are currently available to conclude on the dislocation core stoichiometry in  $\text{UO}_2$ .

Soulié *et al.* have shown that the kink-pair migration energy is particularly significant for the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$ . In this context and without explicit data for kink-pair nucleation/migration energies, we adjusted our MD data using a two-steps process. First, we use the mobility law of Po *et al.* [PO 16] derived from the kink model of Hirth and Lothe [HIR 82] to account for both kink-pair nucleation and propagation energies to model the thermally-activated mobility of the dislocation  $v_{kp}(\tau, T)$  :

$$v_{kp}(\tau, T) = \frac{\tau b}{B(\tau, T)} \exp\left(-\frac{\Delta G_{kp}(\tau, T)}{2k_B T}\right), \quad (3.2)$$

with  $k_B T$  is the Boltzmann factor,  $\Delta G_{kp}(\tau, T)$  the free energy of kink-pair nucleation and migration expressed using the Kocks formalism [KOC 75] and a linear entropy approximation :

$$\Delta G_{kp}(\tau, T) = \Delta H_0 \left(1 - \left(\frac{\tau}{\tau_P}\right)^p\right)^q - T/T_0, \quad (3.3)$$

where  $\Delta H_0$  is the kink-pair enthalpy at zero stress,  $p$  and  $q$  are Kocks parameters and  $T_0$  is a transition temperature that scales with the melting temperature  $T_m$ .  $B(\tau, T)$  is a drag coefficient

that depends on stress and temperature,

$$B(\tau, T) = \frac{a \left( 2a \exp\left(-\frac{\Delta G_{kp}(\tau, T)}{2k_B T}\right) + l \right)}{2hL} B_k, \quad (3.4)$$

where  $a$  is the periodicity of the secondary Peierls barrier,  $l=24b$  is the dislocation length,  $h$  the kink-pair height and  $B_k$  a drag constant.

We used a least-square method to adjust a set of parameters including  $\Delta H_0$ ,  $\tau_P$ ,  $B_k$ ,  $p$  and  $q$  for three of the temperature data-sets. MD data selected for the fit and model predictions are shown in blue in Figure 3.6.

Secondly, the overdamped regime (Figure 3.6, red curves) at high temperature and stress is adjusted using a viscous law and a damping coefficient  $B$  independent of the temperature,

$$v(\tau) = v_0 + \frac{\tau b}{B}. \quad (3.5)$$

Here, the viscous law (Equation 3.5) is characterized by a constant term  $v_0$  to adjust the zero stress limit. Note that this term has only a fitting purpose as the thermally-activated mobility of the dislocation is described in the low-stress regime by Equation 3.2.

Dislocation velocities computed here in the classical MD range of strain-rates ( $\dot{\epsilon} \sim 10^8\text{-}10^9$  /s) show a transition from the thermally-activated regime towards the fully overdamped regime for  $T_a$  about 2200 K. As discussed *e.g.*, in Ref. [COR 12],  $T_a$  can decrease of several hundred Kelvin when reducing the strain rate by several orders of magnitude *i.e.*, here down to the experimental strain-rate. Thus, we can assume that  $T_a$  is here in qualitative good agreement with experimental  $T_a^{exp} \sim 1750$  K in the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  slip systems [BYR 68b, LEF 77, POR 18b]. For  $T < T_a$ , the transition is still observable but only for stresses larger than a critical stress  $\tau_v$ , which decreases when increasing the temperature (down to  $\tau_v=0$  for  $T \geq T_a$ ).

Parameters	
$a_0$ (Å)	5.47
$b$ (Å)	$a_0/\sqrt{2}$
$L$ (Å)	$24b$
$h$ (Å)	$b$
$a$ (Å)	$b$
$T_m$ (K)	3300
$T_0$ (K)	2640 ( $0.8 \times T_m$ )
Data	
$\tau_P$ (GPa)	4.42
$\Delta H_0$ (eV)	3.67
$p$	0.71
$q$	1.0
$B_k$ ( $\times 10^{-3}$ Pa.s)	3.03
$B_0$ ( $\times 10^{-3}$ Pa.s)	2.22

TABLE 3.1 – Dislocation mobility parameters for the neutral  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle\{001\}$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$ . Data are adjusted on MD data computed on the 1600 to 2200 K temperature range.

Fitting parameters for both mobility laws are provided in Table 3.1. The adjusted Peierls stress  $\tau_P=4.4$  GPa is in good agreement with the results of Soulié *et al.* ( $\tau_P=3.9$  GPa) obtained using the SMTB-Q potential. On the other hand, the kink-pair energy ( $\Delta H_0=3.67$  eV) is also comparable to Soulié *et al.* results who obtained up to 2.93 eV for non-stoichiometric kinks using the NEB method.

In the literature, the viscous drag coefficient is generally assumed to be controlled by a temperature-dependent phonon drag process leading to  $B(T)=\sum_n B_n T^n$  [LEI 50, NAD 88]. Here,  $B$  does not depend on the temperature and we calculate  $B=B_0=2.2 \cdot 10^{-3}$  Pa.s when averaging on the four temperature data-sets. This result contradicts classical observations made for FCC [BIT 05, OLM 05] (or BCC edge dislocations [KUK 13, PO 16]) where  $B$  is in the  $\sim 10^{-5}$  Pa.s range but varies with temperature in agreement with the phonon scattering theory. However, temperature-independent  $B$  was reported for screw dislocations in BCC metals [GIL 11, PO 16] and alkali-halides [JOH 59, MAR 76] in the same  $\sim 10^{-3}$  Pa.s range, these systems being characterized by a high-lattice friction as  $\text{UO}_2$ . Arguments about the velocity weakening due to near transonic dislocation velocity regime exist in FCC metals and alkali-halides [JOH 59, OLM 05], but this does not fit our results since the present velocities are well below the longitudinal sound velocity of  $\text{UO}_2$  ( $\sim 5165$  m/s [PAD 69]). Only few information can be found about a possible transition from a thermally-activated, *BCC-like*, regime to a dynamic, *FCC-like*, regime in lattice-friction materials. Al'shitz suggests that when the kinetic energy of the dislocation overshoots the Peierls energy, the dominant dislocation dissipation process relies on the transfer of the dislocation energy into lattice vibrations (phonons), especially at high-temperature. Several phonon mechanisms can be involved but only phonon radiation (due to the Peierls relief) or slow phonons can generate a temperature-independent drag coefficient in contrast with the classical phonon scattering [AL' 75, ALS 92, KUK 13]. Swinburne and collaborators explain that the temperature-independent drag term arises because the vibrations orthogonal to the defect motion direction are different than perfect crystal eigenmodes, an assumption not included in phonon scattering theoretical approaches that justify  $B$  variations with temperature [SWI 15, PO 16]. While the authors confirm that the temperature-independent term might dominate for nanoscale defects in BCC metals (as lattice friction tends to diminish the temperature dependence of  $B$ ) no strict application nor model applied to dislocations can be found in the current literature. This finding reopens the debate on the athermal mobility of dislocations in high lattice-friction materials.

### 3.5 Conclusion

In this work, we investigated both the static and dynamical properties of the  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{001\}$  edge dislocation, which plays a significant role in the plastic behavior of  $\text{UO}_2$  ceramics. In contrast with many materials where edge dislocations have a simpler core structure and dynamics than screw dislocations, the edge dislocation in  $\text{UO}_2$  can adopt many different core structures, charged or neutral. We have confirmed that charged cores have a much higher energy than neutral cores, and are thus less expected to play a role in  $\text{UO}_2$  plasticity. Among the neutral cores, the asymmetrical Ashbee core is expected to have the lowest energy. However, we found that a so-far unreported zigzag core has an energy comparable, if not lower, than the Ashbee core. Moreover, while previous studies focused on 0 K calculations, we have shown that a defected zigzag core, made of a disordered succession of both variants of the Ashbee core, is stabilized

at all finite temperatures due to entropy effect. While the 0 K stability of the dislocation cores strongly depends on the energetic model, the finite-temperature stabilization results from a general argument applied to one-dimensional systems. We thus expect that a defected zigzag core should prevail in experimental  $\text{UO}_2$  ceramics.

We also studied the mobility of the defected zigzag core. Its velocity can be accurately represented by a mobility law based on a thermally-activated kink-pair mechanism at low temperature and stress and a linear regime at high temperature or stress. Interestingly, we found that the drag coefficient in the linear regime does not depend on the temperature, as observed in other high-Peierls materials, but in contrast with FCC metals. The mobility law determined here can be used in higher-scale models and in particular in dislocation dynamics simulations to study plasticity at the micron-scale in  $\text{UO}_2$ . This work is currently underway.

### Résumé

Ce chapitre est dédié à l'étude de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ . La structure de cœur de la dislocation est tout d'abord étudiée. Plusieurs énergies de cœurs sont comparées entre les cœurs chargés et les différentes structures neutres. Nous avons mis en valeur une nouvelle structure de cœur, appelée "zig-zag" qui est la structure la plus stable avec le potentiel empirique de Potashnikov. Ce cœur a également été observé avec un potentiel à charges variables et dans des simulations DFT, réalisées par M. Freyss au CEA de Cadarache. Aussi, des calculs NEB, réalisés par J. Amodeo et D. Rodney, souligne la stabilité du cœur zig-zag avec le potentiel de Potashnikov. Par la suite, la mobilité de la dislocation a été étudiée à différentes températures et contraintes. Cette étude a permis de mettre en valeur les deux régimes de mobilité : le régime thermiquement-activé, dépendant de la température, et le régime athermique, indépendant de la température. Dans le premier régime la dislocation se déplace par le mécanisme de double-décrochements et dans le second régime la dislocation est dans un régime visqueux, son déplacement est assimilable à une corde vibrante. Deux modèles de loi de mobilité ont été utilisés pour les deux régimes et la température de transition est estimée à  $\sim 2000\text{K}$ .

## Chapitre 4

# Interaction entre dislocations $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ et boucles d'irradiation $1/2\langle 110 \rangle$

Dans ce chapitre, on étudie les interactions entre dislocations glissiles  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$  et boucles d'irradiation  $1/2\langle 110 \rangle$  en DM et DDD. Différentes réactions sont étudiées en fonction de l'orientation relative des vecteurs de Burgers et du caractère de la dislocation  $\{001\}$ . Une attention particulière est portée à l'influence de la taille de la boucle. Enfin, une étude par DDD permet d'étudier l'impact du niveau de contrainte sur la stabilité des interactions. Les protocoles des sections 2.1.3.3 et 2.2.2 sont utilisés respectivement en DM et en DDD. Sauf précision contraire, les simulations sont réalisées à une température de 2000 K et une contrainte de 900 MPa, dans le régime athermique pour le système  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$ . En DDD, la loi mobilité utilisée est décrite par l'équation 3.2. Le coefficient  $B$  est fixé à  $2.2 \cdot 10^{-3}$  Pa.s, en accord avec les résultats de DM.

### Sommaire

<b>4.1</b>	<b>Symétries et méthodes d'analyse</b>	<b>72</b>
<b>4.2</b>	<b>Interactions dislocation coin/boucle d'irradiation</b>	<b>74</b>
4.2.1	Cas n°1 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers parallèles	74
4.2.2	Cas n°2 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers perpendiculaires	78
4.2.2.1	Boucle de 80 Å	78
4.2.2.2	Boucle de taille < 50 Å	79
4.2.3	Cas n°3 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers orientés à 120°	81
<b>4.3</b>	<b>Interaction dislocation vis/boucle d'irradiation</b>	<b>83</b>
4.3.1	Cas n°4 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers parallèles	83
4.3.2	Cas n°5 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers perpendiculaires	84
4.3.3	Cas n°6 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers orientés à 120°	86
<b>4.4</b>	<b>Influence de la contrainte</b>	<b>88</b>
<b>4.5</b>	<b>Discussion</b>	<b>89</b>

## 4.1 Symétries et méthodes d’analyse

Comme décrit dans la section 1.2.3, la déformation du combustible  $\text{UO}_2$  sous irradiation est caractérisée par la formation de boucles prismatiques interstitielles de plan d’habitat  $\{110\}$ , de vecteur de Burgers  $1/2\langle 110 \rangle$  et de taille caractéristique comprise entre 30 et 80 Å (figure 4.1). Pendant la déformation des pastilles sous irradiation, ces boucles interagissent avec les dislocations glissiles classiques et induisent du durcissement. Il est donc nécessaire d’étudier ces interactions afin de mieux appréhender le durcissement et plus généralement le comportement mécanique du combustible sous irradiation.

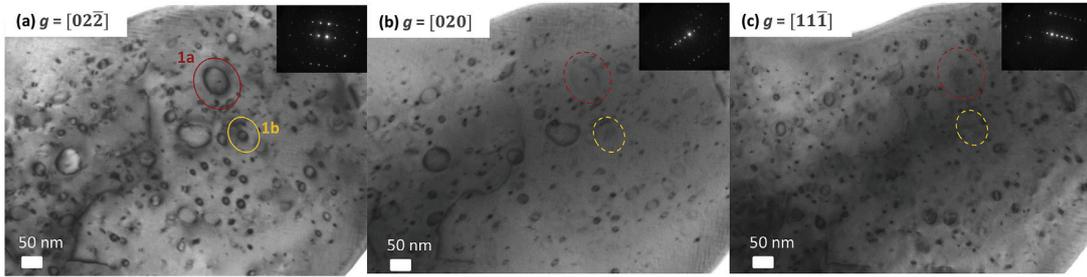


FIGURE 4.1 – Images MET d’un échantillon d’ $\text{UO}_2$  irradié au Xe à 25°C. Évolution de boucles interstitielles indexées 1a et 1b dans leur plan d’habitat  $[\text{ONO } 17]$ .

Afin de simplifier la géométrie du système étudié, nous avons travaillé avec des boucles d’irradiation de forme carrée (voir section 2.1.3.3 pour plus de détails). Considérant chacun des caractères vis et coin des dislocations  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ , il existe par symétrie  $2\times 3$  configurations distinctes. L’angle formé par les vecteurs de Burgers de la dislocation et de la boucle vaut soit  $0^\circ$  (vecteurs de Burgers parallèles),  $90^\circ$  (vecteurs de Burgers perpendiculaires) ou  $120^\circ$ . Les six configurations sont résumées sur la figure 4.2 et dans le tableau 4.3. Les simulations d’interactions élémentaires entre dislocation glissile et boucle d’irradiation sont réalisées en DM et en DDD à partir des protocoles décrits dans les sections 2.1.3.3 et 2.2.2 où la boucle d’irradiation est initialement introduite face à l’une des dislocations d’un dipôle de dislocations vis ou coin. Sauf mention contraire, les calculs sont réalisés à  $T=2000$  K et  $\tau=900$  MPa, en DM et en DDD.

Pour caractériser et interpréter les produits de réaction entre dislocations et boucles, on utilise les travaux de Portelette *et al.* [POR 20] qui portent sur les interactions entre dislocations mobiles et dislocations de la forêt dans les trois modes de glissement  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$ ,  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  et  $1/2\langle 110 \rangle\{111\}$  de  $\text{UO}_2$  (respectivement appelés modes I, II et III). En effet, une boucle d’irradiation peut être décrite comme quatre segments interconnectés, de caractères coins, appartenant chacun à un système  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  ou  $1/2\langle 110 \rangle\{110\}$  (voir Figure 4.4). Ainsi, l’interaction entre une dislocation mobile et un segment coin d’une boucle d’irradiation peut être comparée au premier ordre à une interaction avec une dislocation de la forêt. Des détails sur la dénomination des systèmes de glissement et des différentes interactions sont présentés dans les tableaux 4.1 et 4.2. Dans le cadre de cette approche, on utilisera toujours la même méthodologie :

1. on caractérise les quatre segments de la boucle d’irradiation (figure 4.4),

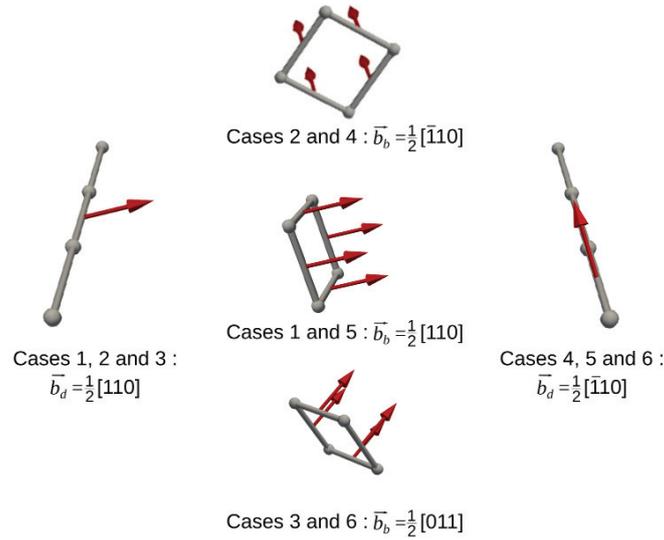


FIGURE 4.2 – Configurations dislocation-boucle étudiées. Les caractères coin et vis de la dislocation  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  interagissent avec trois boucles prismatiques dont les vecteurs de Burgers sont respectivement  $1/2[110]$ ,  $1/2[\bar{1}10]$  et  $1/2[011]$ . Les flèches rouges représentent les vecteurs de Burgers et les lignes grises illustrent les ligne de dislocation modélisées en DDD avec Numodis avec la discrétisation nodale représentée par les sphères grises.

Case number	$\widehat{b_d, b_b}$	Schema	Case number	$\widehat{b_d, b_b}$	Schema
1	$0^\circ$		4	$0^\circ$	
2	$90^\circ$		5	$90^\circ$	
3	$120^\circ$		6	$120^\circ$	

FIGURE 4.3 – Tableau récapitulatif des interactions étudiées avec  $\vec{b}_d$  le vecteur de Burgers de la dislocation glissile (en noire),  $\vec{n}$  la normale à son plan de glissement (qui est représenté en ligne pointillée grise) et  $\vec{b}_b$  le vecteur de Burgers de la boucle d'irradiation (en rouge).

2. on identifie les segments qui interagissent, répertorie les vecteurs de Burgers et plans de glissement (voir exemple équation 4.1),
3. on identifie le produit de réaction de type "forêt" à l'aide du tableau 4.2,
4. on utilise le produit de réaction de type "forêt" afin d'interpréter la réaction dislocation-boucle.

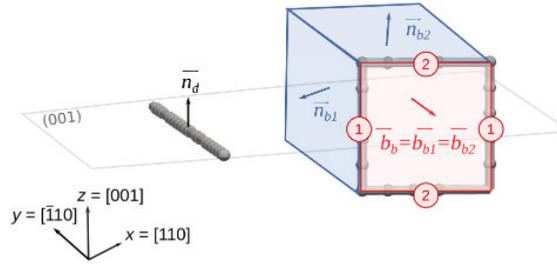


FIGURE 4.4 – Décomposition d'une boucle d'irradiation carrée en quatre segments interconnectés. La dislocation mobile est illustrée en gris et la boucle d'irradiation avec son vecteur de Burgers  $\vec{b}_b = 1/2[110]$  en rouge. Les deux plans (110) et (001) (caractérisés par  $\vec{n}_{b1}$  et  $\vec{n}_{b2}$ ) colorés en bleu sont les plans de glissements associés aux segments numérotés 1 (segment gauche) et 2 (segment haut) appartenant à la boucle. Par symétrie, la boucle possède deux paires de segments caractérisés par des systèmes de glissement identiques.

$$\vec{b}_d = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_6 \quad \vec{n}_d = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad \vec{b}_{b1} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_{b1} = \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_{E_{II}} \quad \vec{b}_{b2} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_{b2} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad (4.1)$$

La même notation sera utilisée dans l'ensemble du chapitre : la dislocation mobile est caractérisée par son vecteur de Burgers  $\vec{b}_d$  et son plan de glissement  $\vec{n}_d$ , le segment de la boucle avec lequel la dislocation mobile interagit est décrit par  $\vec{b}_b$  et  $\vec{n}_b$  et, le cas échéant, on ajoutera des indices si deux segments de la boucle sont à caractériser (le vecteur  $\vec{b}_b$  restera identique quel que soit le segment étudié). C'est cet exemple qui est illustré sur l'équation 4.1 avec avec les vecteurs  $\vec{b}_{b1}$ ,  $\vec{n}_{b1}$  et  $\vec{b}_{b2}$ ,  $\vec{n}_{b2}$ . L'indexation au bas des vecteurs reprend les notations utilisées dans Portelette *et al.* [POR 20] (voir tableau 4.1).

## 4.2 Interactions dislocation coin/boucle d'irradiation

### 4.2.1 Cas n°1 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers parallèles

*Simulations et résultats*

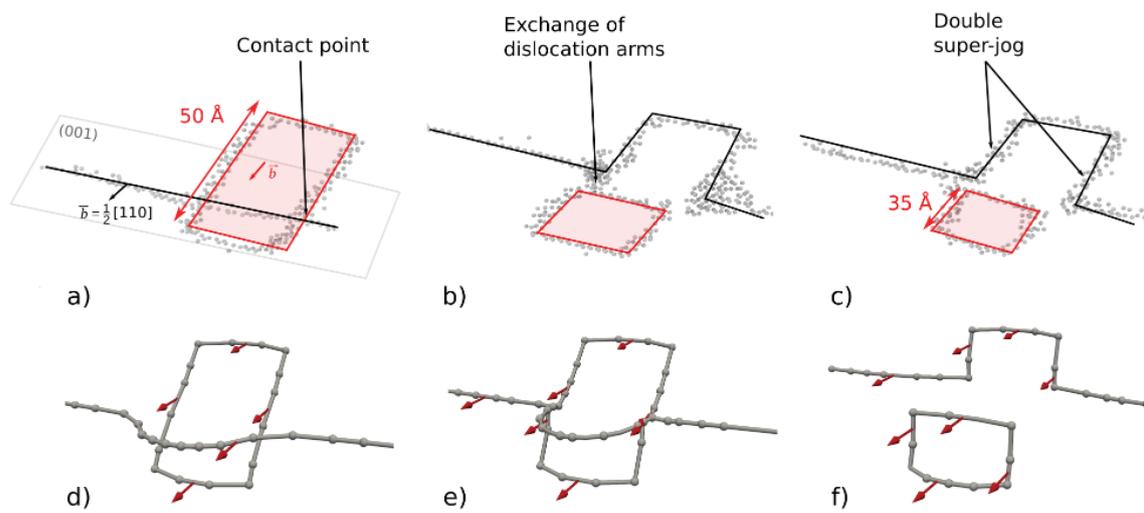


FIGURE 4.5 – Cas n°1 : interaction dislocation coin/boucle d'irradiation avec vecteurs de Burgers parallèles. La dislocation coin du système  $1/2[110](001)$  est en interaction avec un boucle interstielle de vecteur de Burgers  $1/2[110]$ . (a-c) DM : les atomes identifiés par l'algorithme PTM comme appartenant aux dislocations sont illustrés en gris clair. Les courbes en noir et en rouge sont des guides pour les yeux. (d-f) DDD : les portions de ligne et vecteurs de Burgers sont respectivement illustrés en gris et en rouge et les sphères grises représentent les nœuds de discrétisation.

Vecteurs de Burgers avec la notation de Schmid and Boas					
1 [011]	2 [01 $\bar{1}$ ]	3 [101]	4 [10 $\bar{1}$ ]	5 [1 $\bar{1}$ 0]	6 [110]
Plans de glissement $\{100\}$ (lettre + I)					
$A_I$ (100)		$B_I$ (010)		$C_I$ (001)	
Plans de glissement $\{110\}$ (lettre + II)					
$A_{II}$ (01 $\bar{1}$ )	$B_{II}$ (011)	$C_{II}$ (10 $\bar{1}$ )	$D_{II}$ (101)	$E_{II}$ (110)	$F_{II}$ (1 $\bar{1}$ 0)
Plans de glissement $\{111\}$ (lettre + III), issus de la notation de Schmid and Boas					
$A_{III}$ (1 $\bar{1}\bar{1}$ )		$B_{III}$ (111)		$C_{III}$ (1 $\bar{1}\bar{1}$ )	
Vecteurs de Burgers et les plans de glissement relatifs pour les trois modes de glissement de $UO_2$					
Vecteur de Burgers	Système de glissement I	Système de glissement II	Système de glissement III		
1	$A_I$ 1		$A_{II}$ 1	$C_{III}$ 1, $D_{III}$ 1	
2	$A_I$ 2		$B_{II}$ 2	$A_{III}$ 2, $B_{III}$ 2	
3	$B_I$ 3		$C_{II}$ 3	$A_{III}$ 3, $C_{III}$ 3	
4	$B_I$ 4		$D_{II}$ 4	$B_{III}$ 4, $D_{III}$ 4	
5	$C_I$ 5		$E_{II}$ 5	$B_{III}$ 5, $C_{III}$ 5	
6	$C_I$ 6		$F_{II}$ 6	$A_{III}$ 6, $D_{III}$ 6	

TABLE 4.1 – Liste des systèmes de glissement et notations dans  $UO_2$ . Les plans de glissement sont décrits par une lettre majuscule et un chiffre romain en indice, ce dernier étant relatif au mode de glissement : I pour  $\{100\}$ , II pour  $\{110\}$  et III pour  $\{111\}$ . Les vecteurs de Burgers communs au trois modes de glissement sont identifiés par un chiffre compris entre 1 et 6. Cette notation introduite par Portelette *et al.* [POR 20] est une adaptation de la notation de Schmid et Boas [SCH 13]. Adapté de Portelette *et al.* [POR 20].

La première réaction étudiée concerne une dislocation mobile coin  $1/2[110](001)$  et une boucle prismatique interstitielle  $1/2[110]$  avec des vecteurs de Burgers parallèles. Elle est illustrée sur la figure 4.5. La réaction entre la dislocation mobile et la boucle prismatique se fait via deux points de contact le long des deux segments verticaux de la boucle (suivant la direction  $[001]$ ). Il y a alors un échange de bras entre la ligne et la boucle d'irradiation (figures 4.5.b et 4.5.e) : la ligne de dislocation absorbe la partie haute de la boucle tout en cédant le segment entre les deux points de contact à la portion de boucle restante. Après la réaction, la ligne de dislocation intègre la partie de la boucle absorbée sous la forme de deux super-crans alors que la boucle d'irradiation est reconstruite, de plus petite taille, à sa position initiale. En fin de calcul, la ligne de dislocation continue de glisser dans le plan (001). Le phénomène a été observé pour deux tailles de boucles différentes (30 et 50 Å de côté) et les résultats sont identiques en DM et en DDD.

### Discussion

Lorsque deux dislocations avec de vecteurs de Burgers entrent en contact il y a une interaction de type colinéaire. Dans la configuration présente, cela résulte en un échange de bras et l'entraînement de la partie supérieure de la boucle par la dislocation. Aucun ancrage statique n'est observé. On s'attend donc, dans le cas de simulations massives, à un effet de ralentissement de la dislocation sans durcissement statique. Pour ce cas colinéaire, la géométrie étudiée par Portelette *et al.* [POR 20] est différente car elle mène à l'annihilation d'une partie des dis-

	$\alpha_i$	Exemple	Nom de l'interaction
	$\alpha_0$	$A_I1, A_I1$	Self
I/I	$\alpha_1$	$A_I1, A_I2$	Dipole $_{I/I}$
	$\alpha_2$	$A_I1, B_I3$	Glissile $_{I/I}^{II}$
	$\alpha_3$	$A_{II}1, B_{II}2$	Hirth $_{II/II}$
II/II	$\alpha_4$	$A_{II}1, C_{II}3$	Sessile $_{II/II}^{\{112\}}$
	$\alpha_8$	$C_{III}1, D_{III}1$	Collinear $_{III/III}^{70}$
	$\alpha_9$	$C_{III}1, A_{III}2$	Hirth $_{III/III}$
III/III	$\alpha_{10}^{(*)}$	$C_{III}1, A_{III}3$	Glissile $_{III/III}^{III}$
	$\alpha_{11}$	$C_{III}1, C_{III}3$	Dipole $_{III/III}^{70}$
	$\alpha_{12}$	$C_{III}1, B_{III}4$	Glissile $_{III/III}^{I/L}$
	$\alpha_5^{(*)}$	$A_I1, A_{II}1$	Collinear $_{I/II}^{90}$
I/II	$\alpha_6^{(*)}$	$A_I1, B_{II}2$	Hirth $_{I/II}$
	$\alpha_7^{(*)}$	$A_I1, C_{II}3$	Glissile $_{I/II}^I$
	$\alpha_{13}^{(*)}$	$A_I1, C_{III}1$	Collinear $_{I/III}^{55}$
	$\alpha_{14}^{(*)}$	$A_I1, A_{III}2$	Hirth $_{I/III}$
I/III	$\alpha_{15}^{(*)}$	$A_I1, A_{III}3$	Glissile $_{I/IIIa}^{III}$
	$\alpha_{16}^{(*)}$	$C_I1, C_{III}3$	Glissile $_{I/IIIb}^{III}$
	$\alpha_{17}^{(*)}$	$A_{II}1, C_{III}1$	Collinear $_{II/III}^{35}$
	$\alpha_{18}^{(*)}$	$A_{II}1, A_{III}2$	Hirth $_{II/III}^{012}$
II/III	$\alpha_{19}^{(*)}$	$A_{II}1, A_{III}3$	Sessile $_{II/III}^{113}$
	$\alpha_{20}^{(*)}$	$A_{II}1, C_{III}3$	Glissile $_{II/III}^{III}$

TABLE 4.2 – Identifications des interactions de la forêt entre dislocations des modes de glissement I, II et III dans  $UO_2$ . Les interactions sont classées tout d'abord par paires de modes. Par exemple, les interactions I/II concernent deux dislocations respectivement dans les plans  $\{100\}$  et  $\{110\}$ . Pour chaque couple de modes, il existe plusieurs interactions par symétrie et un exemple de paire de systèmes de glissement (notation Figure 4.1) est donné pour chaque interaction dont la dénomination est précisée dans la colonne "Nom de l'interaction". La colonne  $\alpha_i$  indique le coefficient de durcissement associé à chaque interaction et l'exposant \* indique des réactions non symétriques. Adapté de Portelette *et al.* [POR 20].

locations en interaction, ce qui donne à un ancrage statique très important car, en se courbant, les dislocations doivent reconstituer les segments annihilés.

#### 4.2.2 Cas n°2 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers perpendiculaires

Dans le cas n°2, les vecteurs de Burgers de la dislocation coin et de la boucle d'irradiation sont orientés à  $90^\circ$  l'un de l'autre (voir figure 4.2.2.1). Le vecteur ligne de la dislocation coin est toujours selon  $[\bar{1}10]$  tandis que son vecteur de Burgers est suivant  $[110]$ . Le vecteur de Burgers de la boucle est orienté suivant  $[\bar{1}10]$ . Deux résultats distincts ont été identifiés en DM en fonction de la taille de boucle considérée. Ils sont décrits plus en détails dans les sections suivantes.

##### 4.2.2.1 Boucle de 80 Å

*Simulations et résultats*

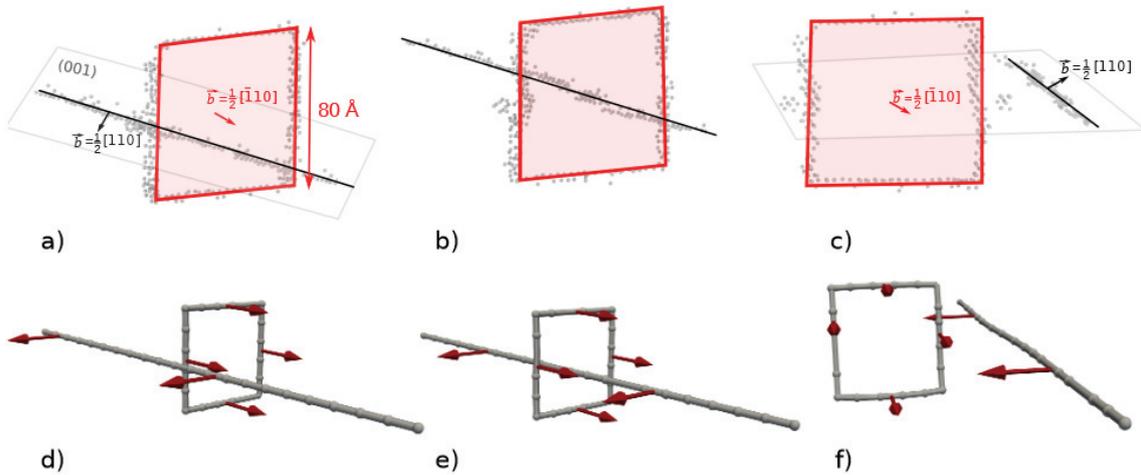


FIGURE 4.6 – Cas n°2 : Interaction entre une ligne de dislocation coin  $1/2[110](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[\bar{1}10]$  (vecteurs de Burgers perpendiculaires) de 80 Å de côté par DM (a-c) et par DDD (d-f).

Dans le cas d'une boucle de 80 Å de côté, la dislocation mobile traverse et cisaille la boucle prismatique sans réel produit de réaction de contact (annihilation, jonction, *etc.*) ni attraction/répulsion caractéristique. Ce résultat est décrit sur la figure 4.2.2.1. Le même phénomène est observé en DM et en DDD.

*Discussion*

L'équation de Kroupa [HIR 82] permet de décrire la force d'interaction entre deux lignes de dislocations droites et infinies (équation 4.2) :

$$\vec{F}_{ab} = \frac{\mu}{|\vec{l}_a \times \vec{l}_b|} \frac{\vec{R}_{ab}}{Rab} \left\{ \frac{1}{2} (\vec{b}_a \cdot \vec{l}_a) (\vec{b}_b \cdot \vec{l}_b) - (\vec{b}_a \times \vec{b}_b) \cdot (\vec{l}_a \times \vec{l}_b) + \frac{1}{1-\nu} \left( (\vec{b}_a \times \vec{l}_a) \cdot \frac{\vec{R}_{ab}}{Rab} \right) \left( (\vec{b}_b \times \vec{l}_b) \cdot \frac{\vec{R}_{ab}}{Rab} \right) \right\} \quad (4.2)$$

avec  $\vec{l}_a$  et  $\vec{l}_b$  les vecteurs lignes et  $\vec{b}_a$  et  $\vec{b}_b$  les vecteurs de Burgers des dislocations et  $R_{ab}$  la direction la plus courte entre les deux dislocations.

Dans le cas n°2, la dislocation glissile est de type coin et est perpendiculaire à chacun des segments coin de la boucle prismatique. Dans le cas d'une interaction entre deux dislocations coins perpendiculaires, on a  $||\vec{F}_{ab}|| = 0$  et il n'y a pas d'interaction élastique. L'absence d'attraction/répulsion observée en DM et en DDD pour la boucle de 80 Å de côté est donc en adéquation avec la théorie élastique.

Cependant, l'approche de Kroupa n'est pas suffisante. En effet, elle ne renseigne que sur la faculté qu'ont les deux dislocations à s'attirer ou se repousser, et non pas sur leur disposition à former une jonction dans le cas d'un contact pré-établi. Or dans notre cas, la dislocation mobile est mise en contact avec la boucle par la contrainte appliquée *i.e.*, les deux dislocations n'ont pas besoin de s'attirer pour être en contact. En appliquant le critère énergétique de Frank on obtient :  $b_j^2 = (b_a^2 + b_b^2)$  car les vecteurs de Burgers  $\vec{b}_a$  et  $\vec{b}_b$  sont perpendiculaires. La jonction de Hirth est donc marginalement stable, comme cela a été observé dans le travail de Portelette *et al.* [POR 20]. Sa probabilité de formation est faible et les interactions mènent souvent à des états croisés (configurations attractives ne formant pas de jonction). Le coefficient de durcissement obtenu par Portelette *et al.* est particulièrement faible pour la Hirth ( $\alpha_6^{(*)} = 0.09$ ). On s'attend donc à une faible contribution du cas n°2 au durcissement de UO<sub>2</sub> sous irradiation.

#### 4.2.2.2 Boucle de taille < 50 Å

##### *Simulations et résultats*

La même simulation est réalisée ici avec une boucle de 40 Å de côté (figure 4.7). La simulation en DDD donne un résultat identique à celui de la boucle de 80 Å alors que la simulation par DM donne un résultat différent. Effectivement, par DM, la dislocation glisse vers la boucle mais n'arrive pas à la franchir comme dans le cas précédent. Après une période où le glissement de la dislocation est obstrué, elle finit par contourner la boucle prismatique et continue de glisser. Un double super-cran est observé sur la dislocation mobile signifiant que la dislocation a absorbé une partie de la boucle d'irradiation.

##### *Discussion*

Le double super-cran se forme en absorbant une partie des atomes interstitiels de la boucle d'irradiation (figures 4.7.a et 4.7.b). Ce processus permet à la dislocation de monter par dessus la boucle puis de se détacher. Par ailleurs, la boucle amputée d'une portion de ses atomes reste à sa position initiale (figure 4.7.c). Des résultats comparables sont observés pour une boucle de 30

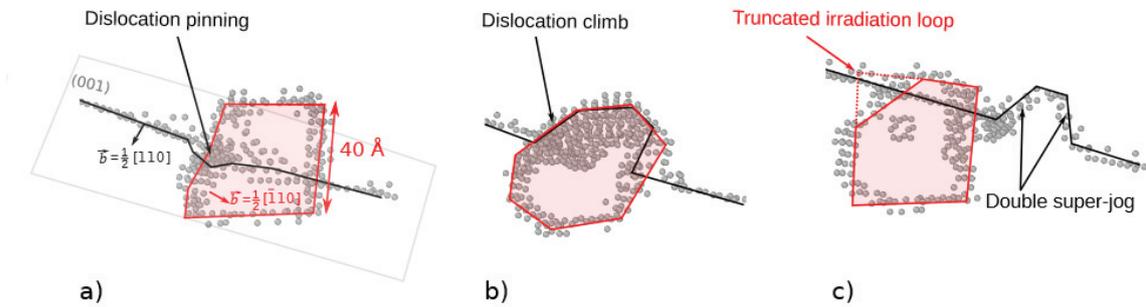


FIGURE 4.7 – Cas n°2 : Interaction entre une ligne de dislocation coin  $1/2[110](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[\bar{1}10]$  (vecteurs de Burgers perpendiculaires) de  $40 \text{ \AA}$  de côté par DM.

$\text{\AA}$  de côté, hormis que dans ce cas, la boucle se fait en grande partie absorbée par la dislocation mobile générant deux amas d'interstitiels (figure 4.8).

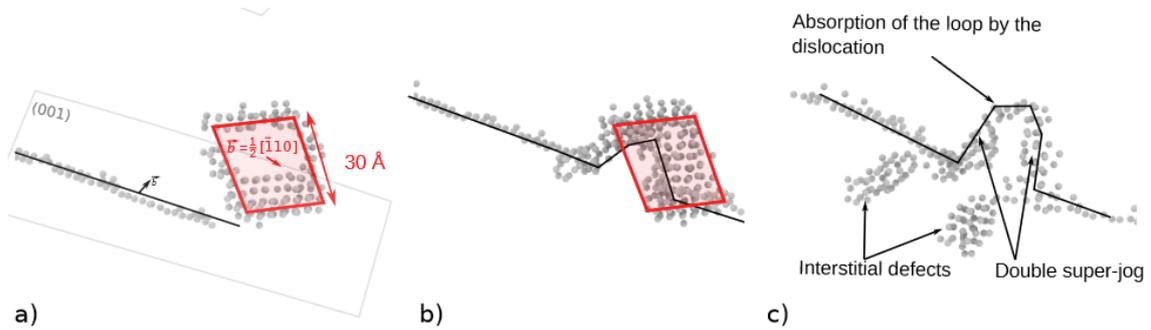


FIGURE 4.8 – Interaction entre une ligne de dislocation coin  $1/2[110](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[\bar{1}10]$  (vecteurs de Burgers perpendiculaires) de côté de  $30 \text{ \AA}$  par DM.

Cette simulation a aussi été effectuée avec des boucles de  $50 \text{ \AA}$  de côté, taille qui a été identifiée comme taille critique dans le calcul de DM : dans certains cas (explorés en changeant la graine aléatoire associée aux vitesses en DM), les résultats montrent parfois une absence d'interaction et la montée de la dislocation coin dans d'autres cas.

Lorsque la boucle est de grande taille ( $> 50 \text{ \AA}$ ), elle se comporte comme quatre segments de dislocation distincts et infinis, ainsi la dislocation et le segment de la boucle interagissent comme attendu par l'élasticité, c'est à dire avec une interaction négligeable. Par contre pour les petites tailles ( $< 50 \text{ \AA}$ ); la boucle perd, au moins partiellement, son caractère de quatre dislocations connectées et se comporte comme un amas d'interstitiels. Dans ce cas, une portion de l'amas peut être arrachée lors du contact avec la dislocation mobile. Ce comportement "corpusculaire"

ne peut être reproduit que par DM, alors que la DDD, fondée sur l'élasticité, prédit un comportement de type "dislocation/dislocation" à toutes les tailles de boucle. À noter qu'il serait possible d'introduire en DDD une règle locale pour forcer l'absorption des petites boucles par la dislocation.

### 4.2.3 Cas n°3 : Dislocation coin / vecteurs de Burgers orientés à 120°

#### *Simulations et résultats*

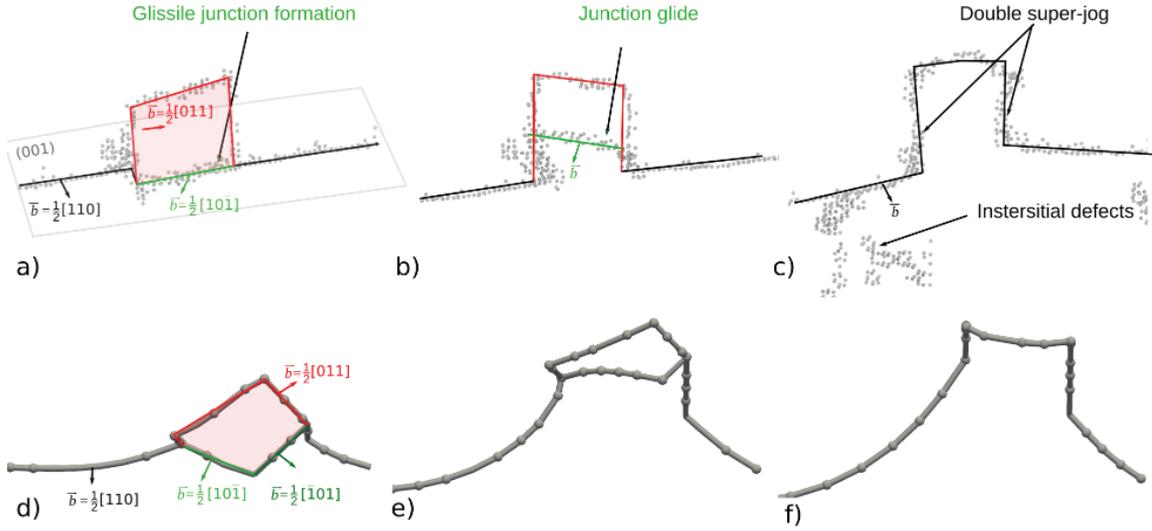


FIGURE 4.9 – Cas n°3 : Interaction entre une ligne de dislocation coin  $1/2[110](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[011]$  (configuration à 120°) par DM (a-c) et par DDD (d-f).

Dans le cas n°3 (figure 4.9), le vecteur de Burgers de la boucle est orienté suivant  $[011]$  alors que celui de la dislocation coin glissile est suivant  $[110]$ , tous deux formant un angle de 120°. En DM, la ligne de dislocation glisse jusqu'à la boucle et intercepte successivement deux segments de cette dernière (dans sa moitié basse). Après avoir créé une jonction instable avec le premier segment, la dislocation mobile crée une jonction glissile stable en réaction avec le second segment rencontré en arrière de la boucle (voir figures 4.9.a et 4.9.d). La jonction créée est de vecteur de Burgers  $\vec{b}_j=1/2[10\bar{1}]$ . Ensuite, la jonction glisse le long de la boucle pour finalement atteindre sa partie supérieure (figures 4.9.b et 4.9.e). où la jonction interagit avec le segment en haut de la boucle pour donner un nouveau segment de dislocation de vecteur de Burgers  $1/2[110]$ , identique à celui de la dislocation glissile initiale. Enfin, la ligne de dislocation glissile est reformée et continue de glisser, elle présente un double super-cran et la boucle a totalement été absorbée (figure 4.9.c).

En DDD, la réaction est un peu plus complexe mais mène au même résultat. La ligne de dislocation intersecte le segment 1 de la boucle sans créer de jonction avant de créer une jonc-

tion avec le deuxième segment rencontré (voir figure 4.10). Cette jonction de vecteur de Burgers  $\vec{b}_j=[\bar{1}01]$  de plan de glissement de normale  $\vec{n}_j=[0\bar{1}0]$  crée une deuxième jonction avec le segment 1' de la boucle de vecteur de Burgers  $\vec{b}_j=[10\bar{1}]$  et de plan de glissement de normale  $\vec{n}_j=[101]$ . Ces deux jonctions sont à l'origine d'une configuration glissile en forme de V (figures 4.9.d et 4.9.e) qui aboutit à la reconstruction de la dislocation glissile initiale accompagnée d'un double super-cran dans une réaction comparable à celle observée en DM (figure 4.9.f).

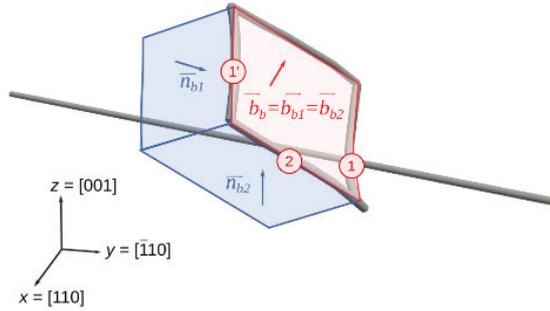


FIGURE 4.10 – Représentation schématique du cas n°3 avec une boucle d'irradiation dont le vecteur de Burgers est orienté suivant  $[011]$ . Les deux plans bleus sont les plans de glissements des bras de la boucle numérotés 1, 1' et 2 de normales  $\vec{n}_{bi}$  avec  $i$  le numéro du segment.

### Discussion

$$\vec{b}_d = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_6 \quad \vec{n}_d = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad \vec{b}_{b1} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix}_1 \quad \vec{n}_{b1} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}_{A_I} \quad \vec{b}_{b2} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix}_1 \quad \vec{n}_{b2} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ \bar{1} \end{bmatrix}_{A_{II}} \quad (4.3)$$

En utilisant les résultats de Portelette *et al.* [POR 20], on peut justifier les réactions observées dans le cas n°3. Un schéma de la configuration étudiée est présentée figure 4.10 et les différents segments et plans concernés sont renseignés sur l'équation 4.4. Le segment 1 de la boucle est caractérisé par  $\vec{b}_{b1}$  et est dans un plan  $(100)$  (système  $A_I$ ). Le segment 1' est aussi de type  $A_I$ , c'est le second qui est rencontré par la dislocation glissile en DDD. Enfin, le segment 2 est dans un plan  $(01\bar{1})$ . L'interaction entre la dislocation glissile et le segment 1 peut générer une jonction glissile dans le mode II appelée *glissile* $_{I/II}^{II}$  (tableau 4.2) alors qu'une jonction glissile dans le mode I peut être générée par interaction avec le segment 2 (elle est notée *glissile* $_{I/II}^I$ , cf. tableau 4.2). C'est cette dernière qui est observée en DM, alors que les deux jonctions apparaissent dans le calcul de DDD où est générée la configuration glissile en forme de V (voir figure 4.9.d). On note cependant que le résultat final (boucle absorbée et dislocation glissile avec double super-cran) est le même par MD et par DDD.

### 4.3 Interaction dislocation vis/boucle d'irradiation

#### 4.3.1 Cas n°4 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers parallèles

*Simulations et résultats*

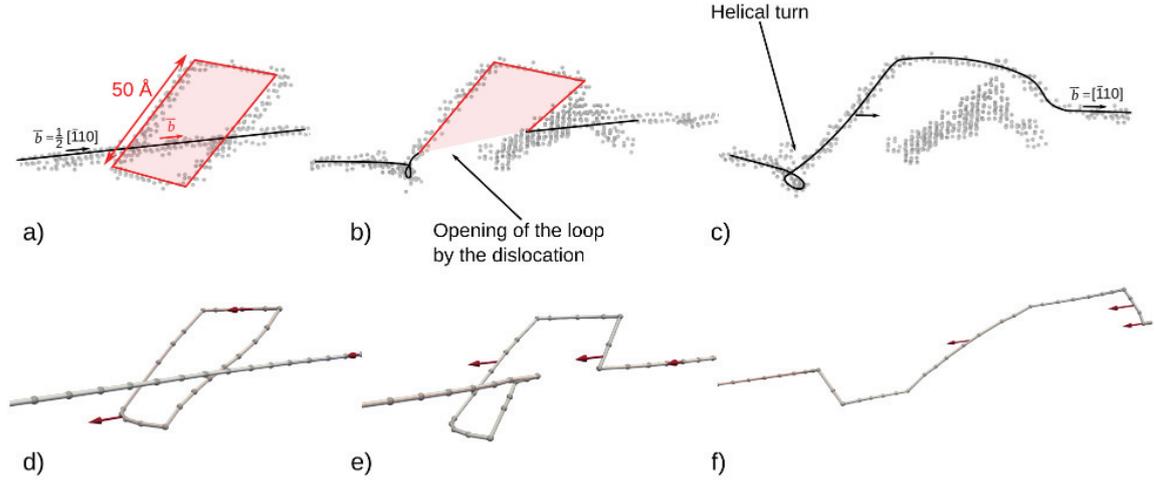


FIGURE 4.11 – Cas n°4 : Interaction entre une ligne de dislocation vis  $1/2[\bar{1}10](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[\bar{1}10]$  (vecteurs de Burgers parallèles) par DM (a-c) et DDD (d-f).

Le cas n°4 est caractérisé par l'interaction entre une dislocation vis  $\{001\}$  et une boucle d'irradiation dont les vecteurs de Burgers sont parallèles (figure 4.11). Lorsque la dislocation mobile croise le premier segment de la boucle prismatique, une scission opère et la boucle s'ouvre dans la direction de la ligne de dislocation  $[\bar{1}10]$  menant à une configuration en forme de tour d'hélice (figure 4.11). A ce moment, la dislocation cesse de glisser. Le même phénomène est observé par DM et par DDD.

*Discussion*

$$\vec{b}_d = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_d = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad \vec{b}_b = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_b = \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_{E_{II}} \quad (4.4)$$

A l'instar du cas n°1, les deux dislocations ont le même vecteur de Burgers et une interaction de contact entre les deux défauts est caractérisée par une réaction colinéaire (ou annihilation) dans le cadre d'interactions dislocation-dislocation. Comme dans le cas n°1, l'interaction de contact mène ici à un échange de bras entre la dislocation et la boucle, plutôt qu'à la formation d'une jonction colinéaire. Il s'ensuit l'ouverture de la boucle qui aboutit à la configuration en

tour d'hélice. Ce type de configuration ne pouvant glisser que dans la direction de son vecteur de Burgers [OSE 06], ici à  $90^\circ$  de la direction de glissement initiale, la configuration en tour d'hélice se comporte comme un obstacle au glissement de la dislocation mobile.

Dans une configuration similaire, Rodney *et al.* ont montré qu'en augmentant la longueur de ligne la dislocation mobile pouvait contourner l'obstacle et se reformer autour du tour d'hélice (reproduisant *in fine* la configuration initiale : une dislocation glissile et une boucle prismatique) [ROD 04]. Nous retrouvons ce même résultat pour une simulation de DDD avec une longueur de ligne de  $1500 \text{ \AA}$  (figure 4.12).

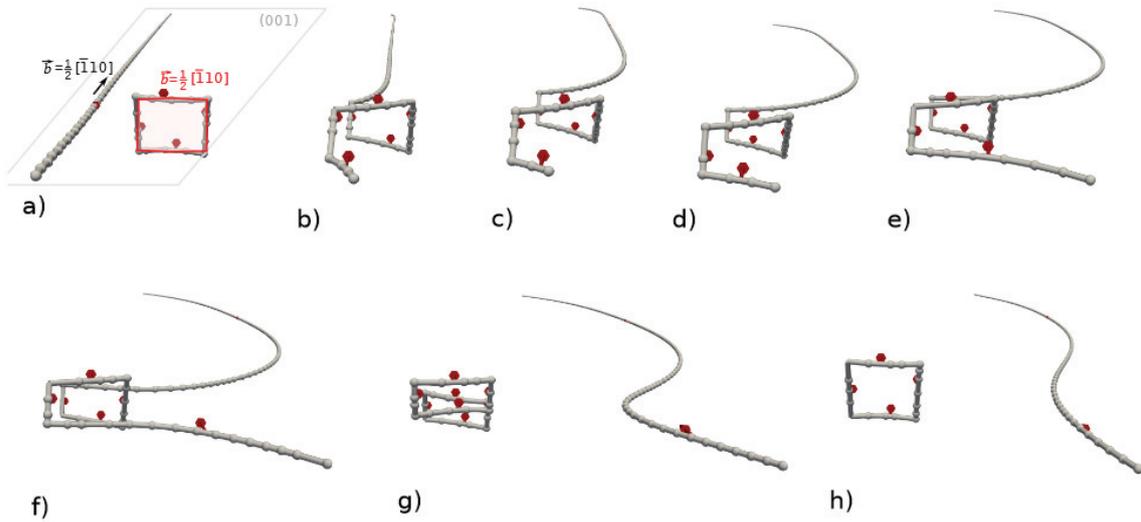


FIGURE 4.12 – Cas n°4 : Simulation par DDD de la reconstruction de la ligne de dislocation vis après destruction de la configuration en tour d'hélice.

### 4.3.2 Cas n°5 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers perpendiculaires

#### *Simulations et résultats*

Le cas n°5, représenté sur la figure 4.13, correspond à l'interaction entre une ligne de dislocation vis  $\{100\}$  et une boucle d'irradiation avec des vecteurs de Burgers perpendiculaires. Lors du contact entre les deux défauts, on observe en DM la formation d'une jonction de Hirth  $\langle 100 \rangle$ . Cette jonction marginalement stable rompt rapidement et la ligne de dislocation se détache de la boucle pour ensuite continuer à glisser. En DDD, la ligne de dislocation entraîne initialement la boucle dans son déplacement. Après quelque pas de temps, la ligne mobile cisaille la boucle, se décroche et continue de glisser.

#### *Discussion*

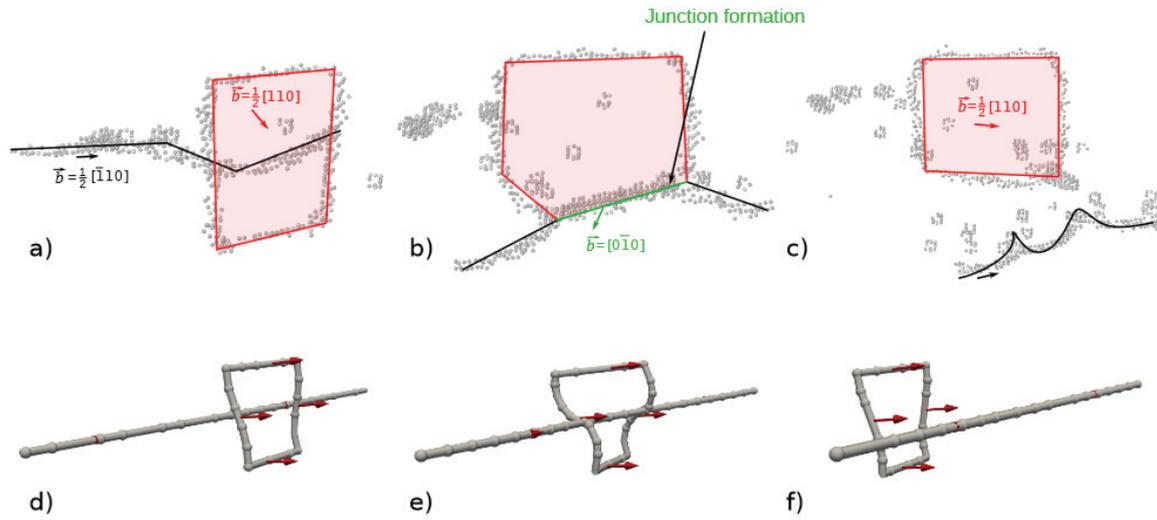


FIGURE 4.13 – Cas n°5 : Interaction entre une ligne de dislocation vis  $1/2[\bar{1}10](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[110]$  par DM (a-c) et par DDD (d-f) (vecteurs de Burgers perpendiculaires).

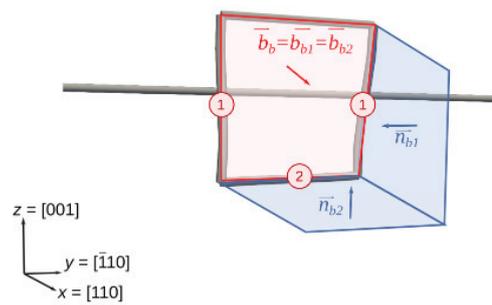


FIGURE 4.14 – Représentation schématique du cas n°5 avec une boucle d'irradiation dont le vecteur de Burgers est orienté suivant  $[110]$ . Les deux plans bleus sont les plans de glissements de normale  $\vec{n}_{bi}$  (avec  $i$  le numéro du segment) associés aux bras de la boucle indicés 1 et 2.

$$\vec{b}_d = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_d = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad \vec{b}_{b1} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_6 \quad \vec{n}_{b1} = \begin{bmatrix} 1 \\ \bar{1} \\ 0 \end{bmatrix}_{F_{II}} \quad \vec{b}_{b2} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_6 \quad \vec{n}_{b2} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad (4.5)$$

Comme déjà vu dans le cas n°2, le cas n°5 est caractérisé par l'absence d'interaction élastique entre la dislocation mobile et les segments indicés 1 (figure 4.14) à cause de l'orientation relative des vecteurs de Burgers et du caractère des dislocations concernées. Notons que l'interaction entre ces deux segments de dislocations pourrait mener à la formation d'une jonction de  $Hirth_{I/II}$ , non observée ni en DM ni en DDD. Néanmoins, la dislocation mobile et les segments de boucle indicés 2, qui sont dans des plans de glissement parallèles, peuvent être caractérisés par des interactions dipolaires notées  $dipole_{I/II}$  dans le tableau 4.2. Dans la simulation en DM, cette interaction dipolaire est à l'origine du glissement dévié de la dislocation vis vers le segment 2 au bas de la boucle. C'est ce processus de glissement dévié qui permet la réaction de contact entre la dislocation mobile et le segment indicé 2 en DM. En plus de l'interaction dipolaire non-locale qui opère lorsque les deux dislocations sont dans des plans parallèles, cette interaction peut mener à la formation d'une jonction de Hirth  $\langle 100 \rangle$  si les deux dislocations concernées sont dans le même plan (non discutée dans Portelette *et al.*). C'est cette réaction que l'on observe en DM. Son absence en DDD est justifiée par le fait que, en l'absence d'informations quantitatives pour  $UO_2$ , nous n'avons pas activé le glissement dévié. Des calculs supplémentaires devront être réalisés afin d'étudier ce genre de configuration en DDD. Dans les deux cas (segment 1 ou 2), les interactions dipolaires ou les jonctions de Hirth sont des obstacles relativement faibles et ne devraient être que très peu durcissants. En fin de simulation, les dislocations vis continuent de glisser sans que leur mobilité ne soit affectée par la présence de l'obstacle. Enfin, on notera que la taille de la boucle pourrait avoir un impact sur l'interaction. Pour des tailles de boucle inférieures, des réactions plus complexes intégrant des dislocations partielles ont pu être observées en DM mais n'ont pas pu être caractérisées rigoureusement.

### 4.3.3 Cas n°6 : Dislocation vis / vecteurs de Burgers orientés à $120^\circ$

#### *Simulations et résultats*

Dans cette configuration (représentée sur la figure 4.15), le vecteur de Burgers de la boucle est orienté suivant  $[011]$  alors que celui de la dislocation est suivant  $[\bar{1}10]$ , ce qui donne un angle de  $120^\circ$  entre les deux vecteurs. Dans ce cas, le contact entre les deux défauts génère une jonction  $glissile_{I/II}^I$  de type  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$ . En DM, la jonction glisse jusqu'à atteindre le bas de la boucle et forme une configuration en tour d'hélice. En DDD, la ligne de dislocation et la jonction glissent jusqu'à ce que la ligne de dislocation se décroche de la boucle d'irradiation. Après interaction, la boucle montre une orientation différente avec  $\vec{b}_b = \vec{b}_j = 1/2[\bar{1}0\bar{1}]$  et la ligne de dislocation continue de glisser.

#### *Discussion*

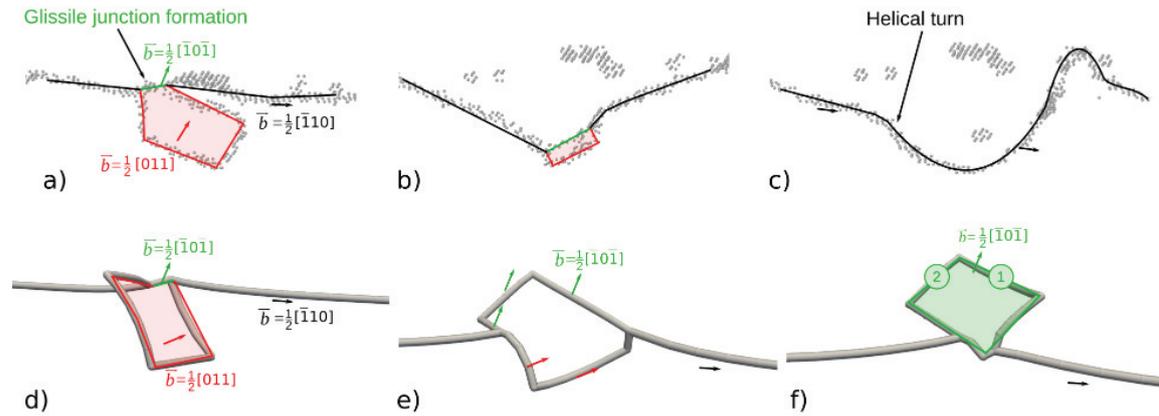


FIGURE 4.15 – Cas n°6 : Interaction entre une ligne de dislocation vis  $1/2[\bar{1}10](001)$  et une boucle d'irradiation  $1/2[011]$  (configuration à  $120^\circ$ ) par DM (a-c) et par DDD (d-f).

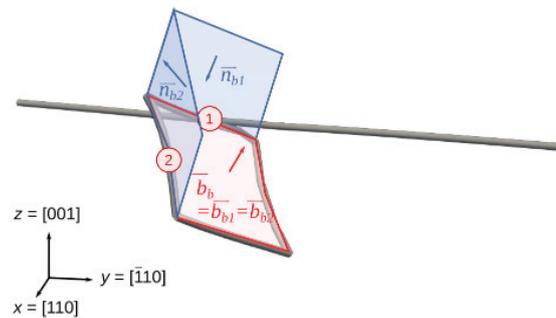


FIGURE 4.16 – Représentation schématique du cas n°6 avec une boucle d'irradiation dont le vecteur de Burgers est orienté suivant  $[011]$ . Les deux plans bleus sont les plans de glissements de normale  $\vec{n}_{bi}$  (avec  $i$  le numéro du segment) associés aux bras de la boucle indicés 1 et 2.

$$(4.6) \quad \vec{b}_d = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \bar{1} \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix}_5 \quad \vec{n}_d = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}_{C_I} \quad \vec{b}_{b1} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix}_1 \quad \vec{n}_{b1} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ \bar{1} \end{bmatrix}_{A_{II}} \quad \vec{b}_{b2} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix}_1 \quad \vec{n}_{b2} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}_{A_I}$$

Comme décrit dans le cas 5, la simulation en DM montre du glissement dévié ce qui explique pourquoi la dislocation mobile interagit ici avec la portion haute de la boucle (segment indicé 1 sur la figure 4.16). D'après Portelette *et al.*, l'interaction entre la dislocation mobile et une dislocation  $1/2[011](01\bar{1})$  (segment 1) peut aboutir à la formation d'une jonction glissile dans le mode II (*glissile* $^{II}_{I/I}$ ) alors que l'interaction entre la même dislocation et le segment 2 peut donner une jonction glissile dans le mode I (*glissile* $^I_{I/II}$ ). Les deux jonctions sont observées respectivement en DM et en DDD (avec et sans glissement dévié), ce qui justifie ici encore l'approche comparative au modèle de la forêt pour interpréter les interactions dislocation-boucle d'irradiation.

Dans la suite de cette section, une attention particulière est portée à l'influence de la contrainte appliquée sur l'interaction pour les différentes configurations étudiées.

#### 4.4 Influence de la contrainte

Les simulations d'interaction entre dislocation et boucle d'irradiation présentées ont été réalisées à une contrainte relativement élevée ( $\tau=900$  MPa), en comparaison aux quelques dizaines de MPa mesurées dans l'expérience. Ce niveau de contrainte n'est pas arbitraire, il est imposée par l'échelle de temps limitée de la DM : les dislocations doivent être mobilisées à vitesse suffisamment élevée (*i.e.*, à forte contrainte) afin d'étudier les réactions entre dislocations dans le court laps de temps imparti (quelques nanosecondes).

Dans cette section, on profite des performances de la DDD pour diminuer le niveau de contrainte et les vitesses de dislocations afin de quantifier l'influence de l'amplitude en contrainte sur les produits de réaction et vérifier la transposition des calculs forte-contrainte réalisés en DM aux conditions expérimentales. Pour ces simulations, un protocole proche de celui utilisé précédemment est utilisé. On utilise une boîte de simulation agrandie ( $200 \times 200 \times 50$  nm<sup>3</sup>) et des conditions périodiques dans la direction de glissement et le long de la ligne de dislocation mobile ( $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ ) alors que des bords libres sont utilisés suivant la normale au plan de glissement ( $\vec{z}$ ). De la même manière que précédemment, une seule ligne de dislocation et une boucle d'irradiation sont modélisées. Néanmoins, on ne travaille plus à contrainte imposée mais à vitesse de déformation imposée, afin de se rapprocher du protocole qui sera utilisé dans les simulations statistiques de durcissement (voir chapitre 2.2.2 pour plus de détails).

Les calculs sont réalisés pour des vitesses de déformation comprises entre  $1.10^5$  s<sup>-1</sup> et  $7.10^6$  s<sup>-1</sup>, correspondant à des contraintes d'écoulement de 10 à 900 MPa (en fonction du type d'interaction étudiée). Voici un résumé des résultats obtenus. Bien que certaines interactions n'ont

montré aucune sensibilité à la contrainte appliquée au système (*i.e.*, les cas n°4 et 5), certains calculs comme le cas n°1 ont montré des différences significatives. Pour des vitesses de cisaillement de  $7.10^6 \text{ s}^{-1}$ ,  $4,5.10^6 \text{ s}^{-1}$  et  $1,20.10^6 \text{ s}^{-1}$ , correspondant respectivement à des contraintes d'environ 900, 600 et 150 MPa, la réaction est la même que celle déjà discutée dans la section 4.2.1, en DM et en DDD. Pour des vitesses de déformation et des contraintes plus faibles, par exemple pour une vitesse de cisaillement de  $5.10^5 \text{ s}^{-1}$  (contrainte équivalente d'environ 70 MPa), la dislocation mobile commence par repousser la boucle empêchant ainsi le contact. Après quelque pas de temps, la réaction décrite dans la section précédente intervient (échange de bras). En diminuant encore la vitesse de déformation ( $2.10^5 \text{ s}^{-1}$  et  $1.10^5 \text{ s}^{-1}$ , contraintes équivalentes respectivement de 30 MPa et 10 MPa), la ligne entraîne la boucle sans que l'on puisse observer d'interaction de contact. On observe donc un effet d'inertie dans les calculs en DDD qui n'est pas capturée par la DM à forte contrainte. La dislocation et la boucle ont une interaction répulsive à grande distance. Si la contrainte, et donc la vitesse de la dislocation, sont élevées, la dislocation entre en contact avec la boucle avant que cette dernière n'ait pu être mise en mouvement par la répulsion élastique. Et inversement, si la contrainte est faible, la dislocation arrive plus lentement vers la boucle, alors cette dernière est mise en mouvement par l'effet de répulsion. Néanmoins, seules des simulations statistiques pourront permettre de quantifier l'impact de l'effet d'inertie sur le durcissement. En effet, bien qu'une boucle puisse être entraînée par une dislocation mobile, il se peut que cette dernière soit de nouveau arrêtée par une hétérogénéité du champ de contrainte induite par la présence d'une ou plusieurs autres boucles (ou dislocation). L'entraînement des boucles d'irradiation par les dislocations mobiles pourrait aussi redistribuer la densité des défauts dans l'échantillon.

Le cas n°2, initialement sans réaction entre la ligne de dislocation et la boucle d'irradiation en DDD, montre une légère influence de la contrainte. En effet, à partir d'une vitesse de cisaillement de  $1,2.10^6 \text{ s}^{-1}$  ( $\tau \sim 150 \text{ MPa}$ ), on observe la formation d'une jonction lors du passage de la ligne au travers du bord de la boucle (figure 4.18). Cette jonction est une *Hirth<sub>I/II</sub>* dont nous avons discuté la faible probabilité d'apparition et justifié son manque de stabilité. On confirme ici que, bien que cette jonction ne soit pas stable, elle peut temporairement être observée pour des contraintes faibles. En effet, elle n'existe que pendant quelques pas de temps alors que la ligne de dislocation continue de glisser et cisaille la boucle prismatique (figure 4.18).

## 4.5 Discussion

Plusieurs études ont été publiées sur les interactions entre dislocations et défauts d'irradiation simulés par DM ou DDD, notamment dans les métaux CFC et CC. Deux études de Osetsky, Bacon et Rodney portent sur les interactions dislocations-boucles d'irradiation et dislocations-tétraèdres de fautes d'empilement étudiées par DM dans des métaux de types CFC et CC [BAC 09, OSE 06]. Des simulations de DDD sur les métaux CFC irradiés ont également été réalisées pour étudier l'écoulement plastique à l'échelle du grain en utilisant les interactions dislocations-boucles élémentaires [ZBI 00, GH0 01, NOG 08]. Plus récemment, Arsenlis *et al.* ont effectué des calculs par DDD dans le but de mieux comprendre les processus qui conduisent au durcissement et à la fragilisation du fer CC irradié en tenant compte des interactions détaillées entre dislocations et boucles de dislocation [ARS 12]. Baudouin *et al.* [BAU 15] ont étudié l'interaction entre une ligne de dislocation coin et une boucle de Franck, en fonction de son orientation, sa température et sa taille dans un alliage Fe-Ni-Cr par DM. De la même

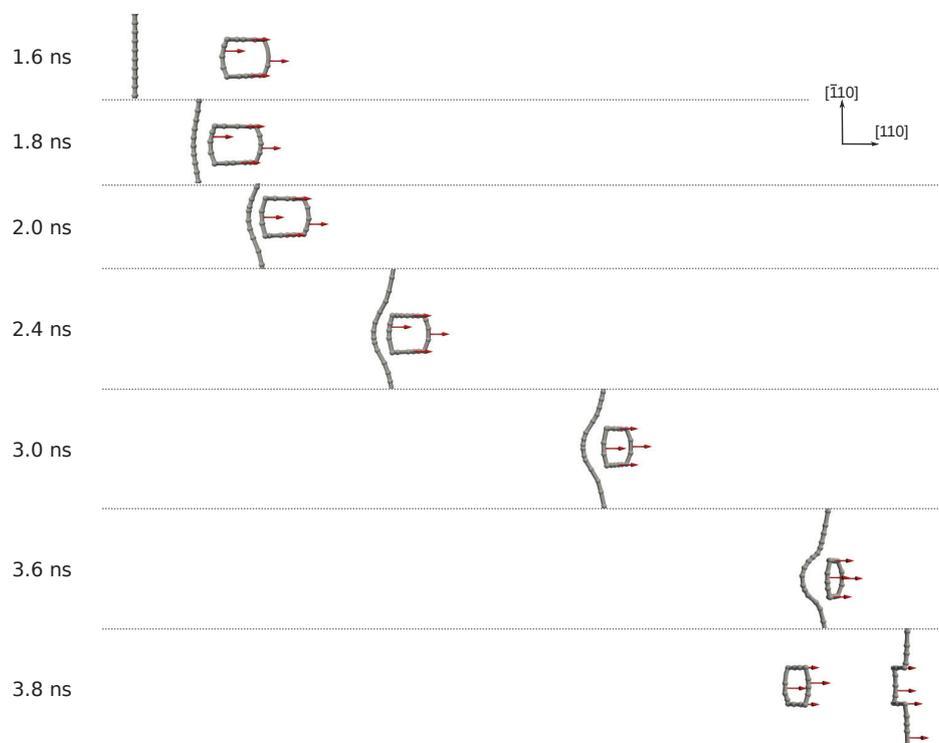


FIGURE 4.17 – Cas n°1 simulé en DDD pour une vitesse de cisaillement de  $5.10^5 \text{ s}^{-1}$  ( $\tau=66 \text{ MPa}$ ). La zone où la dislocation mobile et la boucle prismatique interagissent a été isolée à différents temps de simulation.

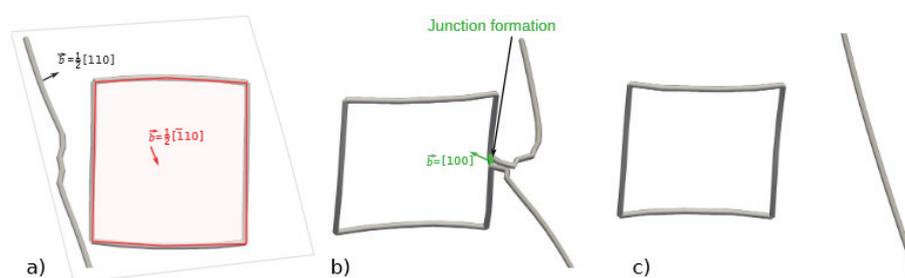


FIGURE 4.18 – Cas n°2 simulé en DDD pour une vitesse de cisaillement de  $1,2.10^6 \text{ s}^{-1}$  ( $\tau=150 \text{ MPa}$ ).

---

manière, Drouet *et al.* [DRO 14] ont étudié les interactions entre les dislocations et les boucles d'irradiation dans du zirconium par DDD. Enfin, Shi *et al.* [SHI 15] se sont intéressés à l'interaction entre dislocation et boucle d'irradiation par DM et DDD dans de la ferrite à haute température et ont également effectué des simulations par DM avec une population significative de boucles. Jusqu'à aujourd'hui, il n'existait pas d'étude numérique sur les interactions entre dislocation et boucle d'irradiation dans  $\text{UO}_2$ .

Au regard des études déjà publiées, le cas n°4 décrit précédemment et caractérisé par la formation d'une configuration en tour d'hélice a déjà été observé dans d'autres matériaux, c'est un cas classique de la dislocation vis qui est intéressant car souvent à l'origine d'un durcissement significatif [BAC 09, DRO 14, SHI 15]. Aussi, le cas n°1 qui montre l'échange de bras entre une dislocation coin et une boucle prismatique, puis l'absorption partielle de la boucle et la formation de super-crans, a également été observé à plusieurs reprises [BAC 09, DRO 14, BAU 15]. Le fait de réaliser ces simulations à la fois en DM et en DDD confirme majoritairement le rôle des interactions élastiques sur les produits de réaction entre dislocations et boucles d'irradiation dans  $\text{UO}_2$  même si les résultats obtenus en DDD sont souvent indépendants de la taille de la boucle car n'intégrant pas certaines spécificités caractéristiques de l'échelle atomique. Cela est particulièrement vrai pour le cas n°2 qui montre une transition entre un comportement de type dislocation à grande taille et un comportement d'amas interstitiels à petite taille. Cette dépendance en taille de boucle a été mise en lumière grâce à la DM et peu d'études portent sur le sujet [OSE 06]. Enfin nous pouvons aussi souligner des différences entre la DM et la DDD pour les cas n°5 et n°6, deux cas caractérisés par du glissement dévié en MD. La différence de résultats s'explique par la non-activation du glissement dévié dans les simulations de DDD, par manque d'informations quantitatives sur celui-ci. Pour résumer les différentes interactions nous utilisons une classification proposée par Bacon, Osetsky et Rodney [BAC 09, OSE 12]. Les auteurs classifient quatre types de réactions :

- R1 : l'obstacle et la dislocation restent inchangés ;
- R2 : l'obstacle a été modifié par l'interaction, mais la dislocation reste inchangée ;
- R3 : l'obstacle a été partiellement ou entièrement absorbé sur la dislocation coin sous forme d'un super-cran ;
- R4 : l'obstacle est temporairement absorbé sur la dislocation vis, sous forme de tour d'hélice.

L'ensemble des résultats obtenus pour les cas n°1 à 6 sont résumés dans le tableau en utilisant cette toponymie, et indiquant les produits de réaction ou encore la sensibilité à la contrainte 4.3.

Cas	$\widehat{\vec{b}_d, \vec{b}_b}$	Équivalence DM/DDD	Réaction [BAC 09, OSE 12]	Produit de réaction	Dépendance en contrainte
Cas n°1	$0^\circ$	Oui	R3	Dislocation glissile avec supercran et boucle partiellement absorbée	Oui
Cas n°2 (80 Å)	$90^\circ$	Oui	R1	Pas d'interaction	Oui
Cas n°2 (40 Å)	$90^\circ$	Non	R3	Dislocation glissile avec supercran et boucle partiellement tronquée	
Cas n°2 (30 Å)	$90^\circ$	Non	R3	Dislocation glissile avec supercran et amas d'interstitiels	
Cas n°3	$120^\circ$	Oui	R3	Dislocation glissile avec supercran et boucle entièrement absorbée	
Cas n°4	$0^\circ$	Oui	R4	Tour d'hélice	Non
Cas n°5	$90^\circ$	Oui	R1	Pas de changement (boucle entraînée par DDD)	Non
Cas n°6	$120^\circ$	Non	R2	DM : Tour d'hélice et DDD : Boucle réorientée suivant $[\bar{1}0\bar{1}]$ et dislocation glissile	

 TABLE 4.3 – Tableau récapitulatif des interactions entre dislocation  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  et boucle d'irradiation  $1/2\{110\}$ .

### Résumé

Ce chapitre est dédié aux interactions élémentaires entre les dislocations  $1/2\langle 110 \rangle\{100\}$  et les boucles d'irradiation prismatiques interstitielles  $\{110\}$  dans  $\text{UO}_2$ . Différents cas indicés de 1 à 6 sont présentés et certains pourraient être responsables d'un durcissement significatif. On notera que les interactions impliquant le caractère coin semble moins durcissant que celles impliquant le caractère vis. Les cas observés où le glissement de la dislocation est le plus entravé sont les cas n°4 et n°6 montrant la formation d'un tour d'hélice le long de la dislocation mobile. L'étude met aussi en évidence l'influence de la contrainte appliquée et celle de la taille de boucle sur l'interaction. On note par exemple l'influence de la taille de boucle sur le cas n°2 : plus la taille de boucle diminue, moins la boucle se comporte comme une dislocation. On remarque aussi l'influence de la taille de boîte notamment sur le cas n°4 où une longue ligne de dislocation permet le désancrage du tour d'hélice. Nous avons aussi pu observer que la contrainte pouvait également avoir un impact sur l'interaction (effet d'inertie), bien que celle-ci ne soit pas totalement altérée. Enfin, cette étude permet de vérifier le bon accord entre les simulations effectuées par DM et par DDD et de valider le protocole qui sera utilisé par la suite en DDD dans des simulations statistiques. Le tableau 4.3 récapitule les différentes configurations observées et les résultats obtenus.

## Chapitre 5

# Durcissement induit par les boucles d'irradiation $1/2\langle 110 \rangle$

Dans ce chapitre, on étudie le durcissement induit par une population de boucles d'irradiation  $1/2\langle 110 \rangle$  par DDD. Le durcissement induit par les boucles d'irradiation est caractérisé dans quatre des cas présentés précédemment. Le protocole présenté dans la section 2.2.2 du chapitre 2 est utilisé. Les simulations sont réalisées à une température de 2000 K, une vitesse de cisaillement de  $10^5 \text{ s}^{-1}$  et, sauf précision contraire, avec une densité de boucles d'irradiation de  $2.10^{22} \text{ m}^{-3}$ , de diamètre de 50 Å. Les résultats sont présentés en fonction du durcissement associé. Une attention particulière est portée à l'influence de la densité des boucles d'irradiation sur le durcissement dans les deux cas les plus pertinents. Ensuite, une discussion met en évidence la difficulté à quantifier le durcissement induit par les irradiations dans  $\text{UO}_2$ . Enfin, le mécanisme du durcissement macroscopique le plus significatif dans le cadre de notre étude est expliqué dans la dernière section.

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Généralités sur le durcissement dans <math>\text{UO}_2</math></b>	<b>93</b>
<b>5.2</b>	<b>Résultats</b>	<b>94</b>
5.2.1	Tableau récapitulatif des différents cas	94
5.2.2	Durcissement faible	94
5.2.3	Durcissement intermédiaire	96
5.2.4	Durcissement fort	96
<b>5.3</b>	<b>Discussion</b>	<b>98</b>
5.3.1	Modélisation du durcissement	98
5.3.2	Scénario formation bande claire	100

---

### 5.1 Généralités sur le durcissement dans $\text{UO}_2$

Il existe peu d'études expérimentales permettant de caractériser le durcissement sous irradiation dans  $\text{UO}_2$  car les expériences sont difficiles à mettre en œuvre. Ainsi, Parise *et al.* [PAR 21] se sont intéressés à la caractérisation des effets de l'irradiation sur le fluage du dioxyde d'uranium polycristallin. Malheureusement, l'irradiation utilisée (faisceaux de protons 20 MeV) induit une

trop grande fragilisation des éprouvettes qui ont rompu rapidement durant les tests de traction. De ce fait, il n’existe pas de caractérisation expérimentale du durcissement induit par l’irradiation. Par modélisation, on peut citer à nouveau le travail de Portelette *et al.* [POR 20] qui permet de caractériser le durcissement induit par les interactions entre dislocations (modèle de la forêt) dans  $\text{UO}_2$ . Les auteurs ont calculé le durcissement dans tous les systèmes de glissement et ont utilisé l’équation de Taylor généralisée pour étudier le durcissement induit par la forêt. Dans notre étude, nous avons essayé d’appliquer un modèle similaire (Bacon *et al.* [BAC 73]) :

$$\Delta\tau = \alpha\mu\frac{b}{l} \quad (5.1)$$

Dans leur étude [BAC 73], les auteurs montrent que  $l = \frac{1}{(Nd)^{1/2}}$ , pour obtenir finalement la formule 5.2 :

$$\Delta\tau = \alpha\mu b(Nd)^{1/2} \quad (5.2)$$

avec  $\Delta\tau = \tau - \tau_f$  où  $\tau$  est la contrainte d’écoulement en présence de défauts et  $\tau_f$  la contrainte associée à la dislocation seule,  $\alpha$  le coefficient de durcissement,  $N$  la densité de boucles d’irradiation et  $d$  le diamètre moyen des boucles. Dans notre étude, la boucle est carrée,  $d$  est alors égal à un côté de la boucle.

Nous verrons par la suite que ce formalisme, valable que dans le cas d’obstacles localisés et placés aléatoirement, n’est pas toujours adapté au durcissement par boucles d’irradiation ce qui rend la quantification du durcissement particulièrement difficile. Les coefficients de durcissement sont discutés dans la seconde partie du chapitre.

## 5.2 Résultats

### 5.2.1 Tableau récapitulatif des différents cas

Dans la suite du travail quatre cas sont caractérisés : deux configurations avec une dislocation coin et une population de boucles dont le vecteur de Burgers fait un angle soit de  $0^\circ$ , soit de  $90^\circ$ , avec celui de la dislocation et deux configurations avec une dislocation vis et une population de boucles avec là aussi un vecteur de Burgers parallèle ou perpendiculaire à la dislocation. Ces cas sont indexés 1,2,4 et 5 (voir tableau 1.1), en référence aux labels utilisés pour caractériser les réactions de contact dans le chapitre précédent. Dans différents cas, plusieurs études sont reproduites avec la même densité d’obstacles générée de façon aléatoire. Enfin, les études sont également réalisées avec une densité de défauts différente de celle de référence *i.e.*  $2.10^{22} \text{ m}^{-3}$ . Le tableau 5.1 présente une synthèse des différentes simulations. Dans ce tableau on peut aussi voir le  $\Delta\tau$  obtenu pour chaque cas et de ce fait, catégoriser les différentes simulations en fonction de leur durcissement associé : du plus faible au plus significatif.

### 5.2.2 Durcissement faible

Le cas n°2 est caractérisé par l’interaction entre une dislocation coin et une densité de boucles d’irradiation dont le vecteur de Burgers est perpendiculaire à celui de la dislocation. Ce cas a été caractérisé comme un cas très peu durcissant au chapitre précédent. Pour rappel, il n’y avait pas d’interaction élastique entre la dislocation et la boucle d’irradiation pour une grande contrainte

Caractère dislocation	Configuration	$\widehat{b_d, b_b}$	Densité [ $m^{-3}$ ]	$\Delta\tau$ [MPa]	Durcissement
Coin	Cas n°1	$0^\circ$	$2.10^{22}$	92	Intermédiaire
			$8.10^{21}$	37	
Coin	Cas n°2	$90^\circ$	$2.10^{22}$	42	Faible
			$2.10^{22}$	37	
			$5.10^{22}$	77	
			$1.10^{23}$	96	
			$8.10^{21}$	2487	
Vis	Cas n°4	$0^\circ$	$2.10^{22}$	1017	Fort
			$2.10^{22}$	137	
			$2.10^{22}$	327	
			$5.10^{22}$	1287	
			$1.10^{23}$	733	
Vis	Cas n°5	$90^\circ$	$2.10^{22}$	61	Intermédiaire

TABLE 5.1 – Tableau récapitulatif des quatre cas étudiés avec différentes densités de boucles de type  $1/2\langle 110 \rangle$ .

appliquée mais une jonction de Hirth pouvait apparaître pour une contrainte plus faible (*cf.* les sections 4.1.2 et 4.3 du chapitre 4).

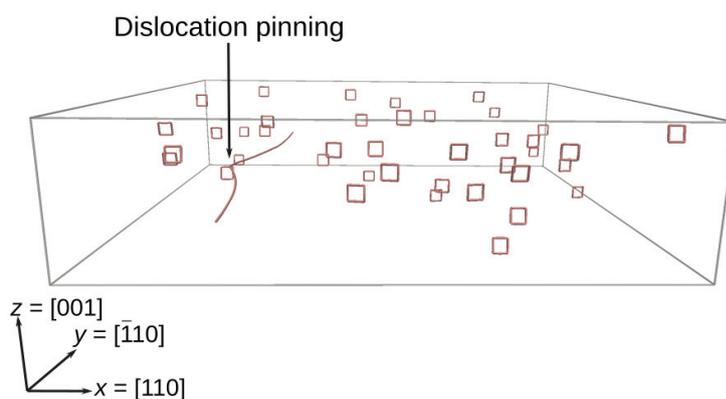


FIGURE 5.1 – Cas n°2 : interaction entre dislocation coin et une population de boucles  $1/2[\bar{1}10]$ . Illustration du mécanisme d'épinglage (pinning) entre la dislocation mobile et les segments de la boucle.

Ici nous pouvons voir sur l'image 5.1 que la dislocation interagit avec les segments verticaux des boucles d'irradiation en créant des jonctions de Hirth. Il y a également des interactions sans contact avec les segments horizontaux des boucles. Comme étudié précédemment, la jonction de Hirth est une jonction marginalement stable. De fait, la dislocation ne reste pas ancrée mais la contrainte augmente jusqu'à environ 50 MPa, à chaque fois que la dislocation crée un contact avec une boucle. On peut voir sur la courbe 5.2 que ce sont des contacts temporaires et que la ligne continue de glisser jusqu'à être à nouveau en contact avec un défaut. De ce fait, ce cas est

un exemple de durcissement faible.

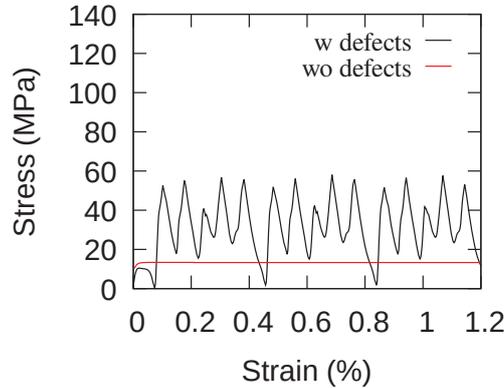


FIGURE 5.2 – Cas n°2 : courbes contrainte-déformation avec défauts (en noir, w defects) et sans défauts (en rouge, wo defects).

### 5.2.3 Durcissement intermédiaire

Les cas n°1 et n°5 sont caractérisés respectivement par la réaction entre une dislocation coin avec une densité de boucles dont les vecteurs de Burgers sont parallèles et une dislocation vis avec des boucles d'irradiation dont les vecteurs de Burgers sont perpendiculaires. Dans ces deux cas la réaction est la même : la dislocation glisse dans son plan de glissement et les boucles d'irradiation sont entraînées par les champs de contrainte de la dislocation et des boucles. Comme expliqué dans le chapitre 1, les boucles d'irradiation se déplacent le long d'un cylindre selon la direction de leur vecteur de Burgers et seulement sous l'effet des champs de contrainte d'autres défauts tels que des dislocations ou d'autres boucles, c'est pourquoi les boucles sont mobiles dans ces cas.

La concentration de boucles créée est entourée en rouge sur l'image 5.3. La dislocation continue de glisser tout en balayant la boîte et entraîne alors quasiment la population complète de boucles (5.3), c'est ce qu'on appelle le *drag effect*. Ce phénomène génère alors des zones complètement vidées de boucle d'irradiation appelées bandes claires.

On observe sur les courbes (figure 5.4) que la contrainte augmente au fur et à mesure que les boucles sont attirées par le cortège de boucles existant, ce nuage de boucles ralentit donc la dislocation et de fait, la contrainte doit augmenter pour respecter la vitesse de cisaillement imposée. Une fois toutes les boucles entraînées, la dislocation continue à glisser mais la contrainte n'augmente plus. Dans ce cas, on parle de durcissement "dynamique", et il est ici d'une amplitude modérée (durcissement intermédiaire).

### 5.2.4 Durcissement fort

Dans le cas n°4, une dislocation de caractère vis est en interaction avec une densité de boucles d'irradiation dont les vecteurs de Burgers sont perpendiculaires. Comme étudiée au chapitre 4,

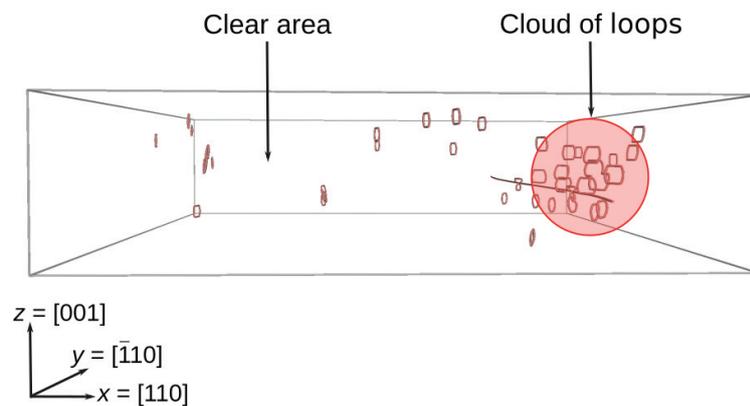


FIGURE 5.3 – Cas n°5 : interaction entre dislocation vis et une population de boucles  $1/2[110]$ . Illustration du mécanisme de *drag effect* et de formation de bande claire. Le même processus est observé dans le cas n°1.

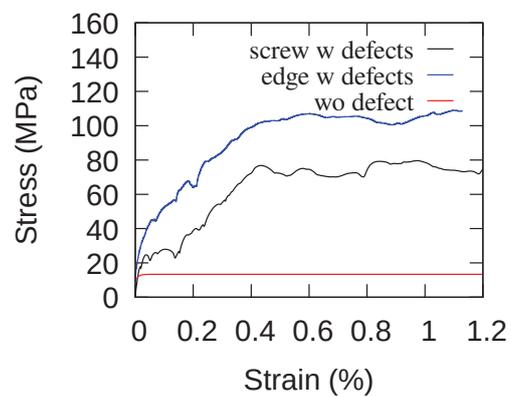


FIGURE 5.4 – Courbes contraintes-déformations des cas n°1 et 5 dans le cadre d’une simulation massive avec les courbes rouge, bleue et noire représentant respectivement la contrainte d’écoulement de la dislocation sans défaut, la dislocation vis (cas n°5) avec une population de défauts et la dislocation coin (cas n°1) avec une population de défauts.

l’interaction topologique du cas n°4 donne la formation d’un tour d’hélice. Ici, nous pouvons voir sur l’image 5.5 que la ligne de dislocation présente plusieurs tours d’hélice.

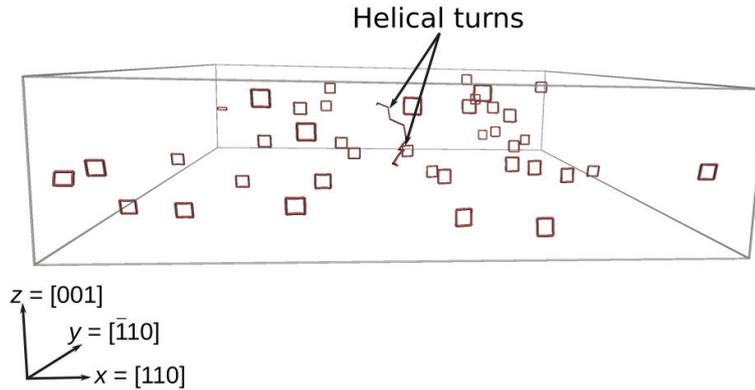


FIGURE 5.5 – Cas n°4 : interaction entre dislocation vis et une population de boucles  $1/2[\bar{1}10]$ . Illustration de la formation de multiple tours d’hélice.

Lorsque la dislocation est ancrée par les tours d’hélice et ne peut plus glisser, la contrainte augmente considérablement et atteint plus de 1000 MPa (courbe 5.6). Cette interaction est très durcissante. La dislocation se désancre en faisant bouger le tour d’hélice le long de sa ligne afin d’avoir un segment vis, assez long pour pouvoir glisser et entraîner le reste de la ligne. Une fois que la dislocation se désancre la contrainte diminue jusqu’à ce que la dislocation s’ancre à nouveau via un tour d’hélice. Selon la géométrie des défauts rencontrés la contrainte va davantage augmenter, le premier pic de la contrainte sur la courbe 5.6 se traduit par la formation de deux tours d’hélice proche l’un de l’autre. Les pics suivants, caractérisés par des contraintes plus faibles, se distinguent par la formation d’un unique tour d’hélice. Une section est réservée par la suite pour l’explication des différents mécanismes induits par cette interaction.

## 5.3 Discussion

### 5.3.1 Modélisation du durcissement

Dans les simulations massives des cas n°1 et 5 où le *drag effect* apparaît, il n’y a pas de contact et les boucles n’interagissent que par les effets à grande distance des champs de contraintes, de ce fait la formule n’est pas applicable. Ensuite, le calcul du durcissement induit dans le cas où l’on observe la formation de tours d’hélice est difficilement mesurable. En effet, le tour d’hélice n’est pas un défaut localisé et la microstructure de la boîte de simulation change au fur et à mesure du glissement de la dislocation, c’est pourquoi la formule ne peut pas, là encore, être appliquée. Nous reviendrons sur la caractérisation de ce cas par la suite. Enfin, le seul cas où la formule est applicable est la simulation massive du cas n°2, bien que celle-ci soit discutable. Rappelons que la formule 5.2 doit respecter des interactions avec des obstacles ponctuels et positionnés aléatoirement. Dans notre cas, la dislocation interagit avec les segments verticaux, donc une interaction localisée, et par champs élastiques avec les segments horizontaux. Néanmoins, nous avons tracé la courbe  $\Delta\tau$  en fonction de la densité de boucles et obtenons la courbe 5.7.

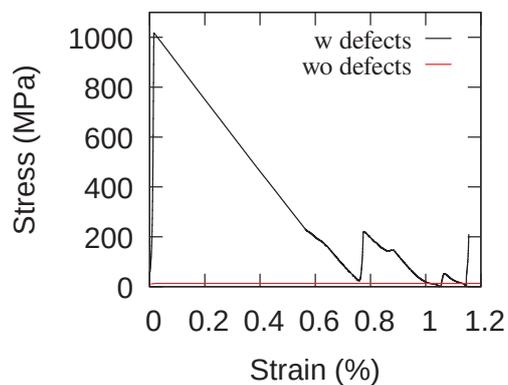


FIGURE 5.6 – Courbe contrainte-déformation du cas n°4 dans le cadre d’une simulation massive avec les courbes rouge et noire représentant respectivement la contrainte d’écoulement de la dislocation sans défaut et celle de la dislocation avec population de défauts.

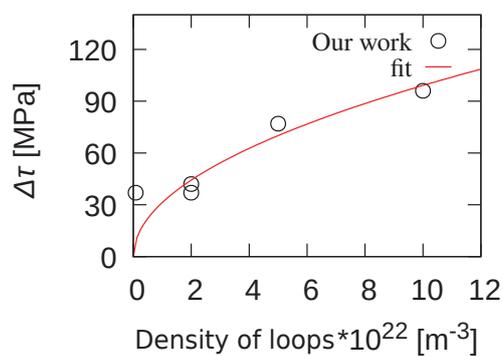


FIGURE 5.7 – Cas n°2 : courbe  $\Delta\tau$  en fonction de la densité de boucles dans le volume de simulation. Les cercles noirs sont les valeurs mesurées par les simulations et la courbe rouge est celle obtenue à partir de l’équation 5.2.

Cette courbe permet de mettre en valeur la dépendance en racine carrée de la densité des boucles et donc la validité de l'équation appliquée. On voit que pour de faibles densités de boucle d'irradiation, la croissance de la contrainte est rapide alors qu'en allant vers des densités plus grandes la contrainte croît de manière moins rapide. En appliquant cette formule on a pu en déduire que dans ce cas  $\alpha=0,06$ . De manière générale, on peut conclure que cette interaction est peu durcissante et qu'elle a un rôle faible dans le durcissement induit par l'irradiation.

En conclusion, les coefficients de la matrice d'interaction dans le cas d'interactions avec des boucles d'irradiation sont difficiles à évaluer car la formule doit vérifier plusieurs critères pour être appliquée correctement et qu'il n'a pas encore été développé d'autres modèles.

### 5.3.2 Scénario formation bande claire

Dans une microstructure anisotrope, une dislocation glisse et rencontre une densité d'obstacles placés aléatoirement. La portion coin de la dislocation sera courte car, comme vu précédemment les dislocations coins ne sont pas fortement ancrées par des boucles d'irradiation ; elle peuvent les traverser ou les emporter pour des contraintes faibles. A l'inverse, la partie vis de la dislocation sera longue due à l'ancrage en tour d'hélice. On s'attend donc à la création d'une microstructure anisotrope constituée de longues dislocations vis fortement ancrées par des tours d'hélice avec des segments coins courts et mobiles.

Effectivement, comme vu dans le chapitre 4, l'interaction du cas n°4 créait un tour d'hélice. Dans le cadre d'une simulation massive on observe la création de multiples tours d'hélice. Afin de se décrocher, la dislocation vis écarte les boucles le long de sa ligne : c'est un mécanisme de *shovelling*, de ce fait elle libère un segment de vis plus long qui lui permet de glisser, attirant par la suite la ligne de dislocation complète. La dislocation déplete alors une zone de boucles qui devient ainsi une bande claire (illustrée sur l'image 5.8).

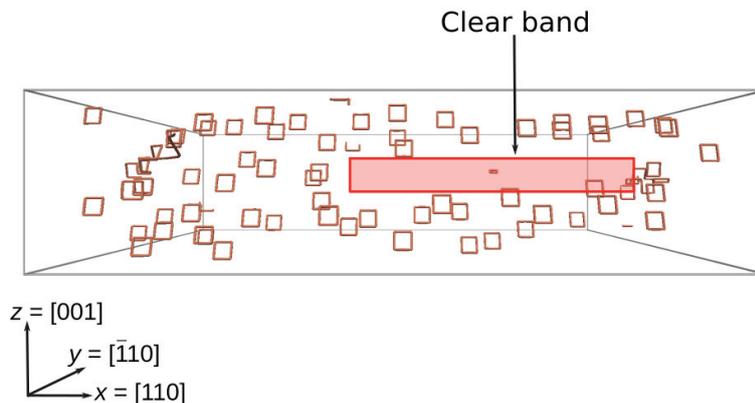


FIGURE 5.8 – Création de la bande claire par DDD.

Lors de son premier passage, la dislocation glisse dans la boîte au travers d'une distribution aléatoire de boucles d'irradiation. C'est à ce moment qu'il y a la création de la bande claire. La microstructure de la boîte est alors altérée et le glissement de la dislocation est donc facilité.

Ce résultat a déjà été discuté dans des métaux CFC. L'hypothèse d'une formation de bande

claire a été initiée par Sharp *et al.* [SHA 67] en 1967 (figure 5.9). Robach *et al.* [ROB 03] se sont également intéressés aux interactions dislocations-défauts d'irradiation dans du cuivre irradié. Ils ont caractérisé par MET la formation de canaux nettoyés de défauts d'irradiation après le passage de dislocations vis.

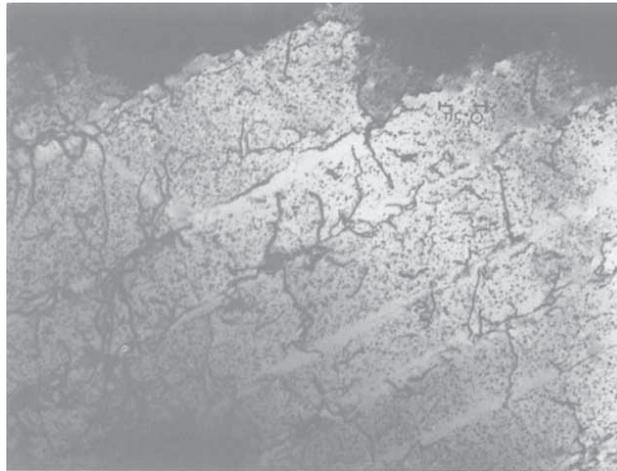


FIGURE 5.9 – Image MET d'un échantillon de cuivre irradié. Illustration de la formation de bandes claires [SHA 67].

Enfin, le phénomène est reproduit par DDD dans des études plus récentes. Nogaret *et al.* [NOG 08] ont introduit des dislocations glissiles dans une boîte avec une population de boucles de Frank.

Le travail de Nogaret *et al.* met en valeur la création de bande claire par simulation en DDD (comme illustrée sur la figure 5.10.c). L'angle de vue, par dessus la lame mince (représentée sur la figure 5.10.a), met en valeur l'impact de la formation de la bande claire sur le glissement des dislocations. La première dislocation (encadrée en rouge) présente beaucoup de points d'ancrage, c'est aussi celle-ci qui a écarté les boucles lors de son premier passage et qui a donc modifié la microstructure. Les dislocations qui suivent ont alors un glissement facilité jusqu'aux dernières générées (encadrées en bleu) qui sont quasiment sans ancrage.

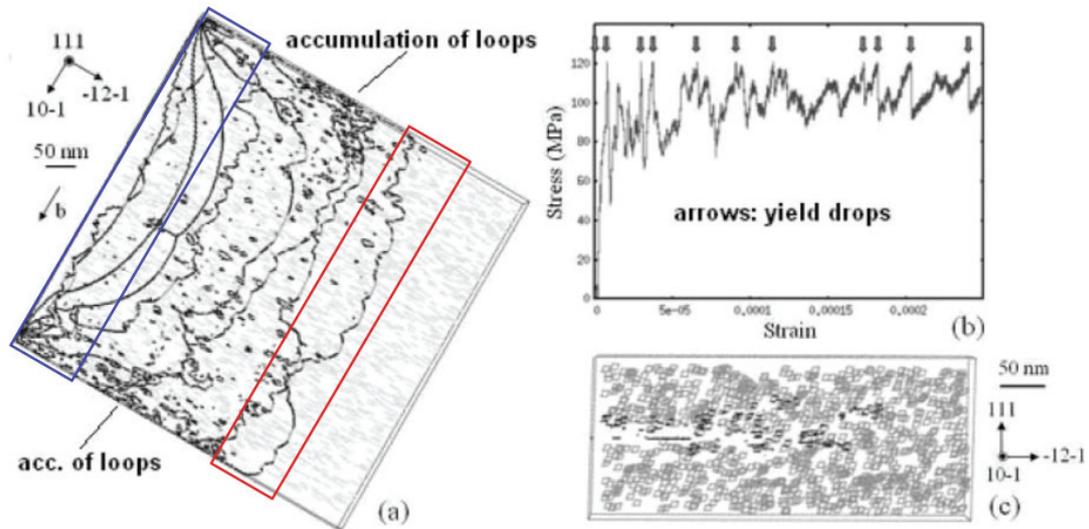


FIGURE 5.10 – Glissement de dislocations dans une lame mince de 200 nm modélisé par DDD a) selon  $[111]$  b) courbe contrainte/déformation c) selon  $[10\bar{1}]$  [NOG 08].

### Résumé

Ce chapitre est dédié au durcissement induit par les boucles d'irradiation. Il permet de comprendre le rôle d'une population de boucles d'irradiation sur le glissement d'une dislocation glissile. On constate que les différents cas mènent à des durcissements différents. Ici nous avons catégoriser trois durcissements en fonction de leur impact. Le durcissement faible est associé au glissement d'une dislocation coin dans une population de boucles d'irradiation. Dans ce cas le modèle le plus simple de durcissement a pu être appliqué. Le durcissement intermédiaire correspond au cas du *drag effect* avec le glissement d'une dislocation coin ou vis dans une population de boucles d'irradiation dont leur vecteurs de Burgers sont suivant la direction du glissement. Enfin, l'exemple d'un durcissement fort est le cas du tour d'hélice où la contrainte d'écoulement de la dislocation augmente significativement.

L'étude montre que le durcissement est compliqué à caractériser et qu'il existe peu de modèles pour le quantifier. Le cas du durcissement fort permet de proposer un mécanisme de formation de bande claire pilotée par les dislocations vis. Ce mécanisme est en accord avec d'autres observations par simulations et images MET dans les métaux. Il est cependant à noter que ce scénario contraste avec le mécanisme classiquement discuté de formation de bande claire pilotée par l'absorption des boucles par des dislocations coins.

# Conclusion générale et perspectives

## Conclusion

Le but principal de cette thèse était d'étudier le durcissement induit par les boucles d'irradiation. Pour se faire, une approche de modélisation multi-échelle a été utilisée. Nous avons d'abord caractérisé la structure de coeur et la mobilité de la dislocation coin  $1/2\langle 110 \rangle\{001\}$  par simulation moléculaire. Cette première étude a permis de mettre au point un protocole d'étude utilisé pour toutes les simulations et de vérifier le potentiel empirique utilisé en comparant nos résultats avec un potentiel à charges variables et des calculs *ab initio*. Comme expliqué dans le chapitre 2, le potentiel de Potashnikov est adapté à notre étude. Il existe un autre potentiel : celui de Cooper, aussi appelé CRG, adapté à l'étude des dislocations et des interactions entre dislocations et défauts dans  $\text{UO}_2$  par DM qui pourrait être également utilisé dans des études similaires, bien qu'un peu plus coûteux en temps de calcul. Mon travail a permis de caractériser une nouvelle structure de coeur stable, appelée *zig-zag*, qui à son centre, présente un dédoublement d'atomes d'oxygène le long de la ligne de dislocation. Grâce à plusieurs simulations, nous avons ensuite été capable de caractériser les deux régimes de mobilité de la dislocation coin. Tout d'abord, il y a le régime thermiquement activé où la mobilité de la dislocation dépend de la température et dans lequel la dislocation se déplace par le mécanisme de double décrochement. Au delà de la température de transition athermique, estimée à environ 2000 K, le régime athermique est alors défini. Dans ce système, la dislocation se déplace comme une corde vibrante et sa vitesse ne dépend pas de la température. Afin d'ajuster au mieux les données, nous avons utilisé deux modèles de vitesse adaptés respectivement aux deux régimes de déformation. Enfin, cette étude a permis de révéler l'influence de la structure de coeur de la dislocation sur sa vitesse.

Par la suite, nous avons caractérisé les interactions entre une dislocation, de caractère coin ou vis, et une boucle d'irradiation. Nous avons réalisé cette étude topologique par DM et par DDD, informée par une loi de mobilité trouvée en DM. Le protocole utilisé, en DM et DDD, est proche de celui de la première simulation, une boucle d'irradiation est insérée face à une des deux dislocations du dipôle. Ces études ont permis de mettre en évidence la bonne concordance entre les simulations effectuées par DM et par DDD lorsque l'interaction ne fait pas intervenir de glissement dévié. Nous avons également étudié l'influence de la taille de boîte, de la taille de la boucle d'irradiation et de la contrainte sur l'interaction. On notera notamment que si le diamètre de la boucle est trop petit, elle devient comparable à un amas d'atomes et l'interaction en est alors modifiée. Nous avons également pu observer l'apparition du glissement dévié durant le glissement de la dislocation vis par DM. Ce mécanisme n'a pas été intégré dans la DDD par

manque d'information et de temps. Cependant on a vu certaines différences entre les interactions DM et DDD dans le cas où il y avait du glissement dévié. Cela peut donc devenir une piste pour les prochaines simulations sur ce sujet. Plusieurs interactions ont été étudiées et ont donné des résultats intéressants pour la suite. En effet, nous avons pu voir à cette échelle que les interactions faisant intervenir des dislocations coins sont moins durcissantes que celles avec des dislocations vis. Les interactions avec les dislocations coins forment des jonctions instables ou glissiles, la ligne de dislocation continue de glisser sans être ancrée dans tous les cas étudiés. Dans une interaction avec une dislocation vis et une boucle d'irradiation dont les vecteurs de Burgers sont parallèles, la formation d'un tour d'hélice est observé. C'est l'interaction la plus durcissante car le tour d'hélice ne peut avancer avec la dislocation, qui reste fortement ancrée.

Afin de mieux appréhender le durcissement nous avons réalisé des études massives par DDD où une population de boucles est insérée de façon aléatoire dans la boîte de simulation. Ces simulations ont permis de mettre en valeurs trois types de durcissements. Le cas d'un durcissement faible est d'abord présenté et fait intervenir une dislocation coin. Ce cas est intéressant car un coefficient de durcissement  $\alpha$  a pu y être associé. Nous avons souligné la dépendance de la contrainte d'écoulement ( $\Delta\tau$ ) en fonction de la densité de défauts dans la boîte. Malgré une interaction peu durcissante, il serait intéressant ici de continuer cette étude en réalisant davantage de cas avec différentes populations de défauts afin de mieux mettre en valeur la dépendance de  $\Delta\tau$ . Le cas d'un durcissement intermédiaire a été caractérisé dans deux simulations, une avec une dislocation coin et une avec une dislocation vis. Dans ce cas; c'est un mécanisme de type *drag effect* qui a été observé, c'est à dire le phénomène d'aimant de la part de la dislocation sur les boucles qui sont attirées et tractées lors du glissement de la dislocation. Enfin, le cas avec le durcissement le plus important est le cas où est observé la formation du tour d'hélice. Dans ce cas, la dislocation forme plusieurs tours d'hélice et la contrainte augmente considérablement. Ce cas permet de caractériser le phénomène de *shoveling* (action de désancrage de la dislocation qui consiste à déplacer les boucles d'irradiation en dehors du plan de glissement) et la formation de bande claire (zone vidée de défaut). Ce phénomène a déjà été observé par MET et par DDD dans des métaux. Notre étude permet ainsi de confirmer la création de bande claire par les dislocations vis dans  $UO_2$ .

## Perspectives

Voici une liste de perspectives organisée par thématique qu'il serait pertinent d'investiguer dans les années à venir.

### *Compréhension des modes glissements de $UO_2$*

Dans l'étude du chapitre 3, nous avons pu mettre en valeur l'influence du coeur de dislocation sur la vitesse de dislocation et avons montré qu'un coeur neutre, plus stable, est plus

lent qu'un coeur chargé et métastable. On peut alors se questionner sur la nature des coeurs de dislocations présents dans  $\text{UO}_2$  et pour y répondre il serait pertinent de réaliser des observations par microscopie haute résolution pour caractériser les coeurs les plus présents dans le matériau. Pour avoir une compréhension plus globale du comportement du matériau, il serait pertinent de continuer l'étude de la mobilité de la dislocation coin dans les autres systèmes de glissement. L'étude de la mobilité de la dislocation vis est aussi une piste intéressante car le glissement dévié est complexe dans  $\text{UO}_2$ . Effectivement, des études expérimentales ont permis de mettre en évidence le glissement dévié des dislocations vis dans  $\{100\}$  vers les plans  $\{111\}$  [SOU 77, DHE 00].

#### *Défauts d'irradiation*

L'irradiation produit des réactions de fission qui entraînent la création des défauts d'irradiations. Il en existe plusieurs dont des défauts ponctuels tels que les lacunes ou interstitiels, des bulles de fission qui sont des amas d'interstitiels nanométrique de Xe ou Kr et des précipités métalliques. Il est aussi intéressant d'étudier les autres défauts d'irradiation, notamment leur réaction avec des dislocations ou des joints de grains, afin d'avoir une compréhension globale du mécanisme d'irradiation et son rôle dans le durcissement de  $\text{UO}_2$ . Plusieurs études expérimentales ont permis de caractériser les défauts et il existe déjà des projets notamment sur l'étude de l'interaction entre dislocations et bulles de fission mais à l'échelle atomique pour le moment.

Les boucles d'irradiation sont également nombreuses et de natures différentes. Les premières à apparaître durant l'irradiation sont de nature interstitielle et de plan d'habitat  $\{111\}$ , elles ont un diamètre inférieur au nanomètre, sont imparfaites et instables. Ces boucles tendent à évoluer vers des boucles de plus grands diamètres de Burgers  $1/2\langle 110 \rangle$  et de plan d'habitat  $\{110\}$  (étudiées dans ce travail) et même si, moins observées par MET, il existe également des boucles de plan d'habitat  $\{111\}$ . Dans ces deux cas ce sont des boucles prismatiques, interstitielles, non fautées et de diamètre moyen de 5 nm. De ce fait, il serait intéressant de modéliser une loi de mobilité des boucles d'irradiation  $\{110\}$  et de caractériser les boucles  $\{111\}$  : leur mobilité et leur stabilité. L'objectif final est de mesurer le durcissement induit par les deux types de boucles.

#### *Interaction topologique entre dislocation glissile $\{100\}$ et boucle d'irradiation $1/2\langle 110 \rangle$*

Afin de compléter l'étude, il serait pertinent d'activer le glissement dévié de la dislocation vis dans le modèle de DDD. Effectivement, nous avons vu l'impact du glissement dévié dans le chapitre 4 qui crée une différence de résultats entre la DM et la DDD. Activer le glissement dévié pourrait alors valider la cohérence DM/DDD et pourrait modifier les premiers résultats de durcissement obtenus au chapitre 5. Il serait également intéressant d'approfondir l'étude du cas où la dislocation contourne la boucle de petit diamètre (cas n°2 du chapitre 4) assimilée à un amas d'interstitiels. En effet durant cette interaction nous avons pu observer plusieurs mécanismes (la formation de quatre jonctions, de noeuds triples et la montée de la dislocation) qu'il serait intéressant de mieux comprendre.

#### *Caractérisation du durcissement*

Pour pouvoir compléter l'étude du durcissement dans le mode I, il est nécessaire de faire davantage de simulations dans chaque cas afin d'obtenir des résultats statiquement complets. Il

serait aussi pertinent de réaliser des calculs dans un volume de simulation beaucoup plus grand afin d'imposer une vitesse de cisaillement plus basse et plus proche des valeurs expérimentales (*i.e.*  $10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ) et donc de laisser le temps au système de se réarranger, notamment dans le cas n°4 avec la création de la bande claire. Il serait aussi intéressant de réaliser des simulations avec des boucles de diamètre inférieur ( $\sim 30 \text{ \AA}$ ) pour également voir le comportement collectif. En effet, nous avons vu dans le cas n°2 du chapitre 4 que la dislocation a un comportement différent lorsque la boucle est de petit diamètre. Aussi, pour avoir une meilleure appréhension du durcissement globale dans le mode I, il serait intéressant d'insérer des sources de Frank-Read au lieu d'une dislocation de caractère coin ou vis, afin d'avoir une caractérisation globale des dislocations face à une population de boucles et de mieux observer les différences de comportement entre les portions des dislocations vis, coins ou mixtes.

Enfin, afin de mieux caractériser le durcissement il serait pertinent de développer des modèles adaptés aux différents cas observés. Ces modèles pourraient alors être implémentés dans des lois de comportements du matériau sous irradiation pour mieux l'étudier à l'échelle macroscopique par la méthode des éléments finis notamment.

## Annexe A

# Supplementary material

### A.1 Influence of the charge summation method : Ewald *vs.* Wolf

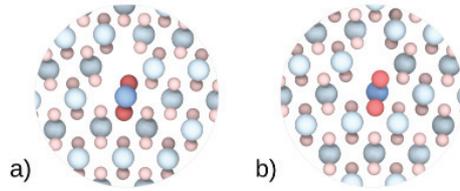


FIGURE A.1 –  $\frac{1}{2}110\{100\}$  edge dislocation Ashbee core computed using various charge summation methods, (a) Ewald, (b) Wolf.

Here we compare the cpu costs involved using either the Wolf [WOL 99] or the Ewald [EWA 21] charge summation methods in the context of dislocation energy minimization simulations. The simulation cell of size  $221 \times 15 \times 223 \text{ \AA}^3$  contains a dipole of  $\frac{1}{2}110\{100\}$  neutral edge dislocations similar to the one used in the original manuscript. Two simulations are designed using either the Wolf or the Ewald method as a charge summation method. The cutoff radii for Buckingham and Coulombic interactions are  $11 \text{ \AA}$  for Ewald method simulation while Wolf parameters are presented in the article. After box relaxation, the potential energy of the system ( $E_{pot}$ ) is minimized using the FIRE minimization algorithm. For this test, a stopping criterion on the total net force of about  $F_{norm} = 10^{-2} \text{ eV.\AA}$  and the same 30 processors are used. Simulation outcomes are presented in Table A.1. Final  $E_{pot}$  values are slightly different due to the various formalisms for charges but the two relaxed core configurations are comparable as shown Figure A.1. Pressure components ranges are low and comparable. The main concern is the cpu costs that are about  $\times 50$  lower when relying on the Wolf method.

### A.2 Unrelaxed edge $\{100\}$ core structures

---

	Ewald	Wolf
$F_{norm}$ [eV/Å]	$9.7 \cdot 10^{-3}$	$9.7 \cdot 10^{-3}$
$E_{pot}$ [eV]	-933379.38	-933064.32
$P_{xx}$ [MPa]	-274	80
$P_{yy}$ [MPa]	-312	21
$P_{zz}$ [MPa]	-279	58
Cpu time [H :min]	03 :42	00 :04

---

TABLE A.1 – Dislocation energy minimization. Comparison between Ewald and Wolf charge summation methods.

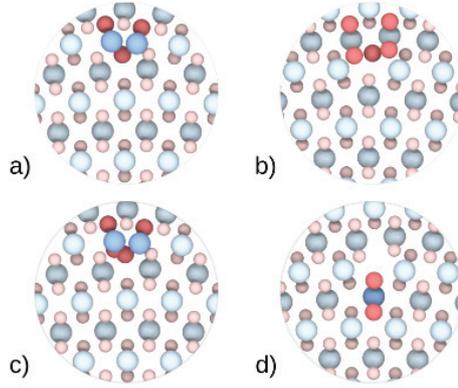


FIGURE A.2 – Unrelaxed  $\frac{1}{2}110 \{100\}$  edge dislocation core structures. (a) Positively charged core, (b) Negatively charged core and (c,d) Neutral configurations.

# Références bibliographiques

- [ABR 99] ABRAMOWSKI M., GRIMES R. W., OWENS S.  
Morphology of  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, vol. 275, 1999, p. 12–18.
- [AHR 05] AHRENS J., GEVECI B., LAW C.  
Paraview : An end-user tool for large data visualization. *The visualization handbook*, vol. 717, 2005.
- [AL' 75] AL'SHITZ V. A., INDENBOM V. L.  
Dynamic dragging of dislocations. *Soviet Physics Uspekhi*, vol. 18, 1975, p. 1–20.
- [ALA 78] ALAMO A., LEFEBVRE J., SOULLARD J.  
Deformation plastique du bioxyde d'uranium : Observation des sous-structures de dislocations. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 75, 1978, p. 145–153.
- [ALS 92] ALSHITS V.  
CHAPTER 11 The Phonon-Dislocation Interaction and its Rôle in Dislocation Dragging and Thermal Resistivity. *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, vol. 31, 1992, p. 625–697.
- [AME 58] AMELINCKX S.  
Dislocations in ionic crystals. *Il Nuovo Cimento*, vol. 7, 1958, p. 569–599.
- [AMO 89] AMORETTI G., BLAISE A., CACIUFFO R., FOURNIER J. M., HUTCHINGS M. T., OSBORN R., TAYLOR A. D.  
5f-electron states in uranium dioxide investigated using high-resolution neutron spectroscopy. *Physical Review B*, vol. 40, 1989, page 1856.
- [ARI 05] ARIMA T., YAMASAKI S., INAGAKI Y., IDEMITSU K.  
Evaluation of thermal properties of  $\text{UO}_2$  and  $\text{PUO}_2$  by equilibrium molecular dynamics simulations from 300 to 2000K. *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 400, 2005, p. 43–50.
- [ARM 62] ARMSTRONG W., IRVINE W., MARTINSON R.  
Creep deformation of stoichiometric uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 7, 1962, p. 133–141.
- [ARS 07] ARSENLIS A., CAI W., TANG M., RHEE M., OPPELSTRUP T., HOMMES G., PIERCE T. G., BULATOV V. V.  
Enabling strain hardening simulations with dislocation dynamics. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 15, 2007, page 553.
- [ARS 12] ARSENLIS A., RHEE M., HOMMES G., COOK R., MARIAN J.  
A dislocation dynamics study of the transition from homogeneous to heterogeneous deformation in irradiated body-centered cubic iron. *Acta Materialia*, vol. 60, 2012, p. 3748–3757.

- [ASH 70] ASHBEE K. H. G., FRANK F. C.  
Dislocations in the fluorite structure. *Philosophical Magazine*, vol. 21, 1970, p. 211–213.
- [BAC 73] BACON D., KOCKS U., SCATTERGOOD R.  
The effect of dislocation self-interaction on the Orowan stress. *Philosophical Magazine*, vol. 28, 1973, p. 1241–1263.
- [BAC 09] BACON D., OSETSKY Y., RODNEY D.  
Chapter 88 Dislocation–Obstacle Interactions at the Atomic Level. *Dislocations in Solids*, vol. 15, p. 1–90 Elsevier, 2009.
- [BAR 85] BARNETT D. M.  
The displacement field of a triangular dislocation loop. *Philosophical Magazine A*, vol. 51, 1985, p. 383–387.
- [BAS 03] BASAK C., SENGUPTA A., KAMATH H.  
Classical molecular dynamics simulation of  $\text{UO}_2$  to predict thermophysical properties. *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 360, 2003, p. 210–216.
- [BAU 15] BAUDOIN J.-B., NOMOTO A., PEREZ M., MONNET G., DOMAIN C.  
Molecular dynamics investigation of the interaction of an edge dislocation with Frank loops in Fe–Ni10–Cr20 alloy. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 465, 2015, p. 301–310.
- [BIT 05] BITZEK E., GUMBSCH P.  
Dynamic aspects of dislocation motion : atomistic simulations. *Materials Science and Engineering A*, vol. 400, 2005, p. 40 – 44.
- [BIT 06] BITZEK E., KOSKINEN P., GÄHLER F., MOSELER M., GUMBSCH P.  
Structural relaxation made simple. *Physical review letters*, vol. 97, 2006, page 170201.
- [BLA 69] BLANK H., RONCHI C.  
Versetzen in kubischen uranoxiden. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 31, 1969, p. 1–12.
- [BLÖ 94] BLÖCHL P. E., JEPSEN O., ANDERSEN O. K.  
Improved tetrahedron method for Brillouin-zone integrations. *Physical Review B*, vol. 49, 1994, page 16223.
- [BOU 17] BOURASSEAU E.  
Les potentiels empiriques permettant la simulation atomistique de  $\text{UO}_2$  : état de l’art. , 2017.
- [BOU 19] BOURASSEAU E., MOURET A., FANTOU P., ILTIS X., BELIN R. C.  
Experimental and simulation study of grain boundaries in  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, vol. 517, 2019, p. 286–295.
- [BRA 70] BRANTLEY W. A., BAUER C. L.  
Geometric Analysis of Charged Dislocations in the Fluorite Structure. *physica status solidi (b)*, vol. 40, 1970, p. 707–715.
- [BRU 18] BRUNEVAL F., FREYSS M., CROCOMBETTE J.-P.  
Lattice constant in nonstoichiometric uranium dioxide from first principles. *Physical Review Materials*, vol. 2, 2018, page 023801.
- [BS 15] BS R., MARTIN P., VATHONNE E., DELORME R., SABATHIER C., FREYSS M., BERTOLUS M., GLATZEL P.  
Experimental evidence of Xe incorporation in Schottky defects in  $\text{UO}_2$ . *Applied Physics Letters* 106, 114102 (2015), vol. 106, 2015, page 114102.

- [BYR 68a] BYRON J.  
Yield and flow of polycrystalline uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 27, 1968, p. 48–53.
- [BYR 68b] BYRON J.  
The yield and flow of single crystals of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 28, 1968, p. 110–114.
- [Bè 15] BÈS R., MARTIN P., VATHONNE E., DELORME R., SABATHIER C., FREYSS M., BERTOLUS M., GLATZEL P.  
Experimental evidence of Xe incorporation in Schottky defects in  $\text{UO}_2$ . *Applied Physics Letters*, vol. 106, 2015, page 114102.
- [CAI 03] CAI W., BULATOB V. V., CHANG J., LI J., YIP S.  
Periodic image effects in dislocation modelling. *Philosophical Magazine*, vol. 83, 2003, p. 539–567.
- [CAN 71] CANON R. F., ROBERTS J. T. A., BEALS R. J.  
Deformation of  $\text{UO}_2$  at High Temperatures. *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 54, 1971, p. 105–112.
- [CAN 83] CANNON W. R., LANGDON T. G.  
Creep of ceramics. *Journal of Materials Science*, vol. 18, 1983, p. 1–50.
- [CAT 76] CATLOW C. R., JAMES R., NORGETT M. J.  
The defect structure of compounds with the rutile structure. *Le Journal de Physique Colloques*, vol. 37, 1976, p. C7–443–C7–448.
- [CHA 16] CHARTIER A., ONOFRI C., VAN BRUTZEL L., SABATHIER C., DOROSH O., JAGIELSKI J.  
Early stages of irradiation induced dislocations in urania. *Applied Physics Letters*, vol. 109, 2016, page 181902.
- [CLO 09] CLOUET E., VENTELON L., WILLAIME F.  
Dislocation core energies and core fields from first principles. *Physical review letters*, vol. 102, 2009, page 055502.
- [COB 63] COBLE R.  
A model for boundary diffusion controlled creep in polycrystalline materials. *Journal of applied physics*, vol. 34, 1963, p. 1679–1682.
- [COL 03] COLIN C.  
Etude du fluage du dioxyde d'uranium : caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2003.
- [COO 14] COOPER M. W. D., RUSHTON M. J. D., GRIMES R. W.  
A many-body potential approach to modelling the thermomechanical properties of actinide oxides. *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 26, 2014, page 105401.
- [COO 15] COOPER M.  
Atomic scale simulation of irradiated nuclear fuel. Thèse de doctorat, Imperial College London, 2015.
- [COR 12] CORDIER P., AMODEO J., CARREZ P.  
Modelling the rheology of  $\text{MgO}$  under Earth's mantle pressure, temperature and strain rates. *Nature*, vol. 481, 2012, p. 177 – 180.

- [DEV 10] DEVANATHAN R., VAN BRUTZEL L., CHARTIER A., GUÉNEAU C., MATTSSON A. E., TIKARE V., BARTEL T., BESMANN T., STAN M., VAN UFFELEN P.  
Modeling and simulation of nuclear fuel materials. *Energy & Environmental Science*, vol. 3, 2010, page 1406.
- [DEV 11] DEVINCRE B., MADEC R., MONNET G., QUEYREAU S., GATTI R., KUBIN L.  
Modeling crystal plasticity with dislocation dynamics simulations : The ‘microMegs’ code. *Mechanics of Nano-objects*, vol. 1, 2011, p. 81–100.
- [DHE 00] DHERBEY F.  
Déformation à chaud du dioxyde d’uranium polycristallin : des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique. Thèse de doctorat, Grenoble INPG, 2000.
- [DHE 02] DHERBEY F., LOUCHET F., MOCELLIN A., LECLERCQ S.  
Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour. *Acta Materialia*, vol. 50, 2002, p. 1495–1505.
- [DJO 13] DJOURELOV N., MARCHAND B., MARINOV H., MONCOFFRE N., PIPON Y., BÉRERD N., NÉDÉLEC P., RAIMBAULT L., EPICIER T.  
Study of temperature and radiation induced microstructural changes in Xe-implanted UO<sub>2</sub> by TEM, STEM, SIMS and positron spectroscopy. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 443, 2013, p. 562–569.
- [DOR 09] DORADO B., AMADON B., FREYSS M., BERTOLUS M.  
DFT+ U calculations of the ground state and metastable states of uranium dioxide. *Physical Review B*, vol. 79, 2009, page 235125.
- [DRO 14] DROUET J., DUPUY L., ONIMUS F., MOMPIOU F., PERUSIN S., AMBARD A.  
Dislocation dynamics simulations of interactions between gliding dislocations and radiation induced prismatic loops in zirconium. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 449, 2014, p. 252–262.
- [EVA 69a] EVANS A. G., PRATT P. L.  
Dislocations in the fluorite structure. *Philosophical Magazine*, vol. 20, 1969, p. 1213–1237.
- [EVA 69b] EVANS A., DAVIDGE R.  
The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear materials*, vol. 33, 1969, p. 249–260.
- [EWA 21] EWALD P. P.  
Die Berechnung optischer und elektrostatischer Gitterpotentiale. *Annalen der physik*, vol. 369, 1921, p. 253–287.
- [FOS 12] FOSSATI P.  
Contribution à l’étude des propriétés mécaniques du combustible nucléaire : Modélisation atomistique de la déformation du dioxyde d’uranium. Thèse de doctorat, Ecole Centrale Paris, 2012.
- [FOS 13] FOSSATI P., VAN BRUTZEL L., DEVINCRE B.  
Molecular dynamics simulation of dislocations in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 443, 2013, p. 359–365.
- [FRI 76] FRITZ I.  
Elastic properties of UO<sub>2</sub> at high pressure. *Journal of Applied Physics*, vol. 47, 1976, p. 4353–4358.

- [GAL 16] GALVIN C. O. T., COOPER M. W. D., FOSSATI P. C. M., STANEK C. R., GRIMES R. W., ANDERSSON D. A.  
Pipe and grain boundary diffusion of He in UO<sub>2</sub>. *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 28, 2016, page 405002.
- [GAN 83] GANDHI C., ASHBY M.  
Fracture-mechanism maps for materials which cleave : FCC, BCC and HCP metals and ceramics. *Perspectives in Creep Fracture*, p. 33–70 Elsevier, 1983.
- [GAR 21] GARCIA P., MIARD A., HELFER T., PARISE J.-B., ILLIS X., ANTOU G.  
The effect of oxygen partial pressure on dislocation creep in polycrystalline uranium dioxide. *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 41, 2021, p. 2124–2133.
- [GHO 01] GHONIEM N., TONG S.-H., SINGH B., SUN L.  
On dislocation interaction with radiation-induced defect clusters and plastic flow localization in fcc metals. *Philosophical Magazine A*, vol. 81, 2001, p. 2743–2764.
- [GIL 11] GILBERT M. R., QUEYREAU S., MARIAN J.  
Stress and temperature dependence of screw dislocation mobility in -Fe by molecular dynamics. *Physical Review B*, vol. 84, 2011, page 174103.
- [GOE 08] GOEL P., CHOUDHURY N., CHAPLOT S.  
Atomistic modeling of the vibrational and thermodynamic properties of uranium dioxide, UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 377, 2008, p. 438–443.
- [GOV 07] GOVERS K., LEMEHOV S., HOU M., VERWERFT M.  
Comparison of interatomic potentials for UO<sub>2</sub>. Part I : Static calculations. *Journal of nuclear materials*, vol. 366, 2007, p. 161–177.
- [GOV 08] GOVERS K., LEMEHOV S., HOU M., VERWERFT M.  
Comparison of interatomic potentials for UO<sub>2</sub> : Part II : Molecular dynamics simulations. *Journal of nuclear materials*, vol. 376, 2008, p. 66–77.
- [GRI 91] GRIMES R., CATLOW C. R. A.  
The stability of fission products in uranium dioxide. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Physical and Engineering Sciences*, vol. 335, 1991, p. 609–634.
- [GRØ 55] GRØNVOLD F.  
High-temperature X-ray study of uranium oxides in the UO<sub>2</sub> U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> region. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, vol. 1, 1955, p. 357–370, Elsevier.
- [GUE 75] GUERIN Y.  
Etude par compression a hautes temperatures de la deformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 56, 1975, p. 61–75.
- [GUÉ 85] GUÉRIN Y.  
Le comportement mécanique du combustible nucléaire sous irradiation. *Annales de chimie (Paris. 1914)*, vol. 10, 1985, p. 405–414.
- [GUI 08] GUILLET J.-L., GUERIN Y., BONIN B.  
. Combustibles nucléaires, 2008.
- [HE 14] HE L., PAKARINEN J., KIRK M., GAN J., NELSON A., BAI X.-M., EL-AZAB A., ALLEN T.  
Microstructure evolution in Xe-irradiated UO<sub>2</sub> at room temperature. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 330, 2014, p. 55–60.

- [HEN 00] HENKELMAN G., UBERUAGA B. P., JÓNSSON H.  
 A climbing image nudged elastic band method for finding saddle points and minimum energy paths. *The Journal of Chemical Physics*, vol. 113, 2000, p. 9901 – 9904.
- [HER 50] HERRING C.  
 Diffusional Viscosity of a Polycrystalline Solid. *Journal of Applied Physics*, vol. 21, 1950, p. 437–445.
- [HIR 82] HIRTH J. P., LOTHE J.  
*Theory of dislocations*. John Willey and Sons, 1982.
- [HIR 15] HIREL P.  
 AtomsK : A tool for manipulating and converting atomic data files. *Computer Physics Communications*, vol. 197, 2015, p. 212–219.
- [HOK 02] HO KANG K., JIN RYU H., CHAN SONG K., SEUNG YANG M.  
 Thermal expansion of  $\text{UO}_2$  and simulated DUPIC fuel. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 301, 2002, p. 242–244.
- [HOO 85] HOOVER W. G.  
 Canonical dynamics : Equilibrium phase-space distributions. *Physical review A*, vol. 31, 1985, page 1695.
- [HUT 87] HUTCHINGS M. T.  
 High-temperature studies of  $\text{UO}_2$  and  $\text{ThO}_2$  using neutron scattering techniques. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2*, vol. 83, 1987, page 1083.
- [JAC 86] JACKSON R. A., MURRAY A. D., HARDING J. H., CATLOW C. R. A.  
 The calculation of defect parameters in  $\text{UO}_2$ . *Philosophical Magazine A*, vol. 53, 1986, p. 27–50.
- [JOH 59] JOHNSTON W. G., GILMAN J. J.  
 Dislocation Velocities, Dislocation Densities, and Plastic Flow in Lithium Fluoride Crystals. *Journal of Applied Physics*, vol. 30, 1959, p. 1 – 16.
- [JÓN 98] JÓNSSON H., MILLS G., JACOBSEN K. W.  
 Nudged elastic band method for finding minimum energy paths of transitions. *Classical and quantum dynamics in condensed phase simulations*, p. 385–404 1998.
- [JON 08] JONNET J., VAN UFFELEN P., WISS T., STAICU D., RÉMY B., REST J.  
 Growth mechanisms of interstitial loops in  $\gamma$ -doped  $\text{UO}_2$  samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 266, 2008, p. 3008–3012.
- [KAD 00] KADANOFF L. P.  
*Statistical physics : statics, dynamics and renormalization*. World Scientific, 2000.
- [KEI 68] KEIG G. A., COBLE R. L.  
 Mobility of Edge Dislocations in Single[U+2010]Crystal Calcium Fluoride. *Journal of Applied Physics*, vol. 39, 1968, p. 6090–6095.
- [KEL 88a] KELLER R., MITCHELL T., HEUER A. H.  
 Plastic deformation in nonstoichiometric  $\text{UO}_{2+x}$  single crystals—I. Deformation at low temperatures. *Acta metallurgica*, vol. 36, 1988, p. 1061–1071.
- [KEL 88b] KELLER R., MITCHELL T., HEUER A. H.  
 Plastic deformation in nonstoichiometric  $\text{UO}_{2+x}$  single crystals—II. Deformation at high temperatures. *Acta metallurgica*, vol. 36, 1988, p. 1073–1083.

- [KOC 75] KOCKS U. F., ARGON A. S., ASHBY M. F.  
*Thermodynamics and Kinetics of Slip*. Pergamon Pergamon, 1975.
- [KRE 99] KRESSE G., JOUBERT D.  
From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Physical review b*, vol. 59, 1999, page 1758.
- [KUK 13] KUKSIN A. Y., YANILKIN A. V.  
Atomistic simulation of the motion of dislocations in metals under phonon drag conditions. *Physics of the Solid State*, vol. 55, 2013, p. 1010–1019.
- [LAR 16] LARSEN P. M., SCHMIDT S., SCHIØTZ J.  
Robust structural identification via polyhedral template matching. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 24, 2016, page 055007.
- [LEF 76] LEFÈBVRE J.-M., SOULLARD J., GABORIAUD R.-J., GRILHÉ J.  
Calcul d'énergie de fautes d'empilement dans le dioxyde d'uranium. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 60, 1976, p. 59–65.
- [LEF 77] LEFEBVRE J.-M.  
Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorite : le bioxyde d'uranium. Thèse de doctorat, faculté des sciences de Poitiers, 1977.
- [LEI 50] LEIBFRIED G.  
Über den Einfluß thermisch angeregter Schallwellen auf die plastische Deformation. *Zeitschrift für Physik*, vol. 127, 1950, p. 344–356.
- [LEP 16] LE PRIOUX A., FOSSATI P., MAILLARD S., JOURDAN T., MAUGIS P.  
Empirical potential simulations of interstitial dislocation loops in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 479, 2016, p. 576–584.
- [LHU 10] LHUILLIER P.-E.  
Etude du comportement de l'hélium et des défauts lacunaires dans le tungstène. Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 2010.
- [LIC 98] LICHTENSTEIN A., KATSNELSON M.  
Ab initio calculations of quasiparticle band structure in correlated systems : LDA++ approach. *Physical Review B*, vol. 57, 1998, page 6884.
- [LIU 64] LIU T. S., STOKES R. J., LI C. H.  
Fabrication and Plastic Behavior of Single-Crystal MgO-NiO and MgO-MnO Solid-Solution Alloys. *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 47, 1964, p. 276–279.
- [LUN 17] LUNEV A., KUKSIN A., STARIKOV S.  
Glide mobility of the  $1/2[110](001)$  edge dislocation in  $\text{UO}_2$  from molecular dynamics simulation. *International Journal of Plasticity*, vol. 89, 2017, p. 85–95.
- [LUN 18] LUNEV A., STARIKOV S., ALIEV T., TSEPLYAEV V.  
Understanding thermally-activated glide of  $1/2 \langle 110 \rangle \{110\}$  screw dislocations in  $\text{UO}_2$  – A molecular dynamics analysis. *International Journal of Plasticity*, vol. 110, 2018, p. 294–305.
- [MAR 76] MARTIN J. W., PAETSCH R.  
Generalised Viscosity and Dislocation Damping Constant in Diatomic Crystalline Solids. *Physica Status Solidi (b)*, vol. 74, 1976, p. 761–772.
- [MAR 89] MARTIN D. G.  
The elastic constants of polycrystalline  $\text{UO}_2$  and (U, Pu) mixed oxides : A review and recommendations. *High temperatures-High pressures*, vol. 21, 1989, p. 13–24.

- [MAR 00] MARTIN J.-L.  
*Dislocations et plasticité des cristaux*, vol. 5. PPUR presses polytechniques, 2000.
- [MAR 09] MARTIN G., MAILLARD S., BRUTZEL L. V., GARCIA P., DORADO B., VALOT C.  
 A molecular dynamics study of radiation induced diffusion in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 385, 2009, p. 351–357.
- [MAR 10] MARTIN G., GARCIA P., SABATHIER C., VAN BRUTZEL L., DORADO B., GARRIDO F., MAILLARD S.  
 Irradiation-induced heterogeneous nucleation in uranium dioxide. *Physics Letters A*, vol. 374, 2010, p. 3038–3041.
- [MAR 15a] MARAS E., SALLES N., TÉTOT R., ALA-NISSILA T., JÓNSSON H.  
 Improved tight-binding charge transfer model and calculations of energetics of a step on the rutile TiO<sub>2</sub> (110) surface. *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 119, 2015, p. 10391–10399.
- [MAR 15b] MARTIN G., SABATHIER C., WIKTOR J., MAILLARD S.  
 Molecular dynamics study of the bulk temperature effect on primary radiation damage in uranium dioxide. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 352, 2015, p. 135–139.
- [MEI 05] MEIS C., CHARTIER A.  
 Calculation of the threshold displacement energies in UO<sub>2</sub> using ionic potentials. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 341, 2005, p. 25–30.
- [MER 68] MERMIN N. D.  
 Crystalline Order in Two Dimensions. *Physical Review*, vol. 176, 1968, p. 250–254.
- [MIC 08] MICHEL B., SERCOMBE J., THOUVENIN G., CHATELET R.  
 3D fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction. *Engineering fracture mechanics*, vol. 75, 2008, p. 3581–3598.
- [MIC 12a] MICHEL A., SABATHIER C., CARLOT G., KAÏTASOV O., BOUFFARD S., GARCIA P., VALOT C.  
 An in situ TEM study of the evolution of Xe bubble populations in UO<sub>2</sub>. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 272, 2012, p. 218–221.
- [MIC 12b] MICHEL B., SERCOMBE J., NONON C., FANDEUR O.  
 Modeling of pellet cladding interaction. , 2012.
- [MOR 03] MORELON N.-D., GHALEB D., DELAYE J.-M., VAN BRUTZEL L.  
 A new empirical potential for simulating the formation of defects and their mobility in uranium dioxide. *Philosophical Magazine*, vol. 83, 2003, p. 1533–1555.
- [MUR 14] MURPHY S. T., RUSHTON M. J., GRIMES R. W.  
 A comparison of empirical potential models for the simulation of dislocations in uranium dioxide. *Progress in Nuclear Energy*, vol. 72, 2014, p. 27–32.
- [NAD 69] NADEAU J. S.  
 Dependence of Flow Stress on Nonstoichiometry in Oxygen-Rich Uranium Dioxide at High Temperatures. *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 52, 1969, p. 1–7.
- [NAD 88] NADGORNYYI E.  
 Dislocation dynamics and mechanical properties of crystals. *Progress in Materials Science*, vol. 31, 1988, p. 1–530.

- [NAG 75] NAGUIB H., KELLY R.  
Criteria for bombardment-induced structural changes in non-metallic solids. *Radiation effects*, vol. 25, 1975, p. 1–12.
- [NOG 08] NOGARET T., RODNEY D., FIVEL M., ROBERTSON C.  
Clear band formation simulated by dislocation dynamics : Role of helical turns and pile-ups. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 380, 2008, p. 22–29.
- [NOI 08] NOIROT J., DESGRANGES L., LAMONTAGNE J.  
Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 372, 2008, p. 318–339.
- [NOS 84a] NOSÉ S.  
A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods. *The Journal of chemical physics*, vol. 81, 1984, p. 511–519.
- [NOS 84b] NOSÉ S.  
A molecular dynamics method for simulations in the canonical ensemble. *Molecular Physics*, vol. 52, 1984, p. 255 – 268.
- [OGU 83] OGUMA M.  
Cracking and relocation behavior of nuclear fuel pellets during rise to power. *Nuclear engineering and design*, vol. 76, 1983, p. 35–45.
- [OLM 05] OLMSTED D. L., JR L. G. H., CURTIN W. A., CLIFTON R. J.  
Atomistic simulations of dislocation mobility in Al, Ni and Al/Mg alloys. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 13, 2005, page 371.
- [ONO 16a] ONOFRI C., SABATHIER C., PALANCHER H., CARLOT G., MIRO S., SERRUYS Y., DESGRANGES L., LEGROS M.  
Evolution of extended defects in polycrystalline UO<sub>2</sub> under heavy ion irradiation : combined TEM, XRD and Raman study. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 374, 2016, p. 51–57.
- [ONO 16b] ONOFRI C.  
Etude des défauts étendus induits par irradiation dans UO<sub>2</sub> par microscopie électronique en transmission. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier-Toulouse III, 2016.
- [ONO 17] ONOFRI C., LEGROS M., LÉCHELLE J., PALANCHER H., BAUMIER C., BACHELET C., SABATHIER C.  
Full characterization of dislocations in ion-irradiated polycrystalline UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 494, 2017, p. 252–259.
- [ONO 20] ONOFRI C.  
Communication privée C. Onofri. Mai 2020.
- [OSE 06] OSETSKY Y. N., RODNEY D., BACON D. J.  
Atomic-scale study of dislocation–stacking fault tetrahedron interactions. Part I : mechanisms. *Philosophical Magazine*, vol. 86, 2006, p. 2295–2313.
- [OSE 12] OSETSKY Y., BACON D. J.  
Atomic-level level dislocation dynamics in irradiated metals. *Comprehensive Nuclear Materials*, vol. 1, 2012, page 1b23.
- [PAD 69] PADEL A., NOVION C. D.  
Constantes élastiques des carbures, nitrures et oxydes d’uranium et de plutonium. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 33, 1969, p. 40–51.

- [PAR 10] PARFITT D. C., BISHOP C. L., WENMAN M. R., GRIMES R. W.  
Strain fields and line energies of dislocations in uranium dioxide. *Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal*, vol. 22, 2010, page 175004.
- [PAR 21] PARISE J.-B.  
Etude des mécanismes de déformation viscoplastiques du dioxyde d'uranium polycristallin au voisinage de la stoechiométrie : influence de l'activité d'oxygène et de la microstructure. Thèse de doctorat, Université de Limoges, 2021.
- [PAT 12] PATARIN L.  
*Le cycle du combustible nucléaire*. Edp Sciences, 2012.
- [PAU 32] PAULING L.  
The nature of the chemical bond. IV. The energy of single bonds and the relative electronegativity of atoms. *Journal of the American Chemical Society*, vol. 54, 1932, p. 3570–3582.
- [PEA 50] PEACH M., KOEHLER J.  
The forces exerted on dislocations and the stress fields produced by them. *Physical Review*, vol. 80, 1950, page 436.
- [PER 96] PERDEW J. P., BURKE K., ERNZERHOF M.  
Generalized gradient approximation made simple. *Physical review letters*, vol. 77, 1996, page 3865.
- [PIP 20] PIPON Y.  
Migration d'éléments volatils ou semi-volatils dans les céramiques nucléaires. Thèse de doctorat, Université de Lyon, 2020.
- [PLI 95] PLIMPTON S.  
Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics. *Journal of computational physics*, vol. 117, 1995, p. 1–19.
- [PO 16] PO G., CUI Y., RIVERA D., CERECEDA D., SWINBURNE T. D., MARIAN J., GHONIEM N.  
A phenomenological dislocation mobility law for bcc metals. *Acta Materialia*, vol. 119, 2016, p. 123–135.
- [POR 18a] PORTELETTE L.  
Analyse des mécanismes de glissement des dislocations dans l'UO<sub>2</sub> à l'aide de la modélisation multi-échelles comparée à l'expérience. Thèse de doctorat, Aix-Marseille, 2018.
- [POR 18b] PORTELETTE L., AMODEO J., MADEC R., SOULACROIX J., HELFER T., MICHEL B.  
Crystal viscoplastic modeling of UO<sub>2</sub> single crystal. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 510, 2018, p. 635–643.
- [POR 20] PORTELETTE L., AMODEO J., MICHEL B., MADEC R.  
Athermal dislocation strengthening in UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 538, 2020, page 152157.
- [POT 11] POTASHNIKOV S., BOYARCHENKOV A., NEKRASOV K., KUPRYAZHKIN A.  
High-precision molecular dynamics simulation of UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> : Pair potentials comparison in UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 419, 2011, p. 217–225.
- [RAP 60] RAPPERPORT E., HUNTRESS A.  
*Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700 C to 1900 C*, vol. 1242. United States Atomic Energy Commission, Office of Technical Information, 1960.

- [REA 10] READ M. S., JACKSON R. A.  
Derivation of enhanced potentials for uranium dioxide and the calculation of lattice and intrinsic defect properties. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 406, 2010, p. 293–303.
- [ROB 03] ROBACH J., ROBERTSON I., WIRTH B., ARSENLIS A.  
In-situ transmission electron microscopy observations and molecular dynamics simulations of dislocation-defect interactions in ion-irradiated copper. *Philosophical Magazine*, vol. 83, 2003, p. 955–967.
- [ROD 04] RODNEY D.  
Molecular dynamics simulation of screw dislocations interacting with interstitial frank loops in a model FCC crystal. *Acta Materialia*, vol. 52, 2004, p. 607–614.
- [ROD 17] RODNEY D., VENDELON L., CLOUET E., PIZZAGALLI L., WILLAIME F.  
Ab initio modeling of dislocation core properties in metals and semiconductors. *Acta Materialia*, vol. 124, 2017, p. 633–659.
- [RUB 91] DIAZ DE LA RUBIA T., GUINAN M. W.  
New mechanism of defect production in metals : A molecular-dynamics study of interstitial-dislocation-loop formation in high-energy displacement cascades. *Physical Review Letters*, vol. 66, 1991, p. 2766–2769.
- [SAB 14] SABATHIER C., MARTIN G., MICHEL A., CARLOT G., MAILLARD S., BACHELET C., FORTUNA F., KAITASOV O., OLIVIERO E., GARCIA P.  
In-situ TEM observation of nano-void formation in UO<sub>2</sub> under irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 326, 2014, p. 247–250.
- [SAL 16] SALLES N., POLITANO O., AMZALLAG E., TÉTOT R.  
Molecular dynamics study of high-pressure alumina polymorphs with a tight-binding variable-charge model. *Computational Materials Science*, vol. 111, 2016, p. 181–189.
- [SAT 13] SATTONNAY G., TÉTOT R.  
Bulk, surface and point defect properties in UO<sub>2</sub> from a tight-binding variable-charge model. *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 25, 2013, page 125403.
- [SAU 03] SAUTER F., LECLERCQ S.  
Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide. *Journal of nuclear materials*, vol. 322, 2003, p. 1–14.
- [SAW 71] SAWBRIDGE P. T., SYKES E. C.  
Dislocation glide in UO<sub>2</sub> single crystals at 1600°K. *Philosophical Magazine*, vol. 24, 1971, p. 33–53.
- [SCH 13] SCHMID E., BOAS W.  
*Kristallplastizität : mit besonderer Berücksichtigung der Metalle*, vol. 17. Springer-Verlag, 2013.
- [SCO 59] SCOTT R., HALL A., WILLIAMS J.  
The plastic deformation of uranium oxides above 800° C. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 1, 1959, p. 39–48.
- [SEL 70] SELTZER M., CLAUER A., WILCOX B.  
The stress dependence for high temperature creep of polycrystalline uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 34, 1970, p. 351–353.

- [SHA 67] SHARP J.  
 Deformation of neutron-irradiated copper single crystals. *Philosophical Magazine*, vol. 16, 1967, p. 77–96.
- [SHI 14] SHI X.  
 Etude par simulations de dynamique des dislocations des effets d’irradiation sur la ferrite à haute température. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2014.
- [SHI 15] SHI X., DUPUY L., DEVINCRE B., THERENTYEV D., VINCENT L.  
 Interaction of  $\langle 100 \rangle$  dislocation loops with dislocations studied by dislocation dynamics in  $\alpha$ -iron. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 460, 2015, p. 37–43.
- [SIN 88] SINDZINGRE P., GILLAN M.  
 A molecular dynamics study of solid and liquid  $\text{UO}_2$ . *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 21, 1988, page 4017.
- [SKE 17] SKELTON R., WALKER A. M.  
 Peierls-Nabarro modeling of dislocations in  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, vol. 495, 2017, p. 202–210.
- [SKO 06] SKOMURSKI F. N., EWING R. C., ROHL A. L., GALE J. D., BECKER U.  
 Quantum mechanical vs. empirical potential modeling of uranium dioxide ( $\text{UO}_2$ ) surfaces : (111), (110), and (100). *American Mineralogist*, vol. 91, 2006, p. 1761–1772.
- [SON 02] SONODA T., KINOSHITA M., RAY I., WISS T., THIELE H., PELLOTTIERO D., RONDINELLA V., MATZKE H.  
 Transmission electron microscopy observation on irradiation-induced microstructural evolution in high burn-up  $\text{UO}_2$  disk fuel. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 191, 2002, p. 622–628.
- [SOU 77] SOULLARD J.  
 Contribution à l’étude des défauts de structure dans le bioxyde d’uranium. Thèse de doctorat, CEN Saclay, 1977.
- [SOU 85] SOULLARD J.  
 High voltage electron microscope observations of  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, vol. 135, 1985, p. 190–196.
- [SOU 18a] SOULIÉ A.  
 Etude à l’échelle atomique de la plasticité et de la sur-stoechiométrie dans le dioxyde d’uranium. Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2018.
- [SOU 18b] SOULIÉ A., CROCOMBETTE J.-P., KRAYCH A., GARRIDO F., SATTONNAY G., CLOUET E.  
 Atomistically-informed thermal glide model for edge dislocations in uranium dioxide. *Acta Materialia*, vol. 150, 2018, p. 248–261.
- [SQU 07] SQUILLACOTE A. H., AHRENS J., LAW C., GEVECI B., MORELAND K., KING B.  
*The paraview guide*, vol. 366. Kitware Clifton Park, NY, 2007.
- [STU 09] STUKOWSKI A.  
 Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool. *Modelling and simulation in materials science and engineering*, vol. 18, 2009, page 015012.

- [STU 10] STUKOWSKI A., ALBE K.  
Extracting dislocations and non-dislocation crystal defects from atomistic simulation data. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 18, 2010, page 085001.
- [STU 12] STUKOWSKI A., BULATOV V. V., ARSENLIS A.  
Automated identification and indexing of dislocations in crystal interfaces. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 20, 2012, page 085007.
- [SWI 15] SWINBURNE T., DUDAREV S.  
Phonon drag force acting on a mobile crystal defect : Full treatment of discreteness and nonlinearity. *Physical Review B*, vol. 92, 2015, page 134302, APS.
- [TAC 76] TACHIBANA T., FURUYA H., KOIZUMI M.  
Dependence on Strain Rate and Temperature Shown by Yield Stress of Uranium Dioxide. *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 13, 1976, p. 497–502.
- [TÉT 08] TÉTOT R., HALLIL A., CREUZE J., BRAEMS I.  
Tight-binding variable-charge model for insulating oxides : Application to  $\text{TiO}_2$  and  $\text{ZrO}_2$  polymorphs. *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 83, 2008, page 40001.
- [THO 14] THOMPSON A. E., MEREDIG B., STAN M., WOLVERTON C.  
Interatomic potential for accurate phonons and defects in  $\text{UO}_2$ . *Journal of nuclear materials*, vol. 446, 2014, p. 155–162.
- [THO 22] THOMPSON A. P., AKTULGA H. M., BERGER R., BOLINTINEANU D. S., BROWN W. M., CROZIER P. S., IN'T VELD P. J., KOHLMAYER A., MOORE S. G., NGUYEN T. D. et al.  
LAMMPS-a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales. *Computer Physics Communications*, vol. 271, 2022, page 108171, Elsevier.
- [TSI 11] TSITSIRIS E., GATT J.-M.  
Modélisation du fluage par diffusion dans une céramique poreuse. *CFM 2011-20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011.
- [VAN 83] VAN OOSTEROM A., STRACKEE J.  
The Solid Angle of a Plane Triangle. *IEEE Transactions on Biomedical Engineering*, vol. BME-30, 1983, p. 125–126.
- [VAN 08] VAN BRUTZEL L., CHARTIER A., CROCMBETTE J. P.  
Basic mechanisms of Frenkel pair recombinations in  $\text{UO}_2$  fluorite structure calculated by molecular dynamics simulations. *Physical Review B*, vol. 78, 2008, page 024111.
- [VAN 19] VAN BRUTZEL L., CHARTIER A.  
A new equation of state for helium nanobubbles embedded in  $\text{UO}_2$  matrix calculated via molecular dynamics simulations. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 518, 2019, p. 431–439.
- [VAT 17] VATHONNE E., ANDERSSON D. A., FREYSS M., PERRIOT R., COOPER M. W. D., STANEK C. R., BERTOLUS M.  
Determination of Krypton Diffusion Coefficients in Uranium Dioxide Using Atomic Scale Calculations. *Inorganic Chemistry*, vol. 56, 2017, page 125.
- [VER 67] VERLET L.  
Computer "experiments" on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules. *Physical review*, vol. 159, 1967, page 98.

- [WAC 65] WACHTMAN JR J., WHEAT M., ANDERSON H., BATES J.  
Elastic constants of single crystal  $\text{UO}_2$  at 25 C. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 16, 1965, p. 39–41.
- [WHA 66] WHAPHAM A. D.  
Electron Microscope Observation of the Fission-Gas Bubble Distribution in  $\text{UO}_2$ . *Nuclear Applications*, vol. 2, 1966, p. 123–130.
- [WIK 14] WIKTOR J., BARTHE M.-F., JOMARD G., TORRENT M., FREYSS M., BERTOLUS M.  
Coupled experimental and DFT +  $U$  investigation of positron lifetimes in  $\text{UO}_2$ . *Physical Review B*, vol. 90, 2014, page 184101.
- [WOL 99] WOLF D., KEBLINSKI P., PHILLPOT S., EGGBRECHT J.  
Exact method for the simulation of Coulombic systems by spherically truncated, pairwise  $r^{-1}$  summation. *The Journal of chemical physics*, vol. 110, 1999, p. 8254–8282.
- [YAK 07] YAKUB E., RONCHI C., STAIKU D.  
Molecular dynamics simulation of premelting and melting phase transitions in stoichiometric uranium dioxide. *The Journal of Chemical Physics*, vol. 127, 2007, page 094508.
- [YAK 09] YAKUB E., RONCHI C., STAIKU D.  
Computer simulation of defects formation and equilibrium in non-stoichiometric uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 389, 2009, p. 119–126.
- [YAM 97] YAMASHITA T., NITANI N., TSUJI T., INAGAKI H.  
Thermal expansions of  $\text{NpO}_2$  and some other actinide dioxides. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 245, 1997, p. 72–78.
- [YAM 00] YAMADA K., KUROSAKI K., UNO M., YAMANAKA S.  
Evaluation of thermal properties of uranium dioxide by molecular dynamics. *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 307, 2000, p. 10–16.
- [YE 11] YE B., KIRK M. A., CHEN W., OAKS A., REST J., YACOUT A., STUBBINS J. F.  
TEM investigation of irradiation damage in single crystal  $\text{CeO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, vol. 414, 2011, p. 251–256.
- [YUS 69] YUST C., MCHARGUE C.  
Dislocation substructures in deformed uranium dioxide single crystals. *Journal of nuclear materials*, vol. 31, 1969, p. 121–137.
- [ZBI 00] ZBIB H. M., DE LA RUBIA T. D., RHEE M., HIRTH J. P.  
3D dislocation dynamics : stress–strain behavior and hardening mechanisms in fcc and bcc metals. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 276, 2000, p. 154–165.