



HAL
open science

Simulation et observation de l'influence d'une contrainte sur l'évolution des défauts cristallins à l'échelle nanométrique et en temps réel

Daphné da Fonseca

► To cite this version:

Daphné da Fonseca. Simulation et observation de l'influence d'une contrainte sur l'évolution des défauts cristallins à l'échelle nanométrique et en temps réel. Matériaux. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2023. Français. NNT : 2023TOU30332 . tel-04594687

HAL Id: tel-04594687

<https://theses.hal.science/tel-04594687>

Submitted on 30 May 2024

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

En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE
Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

Présentée et soutenue par
Daphné DA FONSECA

Le 29 novembre 2023

**Simulation et observation de l'influence d'une contrainte sur
l'évolution des défauts cristallins à l'échelle nanométrique et en
temps réel**

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Sciences et Génie des Matériaux**

Unité de recherche :

CEMES - Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales

Thèse dirigée par
Frédéric MOMPIOU

Jury

M. Jean-Philippe COUZINIÉ, Rapporteur
Mme Charlotte BECQUART, Rapporteur
M. Pierre-Antoine GESLIN, Examineur
M. Frédéric MOMPIOU, Directeur de thèse
M. Bernard VIGUIER, Président
M. Thomas JOURDAN, Encadrant
M. Fabien ONIMUS, Encadrant

Remerciements

Je remercie les membres du jury : Charlotte Becquart, Jean-Philippe Couzinié, Pierre-Antoine Geslin et Bernard Viguié, d'avoir accepté d'évaluer ce travail de thèse, pour l'intérêt qu'ils ont montré pour ce travail, pour leurs retours constructifs et les discussions intéressantes. Je garde un bon souvenir de cette soutenance.

Je souhaite à présent exprimer ma profonde gratitude envers mon équipe encadrante, sans qui ce travail de recherche n'aurait pas pu aboutir, car il s'agit avant tout d'un travail d'équipe : Thomas Jourdan, Fabien Onimus, mes encadrants au CEA et Frédéric Momprou, mon directeur de thèse au CEMES. Merci à mes encadrants de m'avoir donné une chance en acceptant que je fasse partie de ce projet. J'ai apprécié travailler à vos côtés lors de ces trois années. Elles ont été enrichissantes, j'ai beaucoup appris de vous, tant d'un point de vue scientifique que sur le plan du savoir-être. Merci pour votre disponibilité, votre bienveillance et votre patience face à mes nombreuses (et parfois répétitives) questions, ainsi que pour la confiance que vous m'avez accordée tout au long de ce projet et votre enthousiasme. Vos qualités d'encadrant ont fait que j'ai autant apprécié travailler sur les expériences que sur les simulations. Merci à mon directeur de thèse pour sa disponibilité et son investissement malgré la distance. Ma semaine à Toulouse est passée vite et je suis reconnaissante pour le temps que tu m'as accordé sur place afin de réaliser les différents essais in-situ et leur analyse. Cette semaine a été très productive et c'est toujours plus agréable de rencontrer en vrai les personnes avec qui on collabore. En étant encadrée par vous trois, j'ai pu réaliser cette thèse dans les meilleures conditions. Nous avons mené à bien cette enquête et clos un débat vieux de près de 50 ans, grâce à toutes vos suggestions et conseils avisés. Je suis reconnaissante pour le temps que vous avez passé à lire, relire et corriger ce manuscrit. Cette expérience m'a montré la force d'avoir des visions complémentaires au sein d'une équipe. J'espère avoir été à la hauteur de vos attentes. Encore merci, sincèrement.

Je veux également remercier les personnes qui ont participé de près ou de loin à l'avancée de ce projet. Un grand merci à Jean-Paul Crocombette et Alain Chartier du LM2T, d'avoir accepté de collaborer sur la partie des calculs de dynamique moléculaire. Grâce à leur aide précieuse, nous avons obtenu les derniers résultats clés qui nous ont permis de conclure sur notre problématique. Je suis reconnaissante pour le temps que vous avez consacré à réaliser ces calculs, à répondre à mes questions sur le logiciel OVITO et sur la méthode FPA. Merci à Estelle Meslin, responsable du MET TECNAI, pour la gestion de la maintenance du microscope et ses conseils. Merci à Amélie Gangloff et Raphaëlle Guillou du LA2M pour la réalisation des analyses de texture des feuilles d'aluminium. Merci à Benoît Arnal du LA2M de m'avoir formée aux méthodes de préparation des échantillons, de m'avoir montré son outil de caractérisation des boucles avec lequel j'ai gagné du temps dans mes mesures et pour nos échanges conviviaux. Et merci à Guihem Sagnes de m'avoir aidée dans la préparation des échantillons côté SRMP, de s'être montré très disponible et patient et pour tous les gâteaux qu'il a apportés (même si je n'ai pas pu en profiter à chaque fois). Merci d'avoir été à l'écoute, d'avoir supporté mon pessimisme passager lors de nos discussions amicales.

Cette thèse a été réalisée principalement à la SRMP, je souhaite donc remercier Jean-Luc Béchade, chef de section, pour son accueil, pour avoir fait au mieux afin que les thèses se dé-

roulent dans les meilleures conditions au cours du semi-confinement en novembre 2020, pour son enthousiasme et l'intérêt qu'il a toujours montré pour les travaux des étudiants du laboratoire. Je veux également remercier Rosabelle Berger, secrétaire de section, pour son efficacité et pour les services qu'elle m'a rendus, facilitant ainsi mes tâches administratives. Globalement merci à tous les membres de la SRMP du bâtiment 520 et de l'équipe Jannus, pour leur accueil et leur sympathie. Il est agréable de travailler dans cette équipe où une bonne ambiance règne. J'ai apprécié échanger avec vous.

Un grand merci à mes collègues doctorants, post-doctorants et stagiaires : Achraf, Adrien, Alexandre, Anruo, Antoine, Arnaud, Arthur, Aurelia, Azza, Baptiste, Benoît, Cécilia, Charbel, Clovis, Emile, Hilal, Jingjun, Kajal, Lautaro, Liangzhao, Lisa, Marie-José, Martin, Mattia, Maxime, Nargisse, Océane, Omar, Oumou, Orane, Pablo, Pamela, Quentin, Sasha, Savneet, Tarek, Thomas B., Thomas M., Thomas L., Thomas S., Xixi, Yunho et Zhengxuan. J'ai de la chance d'être tombée sur une promotion très sympathique, où l'entre-aide était très présente. Vous avez contribué aux bons souvenirs que je garde de cette expérience. A la SRMP, les non-permanents sont très nombreux donc ces remerciements ne sont pas personnalisés mais j'espère que les personnes qui ont fait la différence se reconnaîtront (certains font partie du SRMA/LA2M) : ceux qui ont facilité mon intégration dans l'équipe, ceux qui m'ont fait rire lors de longues pauses en salle café, ceux qui ont rendu mes missions en conférence bien plus agréables, ceux qui m'ont donné des coups de main (pour certains à de nombreuses reprises), ceux qui ont été à l'écoute et qui ont été de bons conseils, ceux qui sont passés avant moi et qui m'ont rassurée avant que ce ne soit mon tour, et enfin ceux qui sont restés des amis (pour longtemps je l'espère).

Merci à l'équipe PPM pour l'accueil chaleureux au sein du CEMES. Merci à Nicolas Bello d'avoir facilité mon intégration auprès des étudiants avec qui j'ai passé de bons moments. Merci à Joël Douin d'avoir répondu à mes questionnements sur le fonctionnement de l'école doctorale et pour l'introduction au logiciel DISDI. Merci à Jean-Philippe Monchoux, Daniel Caillard et Marc Legros pour les discussions en lien avec mon sujet.

Merci à mes amis que je connais d'avant la thèse pour vos encouragements : Clémence, Clément, Inès, Laura, Olivier, Pauline, Rhodéa (même avec la distance) et Suveruta. La présence de ceux qui ont pu assister à ma soutenance m'a touchée.

Gracias a mi abuelo, a mi abuela y especialmente a mi tia Rosalia por su apoyo. Obrigada a minha avó por ter sido un ouvido atento e um pensameto para o meu avô Amadeu.

Un merci tout particulier à Fred. J'ai été chanceuse de t'avoir eu à mes côtés durant ces trois années, d'avoir vécu cette expérience en même temps que tu réalisais ta thèse. J'espère que tu sais à quel point ton soutien moral, tes encouragements et toutes les fois où tu as cru en moi m'ont permis d'aller aussi loin.

Enfin, je veux remercier mes parents pour leur soutien inconditionnel du début jusqu'à la fin de cette thèse. Je leur dédie ce manuscrit.

Table des matières

1	Contexte et objet de l'étude	9
1.1	Contexte industriel	9
1.2	Problématique de la thèse : le fluage d'irradiation dans les aciers austénitiques . .	11
1.2.1	Vieillessement des matériaux en réacteur	11
1.2.2	Comportements macroscopiques	12
1.2.3	Irradiation d'un point de vue microscopique	16
1.2.4	Mécanismes proposés	17
1.3	Etat de l'art des modèles proposés	20
1.3.1	SIPN	20
1.3.2	SIPA	21
1.3.3	Approche en champ moyen	22
1.3.4	Diffusion des défauts ponctuels sous contrainte	24
1.3.5	Modèles analytiques de l'efficacité d'absorption des dislocations sous contrainte	25
1.4	Etat de l'art des expériences de fluage d'irradiation	27
1.4.1	Premières observations ex-situ de l'effet de la contrainte sur les boucles de dislocation dans des métaux CFC	28
1.4.2	Etudes à une échelle macroscopique afin d'évaluer l'importance relative des mécanismes SIPN et SIPA	35
1.4.3	Exemples d'expériences in-situ de fluage d'irradiation	36
1.4.4	Etudes in-situ qui observent un effet de la contrainte sur la croissance des boucles de dislocation	39
1.4.5	Une expérience in-situ dans l'objectif d'évaluer séparément les mécanismes SIPN et SIPA	42
1.4.6	Expérience de fluage d'irradiation ex-situ dans un acier CC	44
1.4.7	Récapitulatif	46
1.5	Démarche de l'étude	47
2	Etude in-situ de la microstructure sous irradiation aux électrons sans contrainte appliquée	49
2.1	Matériau	49
2.1.1	Présentation de la matière première	49
2.1.2	Préparation des échantillons et leur géométrie	50
2.2	Protocole d'irradiation in-situ aux électrons	51
2.3	Caractérisation de la microstructure	53
2.3.1	Irradiations de l'aluminium dans la littérature	53
2.3.2	Caractérisation de la microstructure suite à une irradiation aux électrons 200 keV à température ambiante	56
2.4	Suivi in-situ de l'évolution des boucles interstitielles	70
2.5	Irradiation à différentes températures	74
2.6	Effet de l'épaisseur sur la dynamique des boucles	79
2.6.1	Méthode pour la mesure d'épaisseur locale	79

2.6.2	Irradiation à différentes épaisseurs au sein d'un même échantillon	84
2.7	Irradiation avec un flux plus élevé	88
2.8	La possible présence de contraintes résiduelles en lame mince	93
2.8.1	Constat d'une sélectivité sans application de contrainte extérieure	93
2.8.2	Traitements thermiques	95
2.8.3	Contraintes résiduelles générées lors de la manipulation de l'échantillon	97
2.9	Conclusion du chapitre	99
3	Etude in-situ de l'effet de la contrainte sur les boucles de Frank	101
3.1	Echantillon de traction in-situ et protocole d'irradiation électronique sous contrainte	101
3.1.1	Choix de l'orientation du grain par rapport à l'axe de traction	101
3.1.2	Géométrie des échantillons et porte-objet de traction	102
3.2	Méthode d'analyse des boucles	105
3.2.1	Méthode manuelle	105
3.2.2	Méthode automatique	106
3.3	Microstructures de référence (sans contrainte appliquée)	107
3.3.1	Observation de l'état de la microstructure et proportions des boucles	107
3.3.2	Taille des boucles	110
3.4	Irradiations avec application d'une contrainte	113
3.4.1	Proportions des boucles	114
3.4.2	Taille des boucles	120
3.5	Irradiations en deux parties (hors puis sous contrainte)	124
3.5.1	Première phase : sans appliquer de contrainte	124
3.5.2	Mise sous contrainte : évaluation de la contrainte et de l'épaisseur	128
3.5.3	Deuxième phase : avec application d'une contrainte	131
3.6	Conclusion du chapitre	141
4	Etude du mécanisme SIPA sur un dipôle de dislocations	143
4.1	Méthode OKMC	143
4.1.1	Généralités sur la méthode Monte-Carlo cinétique	143
4.1.2	Spécificités du code utilisé	144
4.2	Méthode CDM	147
4.3	Géométrie du système et paramètres d'entrée	148
4.4	SIPA-AD	151
4.5	SIPA-I	157
4.6	Contributions relatives du SIPA-AD et SIPA-I dans la montée des dislocations sous contrainte	162
4.7	Conclusion du chapitre	163
5	Simulations de boucles de Frank dans les conditions expérimentales	165
5.1	Boucle isolée hors contrainte	166
5.1.1	Effet de la taille de la boucle	166
5.1.2	Effet de la température et de l'épaisseur de la lame sur la croissance des boucles	168
5.2	Boucle isolée sous contrainte	172
5.3	Simulation d'irradiations aux électrons en lame mince incluant le mécanisme SIPA	174
5.3.1	Evolution des microstructures de boucles avec la méthode OKMC	174
5.3.2	Calcul des forces de puits des boucles dans une lame mince	178
5.4	Evaluation de la sensibilité de la croissance des boucles à différents paramètres lors d'une irradiation en lame mince	180
5.4.1	Méthode et description des systèmes	180
5.4.2	Distribution des biais des boucles	181

5.5	Etude de l'effet de la contrainte sur la formation des boucles dans des plans préférentiels	188
5.5.1	Méthode et description du système	189
5.5.2	Résultats	191
5.6	Conclusion du chapitre	195
	Conclusion et perspectives	197
	Synthèse des résultats	197
	Perspectives	199

Chapitre 1

Contexte et objet de l'étude

1.1 Contexte industriel

En réponse à la crise pétrolière de 1973, la France établit un plan d'indépendance énergétique. Afin d'assurer cette indépendance puis son nouvel objectif de mix énergétique bas carbone, le pays développe son parc nucléaire. En 2021, il compte 56 REP (réacteurs à eau pressurisée) en service répartis dans 18 centrales. Ce sont des réacteurs dits de génération II.

Leur fonctionnement est schématisé dans la figure 1.1. Il se décompose en trois circuits : le circuit primaire, le circuit secondaire et le circuit de refroidissement. La réaction de fission a lieu dans la cuve du réacteur qui produit une forte chaleur. L'eau du circuit primaire atteint 320°C et reste à l'état liquide grâce à la pression élevée qui est maintenue dans le circuit (155 bars). L'eau du circuit primaire vient ensuite réchauffer l'eau du circuit secondaire par l'intermédiaire du générateur de vapeur. L'énergie produite dans le réacteur est convertie en électricité dans le circuit secondaire. Dans ce circuit l'eau est sous forme de vapeur et fait tourner une turbine qui entraîne un alternateur. Puis l'eau du circuit secondaire est refroidie et revient à l'état liquide lors de son passage dans le condenseur grâce au circuit de refroidissement. L'eau de ce dernier circuit est prélevée dans un fleuve ou une mer. Selon les centrales, l'eau est rejetée à la source ou refroidie dans un aéroréfrigérant comme dans l'exemple de la figure 1.1, afin d'être réinjectée dans le circuit de refroidissement.

Actuellement une centrale EPR (*Evolutionary Power Reactor*, initialement *European Pressurized water Reactor*), dite de génération III, est en cours de construction à Flamanville. Sans donner de détails, les principales différences de la technologie EPR par rapport à ses prédécesseurs est un renforcement de la sûreté du réacteur et une amélioration de son rendement. Même si la production d'électricité de source nucléaire a atteint un niveau historiquement bas (54%) au cours de l'année 2022 (à cause de plusieurs arrêts dus à la découverte de phénomènes de corrosion sous contrainte dans les réacteurs les plus récents), elle reste la principale source de production d'électricité en France [1]. Elle représentait en moyenne 73% de la production entre 2015 et 2019. La figure 1.2 donne la répartition entre les différentes sources de la production française d'électricité en 2019. La source nucléaire représentait alors 70,6% de la production.

Avec le déploiement des parcs nucléaires, il est crucial d'assurer la sûreté des centrales et la longévité des pièces constituant le réacteur. Par exemple, les pièces des structures internes en réacteur subissent des déformations non contrôlées dues aux conditions extrêmes en réacteur. Il est possible mais difficile et coûteux de remplacer ces composants. Par conséquent, l'amélioration du comportement sous irradiation de ces matériaux représente également un enjeu économique.

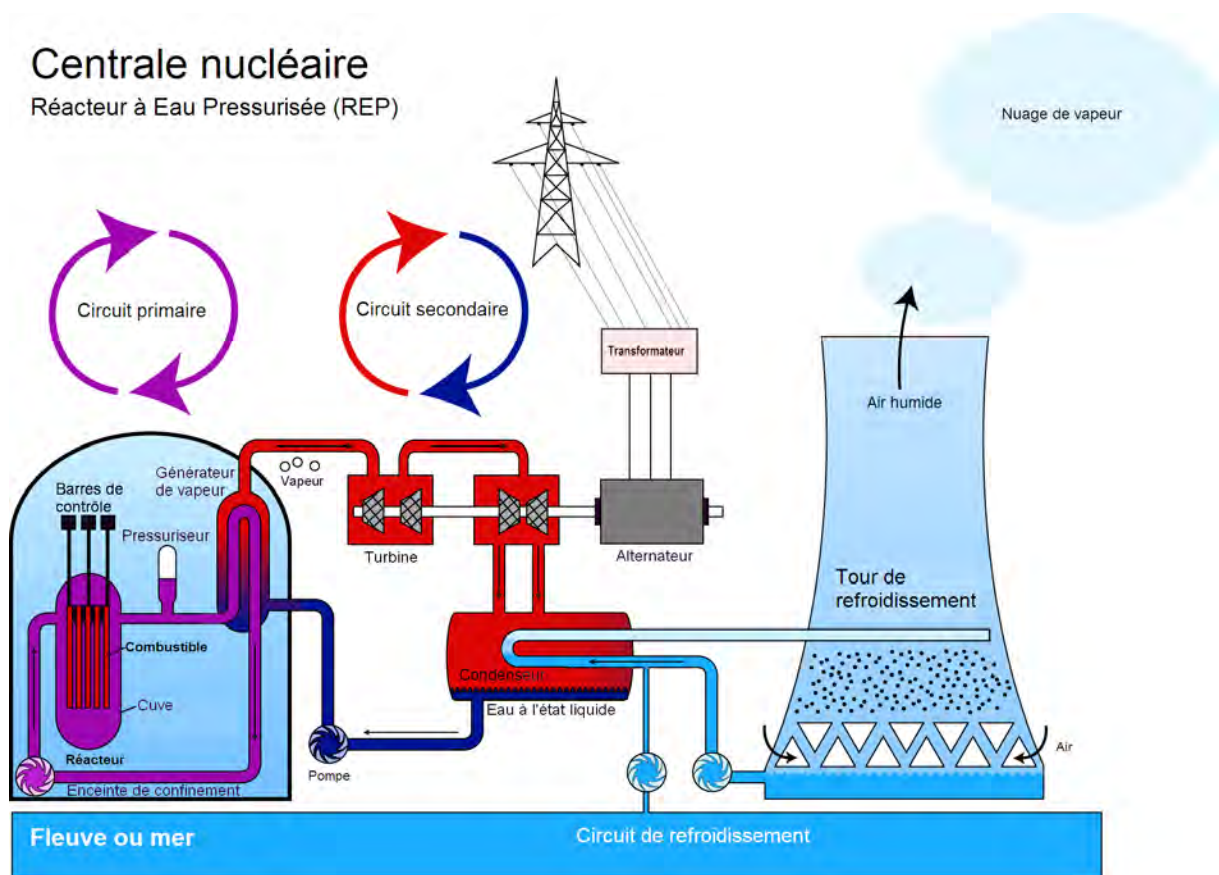


Figure 1.1 – Principe de fonctionnement d'une centrale nucléaire REP avec aéroréfrigérant (Stefen Kuntoff, traduit par Enr-v, dérivé du travail de Cjp24 - CC BY 1.0).

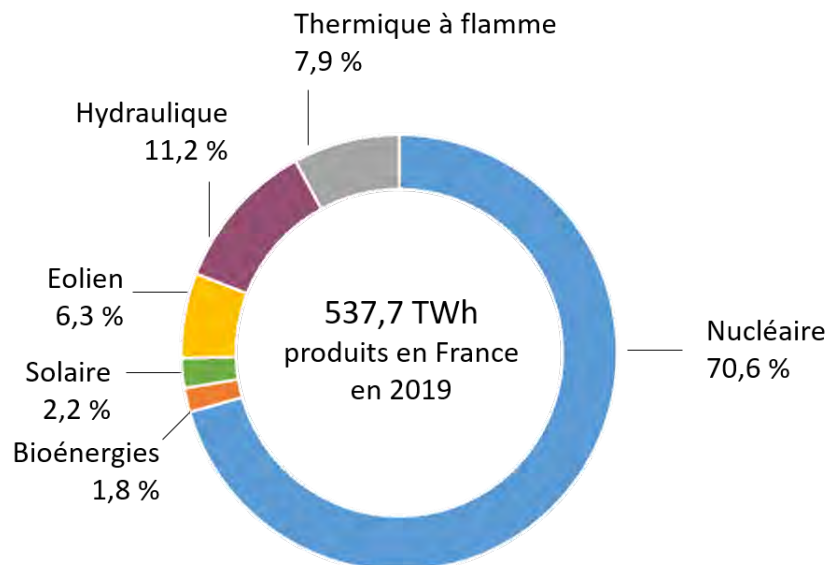


Figure 1.2 – Distribution de la production française d'électricité en 2019 à partir du bilan électrique de 2019 de RTE [1].

1.2 Problématique de la thèse : le fluage d'irradiation dans les aciers austénitiques

1.2.1 Vieillessement des matériaux en réacteur

Parmi les matériaux qui constituent un réacteur de génération II ou III, l'acier austénitique inoxydable, de structure cubique à faces centrées (CFC), est utilisé dans les structures internes des cuves pour sa résistance à la corrosion. Plus précisément le revêtement interne de la cuve, les renforts et les cloisons sont en 304L hyperefforté (18%Cr, 10%Ni) et les vis sont en 316 écroui (17%Cr, 11%Ni, 2,5%Mo) [2, 3] (voir la figure 1.3). Ces matériaux de structure sont soumis à des conditions extrêmes : flux neutroniques, températures élevées, chargements mécaniques et un environnement corrosif. Le tableau 1.1 donne les doses moyennes que subissent les structures internes des cuves pour une durée de fonctionnement de 40 ou 60 ans. En fonction du composant, et donc de son exposition aux neutrons, la dose varie entre la dizaine à la centaine de dpa (déplacement par atome). La combinaison des facteurs cités plus haut entraîne le vieillissement des matériaux en réacteur. Les propriétés initiales des matériaux se dégradent d'où l'importance de connaître et prédire l'évolution des propriétés dans le domaine classique de fonctionnement. Les modifications des propriétés comprennent le durcissement, la diminution de la ductilité, la fragilisation et les variations dimensionnelles comme le gonflement ou le fluage. Cette étude se restreint au phénomène de fluage d'irradiation.

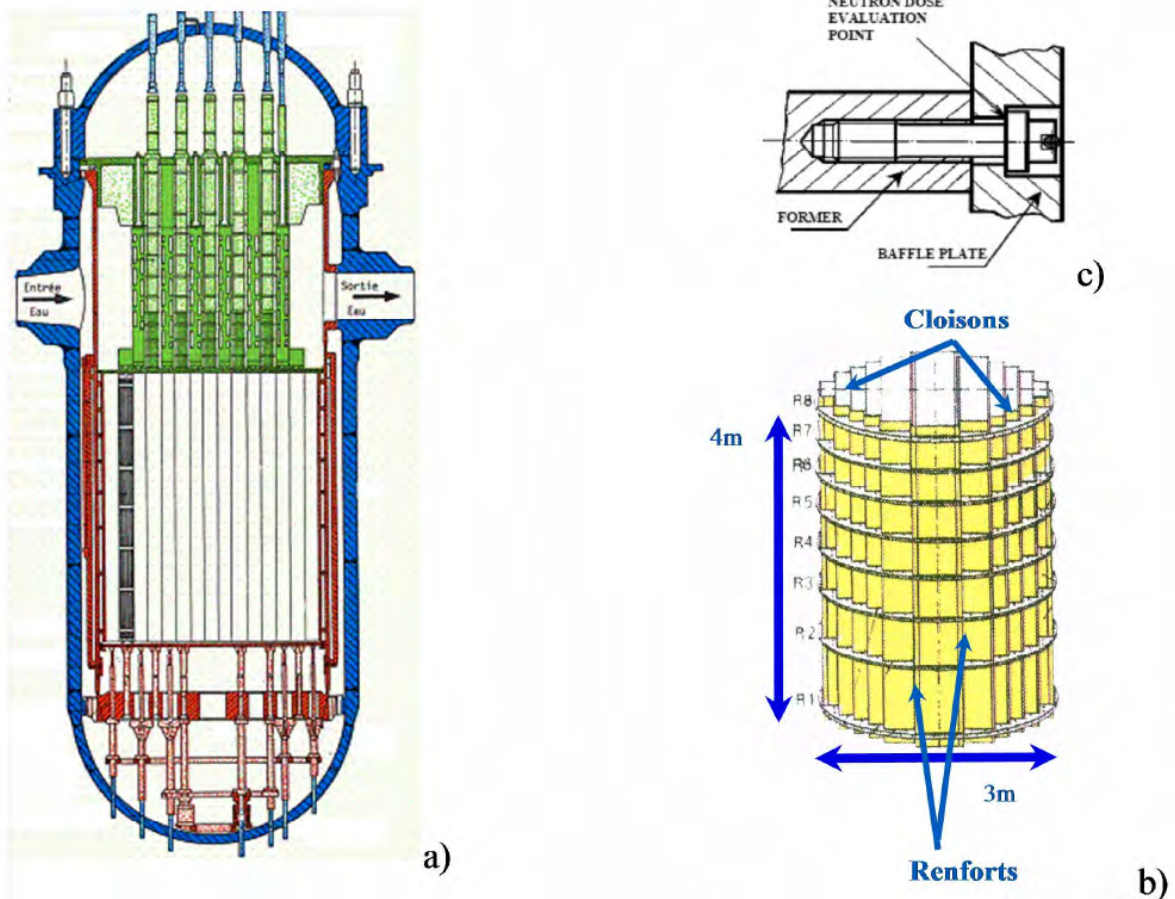


Figure 1.3 – Structures des internes de cuve en acier inoxydable austénitique dans un REP : (a) coupe verticale de la cuve, (b) structures internes inférieures en 304L hyperefforté, (c) vis de liaison renfort-cloison en 316 écroui [3].

Tableau 1.1 – Doses des différents composants d'internes de cuve pour des durées de fonctionnement de 40 et 60 ans [3]. 1 dpa $\sim 6,5 \times 10^{20}$ n/cm² (E > 1 MeV)

Pièces	Matériaux	Température (°C)	Dose à 40 ans* (dpa)	Dose à 60 ans** (dpa)
Vis de liaison cloison-renfort	CW-316 et 316L 17%Cr-11%Ni- 2,5%Mo	~ 300 to 350	up to ~ 80	max 120
Plaques de cloisonnement	SA-304L 18%Cr-10%Ni	~ 300 to 350	up to ~ 80	max 120
Renforts		~ 300 to 350	up to ~ 50	max 75
Enveloppe de coeur		~ 300	up to ~ 10	max 15
Soudures enveloppe de coeur	308L (SAW)	~ 300	up to ~ 10	max 15

(*) Calculée après 40 ans de fonctionnement à 80% de la plein puissance effective.

(**) Estimation à partir de la dose à 40 ans.

1.2.2 Comportements macroscopiques

Le fluage d'irradiation est une déformation qui s'observe sous contrainte non-hydrostatique, à température modérée et sous flux. Il est primordial de considérer ce phénomène, notamment dans les aciers austénitiques pour lesquels la déformation peut être bien plus importante qu'en fluage thermique comme le montre la figure 1.4. Mosedale [4] a montré avec des échantillons en acier 321 écroui, irradiés aux protons, que le fluage d'irradiation est plus important que le fluage thermique aux faibles contraintes, figure 1.5 et aux faibles températures, figure 1.6.

Les conditions REP se situent entre le régime thermique et le régime de fluage d'irradiation. Dans ces conditions, la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{\text{creep}}$ est décrite par l'expression empirique suivante [6] :

$$\dot{\epsilon}_{\text{creep}} = K_0 \sigma^n \phi^m \exp\left(\frac{-Q}{k_B T}\right), \quad (1.1)$$

où K_0 est une constante, σ est la contrainte, ϕ le flux neutronique, Q l'énergie d'activation, k_B la constante de Boltzmann et T la température. En général le fluage est donc un mécanisme thermiquement activé, qui suit une loi de puissance en fonction de la contrainte et du flux.

Au fil des années, de nombreuses données se sont accumulées sur le comportement macroscopique en fluage d'irradiation pour des besoins industriels [7, 8]. La majorité des études s'accordent sur la dépendance de la déformation par rapport à la température, la contrainte appliquée et le flux.

En considérant uniquement le fluage d'irradiation, c'est-à-dire en dehors du régime de fluage thermique, il a été observé que la vitesse associée ne dépend pas ou peu de la température [7, 9, 4]. La figure 1.7 est un exemple tiré de la revue d'Ehrlich [7] qui regroupe des données issues de différentes études sur de l'acier 316 écroui. Il conclut que le fluage dépend faiblement de la température entre 280 et 500°C. Grossbeck [9] conclut dans sa revue que l'intervalle dans lequel le fluage est peu influencé par la température est plus large et part de la température ambiante jusqu'à la moitié de la température de fusion. Mosedale [4] a un propos plus nuancé et précise que la dépendance à la température est propre au matériau.

D'après les données de la littérature, le fluage d'irradiation évolue pratiquement de façon linéaire avec la contrainte [10, 5, 7, 11, 12, 8]. La figure 1.8 est un exemple de cette dépendance

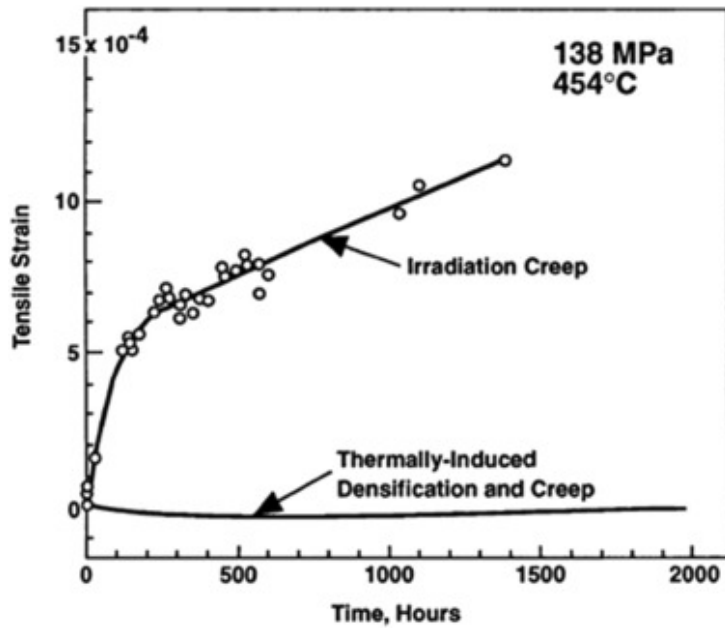


Figure 1.4 – Evolution de la déformation d'un acier 316 écroui sous un chargement uniaxial au cours d'un essai de fluage thermique classique et sous un flux neutronique dans le réacteur expérimental EBR-II [5].

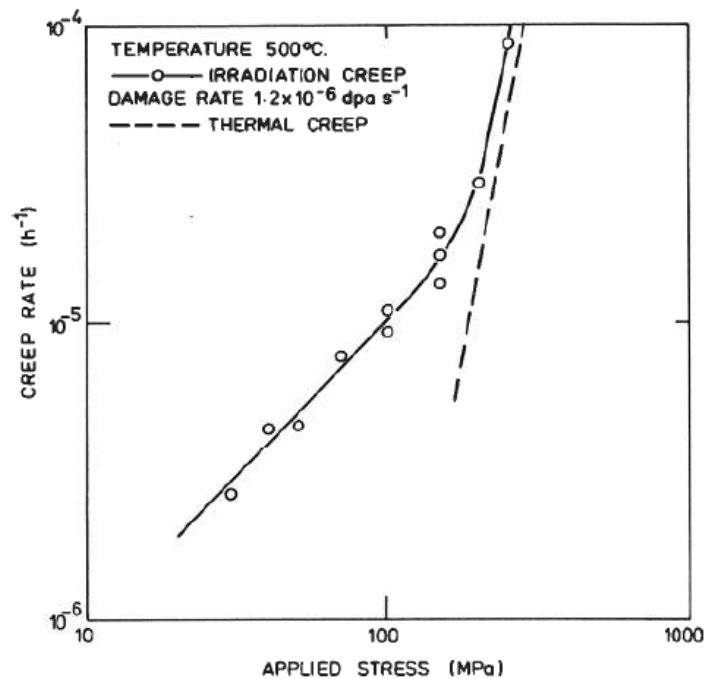


Figure 1.5 – Vitesse de déformation d'un acier 321 écroui en fluage thermique (courbe en pointillé) et en fluage d'irradiation (courbe en trait plein) à 500°C en fonction de la contrainte appliquée [4].

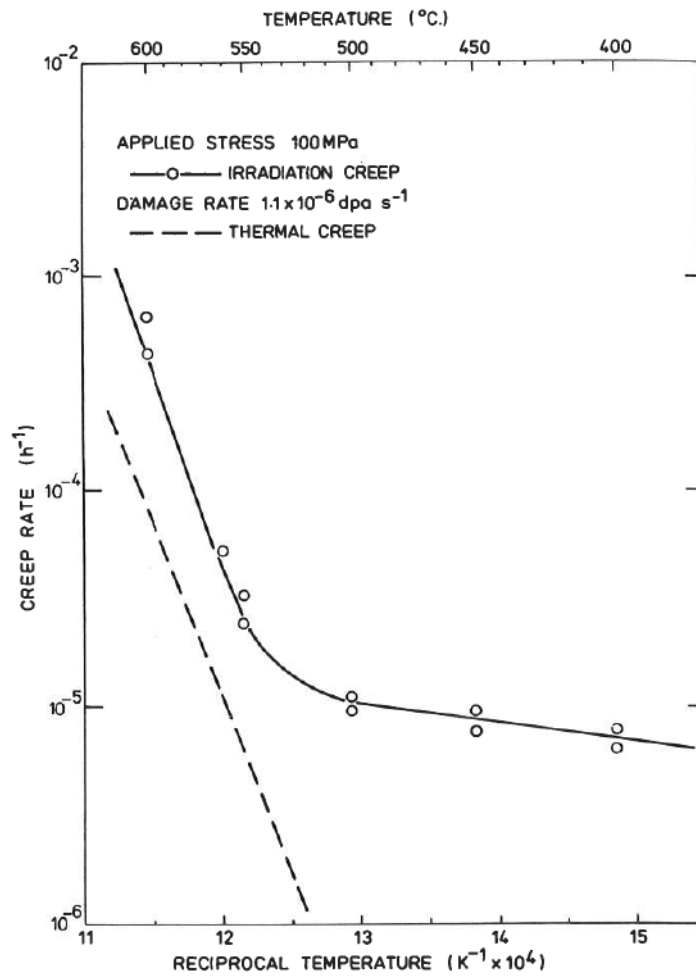


Figure 1.6 – Vitesse de déformation d'un acier 321 écroui en fluage thermique (courbe en pointillé) et en fluage d'irradiation (courbe en trait plein) avec une contrainte uniaxiale de 100 MPa en fonction de la température [4].

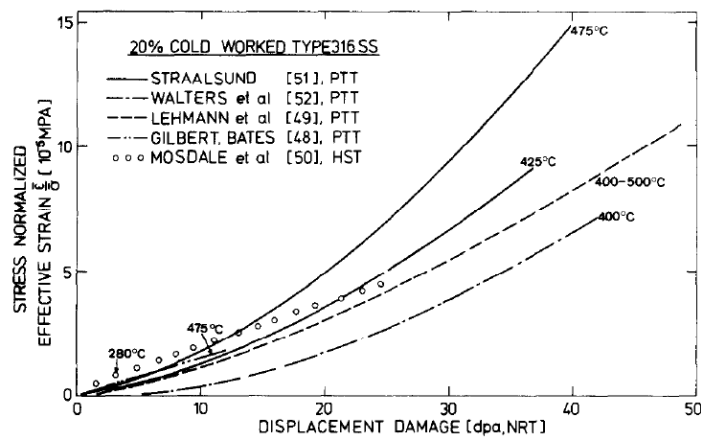


Figure 1.7 – Déformation de fluage renormalisée par la contrainte en fonction de la dose pour des aciers de type 316 écroui [7].

linéaire pour les aciers 304L et 316. Par conséquent l'exposant de la contrainte dans l'équation 1.1 est proche de 1.

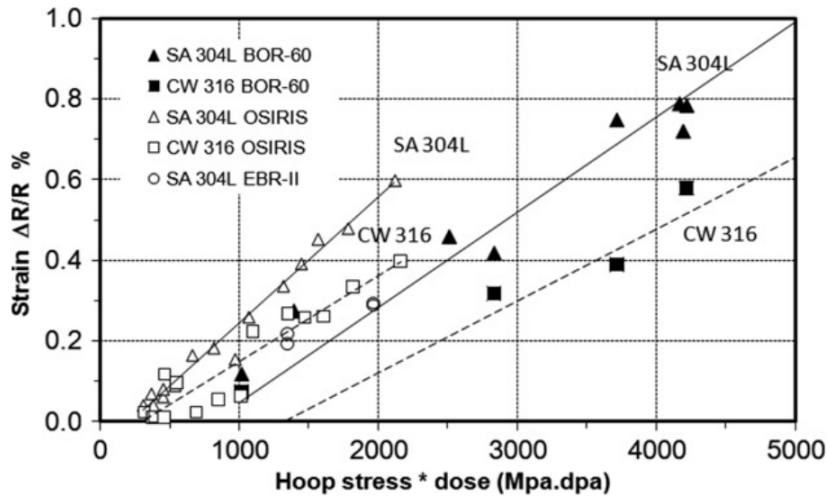


Figure 1.8 – Résultats d'essais de fluage d'irradiation menés à BOR-60, EBR-II et OSIRIS en fonction du produit de la contrainte circonférentielle dans les tubes et la dose [11].

Enfin, pour une contrainte donnée, la déformation évolue également de façon linéaire avec la dose [7, 11, 12, 8]. Un exemple de cette évolution linéaire sur deux aciers différents est donné dans la figure 1.9. Nous constatons que le fluage d'irradiation est plus rapide pour l'acier 304L que pour l'acier 316. Comme le soulignent les auteurs, il n'est pas possible à partir de leurs expériences de déterminer si cette différence de comportement est due à un effet de la composition chimique ou de l'état de la microstructure de dislocations initiale [11]. L'exposant du terme de flux neutronique dans la formule générale du fluage est donc également proche de 1.

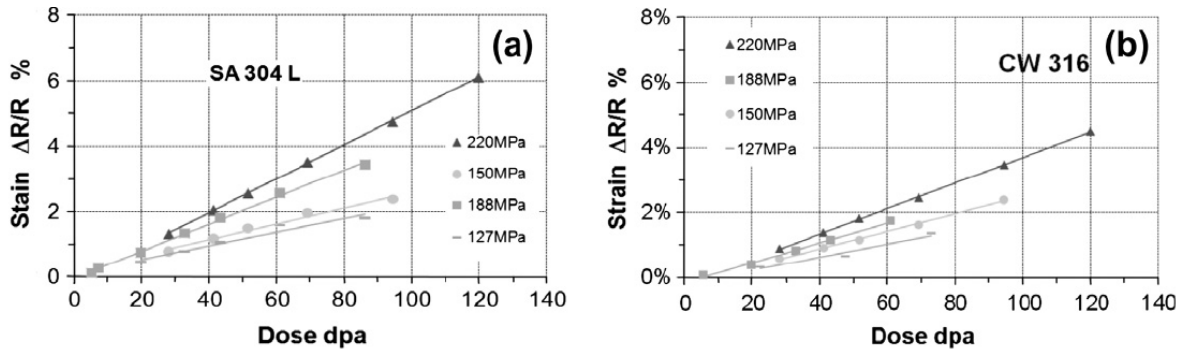


Figure 1.9 – Evolution du diamètre de quatre tubes pressurisés irradiés à BOR-60 à 300°C pour différentes contraintes : (a) 304L hypertempé, (b) 316 écroui [11].

De ces observations, il a été conclu que l'évolution macroscopique du fluage d'irradiation pour les aciers austénitiques, à faible contrainte et faible température, est assez simple. En effet, dans ces conditions l'expression 1.1 peut être simplifiée et devient :

$$\varepsilon_{\text{irr}} = B_0 \sigma \phi t, \quad (1.2)$$

où B_0 est le terme de souplesse. Ce terme est légèrement dépendant de la température et surtout est propre à chaque matériau [11, 12]. Ce modèle empirique s'applique à un régime particulier où le fluage thermique et le gonflement n'interviennent pas. De plus, la déformation est proportionnelle à la contrainte jusqu'à une contrainte de transition au-delà de laquelle la dépendance par

rapport à la contrainte n'est plus linéaire mais devient quadratique [9]. Par exemple Mosedale [4] constate que le fluage évolue linéairement avec la contrainte jusqu'à 150 MPa et 500°C . Au-delà le fluage thermique intervient.

1.2.3 Irradiation d'un point de vue microscopique

Les évolutions macroscopiques des pièces ont pour origine une modification microstructurale des matériaux sous irradiation. Lorsqu'une particule incidente, telle qu'un neutron, transfère à un atome une énergie E_t supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d de cet atome, l'atome en question est déplacé hors de son site atomique. Il s'insère dans le réseau en position interstitielle et laisse derrière lui une place vacante. Dans le cas plus simple, qui est schématisé dans la figure 1.10, la collision génère une paire de Frenkel, c'est-à-dire une lacune et un atome auto-interstitiel (que nous appellerons simplement interstitiel par la suite). Si $E_t \gg E_d$, l'atome éjecté présente une énergie suffisante pour déplacer à son tour un autre atome en transférant une partie de son énergie et ainsi de suite, tant que l'énergie transmise est supérieure à $2E_d$. Cela donne lieu à une cascade de déplacements dont le premier atome déplacé est appelé atome primaire ou pka (pour *primary knock-on atom*).

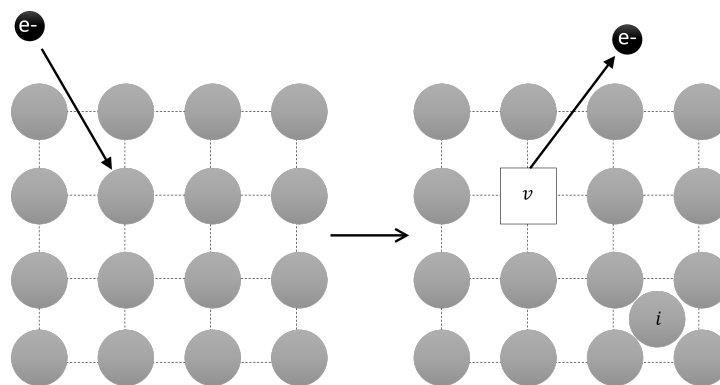


Figure 1.10 – Schéma de la création d'une paire de Frenkel par un électron dans un cristal parfait : une lacune (v) et un atome auto-interstitiel (i).

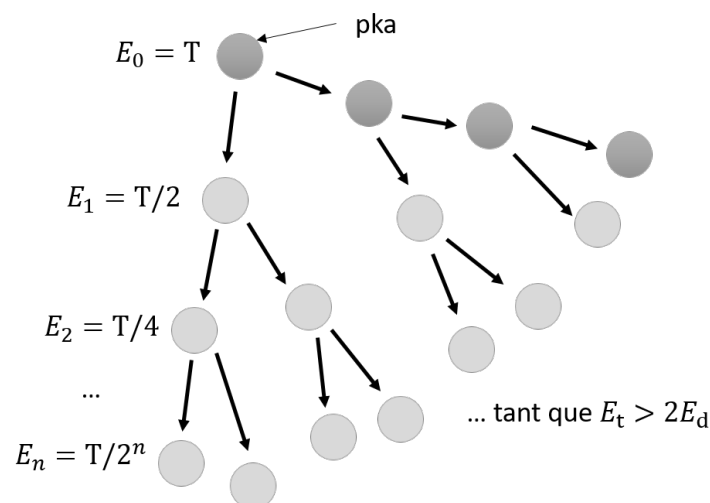


Figure 1.11 – Schéma d'une cascade de déplacements à partir d'un atome primaire d'énergie initiale E_0 [6].

Les défauts ponctuels, lacunes et interstitiels, qui ont été générés par le flux de particules, diffusent ensuite au sein du matériau jusqu'à ce qu'ils rencontrent un autre défaut ou s'éliminent vers des puits de la microstructure (surfaces, joints de grains...). Deux défauts ponctuels de nature opposée peuvent se recombiner et des défauts de même nature peuvent s'agglomérer pour former des amas (figure 1.12). Ces derniers peuvent prendre la forme d'un plan supplémentaire dans le réseau cristallin, formant ainsi d'une boucle de dislocation prismatique. Si celle-ci présente une faute d'empilement on parle de boucle fautée, sinon de boucle parfaite. D'autres types d'amas sont possibles, les amas interstitiels peuvent prendre la forme de phases A15 [13] et les lacunes peuvent s'agglomérer en boucles lacunaires ou en amas tridimensionnels comme la cavité et le tétraèdre de faute d'empilement (SFT pour *stacking fault tetrahedra*). La présence et l'évolution de ces défauts vont avoir une incidence sur les propriétés des matériaux et sont à l'origine des variations dimensionnelles induites par l'irradiation.

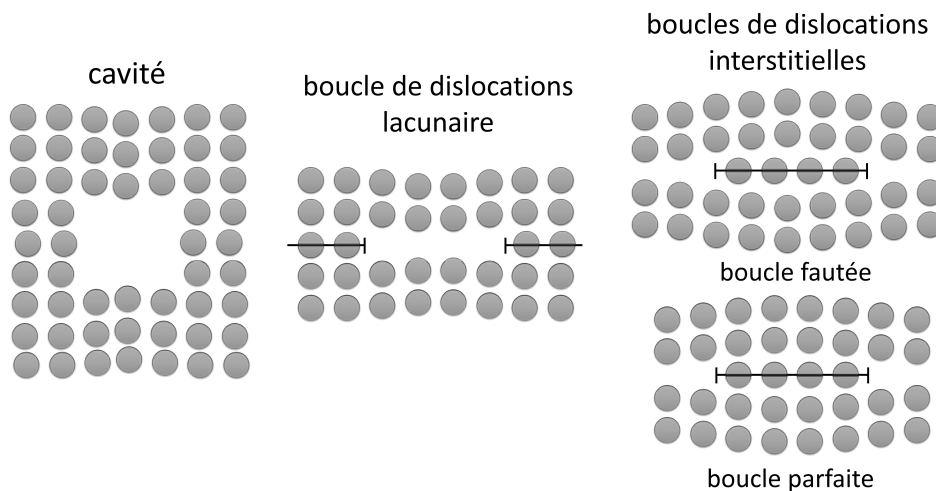


Figure 1.12 – Représentation d'amas de défauts créés sous irradiation suite à l'agglomération de lacunes ou d'interstitiels.

La déformation des pièces sous irradiation peut avoir plusieurs origines : le gonflement ou le fluage d'irradiation. Le gonflement est une augmentation du volume du matériau sans application de contrainte, il est généralement dû à l'apparition de cavités. La déformation associée est isotrope et elle est associée à une diminution de la densité du matériau. Le fluage d'irradiation, quant à lui, se manifeste sous sollicitations mécaniques comme cela a été montré dans la section 1.2.2. Cette déformation peut être induite par à une distribution anisotrope des amas de défauts ponctuels par exemple.

Nous avons vu que les études macroscopiques du phénomène de fluage d'irradiation sont nombreuses. Malgré la simplicité du modèle qui décrit le comportement des aciers austénitiques sous irradiation et sous contrainte (équation 1.2), la nature des mécanismes impliqués d'un point de vue microstructural reste mal connue [14, 8]. Une meilleure compréhension des mécanismes à l'échelle microscopique est utile pour améliorer le caractère prédictif des modèles, voire élaborer des matériaux plus performants.

1.2.4 Mécanismes proposés

Grâce aux observations en microscopie des matériaux suite à un essai de fluage d'irradiation, il est connu que la contrainte affecte l'évolution de la microstructure sous irradiation. L'exemple de la figure 1.13 montre de façon claire que la distribution des boucles de dislocation et des cavités dépend du type de chargement. Garner *et al.* [15] constatent que la densité des cavités et

des boucles de dislocation augmentent avec le niveau de la contrainte, peu importe le signe du chargement.

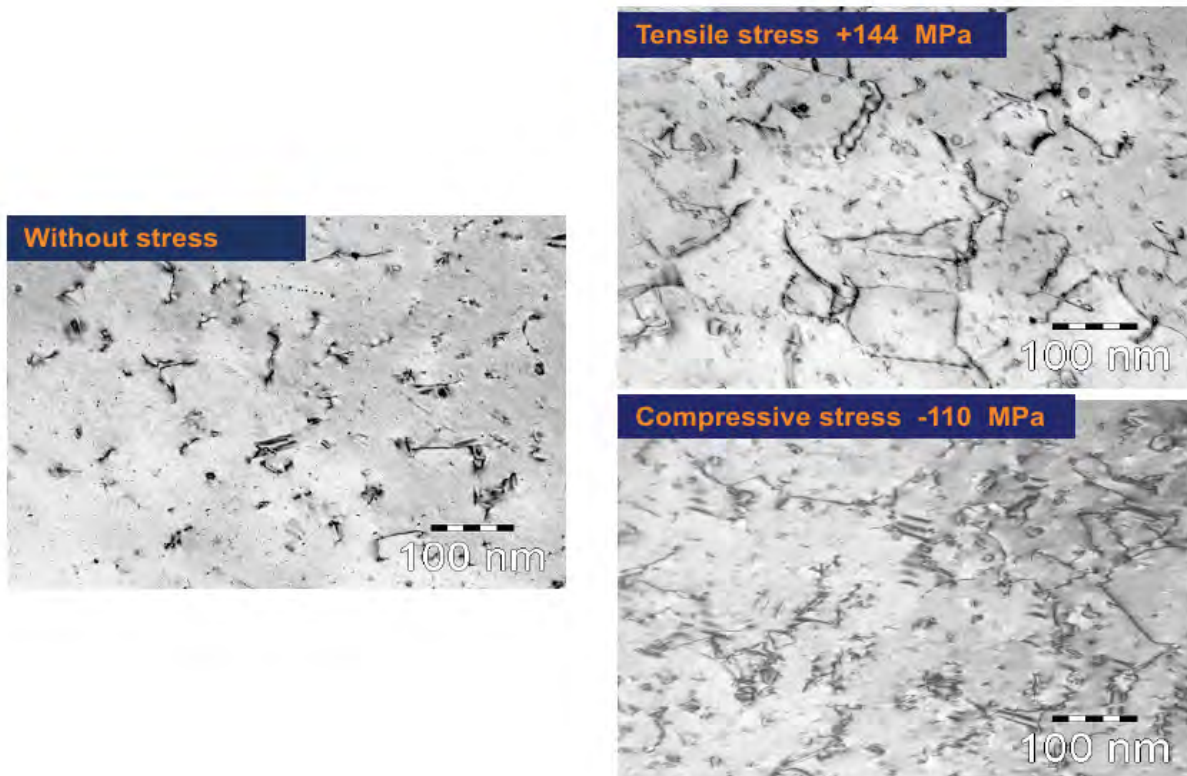


Figure 1.13 – Microstructures de tubes pressurisés à $\sim 400^{\circ}\text{C}$ et à 16 dpa pour différents types de chargements [15].

Différents modèles ont été avancés pour expliquer l'origine du fluage d'irradiation d'un point de vue microstructural. Ehrlich [7] a comparé dans une revue les données expérimentales de fluage d'irradiation avec des modèles théoriques. Matthews et Finnis [14] ont fait une revue exhaustive qui se concentre sur les modèles existants : SIPN [16, 17, 18], SIPA-I [19, 20], SIPA-AD [21, 22], I-creep [23], SIPAG [24]. La dépendance linéaire en contrainte du fluage est souvent associée aux mécanismes de montée des dislocations ou de germination préférentielle de boucles, alors que la dépendance quadratique de la déformation à contrainte plus élevée est prédite par des mécanismes impliquant le glissement des dislocations [9, 25].

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux mécanismes de fluage qui impliquent les boucles et nous excluons les mécanismes impliquant le glissement des dislocations. Comme cela a été expliqué dans la section 1.2.3, des boucles de dislocation peuvent se former sous irradiation suite à l'agglomération de défauts ponctuels. Dans un matériau isotrope sans chargement mécanique, les différentes boucles présentent un comportement à peu près identique, ce qui n'induit pas de déformation. Le fluage d'irradiation est la conséquence d'un comportement anisotrope de la microstructure. Deux types de comportement anisotropes ont été observés sur les boucles de dislocation sous contrainte, ils sont schématisés dans la figure 1.14 : une croissance différentielle entre les variants de boucles [26] ou des densités de boucles différentes entre les variants [27]. Le premier cas repose sur l'absorption préférentielle des défauts ponctuels par certaines boucles sous l'effet de la contrainte, ce mécanisme est connu sous le nom de SIPA (pour *Stress-Induced Preferred Absorption*). Les différences de densités étaient au départ associées à un mécanisme d'orientation préférentielle des boucles, le SIPN (pour *Stress-Induced Preferred Nucleation*). Puis il a été avancé que l'anisotropie des distributions de boucles étaient également

une conséquence du mécanisme SIPA [28]. Les résultats obtenus sur l'étude de la croissance des boucles sous contrainte pourront être étendus aux dislocations (mécanisme SIPA, figure 1.15).

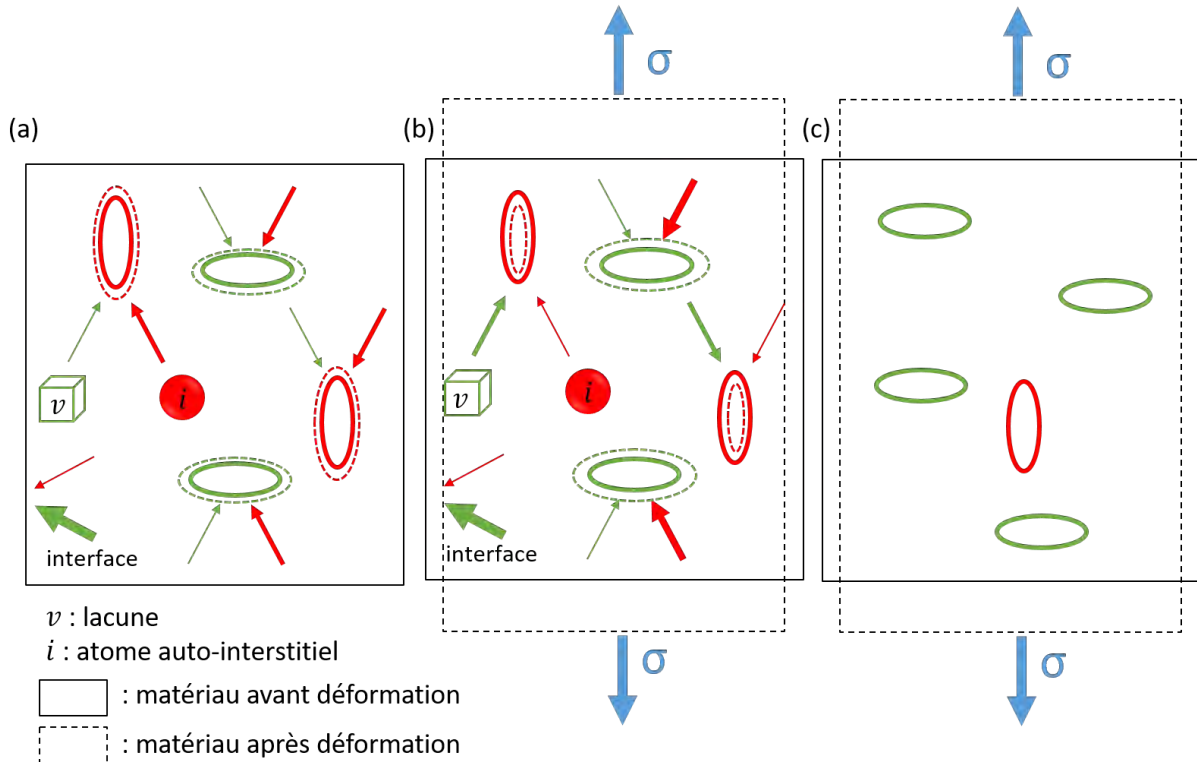


Figure 1.14 – Schéma des observations de l'effet de la contrainte sur l'évolution des boucles. Les flèches rouges correspondent au flux net des interstitiels et les vertes au flux net des lacunes. La largeur des flèches est proportionnelle au flux. Les boucles en pointillé indiquent si une boucle augmente ou diminue en taille. Les boucles en pointillé représentent les boucles après un certain temps sous irradiation. Les boucles vertes et rouges représentent deux familles de boucles orientées différemment par rapport à la contrainte appliquée. Chaque cas de figure illustre un effet : (a) l'EID uniquement (pour *elastic interaction difference*), (b) la croissance différentielle qui s'explique par le mécanisme SIPA et (c) la distribution anisotrope des boucles qui peut s'expliquer par les mécanismes SIPA et SIPN.

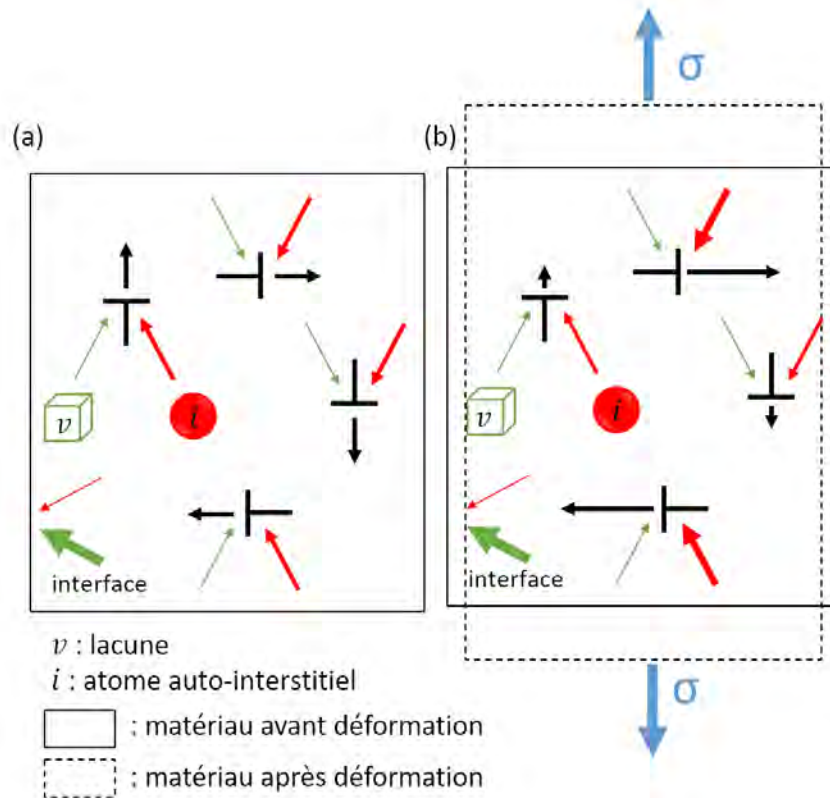


Figure 1.15 – Schéma du mécanisme SIPA sur les dislocations : (a) Montée homogène des dislocations hors contrainte et sous irradiation, (b) Montée différentielle des dislocations sous l'effet de la contrainte (SIPA), augmentation de la capture des interstitiels par les dislocations dont le vecteur de Burgers est aligné avec l'axe de traction. Les flèches rouges correspondent au flux net des interstitiels et les vertes au flux net des lacunes. La largeur des flèches est proportionnelle au flux. Les flèches noires donnent le sens de la montée des dislocations et leur longueur est proportionnelle à la vitesse de montée.

1.3 Etat de l'art des modèles proposés

L'objet de cette section est de présenter le SIPN et le SIPA qui sont les principaux modèles avancés dans la littérature afin d'expliquer le comportement anisotrope des boucles de dislocation en fluage d'irradiation. Pour le mécanisme SIPA, nous distinguons le modèle SIPA-AD et SIPA-I qui correspondent à l'effet du premier et du second ordre du SIPA.

1.3.1 SIPN

Le modèle de germination préférentielle des boucles sous contrainte a été proposé pour la première fois par Hesketh [16] afin d'expliquer le fluage d'irradiation dans l'uranium. Son modèle, qui s'inspire de la théorie classique de la germination, a ensuite été repris par d'autres auteurs [17, 18, 29, 30, 31, 32]. Wolfer [17] et Brailsford [18] développent un modèle SIPN afin de décrire le fluage d'irradiation dans les aciers hypereutectés où la germination et la croissance des boucles sont supposées dominer. Ils postulent qu'en présence d'une contrainte, le nombre de boucles N dans un plan cristallographique est proportionnel au facteur de Boltzmann comme suit :

$$N = N_0 \exp\left(\frac{\pm \pi R_0^2 b \sigma_n}{k_B T}\right), \quad (1.3)$$

où le signe positif est appliqué dans le cas des interstitiels et le signe négatif dans le cas des lacunes, N_0 est le nombre de boucles dans un cristal hors contrainte (il peut être normalisé afin que la densité totale de toutes les boucles reste indépendante de la contrainte), σ_n est la composante de la contrainte normale au plan de la boucle, $b = |\mathbf{b}|$ et \mathbf{b} est le vecteur de Burgers, R_0 est le rayon de la taille critique de la boucle, k_B la constante de Boltzmann et T la température. Le terme du numérateur dans la fonction exponentielle correspond à la modification de l'énergie élastique d'une boucle par la présence d'un champ de contrainte. D'après l'équation 1.3, une contrainte de traction uniaxiale favorisera la formation des boucles interstitielles dans les plans orthogonaux à l'axe de la contrainte et pour les boucles lacunaires, dans les plans parallèles à l'axe. Cet empilement des boucles entraînera alors l'augmentation de l'allongement du matériau dans la direction du chargement.

Comme cette prédiction d'alignement des boucles sous contrainte se rapproche de ce qui a été observé dans les premières études sur les boucles de dislocation en fluage d'irradiation (voir la section 1.4), le SIPN était initialement avancé afin d'expliquer les résultats expérimentaux. Néanmoins le SIPN a rapidement été écarté [33]. La raison principale est qu'il ne s'avère pas pertinent d'appliquer la théorie de la germination aux boucles de dislocation interstitielles parce qu'il n'y a pas de barrière de germination à franchir au-delà du di-interstitiel [33]. En effet, l'énergie de liaison entre deux interstitiels est autour de 1 eV [34], la dissociation thermique d'un di-interstitiel ou l'émission d'interstitiels par un amas est peu probable. L'autre argument avancé à l'encontre du SIPN est que le modèle suggère que la déformation de fluage devrait se poursuivre si la contrainte est retirée après la phase de germination des boucles ou que la déformation ne devrait pas être observée si la contrainte est appliquée après la phase de germination [14].

Comme Wolfer [28] a démontré que le SIPA peut affecter la distribution des boucles comme observé expérimentalement, ce mécanisme a ensuite été préféré au SIPN pour expliquer les différences de densité entre les variants de boucles de dislocation.

Par la suite Wolfer [32] a proposé un modèle de réorientation des tri-interstitiels sous l'effet d'une contrainte. Ce modèle est plus plausible que le mécanisme SIPN classique parce qu'il est étayé par des expériences comme celle de Robrock *et al.* [35] sur la réorientation des petits amas d'interstitiels dans l'aluminium. Cependant, dans la même publication, Wolfer maintient que les prédictions de fluage d'irradiation par le mécanisme SIPA sont en meilleur accord avec les données expérimentales que la réorientation des amas induite par la contrainte. Ce mécanisme induirait en effet trop peu de différences dans les proportions de boucles, si on fait l'hypothèse que les boucles germent en préservant les proportions des différentes configurations du tri-interstitiel sous contrainte. Il existe peu d'études sur l'effet de la contrainte sur les amas et donc peu de données atomistiques qui pourraient prouver ce phénomène [8].

Pour des questions de clarté, nous qualifierons, par la suite, tout mécanisme lié à la contrainte agissant sur la formation des boucles, à l'exclusion du SIPA, de mécanisme "de type SIPN". Cela inclut donc par exemple les mécanismes de réorientation des petits amas.

1.3.2 SIPA

L'anisotropie des microstructures de boucles de dislocation s'explique également par l'absorption préférentielle des interstitiels et des lacunes par certaines boucles, en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte appliquée [28]. Deux modèles principaux ont été développés afin d'expliquer la montée préférentielle de certains types de dislocations sous contrainte et sous irradiation : SIPA-I et SIPA-AD. Ils dépendent subtilement des propriétés élastiques des défauts ponctuels, ils couplent les champs de déformation interne et appliquée, ce qui conduit à l'absorption préférentielle des défauts ponctuels par certaines dislocations. Les deux modèles

décrivent les défauts ponctuels à travers leur dipôle élastique, un tenseur qui décrit comment l'énergie d'un défaut ponctuel varie avec le champ de déformation local.

Le premier modèle, connu sous le nom de SIPA-AD pour *stress-induced preferred absorption due to anisotropic diffusion* [36, 37, 38, 39] ou SIPA-SAPSE pour *saddle-point shape effect* [21, 22], repose sur l'anisotropie du dipôle élastique des défauts ponctuels dans leur configuration col [40]. A cause de cette anisotropie et de la diminution de la symétrie du cristal par l'application d'une contrainte, la diffusion devient anisotrope [41, 42]. Cette diffusion anisotrope est responsable des différentes "sections efficaces" d'absorption des dislocations et par conséquent de l'absorption préférentielle des défauts ponctuels par les dislocations en fonction de leur orientation.

Le second modèle est le SIPA-I pour *stress-induced preferred absorption due to inhomogeneity interaction*. Ce modèle est souvent simplement nommé SIPA comme il a été développé en premier et qu'il est resté populaire [19, 43, 44, 45]. Il repose sur la dépendance du dipôle élastique vis-à-vis de la contrainte locale, un phénomène connu sous le nom de polarisabilité diaélastique [46].

Il est d'usage de quantifier l'effet de la contrainte sur le taux d'absorption d'un type de défaut par les dislocations en calculant leur efficacité d'absorption Z , qui est un terme clé dans une approche en champ moyen. Des calculs théoriques et numériques antérieurs ont montré que pour le fer et le cuivre, l'efficacité d'absorption sous contrainte dépend plus de l'anisotropie du dipôle élastique que de la polarisabilité et que le SIPA-AD serait un ordre de grandeur plus élevé que le SIPA-I [36, 21, 38]. Cette estimation repose sur des tenseurs de dipôle calculés avec des potentiels interatomiques, qui peuvent ne pas être en accord avec ceux calculés par méthode *ab-initio* [47]. Plusieurs approximations sont faites sur le terme de polarisabilité afin de faciliter le développement de calculs analytiques : le tenseur de rang quatre qui caractérise la polarisabilité est supposé isotrope et identique au point stable et au point col. Les conséquences que peuvent avoir les différentes approximations faites dans les modèles analytiques sur les taux d'absorption des défauts ponctuels sont peu claires [38]. C'est pour ces raisons qu'il est important d'évaluer avec plus de précision l'ampleur du SIPA-AD et du SIPA-I, c'est-à-dire le rôle de l'anisotropie du défaut ponctuel et de la polarisabilité diaélastique sur les efficacités d'absorption Z des défauts ponctuels par les dislocations sous contrainte.

1.3.3 Approche en champ moyen

L'intérêt de calculer le terme d'efficacité d'absorption Z est qu'il peut être intégré dans une approche en champ moyen et qu'il permet d'estimer le comportement cinétique d'une boucle par exemple, en présence d'autres puits.

En considérant que le milieu est homogène, l'évolution de la concentration de lacunes C_v et d'interstitiels C_i dans un système est donnée par les équations suivantes [6] :

$$\begin{cases} \frac{dC_v}{dt} = G - K_{iv}C_vC_i - k_{tot,v}^2D_vC_v \\ \frac{dC_i}{dt} = G - K_{iv}C_iC_v - k_{tot,i}^2D_iC_i \end{cases} \quad (1.4)$$

G est le taux de création de paires de Frenkel, K_{iv} est le terme de recombinaison tel que $K_{iv} = 4\pi r_{iv}(D_i + D_v)$ et r_{iv} est le rayon de recombinaison. $k_{tot,j}^2 = \sum_s k_{s,j}^2$ est la force de puits totale pour le défaut j (lacune ou interstitiel), elle est la somme des forces de puits des différents éléments s de la microstructure (boucles, dislocations, surfaces...). Dans ces équations, nous négligeons l'émission thermique des défauts par les puits qui est une contribution importante seulement dans les irradiations à haute température.

Les efficacités d'absorption que nous calculons dans notre étude sont des grandeurs sans unité liées aux forces de puits par un facteur géométrique. Pour une dislocation droite, $k_d^2 = \rho_d Z_d$ avec

ρ_d la densité de dislocations et pour une boucle $k_1^2 = 2\pi r_1 \rho_1 Z_1$ avec r_1 et ρ_1 le rayon et la densité volumique des boucles respectivement.

La vitesse de croissance d'une boucle de dislocation peut être déterminée analytiquement. Sa croissance dépend du flux d'interstitiels ϕ_i et de lacunes ϕ_v qui arrivent vers elle. Nous considérons une boucle interstitielle constituée de n atomes :

$$\frac{dn}{dt} = \phi_i - \phi_v = 2\pi r (Z_i D_i C_i - Z_v D_v C_v). \quad (1.5)$$

La relation entre le rayon d'une boucle purement prismatique et le nombre de défauts qui la constitue est

$$n\Omega = \pi r^2 b, \quad (1.6)$$

où $\Omega = a_0^3/4$ est le volume atomique.

En reprenant les équations 1.5 et 1.6, la vitesse de croissance d'une boucle s'écrit

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} (Z_i D_i C_i - Z_v D_v C_v). \quad (1.7)$$

Pour l'étude il est intéressant d'introduire le terme de biais d'absorption d'un puits s qui est déduit du rapport relatif entre les forces de puits ou les efficacités d'absorption :

$$B_s = \frac{k_{s,i}^2 - k_{s,v}^2}{k_{s,i}^2} = \frac{Z_{s,i} - Z_{s,v}}{Z_{s,i}}. \quad (1.8)$$

A condition que le système soit à l'état stationnaire, c'est-à-dire,

$$k_{\text{tot},i}^2 D_i C_i = k_{\text{tot},v}^2 D_v C_v, \quad (1.9)$$

nous pouvons injecter l'équation 1.9 dans l'équation 1.7 et nous obtenons

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} Z_i \left(\frac{k_{\text{tot},v}^2}{k_{\text{tot},i}^2} - \frac{Z_v}{Z_i} \right) D_v C_v. \quad (1.10)$$

La vitesse de croissance d'une boucle peut finalement s'écrire en fonction de son biais B par rapport au biais moyen du système ($\langle B \rangle$) dans lequel elle se trouve :

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} Z_i (B - \langle B \rangle) D_v C_v. \quad (1.11)$$

Dans l'équation 1.11, si le terme $(B - \langle B \rangle)$ est positif, la boucle aura tendance à croître, s'il est négatif, elle rétrécira. Le mécanisme SIPA prédit des Z dépendant de l'orientation de la contrainte, d'où une absorption préférentielle par certaines dislocations. Les boucles de dislocation présentent donc des efficacités d'absorption, Z_i et Z_v , différentes en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte. Comme nous avons dit plus tôt, le terme de biais d'un puits, équation 1.8, dépend de ces efficacités d'absorption. Nous pouvons donc comprendre avec l'équation 1.11, pourquoi le mécanisme SIPA devrait entraîner une croissance différentielle des boucles en fonction de leur orientation par rapport à la direction de la contrainte. Si on fait l'hypothèse que l'effet du mécanisme SIPA est suffisamment important pour que le terme $B - \langle B \rangle$ soit négatif pour certaines boucles, celles-ci devraient décroître et disparaître, expliquant ainsi des différences de densités de boucles.

1.3.4 Diffusion des défauts ponctuels sous contrainte

Avant de présenter les modèles analytiques SIPA que nous utiliserons dans cette étude, nous rappelons dans cette partie comment la migration d'un défaut ponctuel, décrit par son dipôle élastique, est modifiée par la contrainte locale. Les défauts ponctuels sont décrits dans le cadre du modèle élastique, sur lequel se base les approches analytiques. Comme nous l'avons dit précédemment, la migration des défauts ponctuels vers des dislocations dépend de leur interaction avec le champ élastique généré par les dislocations et la contrainte appliquée.

Un défaut ponctuel peut être décrit par un dipôle élastique Π_{ij} [48, 49], qui dépend du champ de déformation local s'il est polarisable :

$$\Pi_{ij}(\boldsymbol{\varepsilon}) = P_{ij} + \alpha_{ijkl}\varepsilon_{kl}, \quad (1.12)$$

où $P_{ij} = \Pi_{ij}(0)$ est le dipôle élastique sans effet de contrainte, α_{ijkl} est la polarisabilité diaélastique et ε_{ij} est le champ de déformation local à la position du défaut ponctuel. Dans la formule 1.12 et toute la suite, la convention de sommation d'Einstein sur les indices répétés est appliquée. Le dipôle élastique et la polarisabilité sont généralement différents au point stable et au point col.

L'énergie d'interaction associée, en configuration stable ou col, s'écrit [50] :

$$E = -P_{ij}\varepsilon_{ij} - \frac{1}{2}\varepsilon_{ij}\alpha_{ijkl}\varepsilon_{kl}. \quad (1.13)$$

Dederichs et Schroeder ont montré que le flux de défauts ponctuels peut s'écrire à partir du tenseur de diffusion renormalisé [42] :

$$\tilde{D}_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4}D_0 \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j \exp\left(-\frac{E^{\text{col},\mathbf{h}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (1.14)$$

où $E^{\text{col},\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ est l'énergie d'interaction au point col donnée par l'équation 1.13 pour un défaut ponctuel initialement localisé en \mathbf{r} et réalisant un saut dans la direction \mathbf{h} , avec $\hat{\mathbf{h}}$ le vecteur unitaire associé, k_{B} la constante de Boltzmann, T la température et D_0 est le coefficient de diffusion hors contrainte. Ce dernier est calculé de cette façon :

$$D_0 = \kappa\nu_0 a_0^2 \exp\left(-\frac{E_0^{\text{m}}}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (1.15)$$

où $\kappa = 1$ pour les lacunes et $\kappa = 2/3$ pour les interstitiels (en configuration haltère (dumbbell) suivant la direction $\langle 100 \rangle$), a_0 est le paramètre de maille, ν_0 la fréquence d'attaque et E_0^{m} l'énergie de migration hors contrainte.

En développant le coefficient de diffusion en série de Taylor au second ordre par rapport à la déformation, Woo a montré que différents termes contribuent à l'absorption préférentielle induite par la contrainte [38]. Dans le développement ci-après, ε_{ij} est la somme de la déformation appliquée $\varepsilon_{ij}^{\text{a}}$ et la déformation due à une dislocation $\varepsilon_{ij}^{\text{d}}$. Il est supposé que la déformation varie peu sur une distance a_0 , afin de considérer que $\varepsilon_{ij}^{\text{d}}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2) \approx \varepsilon_{ij}^{\text{d}}(\mathbf{r})$. En substituant

l'équation 1.13 dans 1.14, nous obtenons :

$$\begin{aligned}
\tilde{D}_{ij}(\mathbf{r}) \approx & \underbrace{D_0 \delta_{ij}}_{1 - \text{diffusion hors contrainte}} + \underbrace{\frac{1}{4} D_0 \frac{1}{k_B T} \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j P_{kl}^{\text{col}, \mathbf{h}} \varepsilon_{kl}^{\text{d}}(\mathbf{r})}_{2 - \text{EID, premier ordre}} \\
& + \underbrace{\frac{1}{4} D_0 \frac{1}{k_B T} \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j P_{kl}^{\text{col}, \mathbf{h}} \varepsilon_{kl}^{\text{a}}}_{3 - \text{élastodiffusion, SIPA-AD (Woo)}} \\
& + \frac{1}{4} D_0 \frac{1}{k_B T} \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j \left(\underbrace{\alpha_{klmn}^{\text{col}, \mathbf{h}}}_{4 - \text{SIPA-I}} + \underbrace{\frac{1}{k_B T} P_{kl}^{\text{col}, \mathbf{h}} P_{mn}^{\text{col}, \mathbf{h}}}_{5 - \text{SIPA-AD (Dederichs)}} \right) \varepsilon_{kl}^{\text{a}} \varepsilon_{mn}^{\text{d}}(\mathbf{r}) \\
& + \underbrace{\frac{1}{4} D_0 \frac{1}{k_B T} \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j \left(\frac{1}{4} \alpha_{klmn}^{\text{col}, \mathbf{h}} + \frac{1}{4} \frac{1}{k_B T} P_{kl}^{\text{col}, \mathbf{h}} P_{mn}^{\text{col}, \mathbf{h}} \right) \varepsilon_{kl}^{\text{d}}(\mathbf{r}) \varepsilon_{mn}^{\text{d}}(\mathbf{r})}_{6 - \text{EID, second ordre}} \\
& + \underbrace{\frac{1}{4} D_0 \frac{1}{k_B T} \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j \left(\frac{1}{4} \alpha_{klmn}^{\text{col}, \mathbf{h}} + \frac{1}{4} \frac{1}{k_B T} P_{kl}^{\text{col}, \mathbf{h}} P_{mn}^{\text{col}, \mathbf{h}} \right) \varepsilon_{kl}^{\text{a}} \varepsilon_{mn}^{\text{a}}}_{7 - \text{élastodiffusion, second ordre}}. \quad (1.16)
\end{aligned}$$

Le premier terme correspond au tenseur de diffusion en l'absence de contrainte. Le deuxième terme est lié à la différence d'interaction élastique par rapport aux interstitiels et les lacunes (souvent écrit EID pour *elastic interaction difference*), il est responsable du biais de la dislocation hors contrainte [51] au premier ordre (le second ordre correspondant au sixième terme ici, est toujours négligé). Le troisième terme est le terme d'élastodiffusion classique [42]. Woo l'identifie comme le principal contributeur au SIPA [22, 38], appelé SIPA-AD. Le quatrième et le cinquième termes couplent le champ de la dislocation et le champ appliqué, ils contribuent donc également au SIPA. Le terme comprenant la polarisabilité correspond à l'effet du SIPA-I [19, 44, 43], alors que le produit du dipôle élastique est l'effet du SIPA-AD comme il était considéré par Dederichs et Schroeder [42]. Dans les simulations numériques qui reposent sur l'anisotropie du dipôle élastique, le troisième et le cinquième terme sont inclus lorsque la forme initiale du coefficient de diffusion (équation 1.14) est utilisée [37]. Enfin, le sixième et le septième terme sont les termes du second ordre de l'EID et de l'élastodiffusion. Bien que ce dernier contribue en principe au SIPA, il a été ignoré dans les études antérieures qui considéraient la polarisabilité dans leur développement analytique. Seul le quatrième terme était considéré. La seconde partie de ce terme est présente dans les études numériques qui utilisent l'anisotropie du dipôle élastique.

1.3.5 Modèles analytiques de l'efficacité d'absorption des dislocations sous contrainte

Cette partie présente les modèles analytiques avec lesquels nos résultats numériques seront comparés dans la suite de ce travail de thèse. Nous abordons les modèles dans l'ordre chronologique de leur développement, c'est-à-dire SIPA-I puis SIPA-AD.

SIPA-I

Heald et Speight [43] ont donné une expression pour l'efficacité d'absorption des défauts par les dislocations sous contrainte uniaxiale d'amplitude σ , en considérant uniquement le quatrième terme parmi les termes 3 à 7 dans l'équation 1.16. Les auteurs font l'hypothèse que le tenseur de

polarisabilité est identique au point stable et au point col et qu'il est isotrope, ce qui donne :

$$\alpha_{ijkl} = \left(\alpha^K - \frac{2}{3} \alpha^\mu \right) \delta_{ij} \delta_{kl} + \alpha^\mu (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}), \quad (1.17)$$

où α^K et α^μ sont les polarisabilités de compression et de cisaillement [52]. Cette approximation revient à considérer le défaut comme une inclusion isotrope non homogène d'Eshelby dans la matrice. Le dipôle élastique est supposé identique au point stable et point col, et considéré isotrope, c'est-à-dire que $P_{ij} = P \delta_{ij}$. A partir du modèle de Heald et Speight [43], Woo [53] obtient pour l'efficacité d'absorption des dislocations l'expression suivante que nous appellerons modèle HSW :

$$Z^I(\sigma) = Z^0 \left(1 + \frac{\Delta Z^I(\sigma)}{Z^0} \right), \quad (1.18)$$

avec

$$\frac{\Delta Z^I(\sigma)}{Z^0} = \frac{Z^0}{2\pi} \frac{\delta L(\sigma)}{L^0} \quad (1.19)$$

$$Z^0 = \frac{2\pi}{\ln \left(\frac{4R}{|L^0| e^\gamma} \right)} \quad (1.20)$$

$$L^0 = \frac{Pb}{2\pi} \frac{1-2\nu}{1-\nu} \frac{1}{k_B T} \quad (1.21)$$

$$\frac{\delta L(\sigma)}{L^0} = \frac{\sigma}{\mu} \left[\frac{(1-2\nu)\alpha^K}{2(1+\nu)P} + \frac{\alpha^\mu}{3(1-2\nu)P} \left(-(1+\nu) + 3\nu(\mathbf{s} \cdot \mathbf{l})^2 + 3(\mathbf{s} \cdot \mathbf{b})^2 \right) \right] \quad (1.22)$$

(notons que le facteur 2π dans l'équation 1.19 est manquante dans l'expression de Woo [53]). Z^0 est l'efficacité d'absorption sans application de contrainte. Dans les équations 1.20 à 1.22, ν est le coefficient de Poisson, μ est le module de cisaillement, \mathbf{l} est la direction de la ligne de dislocation, γ est la constante d'Euler ($\gamma \approx 0,577$) et $R = (\pi\rho_d)^{-1/2}$ avec ρ_d la densité de dislocations. La contrainte uniaxiale est appliquée suivant la direction \mathbf{s} de manière à ce que $\sigma_{ij} = \sigma s_i s_j$. Les équations 1.18 à 1.22 sont souvent données avec des notations différentes, en considérant le défaut comme une inclusion non-homogène d'Eshelby. Nous pouvons également noter que Wolfer et Ashkin [52] obtiennent une expression avec la même dépendance par rapport à l'orientation de la contrainte en $(\mathbf{s} \cdot \mathbf{l})^2$ et $(\mathbf{s} \cdot \mathbf{b})^2$.

Avec ce modèle, la direction de la contrainte qui donne l'efficacité d'absorption la plus élevée dépend du signe α^μ/P (équation 1.22). Pour un interstitiel en configuration stable dans un métal CFC, $\alpha^\mu > 0$ et $P > 0$ [54]. Par conséquent le modèle prédit que les interstitiels sont plus absorbés par une dislocation si la contrainte de traction est appliquée dans la direction du vecteur de Burgers. Pour une lacune, il est supposé dans la littérature que $\alpha^\mu > 0$ [44, 43], mais $P < 0$ donc il est attendu que le comportement soit inversé par rapport au cas de l'interstitiel.

SIPA-AD

Plus tard, le mécanisme SIPA dû à l'élastodiffusion a été étudié analytiquement par Skinner et Woo [22], Woo [38] et Borodin et Ryazanov [39]. L'expression la plus générale a été développée par Borodin et Ryazanov. Ils montrent que s'ils conservent uniquement les trois premiers termes dans l'équation 1.16 du coefficient de diffusion et que si la partie déviatorique du dipôle élastique au point col est faible, l'efficacité d'absorption d'un défaut peut s'écrire :

$$Z^{\text{AD}}(\sigma) = Z^0 \left(1 + \frac{\Delta Z^{\text{AD},0}}{Z^0} + \frac{\Delta Z^{\text{AD,hydro}}(\sigma)}{Z^0} + \frac{\Delta Z^{\text{AD,dev}}(\sigma)}{Z^0} \right). \quad (1.23)$$

Contrairement au modèle SIPA-I décrit précédemment, dans ce modèle que nous appellerons ici le modèle B&R, le défaut présente des propriétés différentes au point stable et au point col.

L'efficacité d'absorption Z^0 est également définie par les équations 1.20 et 1.21, mais cette fois-ci P est relatif au point col, c'est-à-dire que $P = P^{\text{col}} = \text{Tr}(\mathbf{P}^{\text{col}})/3$. Donc Z^0 correspond à l'absorption d'un défaut isotrope au point col. L'anisotropie au point col peut avoir une influence sur l'efficacité d'absorption même en absence de contrainte appliquée [22, 37, 39, 55, 56, 57], c'est ce qui est pris en compte dans le terme $\Delta Z^{\text{AD},0}$. L'effet de la contrainte sur l'efficacité d'absorption peut se décomposer en plusieurs termes : $\Delta Z^{\text{AD,hydro}}$, la composante hydrostatique qui dépend uniquement de $\text{Tr}(\boldsymbol{\sigma})$, et $\Delta Z^{\text{AD,dev}}$, qui dépend de la composante déviatorique de la contrainte. Seul ce dernier terme présente un intérêt pour notre étude puisque notre objectif est d'étudier l'évolution des efficacités d'absorption pour les différentes orientations de la contrainte appliquée. Pour une contrainte uniaxiale $\Delta Z^{\text{AD,dev}}$ s'écrit [39, 58] :

$$\frac{\Delta Z^{\text{AD,dev}}(\boldsymbol{\sigma})}{Z^0} = -\frac{\sigma}{4\mu k_{\text{B}}T} \left\{ d^{(2)} \left[(\mathbf{s} \cdot \mathbf{l})^2 - \frac{1}{3} \right] + d^{(3)} \sum_{p=1}^3 \left[(\mathbf{e}_p \cdot \mathbf{l})^2 (\mathbf{e}_p \cdot \mathbf{s})^2 - \frac{1}{9} \right] \right\}, \quad (1.24)$$

où \mathbf{e}_p ($p = 1, 2, 3$) sont les vecteurs unitaires suivant les axes cristallographiques. Les facteurs $d^{(2)}$ et $d^{(3)}$ sont liés aux composants du dipôle élastique au point col. Dans une structure CFC, le dipôle élastique d'un défaut ponctuel se déplaçant dans la direction $[110]$ est de la forme :

$$\mathbf{P}^{\text{col}} = \begin{pmatrix} P_{11}^{\text{col}} & P_{12}^{\text{col}} & 0 \\ P_{12}^{\text{col}} & P_{11}^{\text{col}} & 0 \\ 0 & 0 & P_{33}^{\text{col}} \end{pmatrix}. \quad (1.25)$$

Nous avons $d^{(2)} = P_{12}^{\text{col}}/P^{\text{col}}$ et $d^{(3)} = (P_{11}^{\text{col}} - P_{33}^{\text{col}})/(2P^{\text{col}}) - P_{12}^{\text{col}}/P^{\text{col}}$.

Nous pouvons constater à partir de l'équation 1.24 que l'efficacité d'absorption ne dépend pas de l'orientation de la contrainte uniaxiale par rapport au vecteur de Burgers (absence du terme $\mathbf{s} \cdot \mathbf{b}$), contrairement au SIPA-I. Il est généralement accepté que ce qui importe le plus pour le SIPA-AD est l'orientation de la contrainte par rapport à la ligne de dislocation \mathbf{l} , comme cela est montré dans le modèle simplifié de Woo [38] :

$$\frac{\Delta Z^{\text{AD,dev}}(\boldsymbol{\sigma})}{Z^0} = -\frac{3\sigma P^{\text{col}}}{8\mu k_{\text{B}}T} \left(1 - \frac{P_1^{\text{col}}}{P^{\text{col}}} \right) \left[(\mathbf{s} \cdot \mathbf{l})^2 - \frac{1}{3} \right]. \quad (1.26)$$

Cette relation correspond au développement de Borodin (équation 1.24) si $\mathbf{l} = \mathbf{e}_p$ pour un p donné, à la différence que P_{11}^{col} dans l'équation 1.24 est remplacé par la valeur propre P_1^{col} associée au vecteur propre suivant la direction de saut (en pratique P_{11}^{col} et P_1^{col} sont très proches, comme $P_1^{\text{col}} = P_{11}^{\text{col}} + P_{12}^{\text{col}}$ et $P_{12}^{\text{col}} \ll P_{11}^{\text{col}}$). Pour les lacunes, $P^{\text{col}} < 0$ et $P_1^{\text{col}}/P^{\text{col}} > 1$ [59, 55], donc une contrainte de traction appliquée suivant la ligne de dislocation augmente l'efficacité d'absorption. Pour les interstitiels, $P^{\text{col}} > 0$ et $P_1^{\text{col}}/P^{\text{col}} > 1$, donc le comportement opposé est attendu. Néanmoins nous notons que d'après l'équation (1.24), l'orientation de la contrainte par rapport aux directions cristallographiques joue également un rôle.

1.4 Etat de l'art des expériences de fluage d'irradiation

Dans cette partie, nous passons en revue quelques études expérimentales de la littérature qui portent sur la compréhension des mécanismes à l'origine du fluage d'irradiation, à l'échelle microstructurale. Les études sur le fluage d'irradiation sont nombreuses dans la littérature, notamment dans la période des années 70-80 où l'intérêt suscité par ce phénomène était à son apogé suite à la découverte d'une augmentation du fluage de déformation aux températures typiques de fonctionnement d'un réacteur [5]. Afin d'être concis et de rester dans le périmètre défini par notre problématique, nous nous limiterons à des expériences sur l'évolution des boucles de dislocation sous contrainte, jugées clés. Toutes les études présentées dans cette partie sont résumées dans le tableau 1.2 donné à la fin. Parmi les expériences référencées dans ce tableau, certaines

ne sont pas détaillées dans cette section afin d'éviter la redondance des conclusions tirées. Nous nous intéressons particulièrement aux études menées dans les aciers austénitiques ou matériaux à structure cubique à faces centrées. Les observations sur les cavités qui sont parfois faites dans les références qui suivent sont abordées de manière succincte parce que ce point sort du cadre de notre étude. Notons que l'observation de cavités n'est pas systématique dans les expériences de fluage d'irradiation qui suivent, cela dépend grandement du type d'irradiation et de la dose atteinte.

1.4.1 Premières observations ex-situ de l'effet de la contrainte sur les boucles de dislocation dans des métaux CFC

Etude d'Okamoto et Harkness

L'expérience pionnière est celle d'Okamoto et Harkness [60]. Des capsules pressurisées en acier 316 ont été irradiées aux neutrons ($E > 0,1$ MeV) à 410°C dans le réacteur expérimental EBR-II. La contrainte circonférentielle dans les tubes a été estimée à 207 MPa. L'état de la microstructure est analysé a posteriori dans un microscope électronique à transmission. Les auteurs mesurent et comptabilisent les boucles de Frank, réparties dans les plans $\{111\}$, elles sont de nature interstitielle. Ils distinguent les quatre variants possibles dans leurs mesures comme cela est montré dans leurs micrographies en figure 1.16.

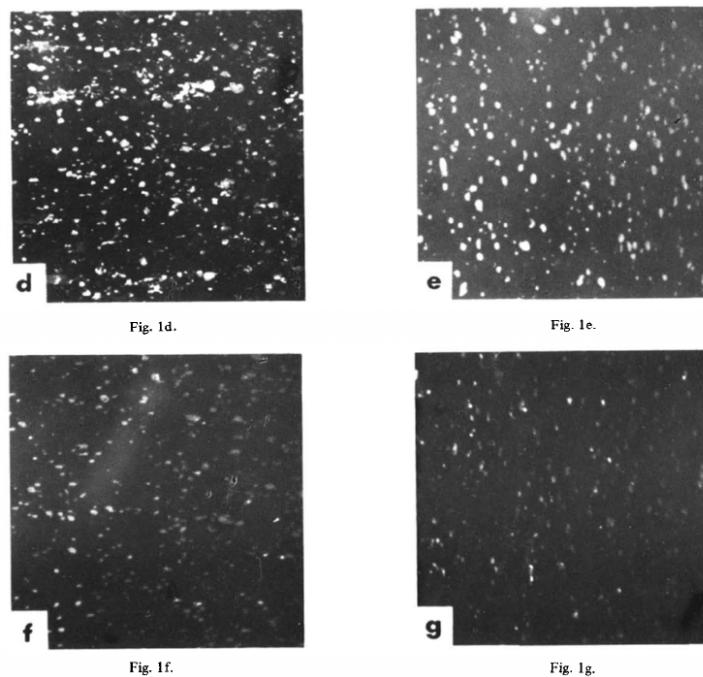


Figure 1.16 – Micrographies prises en champ sombre faisceau faible des boucles de Frank générées sous contrainte et sous irradiation dans une zone donnée. Chaque image correspond à une population : (d) $(\bar{1}\bar{1}1)$, (e) $(\bar{1}11)$, (f) (111) , (g) $(1\bar{1}1)$ [60].

Les résultats de leur analyse sont donnés dans la figure 1.17a et 1.17b. Comme cela se déduit de la distribution des tailles de boucles en figure 1.17a puis attesté par les valeurs du tableau en figure 1.17b, les quatre variants de boucles présentent les mêmes tailles moyennes avec une marge de 5%. Par contre, ils constatent qu'il y a des écarts entre les pourcentages de population entre les quatre variants. Cet écart peut aller jusqu'à un facteur 2.

Les auteurs concluent que ces premières observations sont en accord avec l'étude de Brailsford et Bullough [18], qui conclut à la prédominance du mécanisme SIPN. Nous devons souligner

cependant que l'orientation de la contrainte principale par rapport à la microstructure n'est pas reportée et que les résultats ne sont pas comparés à une expérience hors contrainte, ce qui permettrait de mieux mesurer l'ampleur du phénomène. Néanmoins, selon Okamoto et Harkness, cette expérience est une preuve du mécanisme SIPN.

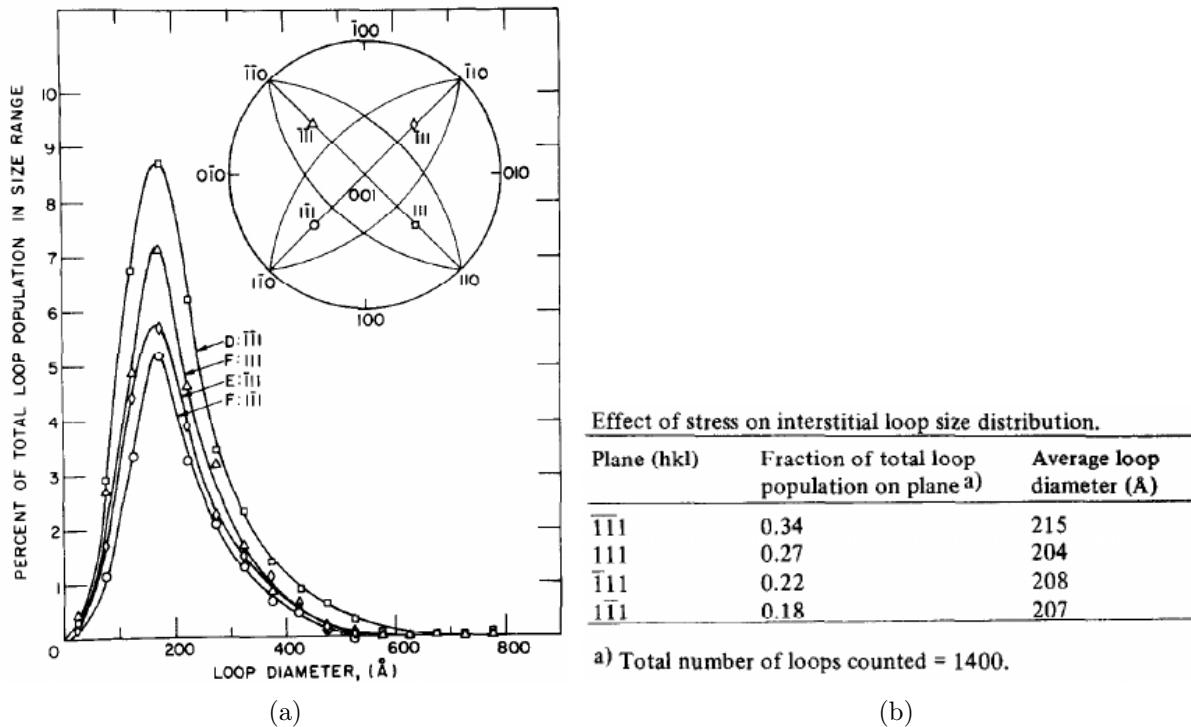


Figure 1.17 – Résultat des mesures des boucles de Frank correspondant à l'expérience de la figure 1.16 : (a) distribution de tailles de boucles pour chaque variant et (b) tableau qui répertorie leur taille moyenne et leur taux de présence [60].

Première étude de Brager *et al.*

En continuant dans l'ordre chronologique des publications, nous pouvons citer le travail de Brager *et al.* [61]. Comme pour Okamoto, les expériences de fluage d'irradiation sont menées dans l'EBR-II sur des échantillons en acier 316, à 450°C. Ils utilisent deux types d'échantillons, des capsules pressurisées où la contrainte appliquée est de forme biaxiale et des barreaux afin d'appliquer une contrainte uniaxiale.

A partir de leurs résultats ils n'établissent pas de relation quantitative entre la contrainte et les densités des quatre variants de boucles de Frank. En effet, ils constatent que les densités de boucles sont hétérogènes dans les échantillons irradiés hors contrainte, elles varient jusqu'à un facteur 3. Ils précisent que les écarts d'un facteur 2 sont assez courant mais ils l'attribuent entre autres à des erreurs expérimentales dans la distinction des boucles par rapport aux segments de dislocations. Ils estiment qu'entre 10 et 25% des boucles ont pu être omises au cours de leur analyse. De plus, dans les expériences sous contrainte, l'hétérogénéité de la microstructure ne peut pas être corrélée à l'orientation de la contrainte par rapport aux différents plans de boucles.

A partir des résultats des expériences de fluage sur les barreaux, ils établissent un lien entre l'orientation de la contrainte et les tailles moyennes des boucles. Dans la figure 1.18, la taille moyenne des boucles est tracée en fonction de la composante de la contrainte appliquée normale aux plans des boucles. Ce terme est calculé de cette façon : $\sigma^a \cos^2 \theta$, où σ^a est la contrainte appliquée et θ est l'angle entre l'axe de traction et la normale au plan de la boucle. D'après la figure 1.18, l'évolution des tailles moyennes par rapport à la composante normale de la contrainte

sur les boucles peut être interpolée par une loi linéaire. Aucun effet similaire n'est constaté dans les échantillons mis sous contrainte biaxiale. Les conclusions tirées de l'étude de Brager [61] sont donc en contradiction avec la précédente [60], la contrainte agit sur les tailles de boucles et non pas sur leur probabilité de germination.

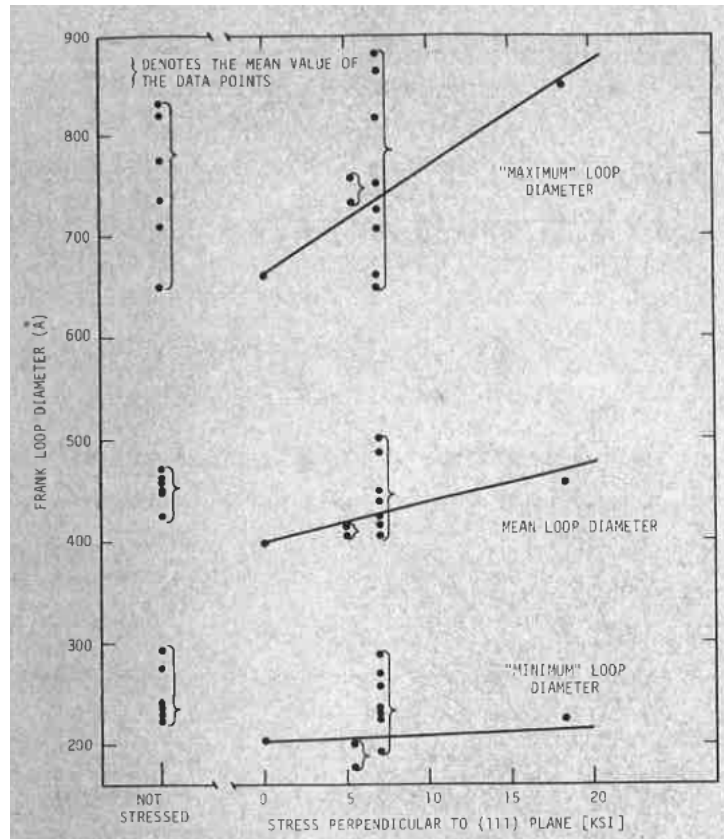


Figure 1.18 – Tailles moyennes des boucles de Frank dans les expériences d'irradiation hors contrainte et sous contrainte [61]. Pour le cas sous contrainte, les tailles de boucles sont tracées en fonction de $\sigma^a \cos^2 \theta$. Les données obtenues sous contrainte réunissent trois expériences : deux où l'orientation de la contrainte est de type $\langle 100 \rangle$ (donc la contrainte appliquée affecte toutes les boucles de la même façon) et une où la contrainte est orientée suivant la direction $[112]$.

Deuxième étude de Brager *et al.*

Trois ans plus tard, Brager *et al.* [27] publient de nouveaux résultats. Les irradiations sont menées uniquement dans des capsules pressurisées. Des échantillons d'acier 316 écroui et recuit ont été irradiés aux neutrons dans l'EBR-II, à 500°C avec une contrainte circonférentielle de 0 à 327 MPa. La figure 1.19 donne un exemple de microstructures obtenues hors contrainte et sous contrainte. Nous pouvons constater de manière qualitative que la contrainte affecte l'évolution des microstructures de boucles.

Le premier constat des auteurs est que la densité totale des boucles est affectée par le niveau de la contrainte hydrostatique, elle augmente avec cette dernière. En plus d'augmenter la densité des boucles, la contrainte vient dissymétriser les densités entre les populations comme cela est montré dans la figure 1.20. Les densités de populations entre les variants $\{111\}$ sont à peu près équivalentes dans l'expérience sans contrainte appliquée. Dans le cas avec une contrainte appliquée, l'écart entre les densités peut aller jusqu'à un facteur 8. Ces résultats vont donc dans le même sens que ceux d'Okamoto [60].

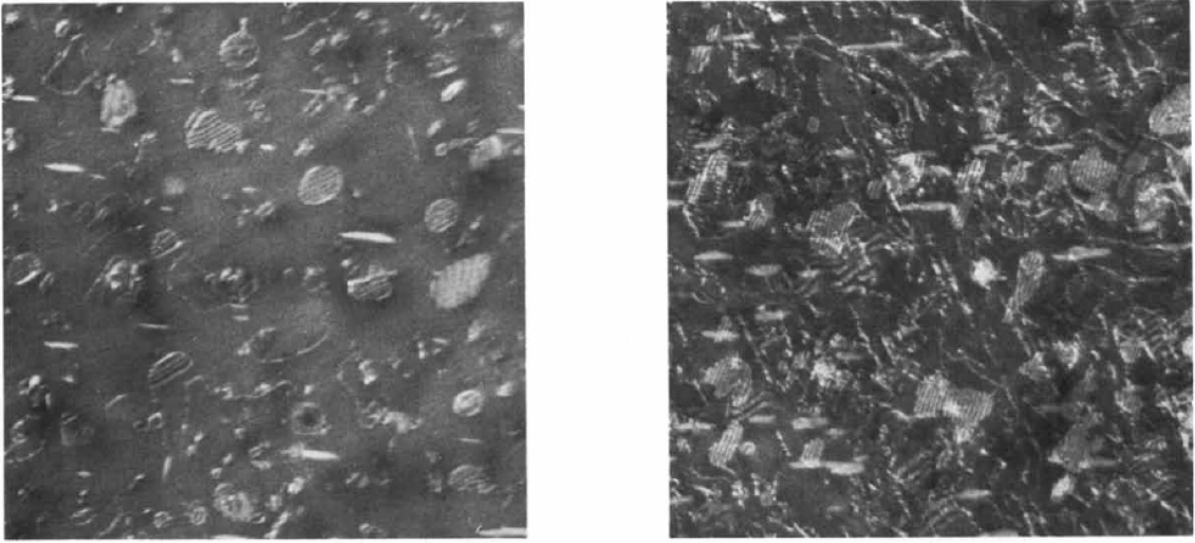


Figure 1.19 – Microstructures de boucles d'un acier 316 recuit suite à une irradiation aux neutrons à 500°C [27]. Les micrographies sont prises en champ sombre faisceau faible, avec un axe de zone proche de $\langle 110 \rangle$ et avec un vecteur de diffraction $g = (111)$. A gauche, irradiation menée hors contrainte à une fluence de $2,0 \times 10^{22}$ n.cm $^{-2}$ et à droite, irradiation sous contrainte (contrainte circonférentielle de 163 MPa) à une fluence de $2,7 \times 10^{22}$ n.cm $^{-2}$.

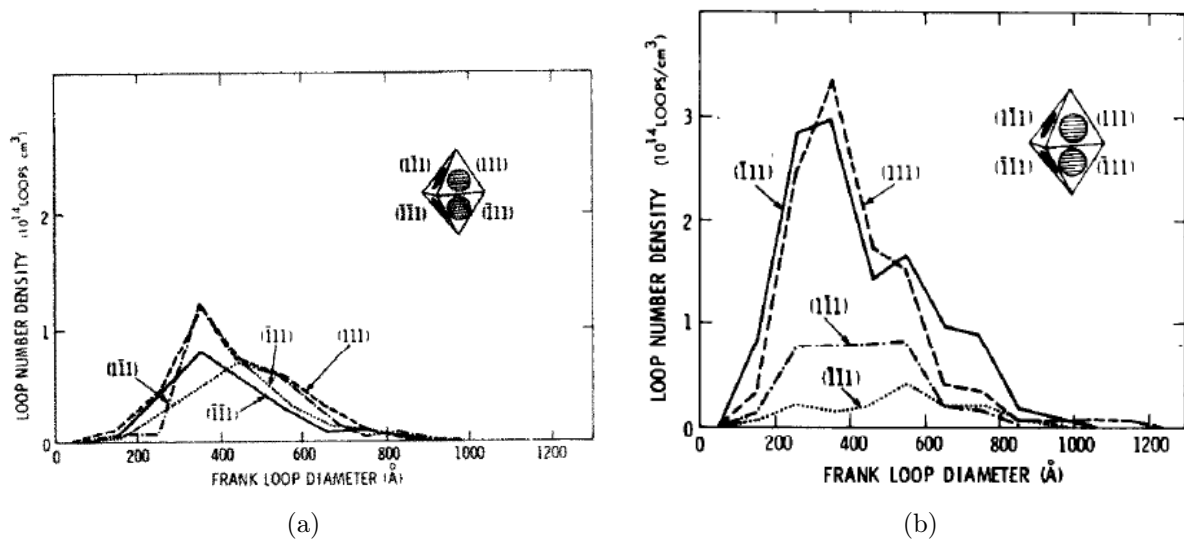


Figure 1.20 – Distributions des boucles de Frank dans de l'acier écroui irradié à 500°C à une fluence de $3,0 \times 10^{22}$ n.cm $^{-2}$: (a) à 0 MPa et (b) à 327 MPa [27].

Dans cette étude, l'orientation de la contrainte principale par rapport aux plans d'habitat des boucles est maîtrisée, la composante de la contrainte appliquée normale aux plans des boucles, σ_N , peut donc être calculée. En traçant la densité des populations de boucles en fonction de la contrainte normale à leur plan, ils obtiennent le graphique de la figure 1.21. La figure permet d'affirmer que les densités de boucles entre les populations sont bien dépendantes de la composante normale de la contrainte pour chaque plan d'habitat. La densité d'un variant de boucle a tendance à augmenter avec σ_N , bien que dans le cas hors contrainte, il y ait une dispersion des densités, certes moins forte que dans les expériences avec contrainte.

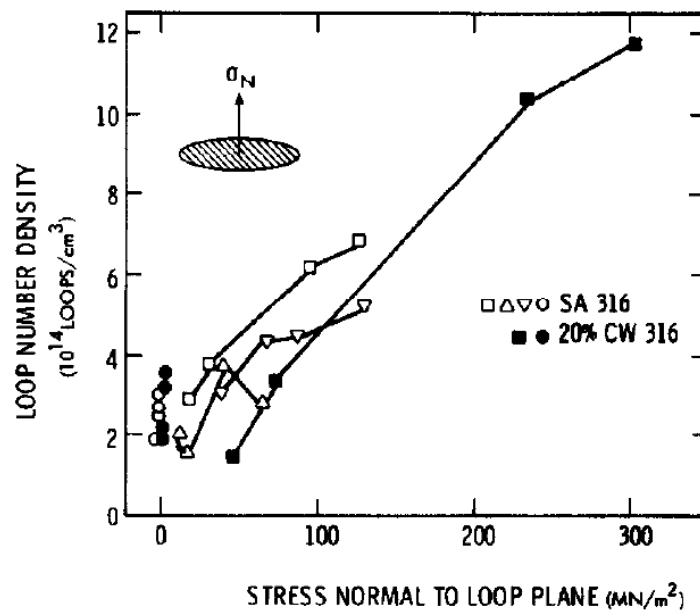


Figure 1.21 – Dépendance de la densité des plans de boucles dans l'acier 316 écroui et recuit par rapport à la contrainte normale aux plans $\{111\}$ [27].

D'après les résultats de la figure 1.20, la contrainte n'agit pas sur les tailles de boucles. Ces derniers résultats contredisent ceux obtenus à plus faibles contraintes. D'après les distributions des tailles de boucles obtenues à 0 MPa et 66 MPa, à la même dose, la taille moyenne augmente significativement, passant de 30,8 nm à 52 nm. Pourtant, comme nous pouvons le constater sur la figure 1.22, avec une contrainte plus élevée, il n'y a pas d'augmentation de la taille moyenne observable par rapport au cas hors contrainte. Leur interprétation est que l'accélération de la vitesse de croissance des boucles, sous l'effet de la contrainte, est cachée par des mécanismes limitants. En effet la distribution à plus forte contrainte est obtenue à plus haute fluence, figure 1.22, passant de 2×10^{22} à $\sim 3 \times 10^{22}$ n.m⁻². Selon eux, les distributions des tailles boucles sont contrôlées par le phénomène de défautement produit par l'intersection des boucles avec les autres éléments de la microstructure.

Donc Brager *et al.* concluent de leur étude que la contrainte induit une germination préférentielle des boucles dans certains plans et que la composante hydrostatique de la contrainte agit sur les vitesses de croissance des boucles. Ces données ont ensuite été réétudiées et reprises par la suite dans l'argumentation des mécanismes en jeu en fluage d'irradiation [33, 62].

Wolfer [28] a démontré que la distribution anisotrope des boucles est compatible avec le mécanisme de croissance différentielle des boucles sous contrainte et que le SIPN est négligeable par rapport au SIPA. Suite à ce résultat, Garner *et al.* [33] ont publié un article dont l'objectif était de réévaluer les données de l'étude de Brager *et al.* [27] et d'expliquer les résultats obtenus avec le mécanisme de croissance différentielle des boucles sous contrainte (SIPA), à partir des travaux de Wolfer. En effet le mécanisme SIPN est remis en question car il présente des faiblesses.

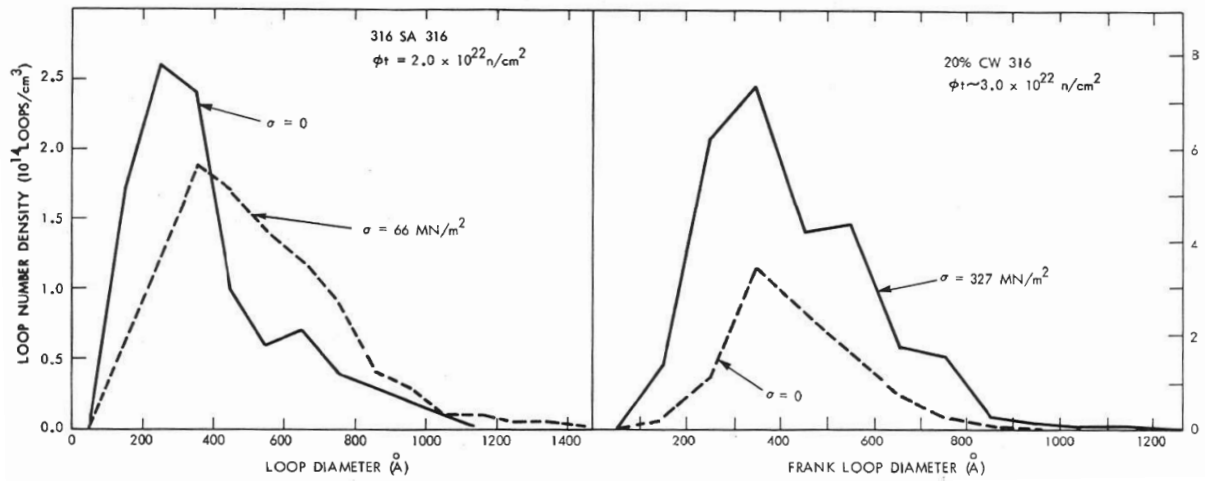


Figure 1.22 – Comparaison de la distribution totale des boucles dans l'acier recuit à gauche et l'acier écroui à droite, irradiés à différents niveaux de contrainte et à différentes fluences. La figure est extraite de la revue de Gelles [62] mais reprend les données de l'étude de Brager [27].

Par exemple il ne peut pas prédire l'augmentation de la taille des boucles en présence d'une contrainte. Par contre, l'augmentation de la taille des boucles sous contrainte est justifiée avec le modèle de Wolfer et Ashkin [20]. D'après leur expression de $Z_i(\sigma)$, l'efficacité d'absorption des interstitiels pour une boucle de dislocation, la composante hors contrainte varie en r^{-2} et celle de la contrainte en r^{-1} , où r est le rayon de la boucle. Ils en déduisent que l'effet relatif de la contrainte sur les biais est plus important aux tailles intermédiaires, ce qui entraîne le décalage de la distribution vers des tailles moyennes plus élevées comme cela a été observé dans la figure 1.22.

Gelles *et al.* [62] reprennent également l'étude de Brager pour appuyer leur interprétation des études expérimentales par le modèle SIPA et comme point de comparaison avec leur propre résultat. Les travaux de Garner et de Gelles insistent tous les deux sur un point dans leur argumentation en faveur du SIPA : la dépendance de la densité de boucles sur la contrainte déviatorique. Pour cela, les données de Brager de la figure 1.21 sont reprises et au lieu de tracer les densités de boucles en fonction de σ_N , elles sont tracées dans la figure 1.23 en fonction de σ_{DN} où $\sigma_{DN} = (\sigma_N - \sigma_H)$. Il s'agit de la composante déviatorique normale du tenseur de contrainte par rapport au plan d'habitat d'une boucle. Dans le modèle SIPA développé par Wolfer [28] sur lequel leur argumentation se repose, le tenseur déviatorique de la contrainte est impliqué dans le calcul de l'efficacité d'absorption $Z_i(\sigma)$. Comme cela peut être constaté dans la figure 1.23, l'utilisation du terme σ_{DN} permet de mieux comparer des résultats obtenus à différents niveaux de contrainte hydrostatique et de mieux discerner l'influence de la contrainte extérieure sur les populations de boucles. Les plans de boucles associés à des valeurs de σ_{DN} négatives subissent une diminution de leur densité.

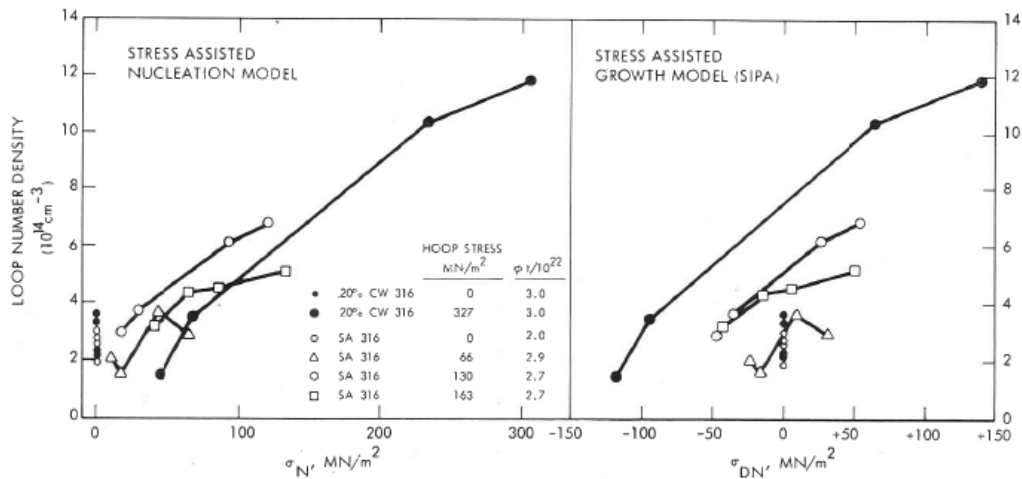


Figure 1.23 – Comparaison des données de Brager [27] d'un point de vue du modèle SIPN et du modèle SIPA [33].

Etude de Gelles *et al.*

En plus de réviser des expériences antérieures, Gelles *et al.* présentent également des résultats de fluage d'irradiation sur deux autres matériaux : Nimonic PE16 et Inconel 706. La même procédure que précédemment est appliquée, des capsules pressurisées sont irradiées à l'EBR-II avec des neutrons ($E > 0,1$ MeV). Ils arrivent à interpréter des résultats des expériences menées dans le Nimonic PE16 (voir la figure 1.24). Ils constatent bien une anisotropie des densités entre les populations de boucles de Frank sous contrainte. En traçant la densité par rapport à σ_{DN} pour chaque population de boucles, ils obtiennent une dépendance à peu près linéaire, ce qui est pour eux une démonstration de l'existence du mécanisme SIPA. Ils constatent que la densité des boucles orientées défavorablement par rapport à la contrainte (σ_{DN} négatif), diminue par rapport aux densités obtenues hors contrainte.

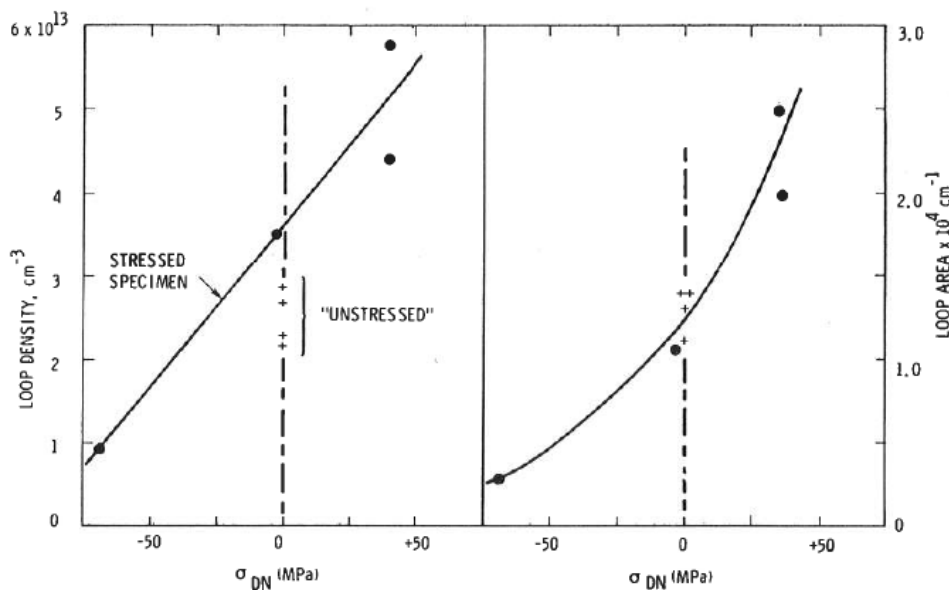


Figure 1.24 – Résultats suite à une irradiation à 550°C du Nimonic PE16 recuit à une fluence de $2,0 \times 10^{22}$ n.cm⁻², avec l'application d'une contrainte circonférentielle de 0 et 167 MPa. A gauche, densités des boucles de Frank par rapport à σ_{DN} , à droite, aires des boucles par rapport à σ_{DN} [62].

1.4.2 Etudes à une échelle macroscopique afin d'évaluer l'importance relative des mécanismes SIPN et SIPA

Entre l'étude expérimentale de Brager [27] et la réinterprétation des résultats par Garner [33] et Gelles [62], Khan et Leteurtre [63] ont mené des expériences dans le but de répondre à la problématique : le fluage est-il essentiellement dû à des mécanismes de croissance ou de germination préférentielle ? Antérieurement à ce travail, Bounaud *et al.* [64] ont observé que l'irradiation de trichites de cuivre en flexion générerait une déformation permanente. Celle-ci se résorbait après un recuit, leur permettant d'affirmer que le fluage était bien dû à la présence de boucles induites sous irradiation. Ils ont attribué ce phénomène à une germination préférentielle des boucles. En parallèle des résultats de Bounaud, le modèle SIPA est de plus en plus défendu pour expliquer le fluage d'irradiation.

Le protocole de Khan et Leteurtre repose sur les mesures de courbures résiduelles des trichites de NaCl suite à des irradiations aux rayons-X dans différentes conditions. Les échantillons sont mis sous contrainte (par essai de flexion) à différents instants de l'irradiation afin d'écarter ou non des hypothèses de mécanismes en jeu. Ils réalisent deux expériences en parallèle. Dans la première, l'irradiation débute sans appliquer de contrainte sur une durée relativement courte puis l'échantillon est mis sous contrainte et l'irradiation continue. La deuxième expérience applique le protocole inverse, une contrainte est appliquée en début d'irradiation puis elle est retirée, le reste de l'expérience d'irradiation. Ils s'assurent dans les deux expériences que la phase de germination soit aboutie avant de changer l'état de contrainte. Dans la première expérience, où la contrainte est appliquée en cours d'irradiation, les trichites ne présentent pas de déformation permanente. L'application de la contrainte au début de l'irradiation dans le deuxième cas de figure est suffisante pour observer une courbure résiduelle des trichites.

Khan et Leteurtre concluent que l'influence de la contrainte sur la germination des boucles est sans équivoque, alors que le mécanisme SIPA est trop faible pour être détecté dans leur expérience.

Ces résultats ont ensuite été soutenus par Dural et Quéré [65]. Des monocristaux de LiF ont été irradiés à 20 K, en appliquant une contrainte au début de l'irradiation puis la contrainte est relâchée pour la seconde phase d'irradiation hors contrainte. Lors de l'expérience, les auteurs suivent la déformation de l'échantillon en fonction de la fluence (figure 1.25). La déformation continue d'augmenter au cours de l'irradiation hors contrainte. De cette observation, ils concluent qu'une germination des boucles dans des plans préférentiels se produit, ce qui permet au matériau de continuer à se déformer sous irradiation et sans contrainte par un mécanisme de croissance induite. Cette observation est une preuve de l'influence d'un mécanisme de type SIPN.

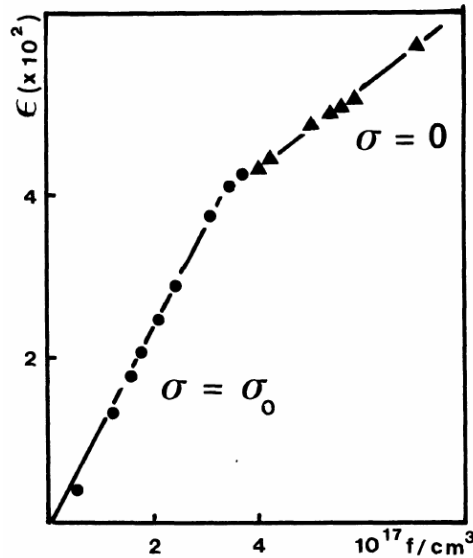


Figure 1.25 – Suivi de la déformation permanente d'un monocristal de LiF irradié à 20 K en fonction de la fluence (particule $\alpha \cdot \text{cm}^{-3}$). Les points en forme de cercle sont au cours de la phase sous contrainte élastique constante et ceux en forme de triangle, au cours de la phase sans contrainte appliquée [65].

1.4.3 Exemples d'expériences in-situ de fluage d'irradiation

Etude de Caillard *et al.*

Les études présentées jusqu'à maintenant analysaient les microstructures de boucles ex-situ ou reposaient sur des observations macroscopiques afin d'évaluer des mécanismes qui s'avèrent complexes à observer. Caillard *et al.* [66] mènent, à notre connaissance, une des premières études in-situ sur l'évolution des boucles de Frank en fluage d'irradiation. Ces auteurs irradient un échantillon en acier 316 (recuit) aux électrons de 1 MeV dans un microscope électronique à très haute tension, sous contrainte constante. La microstructure est présentée dans la figure 1.26. Les boucles observées sont de nature interstitielle.

La proportion des quatre variants ainsi que l'angle entre la normale des plans d'habitat et l'axe de traction sont donnés dans la figure 1.27. La répartition entre les populations de boucles est fortement anisotrope avec un variant qui représente près de la moitié des boucles de la microstructure. Les mesures de tailles de boucles sont similaires entre les populations ce qui suggère que leur vitesse de croissance ne dépend pas de la contrainte. Les auteurs concluent que leur résultat est en accord avec l'hypothèse présentée par Hesketh [16], Brailsford *et al.* [18] et Lewthwaite [30] : la contrainte vient biaiser la germination des boucles en favorisant celles dont le vecteur de Burgers est proche de l'axe de la contrainte.

Cependant, d'après le tableau de la figure 1.27, le variant majoritaire n'est pas celui qui est le mieux orienté par rapport à la contrainte mais seulement le second. La boucle dont la normale est la plus proche de l'axe de traction ne représente que 25% du total des boucles. Caillard *et al.* expliquent qu'il y a un effet de la surface qui s'ajoute à l'effet de la contrainte qui affecte l'évolution des boucles. Les plans notés A et C sont orientés de la même façon par rapport à la contrainte, il en est de même pour les plans B et D. Ils précisent donc que la population A devrait être comparée à celle de C et B avec D.

Ils observent par ailleurs qu'une population de boucles se défaute plus par rapport aux autres, générant par conséquent des boucles présentant en majorité un type de vecteur de Burgers $1/2\langle 110 \rangle$. Cela suggère qu'il y a un défautement préférentiel des boucles sous contrainte. Notons que l'article ne montre pas de comparaison avec une irradiation hors contrainte.

Ils concluent de leurs observations que la contrainte agit sur la formation des boucles dans des plans particuliers.

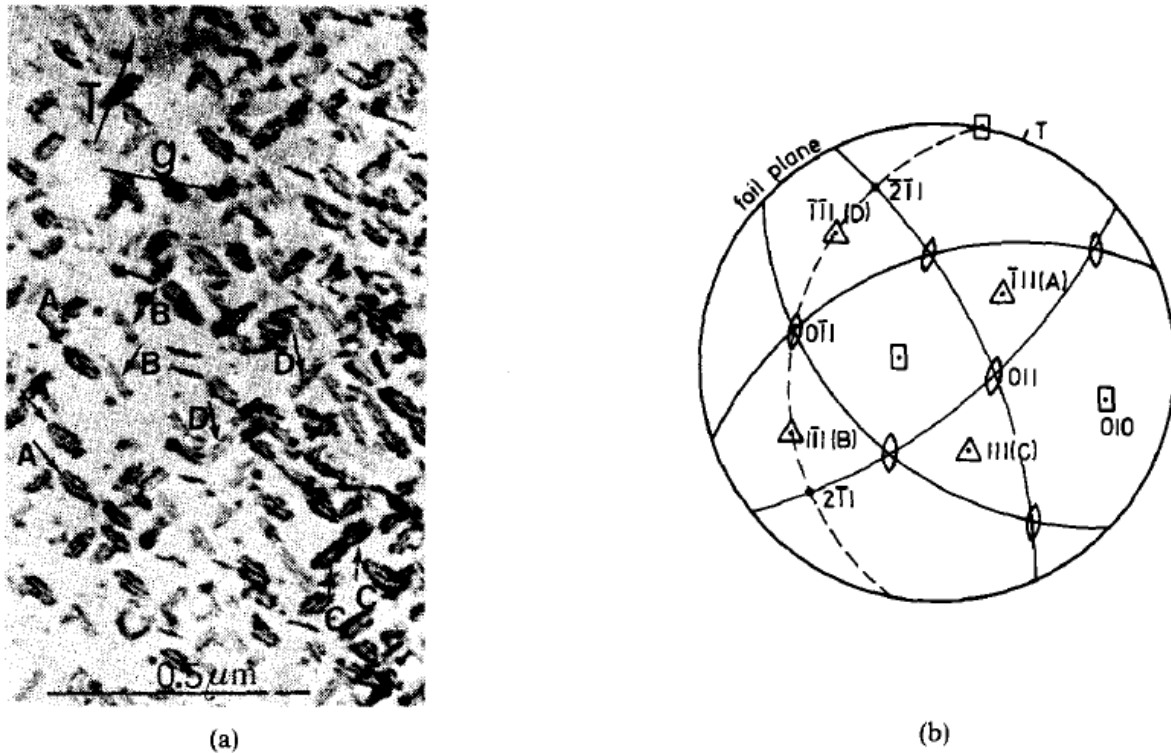


Figure 1.26 – (a) Observation des boucles de Frank au cours d'un essai de fluage d'irradiation in-situ à 350°C , 1 MeV et 0,7 dpa, le vecteur de diffraction est $g = (020)$, (b) projection stéréographique des quatre plans de boucles de Frank identifiés A, B, C et D. L'axe de traction est désigné par T [66].

Loop family	b_F	Loop fraction of each family	Angle (T, b_F)
A	$1/3 [\bar{1}11]$	$46\% \pm 4\%$	51°
B	$1/3 [1\bar{1}1]$	$25\% -$	46°
C	$1/3 [11\bar{1}]$	$13\% -$	60°
D	$1/3 [\bar{1}\bar{1}1]$	$16\% -$	63°

Figure 1.27 – Répartition des boucles de Frank de l'expérience de la figure 1.26 [66]. Les mesures sont faites sur environ 400 boucles.

Etude de Sato *et al.*

En 1986, Sato *et al.* [67] présentent des expériences d'irradiation in-situ aux électrons, sous contrainte, sur des monocristaux en acier recuit Fe-18Cr-14Ni. Les échantillons sont placés dans un porte-objet traction et haute température. Les échantillons sont préparés de façon à ce que la contrainte soit appliquée suivant la direction $[1\bar{1}0]$ et que le faisceau soit parallèle à la direction $[110]$ comme montré dans la figure 1.28. Avec cette orientation de l'axe de traction, les variants de boucles peuvent être séparés en deux catégories : deux pour lesquels la contrainte n'a supposément pas d'effet car l'axe de la contrainte est contenu dans leur plan d'habitat et les deux variants

restants dont le plan d'habitat est incliné par rapport à l'axe de la contrainte. Les échantillons sont irradiés dans un microscope électronique à très haute tension, la tension d'accélération est de 1000 kV et la température d'opération est de 750 K. Pour le premier échantillon la contrainte imposée est de 60 MPa mais de la déformation plastique est générée dans l'échantillon. Afin de l'éviter, ils procèdent à une deuxième manipulation où la contrainte est de 56 MPa, le résultat est donné en figure 1.29. Les microstructures sont systématiquement comparées avec une irradiation à 0 MPa. Pour les deux expériences sous contrainte, ils observent une anisotropie dans la répartition des boucles entre les variants, les boucles dont les plans ne sont pas parallèles à l'axe de la contrainte sont majoritaires. L'analyse des microstructures est simplement qualitative. Sato *et al.* reconnaissent que les résultats ne sont pas suffisants pour déterminer comment la contrainte agit sur les boucles interstitielles. Ils concluent à partir de leurs résultats que la contrainte agit sûrement aux premières étapes d'irradiation, avant la croissance des défauts à des tailles observables.

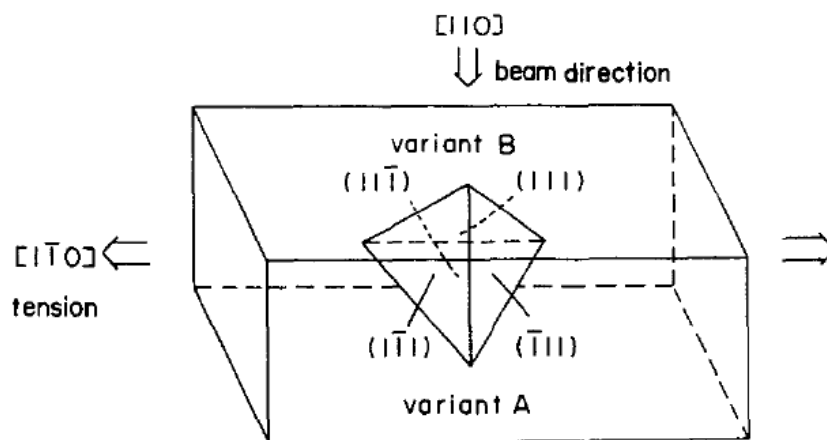


Figure 1.28 – Orientation du monocristal par rapport à l'axe de traction et la direction du faisceau. Le tétraèdre de Thompson schématisé dans la lame mince donne une indication de l'orientation des plans d'habitat des boucles de Frank [67].

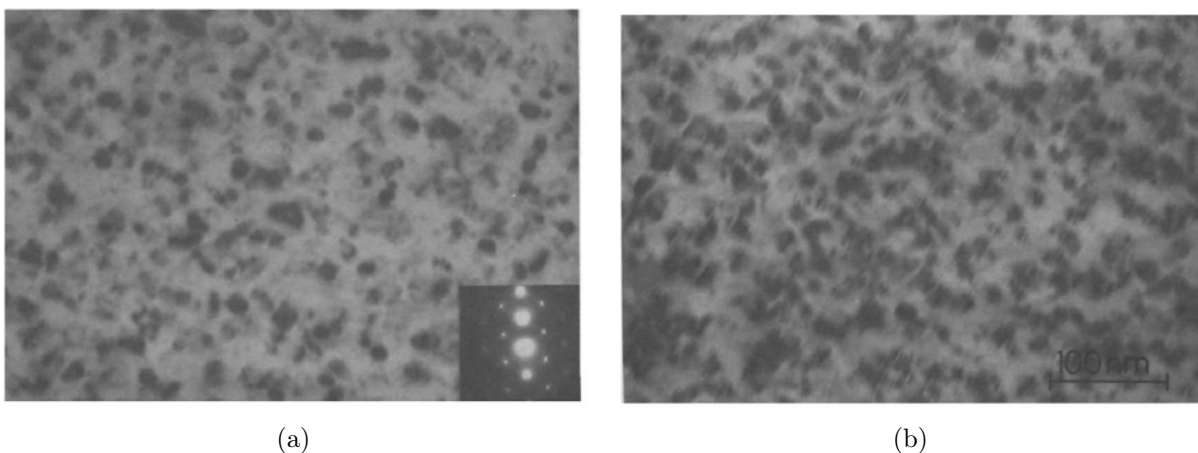


Figure 1.29 – Lames minces irradiées aux électrons 1 MeV : (a) durant 1380 s sans appliquer de contrainte, (b) durant 1320 s à 56 MPa [67].

1.4.4 Etudes in-situ qui observent un effet de la contrainte sur la croissance des boucles de dislocation

Etudes de Saka *et al.*

Entre 1989 et 1991, Saka et co-auteurs [68, 69, 70] observent de façon directe un effet de la contrainte sur la croissance des boucles de dislocation. Il s'agit d'une des rares observations de ce phénomène. L'objectif de leur étude était d'évaluer de manière quantitative la montée anisotrope des dislocations sous contrainte. L'observation d'un tel phénomène serait une preuve directe de la véracité du mécanisme SIPA. Ils procèdent à des irradiations in-situ dans un microscope électronique à haute tension. Deux types d'échantillons sont utilisés : deux lames minces en argent irradiées avec des électrons de 1 MeV à 358 K et 403 K et une lame en cuivre irradiée avec des électrons de 0,8 MeV à 425 K. L'orientation du cristal par rapport à l'axe de traction est équivalente à celle présentée dans l'étude de Sato [67] (voir la figure 1.28), la différence avec Sato est la direction du faisceau qui est proche de $\langle 111 \rangle$.

Leur procédure consiste à mesurer les tailles des boucles à différents instants au cours de 10 minutes d'irradiation en imposant un chargement différent entre chaque essai : 0 à 53,9 MPa et 0 à 34,3 MPa, pour les échantillons en argent et en cuivre respectivement. La figure 1.30 est un exemple de l'évolution des boucles interstitielles dans l'argent. Chaque image correspond à un chargement différent. Ils observent que les boucles s'allongent dans la direction parallèle à l'axe de traction.

Du fait qu'ils utilisent un vecteur de diffraction $\mathbf{g} = (\bar{2}02)$, ils observent trois variants de boucles sur quatre. Plus précisément, ils observent deux populations, désignés γ et δ , pour lesquelles le plan d'habitat est parallèle à l'axe de traction et une population, β , dont le plan d'habitat est incliné par rapport à l'axe de traction. La population α qui est équivalente à celle de β est en condition d'extinction. Leurs mesures de vitesses de croissance en fonction de la contrainte imposée pour les boucles β , δ et γ dans l'argent sont données dans la figure 1.31a. Il y a des divergences dans le comportement des boucles en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte. Les boucles β qui sont orientées favorablement par rapport à la contrainte, en se basant sur la théorie du SIPA et les résultats expérimentaux présentés précédemment dans cette partie, voient leur vitesse de croissance légèrement augmenter avec la contrainte imposée. La vitesse de croissance des boucles parallèles à la contrainte (δ et γ) augmente plus rapidement avec la contrainte. La taille des boucles δ est mesurée suivant deux directions, $[\bar{1}10]$ et $[0\bar{1}1]$. Celle qui est parallèle à l'axe de la contrainte augmente fortement avec le niveau de la contrainte et dans l'autre direction, la vitesse est indépendante de la contrainte appliquée. Saka retrouve un résultat similaire dans le cuivre [69]. Le ratio entre les longueurs des bords des boucles δ dans la direction $[0\bar{1}1]$ et la direction $[\bar{1}10]$ en fonction de la contrainte est donné dans la figure 1.31b. Ce ratio diminue avec la contrainte, preuve d'une croissance anisotrope des boucles.

Saka et Teshima [70] réalisent une expérience équivalente en compression dans l'aluminium. Ce ratio augmente avec la contrainte en compression. Leurs résultats en traction et en compression sont donc en accord. Avec leurs études, Saka *et al.* constatent bien que la présence d'une contrainte entraîne une croissance anisotrope des boucles et qu'elle dépend de l'orientation des plans par rapport à la contrainte. Cependant leurs résultats sont en opposition avec les prédictions du modèle SIPA [44].



Figure 1.30 – Boucles de Frank interstitielles dans des lames en argent irradiées aux électrons de 1 MeV, avec un flux de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, à 130°C , pendant 10 minutes. La direction de traction est indiquée par T.A. Chaque image correspond à une contrainte, de gauche à droite et de haut en bas : 0 MPa, 31,4 MPa, 48,1 MPa et 53,9 MPa [68, 69].

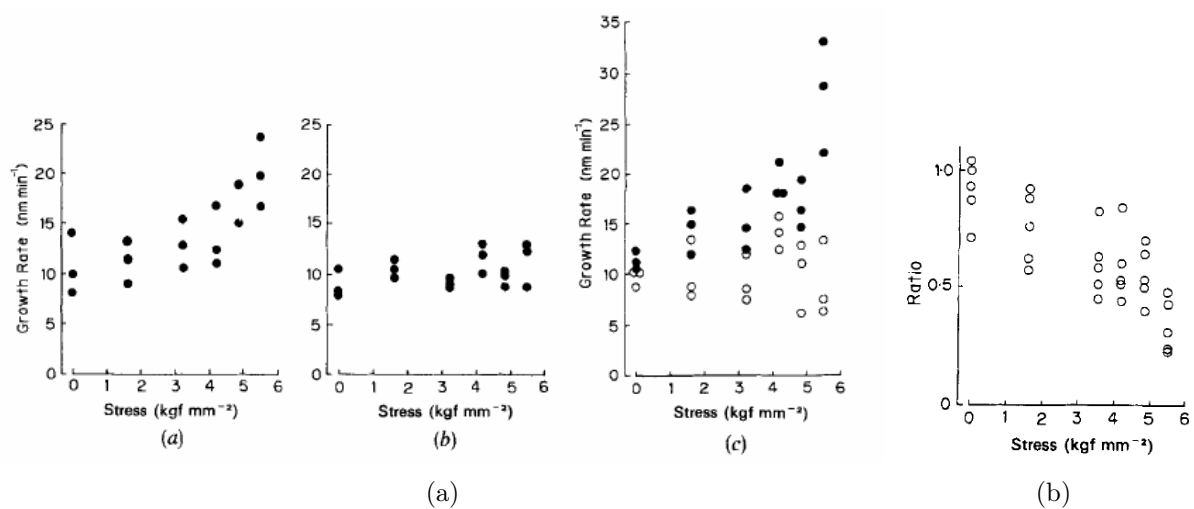


Figure 1.31 – (a) Vitesses de croissance en fonction de la contrainte imposée de l'expérience de la figure 1.30, dans les directions $[\bar{1}10]$ et $[0\bar{1}1]$, indiquées par des points en noir et blanc respectivement : (a.a) boucles γ , (a.b) boucles β et (a.c) boucles δ . (b) Ratio de la longueur des bords $[0\bar{1}1]$ et $[\bar{1}10]$ des boucles δ en fonction de la contrainte extérieure [68].

Etude de Jitsukawa *et al.*

Jitsukawa [26] a fait le même type d'expérience et a obtenu un résultat cohérent avec le SIPA, contrairement à Saka. A l'aide d'un porte-objet traction double tilt, un échantillon de nickel pur est irradié dans un microscope électronique haute tension avec des électrons de 1 MeV, à une température de 723 K. L'échantillon est d'abord irradié hors contrainte durant 400 s puis une contrainte de ~ 18 MPa est appliquée suivant la direction $[\bar{1}\bar{2}2]$. Le schéma de l'orientation des plans des boucles de Frank par rapport à la contrainte et les micrographies des boucles examinées sont donnés dans la figure 1.32a. L'évolution du diamètre de trois boucles est donnée dans la figure 1.32b. La boucle A, dont le vecteur de Burgers est le plus proche de la direction de contrainte, est la boucle qui présente la croissance la plus rapide. Elle est à $0,56 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ contre $0,48 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les boucles C et D.

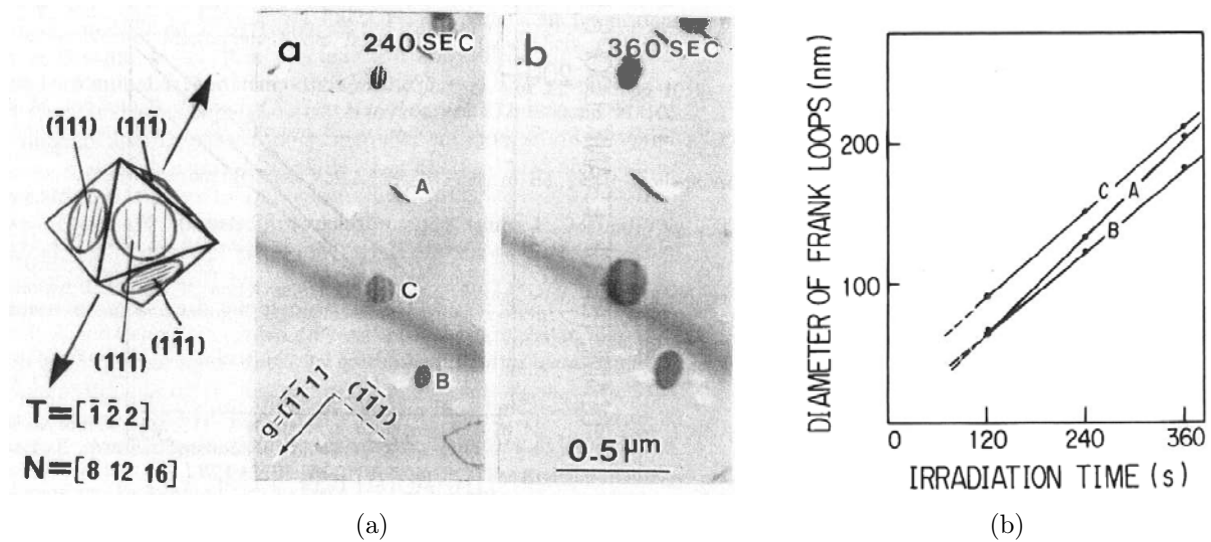


Figure 1.32 – (a) Evolution des boucles sous irradiation dans un échantillon de nickel recuit avec une charge de 20 g à 723 K, (b) croissance des boucles de Frank en (a) [26].

Des données supplémentaires de cette même étude ont été publiées par Garner et Gelles [71] (figure 1.33). Elles montrent que la vitesse de croissance d'une boucle est une fonction linéaire de la projection de la contrainte sur la normale au plan d'habitat. Ce constat contribue à renforcer l'argumentation en faveur du SIPA.

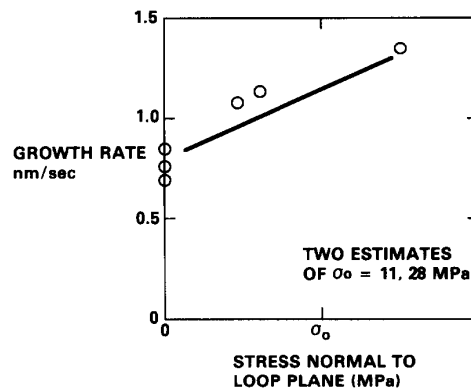


Figure 1.33 – Mesures de la vitesse de croissance des boucles de Frank de nature interstitielle dans du nickel irradié aux électrons en fonction de la contrainte normale aux plans d'habitat des boucles [71].

1.4.5 Une expérience in-situ dans l'objectif d'évaluer séparément les mécanismes SIPN et SIPA

De la même façon que Khan [63] dans son étude sur les trichites de NaCl, Suzuki et Sato [72] procèdent à différents essais d'irradiation dans lesquels la contrainte est appliquée soit en début d'irradiation, soit en cours d'irradiation afin de discriminer un possible effet de la contrainte sur les phases de germination ou de croissance.

Les échantillons de traction in-situ sont extraits de monocristaux Fe-18Cr-14Ni. Ils sont préparés de façon à ce que la contrainte soit appliquée suivant la direction $[1\bar{1}0]$ (équivalent à l'étude de Sato [67] et Saka [68, 69, 70]). Cette orientation est pratique afin de considérer les boucles selon deux groupes : celles orientées défavorablement (plans parallèles à la contrainte) et celles orientées favorablement (plans inclinés par rapport à l'axe de la contrainte). Les lames sont irradiées dans un microscope électronique à très haute tension avec des électrons de 1 MeV à des températures entre 600 et 700 K, avec une contrainte imposée de 0 à 50 MPa.

Dans un premier temps, ils s'intéressent à l'influence de la contrainte au stade de germination. Ils comparent les microstructures obtenues pour une irradiation sans contrainte appliquée et avec une contrainte de 50 MPa. En accord avec la plupart des expériences revues dans cette partie, hors contrainte les quatre variants de boucles sont présents en quasi-même nombre et sous contrainte les boucles avec la plus grande projection de la contrainte sur leur normale sont en majorité. Ils constatent que la densité totale des boucles augmente sous contrainte et que la vitesse de croissance des boucles diminue légèrement. Afin d'évaluer quantitativement l'effet de la contrainte, ils introduisent un terme Z (différent de l'efficacité d'absorption), "degré d'orientation" défini de cette façon : $Z = \frac{Z_A - Z_B}{Z_A + Z_B}$, où Z_A et Z_B sont le nombre de boucles orientées favorablement et défavorablement, respectivement. Dans cette expérience à 50 MPa, $Z = 0,38$. Dans leurs expériences, ce terme Z augmente de façon linéaire avec la contrainte, aux faibles contraintes, comme cela est montré dans la figure 1.34. Ils comparent leurs données avec l'expérience de Brager [27] qui se place à des contraintes élevées. Visiblement l'effet de la contrainte est plus élevé aux faibles contraintes en relatif.

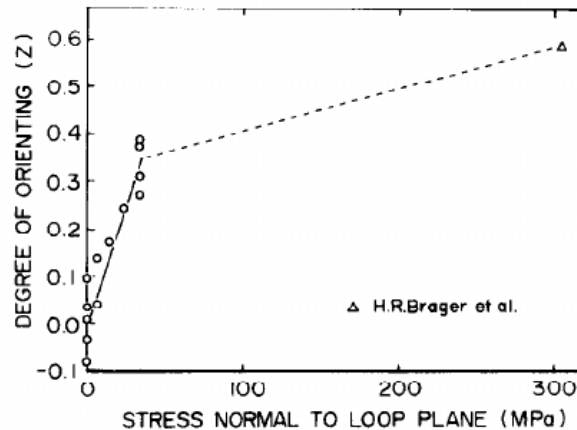


Figure 1.34 – Niveau d'anisotropie des microstructures de boucles en fonction de la contrainte dans des expériences à un flux de $1,0 \times 10^{21} \text{ e}^- \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour 1080 s à 622 K [72]. Le point en forme de triangle est la valeur estimée du résultat de Brager [27].

Afin de prouver sans ambiguïté que le rôle de la contrainte lors de la phase de germination est important, un nouvel échantillon est irradié en imposant une contrainte pendant 120 s avant que les boucles soient visibles puis la contrainte est relâchée. L'irradiation est maintenue durant 1080 s additionnelles. Les auteurs observent que l'effet de la contrainte persiste lors de la suite de l'expérience, en effet $Z = 0,26$. Ils ont donc démontré que la contrainte agit aux premiers stades d'irradiation, avant que les boucles soient visibles.

Afin d'évaluer de façon isolée l'effet de la contrainte sur les vitesses de croissance des boucles, d'autres expériences sous contrainte en deux phases sont menées. Cette fois-ci l'échantillon est irradié dans un premier temps sans appliquer de chargement. Ainsi les densités des deux catégories de boucles sont similaires. La contrainte est imposée une fois que la phase de germination est terminée. Le diamètre des boucles est mesuré durant la phase sous contrainte. Les résultats sont présentés dans la figure 1.35. La vitesse moyenne des boucles A est de $2,86 \times 10^{-2} \text{ nm.s}^{-1}$ et pour les boucles B de $2,84 \times 10^{-2} \text{ nm.s}^{-1}$. A partir de ces vitesses identiques, les auteurs concluent que la contrainte n'affecte vraisemblablement pas la croissance des boucles. Cette étude contredit donc les autres expériences in-situ vues précédemment.

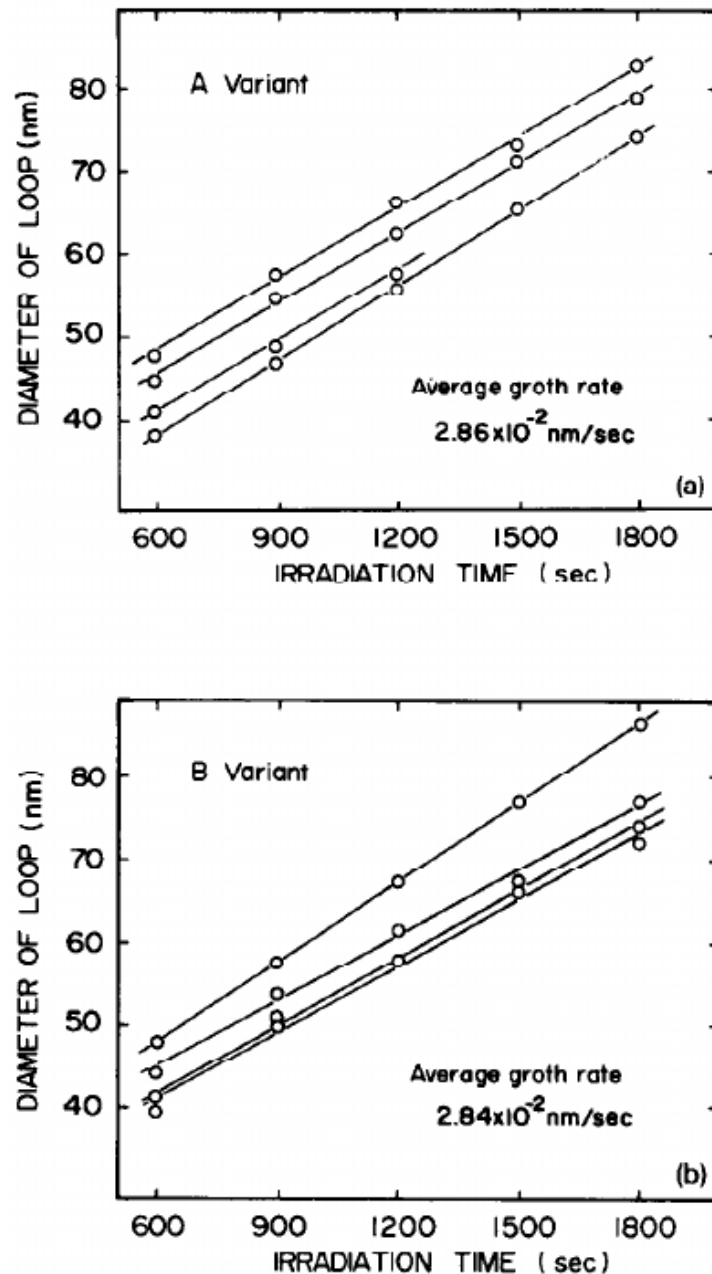


Figure 1.35 – Suivis de la taille des boucles au cours de l'irradiation lors de la phase sous contrainte pour les boucles orientées favorablement (au-dessus) et défavorablement (en-dessous). Le flux d'irradiation est $2,5 \times 10^{21} \text{ e}^- \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et la température 623 K [72].

1.4.6 Expérience de fluage d'irradiation ex-situ dans un acier CC

Cette partie résume l'étude publiée par Xu et Was en 2014 [45]. Le matériau utilisé est l'acier T91 qui présente une structure cubique centrée (CC), la structure est donc différente de l'acier austénitique. Il ne reste pas moins intéressant de se pencher sur cette étude car c'est un des rares papiers récents qui étudie de façon détaillée la réponse des boucles sous contrainte et sous irradiation, tout en maîtrisant l'orientation des plans des boucles par rapport à la direction de traction appliquée.

Les microstructures sont observées ex-situ suite à des essais de traction (100 MPa, 180 MPa et 200 MPa) sous un flux de protons de 3 MeV, à des doses de 1 à 2 dpa à 450°C ou 500°C. Les boucles analysées sont réparties sur les plans $\{100\}$. Dans les conditions d'imagerie choisies, deux populations sur trois sont visibles. Ce sont des boucles dites sessiles, comme les boucles de Frank dans les structures CFC. Elles sont de nature interstitielle.

Pour chaque condition de contrainte, les auteurs mesurent le diamètre des boucles et leur densité normalisée (afin de s'affranchir des différences de densité totale d'un grain à l'autre) en fonction de l'angle entre la normale du plan d'habitat et de l'axe de traction. A partir de ces mesures, ils obtiennent la figure 1.36. Ils arrivent à corréliser le taux de présence des populations de boucles avec leur orientation par rapport à la contrainte. Ils déduisent de leur résultat une loi linéaire empirique : $\frac{N(\theta)}{N} = \alpha - \beta\theta$, où α et β sont des constantes d'interpolation, θ est l'angle entre la normale du plan d'habitat et l'axe de traction, N est le nombre total de boucles, $N(\theta)$ est le nombre de boucles orientées d'un angle θ . D'après la figure 1.36, plus la contrainte est élevée et plus l'anisotropie de la distribution des boucles est accentuée, ce qui se reflète par une pente α plus prononcée.

Pour ce qui est de la taille des boucles, aucune tendance claire n'est observée en fonction de l'orientation de la contrainte. Par contre la taille moyenne des boucles augmente fortement entre 180 MPa et 200 MPa, passant de 24,9 nm à 42,3 nm. Les boucles à 100 MPa sont relativement grandes (24,3 nm) mais cela est une conséquence d'une dose plus élevée par rapport aux autres expériences.

A partir de leurs observations, les auteurs tracent les densités normalisées des populations de boucles en fonction de la composante de la contrainte normale aux plans. Le graphique de la figure 1.37 présente une tendance similaire à l'étude de Brager [27] (figure 1.21). Pour une contrainte donnée, la formation préférentielle des boucles se produit pour les plans dont la normale est la plus proche de l'axe de traction. Bien qu'aucune anisotropie des tailles des boucles ne soit observée dans leurs expériences, les auteurs justifient les écarts de densité par le mécanisme de croissance différentielle des boucles qui serait caché dans les microstructures finales par les interactions entre les grandes boucles avec le réseau de dislocations, comme précédemment argumenté par Brager [27].

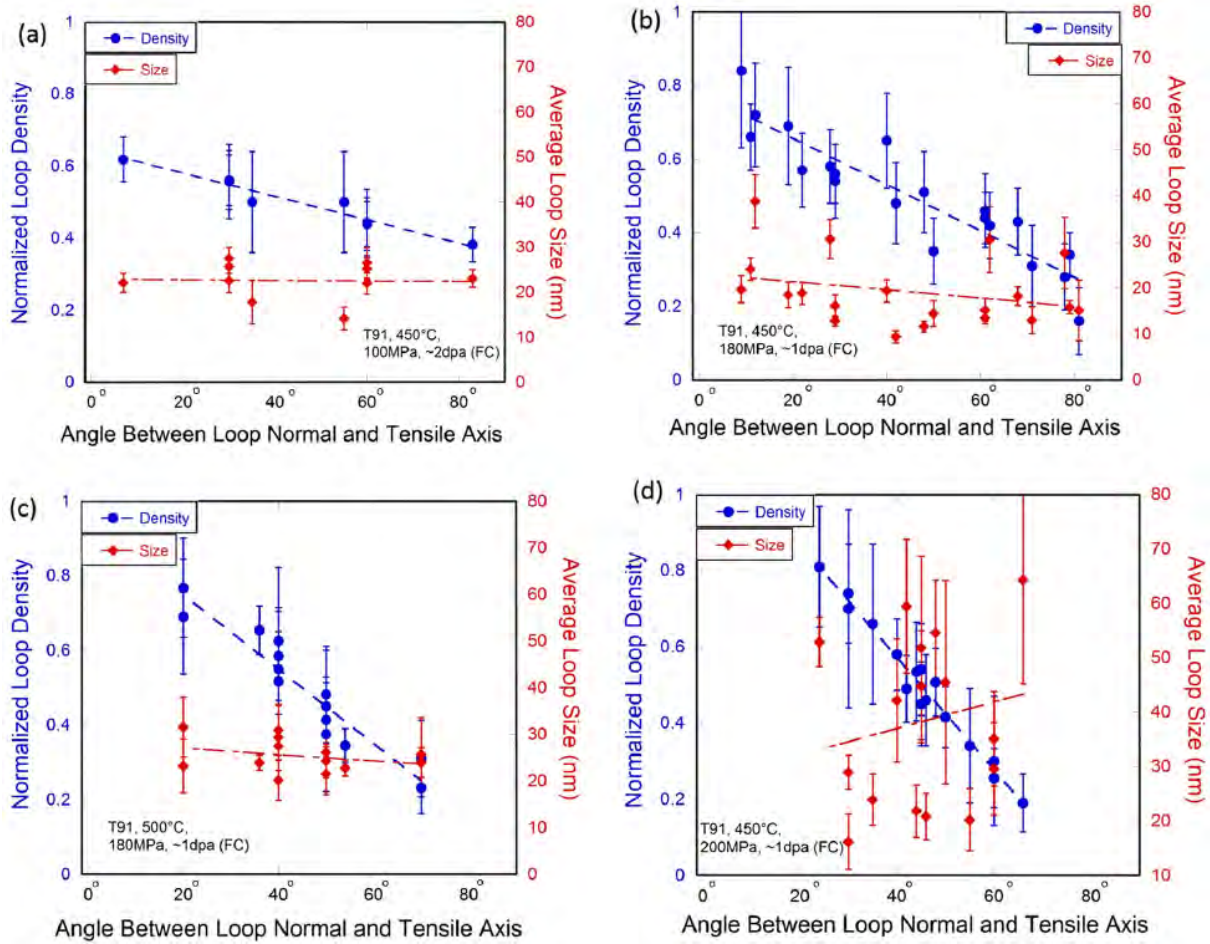


Figure 1.36 – Densité normalisée et taille moyenne des boucles {100} en fonction de l'angle entre la normale de leur plan d'habitat et l'axe de la contrainte suite à un essai de fluage d'irradiation dans de l'acier T91 : (a) à 450°C et 100 MPa, (b) à 450°C et 180 MPa, (c) 500°C et 180 MPa, (d) 450°C et 200 MPa [45].

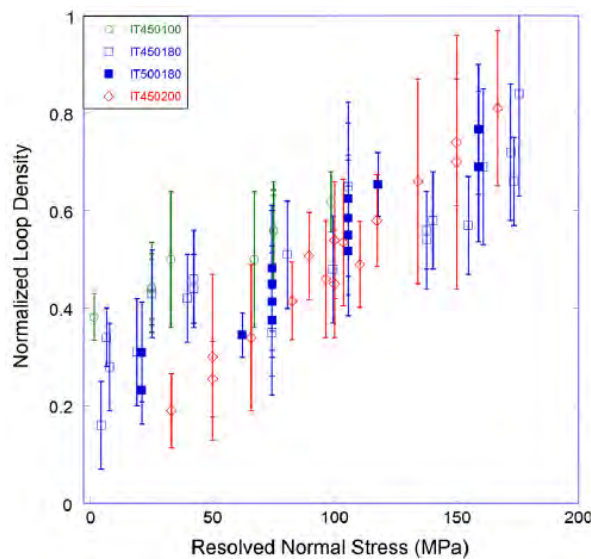


Figure 1.37 – Densité normalisée des boucles de la figure 1.36 en fonction de la composante de la contrainte qui est la normale aux plans des boucles [45].

1.4.7 Récapitulatif

Dans cette section, une partie des expériences de fluage d'irradiation sur le comportement des boucles a été présentée de manière à peu près chronologique afin d'avoir un aperçu de l'évolution des démarches et des interprétations. D'autres études, dont nous avons connaissance, sont énumérées dans le tableau 1.2, ci-dessous. Bien que les données expérimentales s'accumulent depuis la première expérience d'Okamoto [60], il reste encore difficile de conclure sur les mécanismes en jeu et leur importance, au vu des divergences et contradictions entre les études.

Nous avons vu que dans la majorité des cas, les auteurs observent une anisotropie des populations de boucles qui dépend de leur orientation par rapport à une contrainte uniaxiale : la formation d'une boucle dans un certain plan est favorisée si sa normale est alignée avec l'axe de traction. Plus la contrainte est élevée, plus l'effet est fort.

Le premier réflexe a été d'associer ce constat au SIPN [60, 61, 64]. Puis le modèle a été réfuté, notamment parce qu'il repose sur la théorie classique de la germination qui ne s'avère pas valide dans le cas de la formation des boucles de dislocation interstitielles, du fait de la grande stabilité des petits amas d'interstitiels [28].

Les écarts de densités entre les variants de boucles seraient une conséquence indirecte de l'effet SIPA agissant aux petites tailles de boucles [33, 62]. De plus, il est avancé que l'effet sur la taille des boucles est caché par les interactions entre les boucles et le réseau de dislocation [33]. Avec cette argumentation, de plus en plus d'études adoptent le mécanisme SIPA pour expliquer l'anisotropie des populations de boucles sans avoir constaté une preuve directe de l'effet de la contrainte sur les tailles de boucles [62, 71, 11, 45, 73].

En parallèle, d'autres auteurs continuent de penser qu'il s'agit de la formation préférentielle des boucles dans des plans favorables sous l'effet de la contrainte ou bien d'une réorientation de petit amas [74, 75, 76]. Par exemple, Atkins et McElroy [74], qui sont ceux qui ont comparé le plus de microstructures avec et sans contrainte appliquée en connaissant l'orientation des boucles par rapport à la contrainte, pensent que leurs résultats soutiennent le modèle de réorientation des tri-interstitiels sous l'effet de la contrainte, tel que proposé par Wolfer [32].

Ce qui rend finalement difficile de conclure sur l'interprétation des différents résultats est que la plupart des auteurs se reposent sur des observations ex-situ. Il n'est donc plus possible d'accéder à l'historique de l'évolution des boucles. La difficulté provient également du fait que l'orientation de la contrainte par rapport aux boucles n'est pas systématiquement maîtrisée ou bien qu'il n'y a pas d'expérience de référence hors contrainte [60, 66, 11, 12].

Parmi les rares études in-situ, Suzuki *et al.* ont démontré que la contrainte n'agit pas sur la croissance des boucles et que l'application d'une contrainte affecte l'alignement des boucles si elle est appliquée aux premiers stades d'irradiation. Cependant ce résultat peut être contredit par deux autres études in-situ dans lesquelles les auteurs observent bien que la contrainte génère une croissance différentielle [68, 26]. Il faut noter qu'elles se contredisent entre elles, l'une allant à l'encontre du SIPA et l'autre allant dans le sens du SIPA mais présente peu de statistique.

En conclusion, le rôle du SIPN et du SIPA dans l'évolution des boucles reste une question ouverte et des expériences in-situ complémentaires doivent être menées. Il a été démontré théoriquement que le SIPN ne peut pas jouer dans le fluage d'irradiation mais il y a un manque de preuve directe et claire de l'action du SIPA. Une approche de simulations permettrait de déterminer le rôle du SIPA aux premiers stades et donc sur les densités de boucles sous contrainte, lorsque les boucles ne sont pas encore visible en MET.

Tableau 1.2 – Liste non-exhaustive des expériences dans la littérature dans lesquelles le comportement des boucles de dislocation sous irradiation et sous contrainte a été étudié.

Premier auteur	mode d'observation	comportement anisotrope microstructural observé	matériau
Okamoto [60]	ex-situ	densité de boucles	316
Brager [61]	ex-situ	taille de boucles	316
Bounaud [64]	macroscopique	densité de boucles	Cu
Brager [27]	ex-situ	densité de boucles	316
Khan [63]	macroscopique	densité de boucles	NaCl
Caillard [66]	in-situ	densité de boucles	Fe18Cr14Ni/316
Gelles [62]	ex-situ	densité de boucles	Nimonic PE16
Sato [67]	in-situ	densité de boucles	Fe18Cr14Ni
Atkins [74]	ex-situ	densité de boucles	alliage Ni-Si
Saka [68, 69, 70]	in-situ	taille de boucles	Ag, Cu
Suzuki [72]	in-situ	densité de boucles	Fe18Cr14Ni
Jitsukawa [26]	in-situ	taille de boucles	Ni
Tanigawa [75]	ex-situ	densité de boucles	Fe15Cr20Ni
Gelles [77]	ex-situ	densité de boucles	acier ferritique ODS
Garnier [11]	ex-situ	pas de tendance claire	304L et 316
Chen [78]	ex-situ	pas de tendance claire	TiAl
Kondo [76]	ex-situ	densité de boucles	SiC
Xu [45]	ex-situ	densité de boucles	T91
Gharbi [73]	ex-situ	densité de boucles	zircaloy-4 et M5
Renault-Laborne [12]	ex-situ	pas de tendance claire	316 et 304L

1.5 Démarche de l'étude

À ce jour, il existe peu d'expériences in-situ et les résultats sont contradictoires. Du fait de ce manque de données, il est difficile de conclure sur les mécanismes en jeu. L'objectif de cette thèse est de déterminer le mécanisme dominant lors de l'évolution des boucles sous contrainte et sous irradiation. Pour cela, nous adoptons une démarche couplant expériences et simulations numériques.

Pour nos expériences d'irradiation in-situ, nous utilisons un microscope électronique en transmission (MET) nous permettant à la fois d'observer en temps réel l'évolution des défauts cristallins, de générer des défauts ponctuels de type paire de Frenkel et de suivre la croissance de boucles de dislocation en fonction de la température et de la contrainte. La mise en place de ce protocole nécessite un matériau modèle qui présente une énergie seuil de déplacement, E_d , suffisamment faible afin d'introduire des défauts ponctuels à une tension inférieure ou égale à 200 kV. Le choix d'un tel matériau nous évite de passer par un MET très haute tension couramment utilisé dans ce but mais difficile à opérer aujourd'hui. C'est une des raisons pour laquelle nous avons choisi l'aluminium pur comme matériau modèle pour notre étude. Le faisceau d'électrons en MET ne génère pas de cascade de déplacements mais uniquement des paires de Frenkel. Ce choix a pour but de simplifier l'interprétation des résultats expérimentaux en s'affranchissant des complications liées à la présence de cascades lors d'irradiations aux ions.

En plus de pouvoir facilement irradier de l'aluminium pur dans un MET, la mobilité des lacunes à température ambiante conduit à des boucles de taille suffisante pour être observées facilement (de l'ordre de la dizaine de nanomètres) sans avoir besoin de chauffer. Enfin sa structure CFC fait de lui un matériau modèle pour les aciers austénitiques.

Dans la première partie de l'étude expérimentale, nous irradiions des lames d'aluminium sans appliquer de contrainte. Nous commençons par caractériser la microstructure de boucles obtenue suite à une irradiation aux électrons et nous nous assurons que la microstructure de boucles est isotrope afin qu'elle puisse servir de microstructure de référence. Des suivis de la croissance de ces boucles sont également réalisés.

La deuxième partie de cette étude consiste à irradier sous contrainte, à l'aide d'un porte-objet traction. Les premières observations montrent comment la contrainte agit sur les boucles en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de traction. Comme ce qui a pu être fait dans la littérature, nous réalisons des expériences dans lesquelles la contrainte est appliquée à différents instants de l'irradiation. Nous comparons les tailles et les proportions des boucles obtenues dans différentes conditions. Nous pouvons ainsi déceler quel mécanisme domine d'un point de vue expérimental.

En parallèle des expériences in-situ, nous menons une étude numérique dans le but de vérifier la validité des mécanismes proposés dans la littérature. Comme il a été avancé que le mécanisme SIPA peut être à l'origine à la fois des différences de taille et de proportion entre les variants de boucles sous contrainte, nous avons décidé de nous concentrer sur ce mécanisme dans un premier temps.

Nous commençons par évaluer l'importance relative du SIPA-AD et du SIPA-I. Ces deux sous-mécanismes ont historiquement été traités séparément dans la littérature alors que les deux sont dus à l'élastodiffusion. Nous utilisons la méthode Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC) et le modèle de diffusion continu (CDM) qui sont des outils adaptés à la simulation de la diffusion des défauts ponctuels sous contrainte. Afin d'assurer le caractère prédictif de ces simulations cinétiques, les paramètres utilisés pour décrire les défauts ponctuels, déterminés au préalable, sont déduits de calculs ab-initio.

Nous calculons l'efficacité d'absorption Z d'un dipôle de dislocations sous contrainte en considérant séparément le SIPA-AD et le SIPA-I. Nous comparons nos résultats à ceux prédits par des modèles analytiques.

Comme pour le dipôle de dislocations précédemment, nous déterminons ensuite l'efficacité d'absorption d'une boucle isolée sous contrainte en considérant le mécanisme SIPA. Le biais d'une boucle en fonction de son orientation par rapport à la contrainte est déduit de ces calculs.

Après l'étude du cas simple d'une boucle isolée, nous procédons à la simulation de l'évolution d'une microstructure de boucles dans nos conditions expérimentales (irradiation aux électrons en lame mince) par OKMC. L'avantage d'utiliser cette méthode est qu'elle permet de réaliser des simulations aux mêmes échelles d'espace et de temps que nos expériences in-situ. De plus, ces simulations considèrent uniquement les mécanismes reposant sur la diffusion anisotrope des défauts ponctuels. Il est donc possible de conclure si le mécanisme SIPA est à l'origine de l'évolution anisotrope des boucles sous contrainte en comparant directement les résultats expérimentaux et ces résultats numériques.

Enfin, nous évaluons l'impact de la contrainte aux premiers stades d'évolution des boucles en passant par des simulations de dynamique moléculaire avec la méthode d'accumulation de paires de Frenkel. Cette méthode permet d'étudier d'autres mécanismes que le SIPA en s'éloignant des conditions expérimentales.

La combinaison de nos résultats expérimentaux et de nos simulations numériques nous permet de conclure sur l'effet de la contrainte sur l'évolution des boucles de dislocation sous irradiation.

Chapitre 2

Etude in-situ de la microstructure sous irradiation aux électrons sans contrainte appliquée

L'objectif de cette partie du travail de thèse est d'étudier l'évolution de la microstructure sous irradiation aux électrons sans appliquer de contrainte extérieure. Ce chapitre présente tout d'abord la matière première utilisée dans l'étude expérimentale puis la méthode d'élaboration des lames minces pour les observations en microscope électronique en transmission. Les protocoles d'irradiation sont également détaillés. Les boucles et leur croissance sont caractérisées. Les effets de certains paramètres qui peuvent affecter une irradiation en lame mince sont étudiés, tels que l'épaisseur de l'échantillon, la température et le flux de particules. Enfin, nous avons constaté que les microstructures de boucles peuvent être anisotropes sans appliquer de contrainte extérieure, l'origine de ce phénomène est étudiée à la fin de ce chapitre.

2.1 Matériau

2.1.1 Présentation de la matière première

Dans le cadre de cette thèse, nous utilisons des feuilles d'aluminium de haute pureté (99,999%) à l'état laminé selon le fournisseur GoodFellow. Les dimensions des feuilles sont 50×50 mm pour 0,5 mm d'épaisseur. La composition chimique de cette matière première est présentée dans le tableau 2.1.

Tableau 2.1 – Composition des feuilles d'aluminium d'après le certificat d'analyse du lot par le fabricant. Les valeurs sont données en parties par million (ppm).

Al	B	Ca	Cr	Cu	Sn	Fe	Ga
Matrice	<0.2	<0.2	<0.1	0.59	<0.3	0.76	<0.1
Mg	Mn	Ni	P	Si	Ti	V	Zn
0.33	<0.1	<0.2	<1	1.36	<0.1	<0.2	<1

Des analyses DRX et EBSD ont été réalisées sur ce matériau, au SRMA. La morphologie des grains peut être appréciée sur l'image de contraste de bande sur la figure 2.1a. La microstructure présente de grands grains recristallisés de l'ordre de plusieurs centaines de micromètres mais également de plus petits grains. Parmi ces plus petits grains, certains apparaissent sombres, ce qui indique que leur indexation est de moins bonne qualité. Elle est due à une trop forte densité

de dislocations et une désorientation au sein des grains. La figure 2.1b est la figure de pôle inverse. Elle montre la cartographie des grains avec un code couleur qui indique l'orientation de l'axe Y dans le repère cristallographique des grains. Un code couleur est donné dans le triangle standard. Nous constatons que la majorité des grains sont en rouge, ce qui montre que la majorité des directions Y sont colinéaires à la direction $\langle 100 \rangle$. Cette figure donne une vision partielle de la texture.

Les figures de pôles de la figure 2.2 sont associées à la microstructure des figures 2.1a et 2.1b.

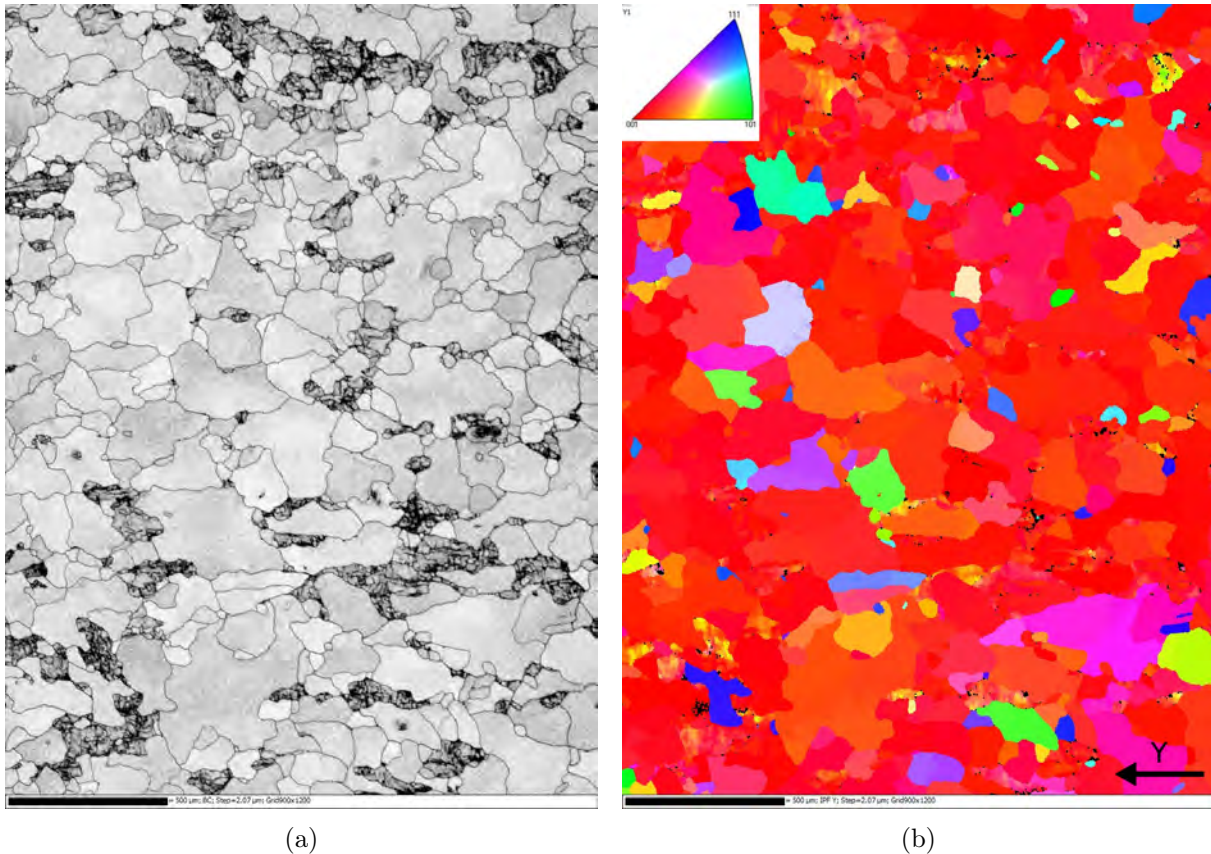


Figure 2.1 – Analyse EBSD d'une feuille d'aluminium : (a) micrographie en contraste de bande (BC), aussi appelé indice de qualité et (b) figure de pôle inverse, IPF//Y. L'axe Y est suivant l'horizontale et correspond à la direction de laminage. Les couleurs correspondent aux couleurs indiquées dans le triangle stéréographique standard.

La répartition des pôles pour cette plaquette d'aluminium pur indique que le polycristal est fortement texturé. Par exemple, nous constatons avec la première figure de pôle (à gauche) qu'en moyenne les trois axes (laminage, transverse, normale à la feuille) sont orientés suivant une direction cristallographique de type $\langle 100 \rangle$, au sein des grains. La feuille présente donc une forte texture cristallographique de type cube. Ce point est très important pour notre étude car en prélevant de façon adéquate l'éprouvette par rapport à l'échantillon, il sera possible de contrôler avec une bonne reproductibilité la direction de traction par rapport à l'orientation des cristaux.

2.1.2 Préparation des échantillons et leur géométrie

Il existe différentes méthodes d'amincissement pour obtenir des échantillons transparents aux électrons pour les observations MET [79]. La procédure de préparation des échantillons pour la caractérisation de la microstructure hors contrainte est présentée dans la figure 2.3 :

- (a) Les feuilles sont dans un premier temps découpées en petits morceaux avec une scie à fil.
- (b) Ces morceaux sont ensuite polis sur les deux faces avec une polisseuse à disque jusqu'à

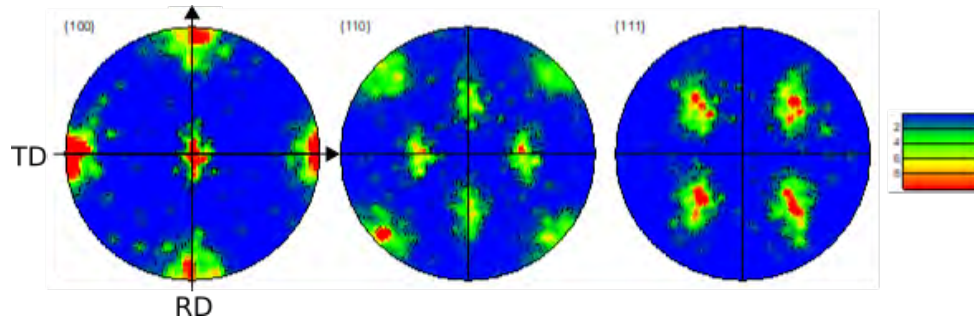


Figure 2.2 – Figures de pôles obtenues par EBSD, pour les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, de gauche à droite. La valeur 1 correspond au cas isotrope (en bleu). L'axe RD correspond à la direction de laminage et l'axe TD à la direction transverse. La normale des figures correspond à la normale de nos feuilles.

atteindre une épaisseur entre 130 et 150 μm . Des papiers abrasifs en carbure de silicium de granularité allant de 320 à 4000 sont utilisés successivement lors du polissage des deux faces. Nous terminons avec la feuille à granulométrie la plus fine pour retirer les possibles effets d'écaillage en surface.

(c) Des disques de 3 mm de diamètre sont prélevés par poinçonnage.

(d) Ces lames subissent une dernière étape d'amincissement par électro-polissage afin d'obtenir une zone mince adaptée aux observations MET. Les échantillons sont percés en leur centre par dissolution électrochimique anodique par l'arrivée d'un jet sur chaque face. Il en résulte une cuvette aux bords minces, transparents aux électrons. L'électrolyte utilisé est un mélange de 95% d'éthanol et 5% d'acide perchlorique. Deux protocoles ont été testés pour cette étape. Le premier protocole a été réalisé au sein du SRMA/LA2M. La machine utilisée est un TenuPol-3 de Struers avec la température de l'électrolyte réglée à -30°C et la tension à 30 V. Le second protocole a été mis en place à la SRMP. Le modèle de la machine est un TenuPol-5 de Struers avec une température imposée de -39°C et la tension à 23 V.

2.2 Protocole d'irradiation in-situ aux électrons

Sur la période consacrée à ce travail, les expériences d'irradiation ont été menées à l'aide de trois MET conventionnels, équipés d'un filament LaB6 : le MET JEOL 2100 (SRMA/LA2M), le MET FEI Tecnai 20 G2 (SC2M/SRMP) et le MET JEOL 2010 (CEMES).

Le taux de dommage était régulièrement contrôlé lors des expériences d'irradiation menées dans le MET FEI Tecnai 20 G2 et le MET JEOL 2010. Il existe une relation simple pour estimer le taux de dommage G ($\text{dpa}\cdot\text{s}^{-1}$) lors d'une irradiation aux électrons [80] :

$$G = N\sigma_{\text{eff}}\phi_{e^-}. \quad (2.1)$$

ϕ_{e^-} est le flux d'électrons en $e^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, σ_{eff} est la section efficace de déplacement atomique des électrons en cm^2 pour un matériau et une énergie donnée. Cette valeur est disponible pour différents matériaux et énergies d'électrons dans le rapport technique de Oen [81, 82], elle dépend de E_d , l'énergie seuil de déplacement de l'atome. Le facteur N correspond au nombre moyen de déplacements secondaires produits pour chaque premier atome frappé. Il est donné par la relation $N = 1 + \ln(E_t/2E_d)$ [80] avec E_t l'énergie transmise par l'électron à l'atome. Cette relation s'applique seulement si $E_t > 2E_d$, sinon $N = 1$. Dans le cas de l'aluminium, les travaux dans la littérature s'accordent sur une valeur moyenne de l'énergie seuil de déplacement de 16-19 eV [83, 84, 85, 86, 87, 88, 6]. Généralement cette énergie peut varier en fonction de la direction d'irradiation [6], c'est également le cas pour l'aluminium mais dans une moindre mesure que pour le cuivre par exemple [87]. Avec une telle énergie seuil de déplacement, il suffit que la

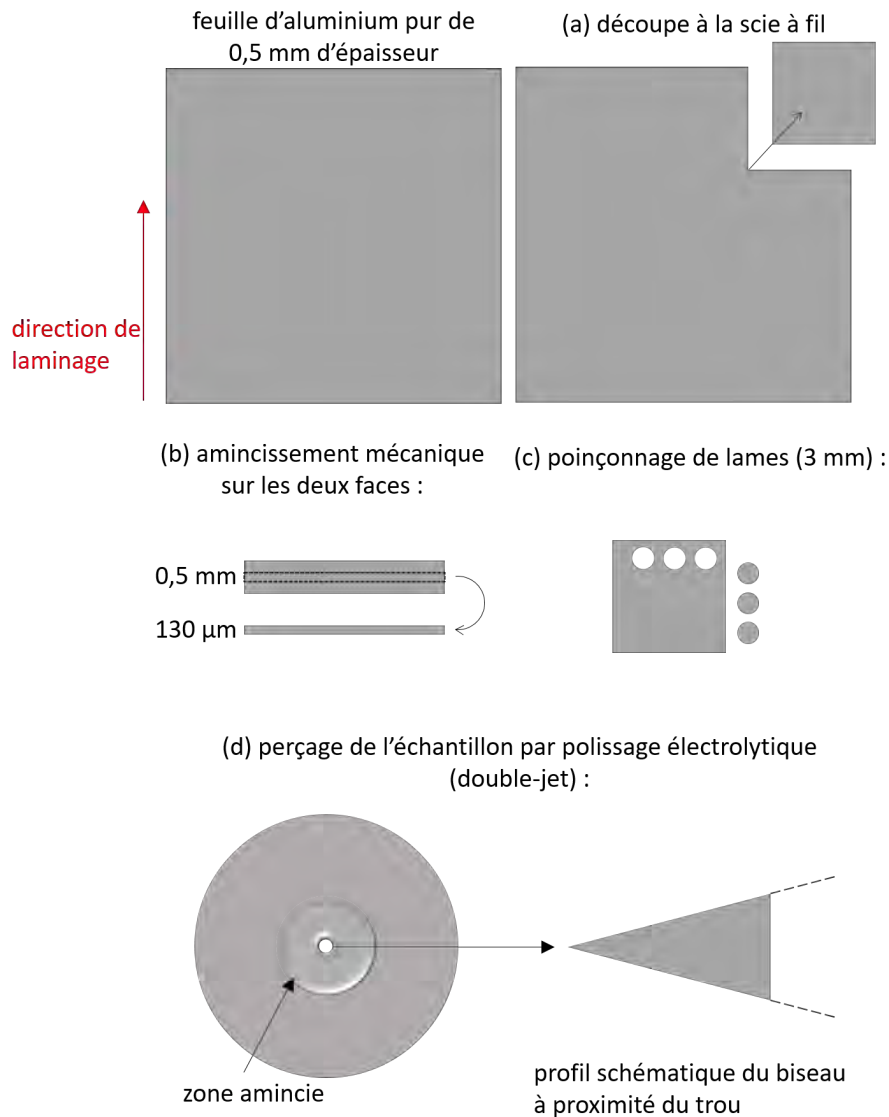


Figure 2.3 – Schéma des différentes étapes entre la réception des feuilles d'aluminium pur et les lames minces finales pour les observations MET hors contrainte.

tension d'accélération du faisceau d'électrons soit de 170 kV minimum pour générer des défauts ponctuels dans la matrice [81, 89, 90, 88, 91]. La tension d'accélération que nous utilisons ne va pas au-delà de 200 kV dans nos expériences, ce qui correspond à une énergie maximale transmise à un atome d'aluminium de 19,5 eV [92]. Nous ne générons donc pas de cascade de déplacements mais uniquement des paires de Frenkel (donc $N = 1$). Afin d'estimer la dose d'une expérience d'irradiation, le taux de dommage est multiplié par le temps d'irradiation.

Il est à noter que la distribution de l'intensité des électrons dans le faisceau incident n'est pas homogène mais de forme gaussienne, avec un flux plus intense au centre qu'en périphérie de la zone irradiée [92]. Le flux estimé in-situ est donc plus exactement une densité de courant moyenne sur la zone irradiée.

Irradiation au SRMP

La tension d'accélération des électrons est fixée à 200 kV. En considérant une énergie seuil de déplacement de 16 eV, cette tension d'accélération correspond à une section efficace des électrons

de 13,09 barns (1 barn : 10^{-24} cm²) [82].

Le flux des électrons est relevé à l'aide du logiciel de pilotage du MET. Plus précisément, le courant électrique récolté par l'écran phosphorescent est mesuré et donné en nA. Connaissant la surface de l'écran, le flux moyen d'électrons sur l'écran est également donné en $e^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L'estimation du flux est faite en se plaçant dans le trou de l'échantillon tout en retirant les diaphragmes situés en-dessous de ce dernier. Le faisceau est étalé selon les dimensions de l'écran. Ces précautions sont nécessaires afin que la valeur estimée de densité de courant corresponde bien à celle du faisceau incident. Les conditions de réglage du faisceau lors de l'estimation du flux sont appliquées pendant l'irradiation in-situ. Dans la majorité des protocoles expérimentaux, le suivi de l'évolution des boucles formées au cours de l'irradiation est assuré par des prises de micrographies de manière régulière avec la caméra CCD Orius 200D Gatan.

Irradiation au CEMES

Le mode opératoire mis en place au CEMES consiste à alterner entre une tension de 180 kV pour les phases d'irradiation et de 140 kV pour les phases d'observation et de réglage des conditions d'imagerie. La tension d'accélération de 180 kV correspond à une section efficace de déplacement atomique de 4,95 barns [82] dans ce dernier cas. Pour ce qui concerne la tension d'accélération utilisée pour les observations, l'énergie transmise est inférieure à l'énergie seuil de déplacement. La formation de défaut ponctuel est ainsi évitée.

Dans ce protocole, le flux d'électrons est mesuré par le biais d'une cage de Faraday montée sur un porte objet et placée sur le chemin du faisceau électronique. Dans les conditions d'illumination et de tension choisies pour ces expériences, la densité de courant est de l'ordre de $1 \times 10^5 e^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ sur un disque de 3 μm de diamètre. Les irradiations in-situ sont enregistrées sous format vidéo à l'aide d'une caméra MEGAVIEW III et d'un enregistreur numérique de façon à conserver une résolution temporelle de l'ordre de 1 s.

2.3 Caractérisation de la microstructure

2.3.1 Irradiations de l'aluminium dans la littérature

D'après les expériences in-situ menées dans la littérature, les boucles formées sous irradiation électronique dans les métaux de structure CFC sont des boucles de dislocation prismatiques fautées communément appelées boucles de Frank. Elles sont purement coin et se forment dans les plans denses $\{111\}$. Elles présentent un vecteur de Burgers de type $1/3\langle 111 \rangle$. Elles sont sessiles, c'est-à-dire immobiles dans la microstructure. Les différentes irradiations aux électrons dans l'aluminium pur sont d'accord sur la nature interstitielle de ces boucles ou de la majorité d'entre elles [93, 94, 95, 96, 97, 98, 99, 100]. Plus précisément, Fischer *et al.* [97] déterminent expérimentalement que la quasi-totalité des boucles sont de nature interstitielle lorsque le taux de pureté du métal est de 99,9999%, alors qu'avec des échantillons moins purs (99,99%), il y a coexistence d'amas interstitiels et lacunaires. Quant aux travaux de Yang *et al.* [98] dans lesquels ils irradient avec des électrons de 1 MeV à des températures entre 20 et 200°C, ils comptent que plus de 90% des boucles sont fautées et de nature interstitielle. Pour générer des boucles lacunaires, les échantillons sont trempés, par exemple dans le travail de Kiritani *et al.* [95].

Les études constatent que les boucles de Frank ont tendance par la suite à se défauter en boucles parfaites au bout d'un certain temps d'irradiation. Ce phénomène s'explique par une compétition entre l'énergie de ligne et l'énergie de surface de la faute d'empilement [101]. Plus une boucle de Frank est grande, plus il est probable qu'elle se défaute pour minimiser son énergie. Après le défautement, les boucles peuvent glisser vers les surfaces libres. Généralement, les cavités ne sont pas observées, du moins aux échelles de temps des expériences in-situ [98]. Furuya *et al.* [100] génèrent des cavités, en plus des boucles, en irradiant avec des

ions He^+ à température ambiante.

Pour ce qui est de la forme des amas, les boucles de Frank présentent une forme circulaire dans la grande majorité des exemples. Lorsque des plans additionnels se forment au sein d'une boucle, il a été constaté que cette couche secondaire présente une forme triangulaire [98, 94, 97, 93]. D'après Kiritani *et al.* [95], la forme des boucles dépend des conditions d'irradiation. Contrairement à la majorité des expériences, ils observent des boucles interstitielles de forme hexagonale à température ambiante (voir la figure 2.6a), forme habituellement constatée pour les boucles lacunaires générées suite à un essai de trempe. Pour des températures supérieures, les boucles sont bien de forme circulaire, elles sont présentées en figure 2.6b.

Plus récemment, les boucles formées sous irradiation aux électrons dans de l'aluminium pur ont été caractérisées dans le cadre du travail de thèse de Flament [102] et de Jacquelin [103]. Ils obtiennent des boucles elliptiques suite à une irradiation aux électrons de 200 keV à température ambiante. Cependant leurs résultats sont contradictoires. Flament trouve une coexistence de boucles lacunaires et interstitielles réparties sur les plans $\{111\}$, alors que Jacquelin conclut que toutes les boucles sont de type Frank et de nature interstitielle.

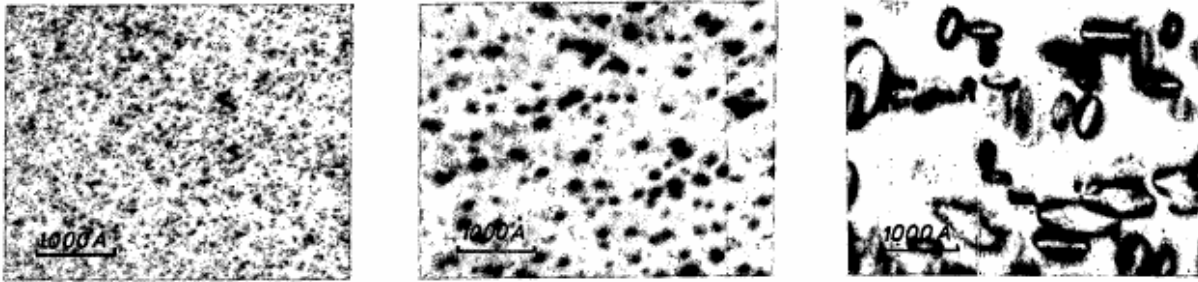


Figure 2.4 – Micrographies de boucles interstitielles suite à une irradiation aux électrons dans de l'aluminium pur à 99,9999% à différentes températures et flux, de gauche à droite : 150 K avec $7 \times 10^{21} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 300 K avec $6 \times 10^{22} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et 450 K avec $4 \times 10^{22} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ [97].

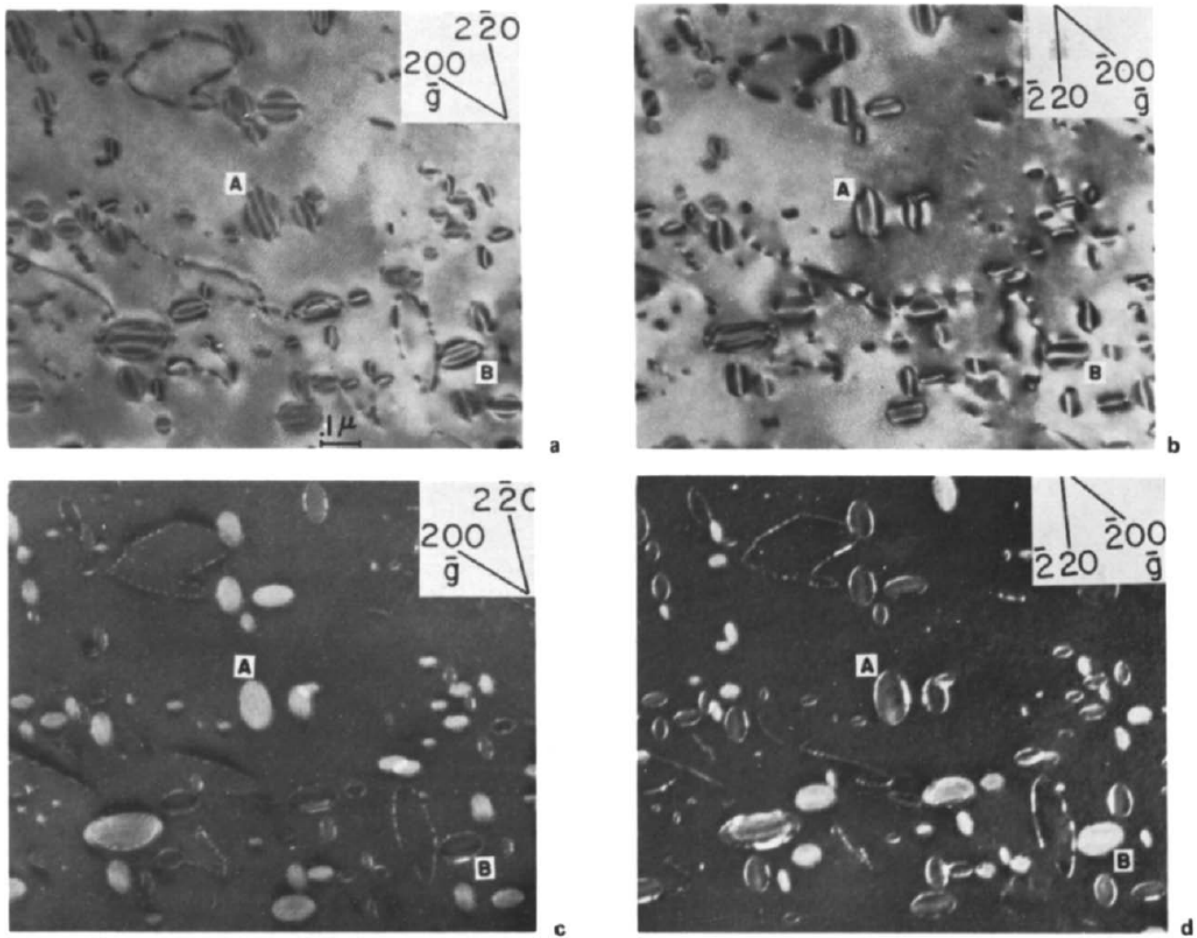


Figure 2.5 – Boucles fautées dans de l'aluminium irradié avec des électrons à 1 MeV à 125°C et 0,1 dpa. (a,b) images prises en champ clair et (c,d) en champ sombre faisceau faible [98].

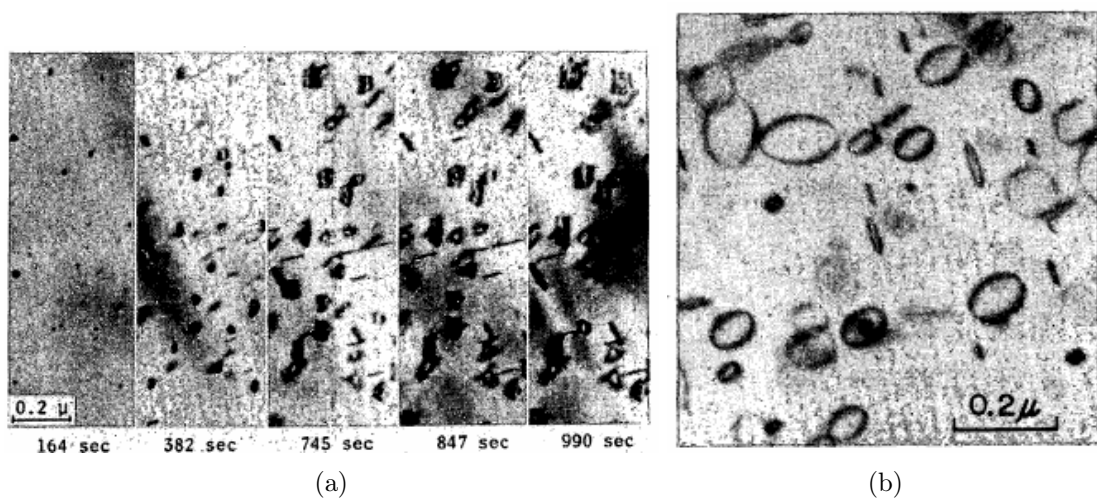


Figure 2.6 – Boucles interstitielles au cours d'irradiation aux électrons 2000 keV dans de l'aluminium de haute pureté (99,9994%) avec un flux $\sim 10^{18} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$: (a) à température ambiante, (b) à 120°C [95].

2.3.2 Caractérisation de la microstructure suite à une irradiation aux électrons 200 keV à température ambiante

Au vu des quelques disparités dans les résultats obtenus dans l'aluminium, issues de la littérature, nous avons réalisé une caractérisation complète de la microstructure dans nos conditions d'irradiation, c'est-à-dire avec des électrons de 200 keV et à température ambiante. Nous avons procédé avec un porte objet double-tilt. L'échantillon peut ainsi être incliné autour de l'axe du porte-objet et autour de l'axe perpendiculaire au premier. La prise de micrographies de l'échantillon à différentes inclinaisons en MET permet d'observer les amas de défauts dans différentes conditions de diffraction permettant ainsi de déduire les caractéristiques des boucles de dislocation formées sous irradiation : leur plan d'habitat, leur nature et leur vecteur de Burgers.

L'étape de caractérisation a été réalisée sur deux échantillons dénommés A1 et A2. L'échantillon A1 a été irradié pendant 15 minutes dans le MET JEOL 2100 au SRMA/LA2M. Pour cette expérience, il n'y a pas de suivi de l'évolution des boucles et le flux d'électrons n'est pas connu (la valeur mesurée par le dispositif étant plafonnée à 508 pA.cm^{-2}). L'échantillon A2 a été irradié de manière contrôlée pendant 35 min. Le flux moyen était de $1,1 \times 10^5 \text{ e}^-.\text{nm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Des micrographies sont prises au cours de l'irradiation toutes les 5 min, permettant de suivre l'évolution des boucles.

L'étape de caractérisation de ces deux échantillons a été réalisée dans le MET Tecnai. L'état des microstructures à la fin de l'irradiation de l'échantillon A1 et A2 est présenté dans la figure 2.7. Pour le premier échantillon, l'irradiation est réalisée à proximité d'un joint de grains et pour le second, elle est centrée sur une dislocation qui sert de repère au cours de l'irradiation. Dans la figure 2.7, les projections stéréographiques correspondent à l'orientation du grain étudié lorsque la lame n'est pas inclinée dans le porte-objet. Ces deux échantillons sont extraits de la même feuille d'aluminium. Les grains de l'échantillon A1 et de l'échantillon A2 sont peu désorientés l'un par rapport à l'autre. On retrouve bien la texture de type cube constatée dans la section 2.1.1.

Nous n'observons pas de cavité dans ces irradiations mais uniquement des boucles de dislocation de forme elliptique qui grossissent progressivement sous le faisceau d'électrons. Elles apparaissent sous forme de taches aux premiers stades d'irradiation.

Au vu des images prises en MET dans la figure 2.7, il est préférable d'enregistrer l'état des microstructures en condition champ sombre faisceau faible plutôt qu'en champ clair, puisque le contraste des boucles est plus fin dans le premier cas et rend ainsi la distinction entre les boucles plus facile, même lorsqu'elles se superposent.

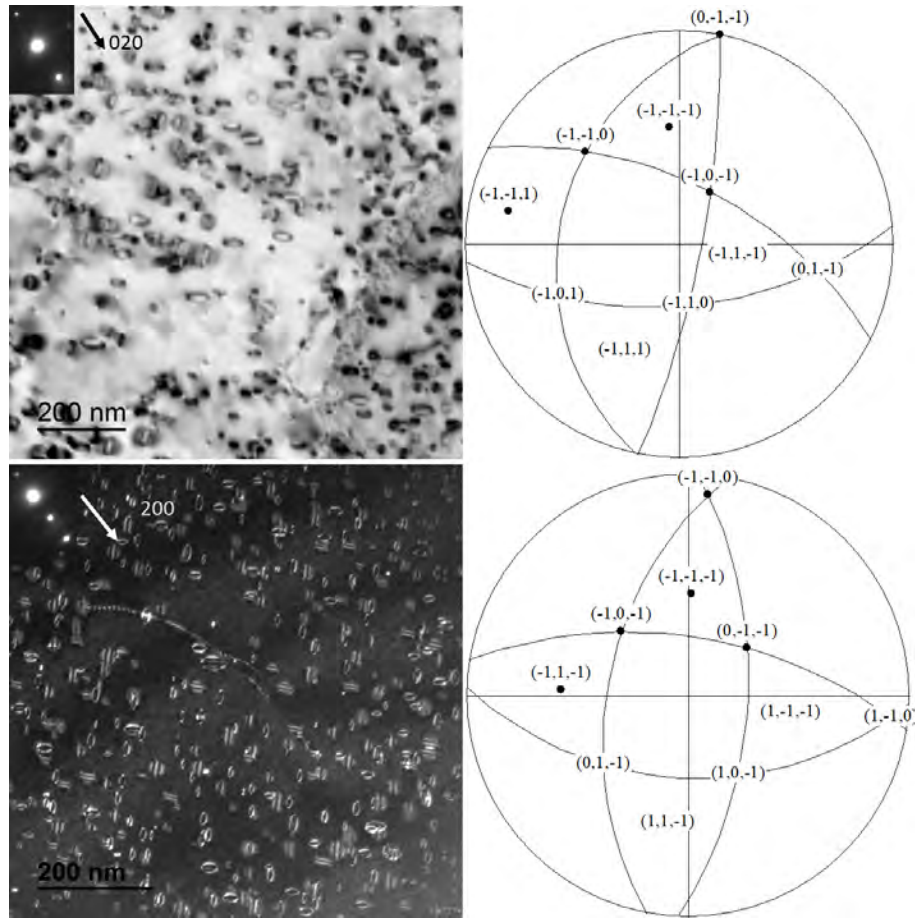


Figure 2.7 – En haut : échantillon A1 suite à une irradiation de 15 min. La microstructure est observée en champ clair. En bas : échantillon A2 suite à une irradiation de plus de 35 min. La microstructure est observée en champ sombre faisceau faible. Les conditions de diffraction sont $g = 200$. Les projections stéréographiques, à droite, correspondent à l'orientation du grain de la micrographie de gauche lorsque l'échantillon n'est pas incliné. Les arcs de cercles des projections stéréographiques correspondent aux plans $\{111\}$.

Détermination des plans d'habitat

Les plans d'habitat des boucles peuvent être déduits de l'association des micrographies prises en MET avec les projections stéréographiques. Pour des questions de clarté, le code couleur employé pour désigner les plans sont identiques tout le long de cette section, que ce soit sur les projections stéréographiques ou sur les micrographies.

Les conditions d'imagerie dans la figure 2.8 mettent en lumière la répartition des boucles dans les plans $\{111\}$. Le choix de l'orientation proche de $[112]$ avec $g = \bar{1}\bar{1}1$ permet de bien distinguer les quatre variants possibles et de les identifier. On suppose que les boucles sont circulaires dans les plans $\{111\}$. Ainsi l'ellipticité observée résulte d'un effet de projection de la boucle dans le plan d'observation. La direction du grand axe de l'ellipse correspond donc à la direction dans le plan d'habitat non déformée dans le plan d'observation, c'est-à-dire la direction à l'intersection du grand cercle de la projection stéréographique et du plan d'habitat.

La présence d'une boucle d'un autre type est indiquée par une flèche rouge dans la figure 2.8. L'observation avec $g = 220$ met en valeur des boucles dans des plans de type $\{110\}$ comme montré en figure 2.9. Il s'agit vraisemblablement de boucles parfaites, comme cela avait été observé par Yang [98].

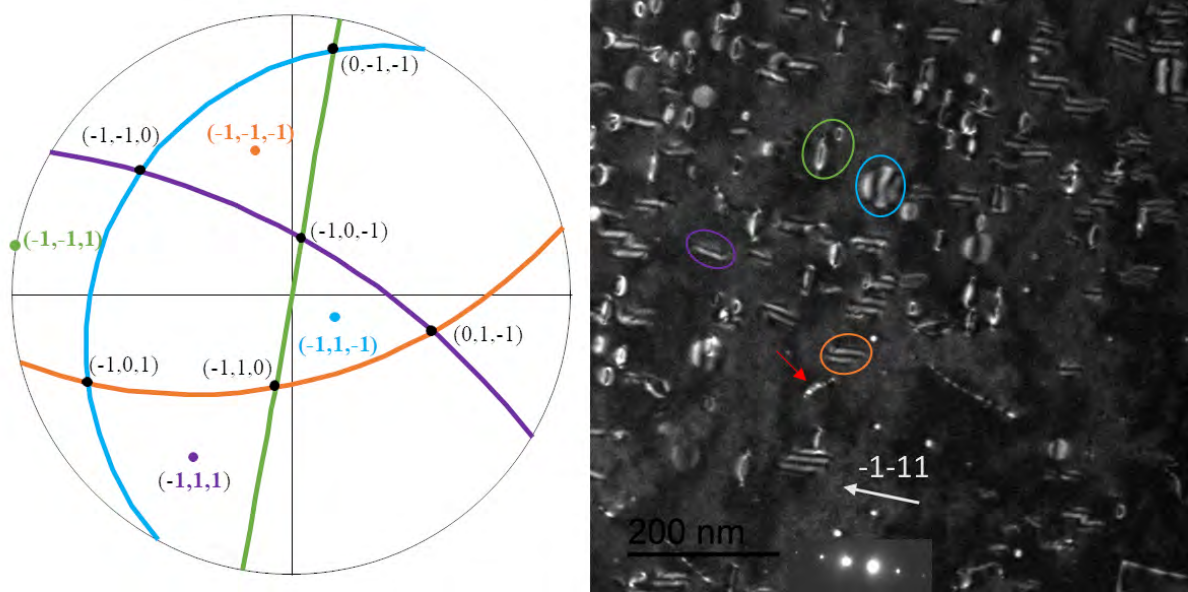


Figure 2.8 – A gauche la projection stéréographique correspondant à l'orientation du grain de l'échantillon A1 dans la micrographie de droite. Les différents plans $\{111\}$ sont différenciés par un code couleur. La micrographie de droite est prise en $g = \bar{1}\bar{1}1$ avec un axe de zone proche de $[112]$. Des exemples des quatre variants de boucles sont entourés à titre illustratif. L'exemple indiqué par une flèche rouge n'est pas une boucle $\{111\}$.

D'après l'identification des plans, les boucles créées sous irradiation dans l'échantillon A1 sont à 95% de type $\{111\}$ et les boucles restantes de type $\{110\}$. Plus précisément, parmi les boucles majoritaires, 34% sont dans les plans $(\bar{1}\bar{1}1)$, 29% dans les plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, 20% dans les plans $(\bar{1}1\bar{1})$ et 17% dans les plans $(\bar{1}11)$. La répartition entre les quatre variants ne suit pas un équilibre parfait mais peut être expliquée par des effets de statistique. De plus, des erreurs liées à des artefacts d'observation par l'opérateur sont possibles, nous considérons que l'erreur sur les pourcentages due au comptage est de $\pm 5\%$ environ.

Les boucles sont également identifiées dans l'échantillon A2 de la même façon que pour l'échantillon A1 (figure 2.10). Contrairement au premier échantillon, nous n'observons pas de boucle dans les plans $\{110\}$. Cette différence entre les deux expériences s'explique par le fait que l'échantillon A1 a été caractérisé 13 jours après l'irradiation alors que l'échantillon A2 a été analysé dès la fin de l'expérience d'irradiation. La première microstructure a eu le temps de continuer d'évoluer avant l'étape d'observation. Les échantillons sont conservés à température ambiante. Nous avons observé à plusieurs reprises que la microstructure peut évoluer après une expérience d'irradiation. Des micrographies de l'échantillon A2 prises à deux dates différentes en est la preuve dans la figure 2.11. La première micrographie 2.11a est la même qu'en figure 2.7, la seconde 2.11b est prise presque deux mois après la première. Une des différences est la disparition de certaines boucles, comme celles désignées en rouge placées à proximité de la dislocation. D'autre part, la zone entourée a fortement évolué entre les deux micrographies. Nous supposons que ces constats sont dus au défautement et à l'interaction des boucles entre elles.

Nos observations in-situ (présentées plus loin) ont montré que les boucles se défautent naturellement au cours de leur croissance puis coalescent fréquemment. La combinaison de ces processus peut donc donner lieu à une zone où la densité de boucles diminue. Kiritani *et al.* [93] ont pris en image la coalescence et le défautement de boucles qui se produisent simultanément selon eux. Ils observent ce phénomène à des temps bien plus courts que les nôtres, c'est-à-dire moins de 10 min contre 15-30 min pour nos expériences, voire plus. Notons qu'ils utilisent des paramètres

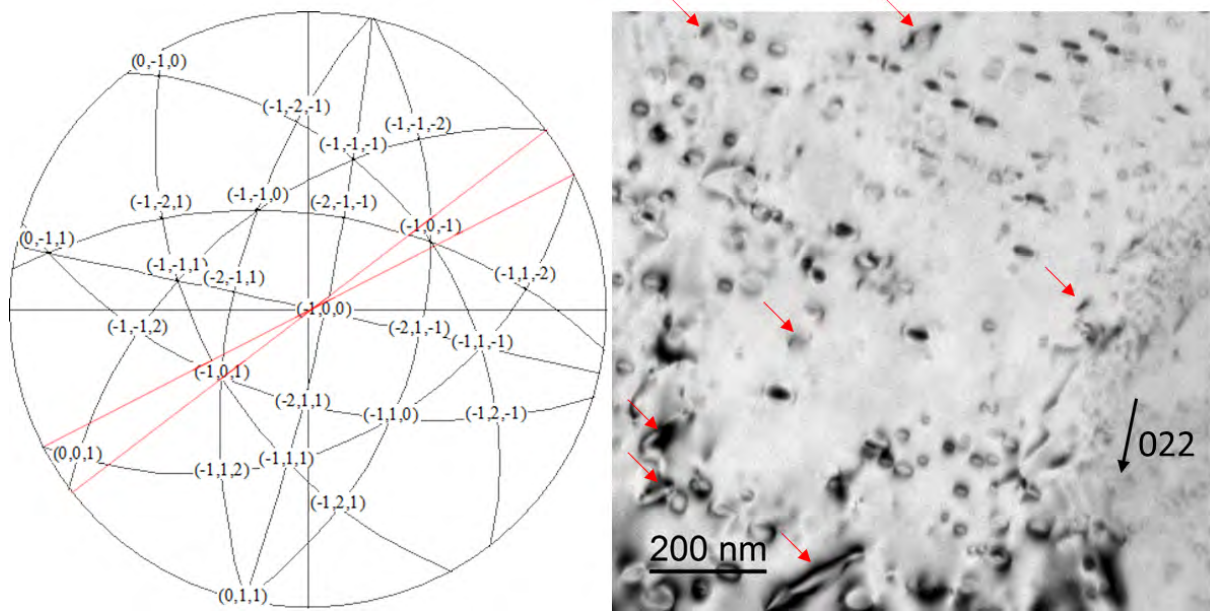


Figure 2.9 – Orientation du cristal et vue de la microstructure de l'échantillon A1 prise en champ clair avec $g = 022$ et un axe de zone proche de $[\bar{1}00]$. Certaines boucles dans les plans $\{111\}$ sont éteintes mais ces conditions d'imagerie mettent en lumière des dislocations contenues dans des plans de type $\{110\}$ indiquées par des flèches rouges et également dans la projection stéréographique de gauche.

de flux différents des nôtres ($2,1 \times 10^{19} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) et les électrons ont une énergie de 1000 keV.

Parmi les boucles observées à la fin de l'irradiation dans l'échantillon A2, nous comptons que 36,3% d'entre elles sont dans les plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, 33,3% dans les plans $(1\bar{1}\bar{1})$ et 15,2% pour les plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et $(11\bar{1})$, sur un total de 402 boucles. Alors que ce nombre de boucles paraît suffisant d'un point de vue statistique, les proportions sont plus déséquilibrées que pour le cas de l'échantillon A1. Pour être plus précis, le déséquilibre est entre deux groupes de variants. En effet, le nombre de boucles comptées entre les plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et $(11\bar{1})$ est identique. Quant aux deux variants restants, les proportions sont à peu près équivalentes. Une explication qui pourrait être avancée lorsque les proportions entre les boucles ne sont pas équivalentes est l'orientation des boucles par rapport aux surfaces libres. Cependant, cet argument ne peut pas s'appliquer à ce cas puisque ce ne sont pas des boucles glissiles qui pourraient s'échapper vers les surfaces libres. De plus, la figure 2.7 montre que les quatre variants de boucles ont une inclinaison à peu près équivalente vis-à-vis des surfaces libres (si on considère que les surfaces libres de la lame mince sont presque parallèles localement). Les quatre orientations de boucles ont donc la même probabilité de glisser vers la surface après défautement, ce qui n'explique pas ces différences de proportions. Nous verrons plus loin que ces différences observées pourraient être dues à des effets de contraintes résiduelles (section 2.8).

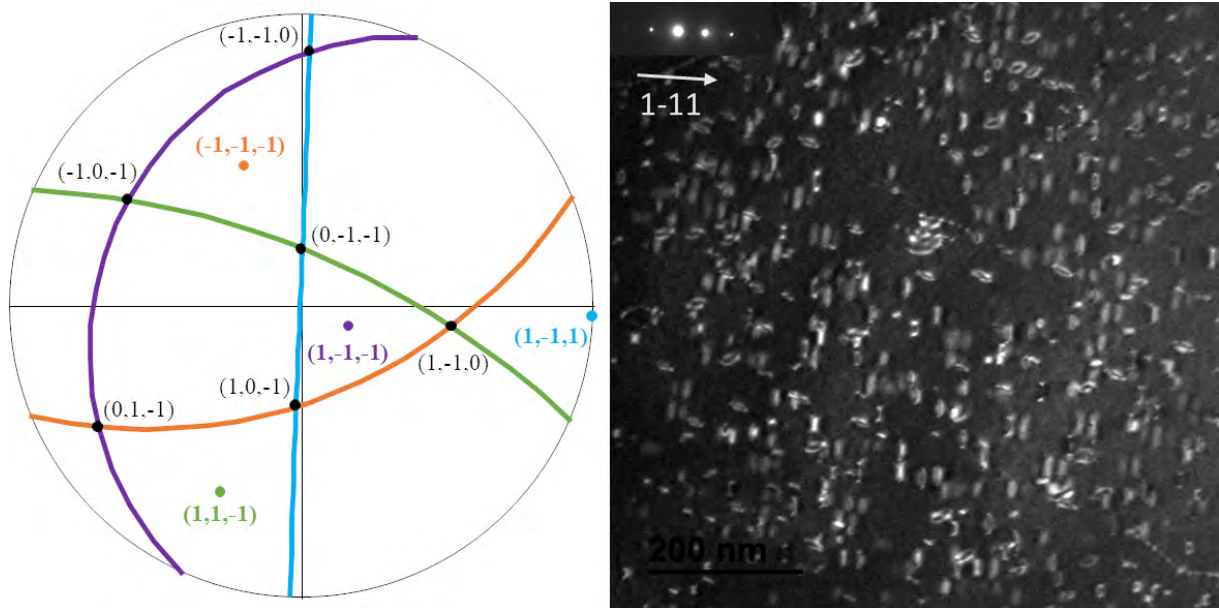


Figure 2.10 – Irradiation de l'échantillon A2 observée avec un vecteur de diffraction $g = \bar{1}\bar{1}1$ et un axe de zone $z \sim [\bar{1}12]$. Dans ces conditions il est facile de distinguer les boucles dans les plans $(11\bar{1})$ et $(\bar{1}\bar{1}1)$ indiqués en vert et en orange respectivement sur la projection stéréographique de gauche.

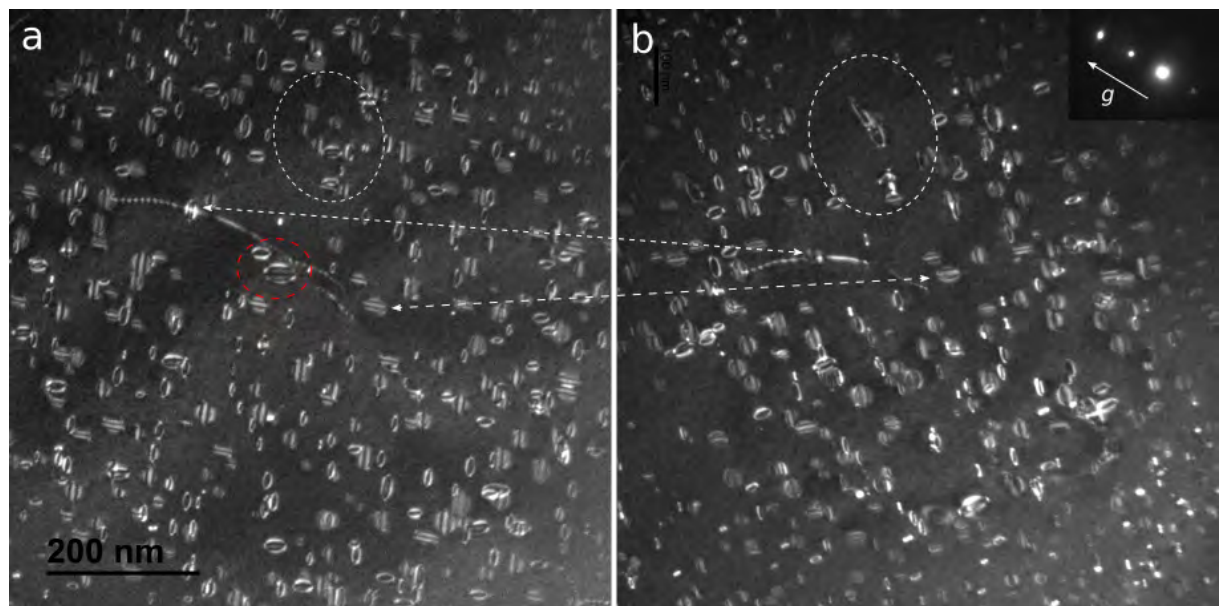


Figure 2.11 – Micrographies de l'échantillon A2 prises avec le même type de vecteur de diffraction $g = 200$: (a) à la fin de l'irradiation, (b) 55 jours après l'observation en (a). Les flèches blanches associent des boucles qui sont présumées les mêmes. La zone indiquée en rouge met en valeur des boucles en (a) qui ne sont plus présentes en (b). Les cercles blancs mettent en lumière une même zone où la microstructure a drastiquement évolué.

Détermination des vecteurs de Burgers

Les vecteurs de Burgers \mathbf{b} des plans $\{111\}$ sont déterminés par la méthode d'extinction [92]. Elle repose sur le critère d'invisibilité : $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$. Les dislocations peuvent présenter un contraste résiduel dépendant du terme $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u}$ (\mathbf{u} vecteur unitaire suivant la ligne de dislocation). Le prérequis afin de déduire le vecteur de Burgers est l'obtention de deux conditions d'extinction avec des vecteurs de diffraction distincts \mathbf{g}_1 et \mathbf{g}_2 . Le vecteur \mathbf{b} est alors parallèle au produit vectoriel $\mathbf{g}_1 \times \mathbf{g}_2$.

La figure 2.12 illustre un cas de figure où deux variants sur quatre sont en condition d'extinction. Les deux variants visibles sont orientés différemment, cet exemple a également contribué à l'indexation des boucles de l'échantillon A2.

Les différentes conditions de visibilité et d'extinction obtenues lors de la caractérisation de l'échantillon A2 sont réunies dans le tableau 2.2. Les micrographies associées sont présentées en figures 2.12, 2.13 et 2.14. Nous avons ainsi pu vérifier pour les boucles contenues dans les plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et $(\bar{1}1\bar{1})$, que leur vecteur de Burgers est de type $1/3\langle 111 \rangle$. De plus, l'existence d'une faute d'empilement caractéristique des boucles de Frank est visible dans les micrographies prises en champ sombre faisceau faible. Elle apparaît sous forme d'alternance de bandes sombres et claires lorsque les boucles sont suffisamment grandes (notamment en contraste externe). Cette caractéristique visible sur nos micrographies constitue un argument supplémentaire sur le type de boucles présentes dans nos microstructures. Il manque une condition ($\mathbf{g} = 202$) dans le tableau pour confirmer la nature des vecteurs de Burgers des boucles contenues dans les plans $(11\bar{1})$ et $(1\bar{1}\bar{1})$. Le porte-objet utilisé est limité à des inclinaisons de $\sim 30^\circ$. Ce vecteur de diffraction était inatteignable. Par extension, nous supposons que les deux boucles restantes sont également des boucles de Frank. Nous tirons les mêmes conclusions pour l'échantillon A1 (figure 2.15).

Tableau 2.2 – Conditions réalisées pour déterminer les vecteurs de Burgers des boucles dans l'échantillon A2. Pour chaque plan, le tableau indique si les boucles étaient visibles (V) ou éteintes (E) en fonction de \mathbf{g} . Les micrographies correspondantes sont en figures 2.12, 2.13 et 2.14.

plan d'habitat	vecteur diffraction	$\bar{2}20$	220	$\bar{2}02$
	$(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$		E	V
$(11\bar{1})$		E	V	V
$(1\bar{1}\bar{1})$		V	E	V
$(\bar{1}1\bar{1})$		V	E	E

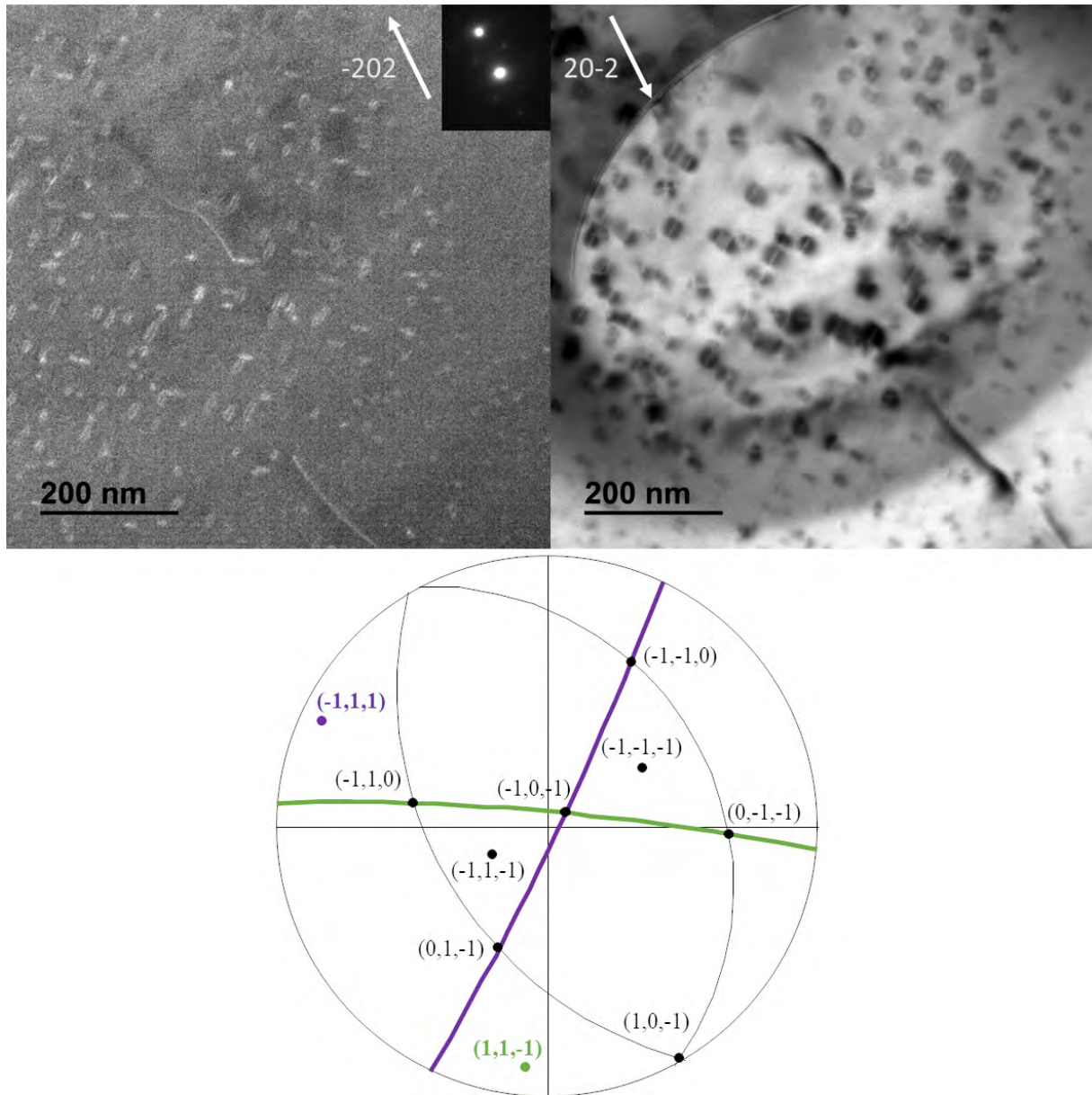


Figure 2.12 – Echantillon A2 orienté de façon à éteindre le contraste des boucles $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et $(\bar{1}1\bar{1})$. La projection stéréographique montre l'orientation des deux boucles visibles sur les micrographies. Celle de gauche est prise en champ sombre faisceau faible et celle de droite en champ clair. Le sens du vecteur de diffraction est opposé entre les deux images.

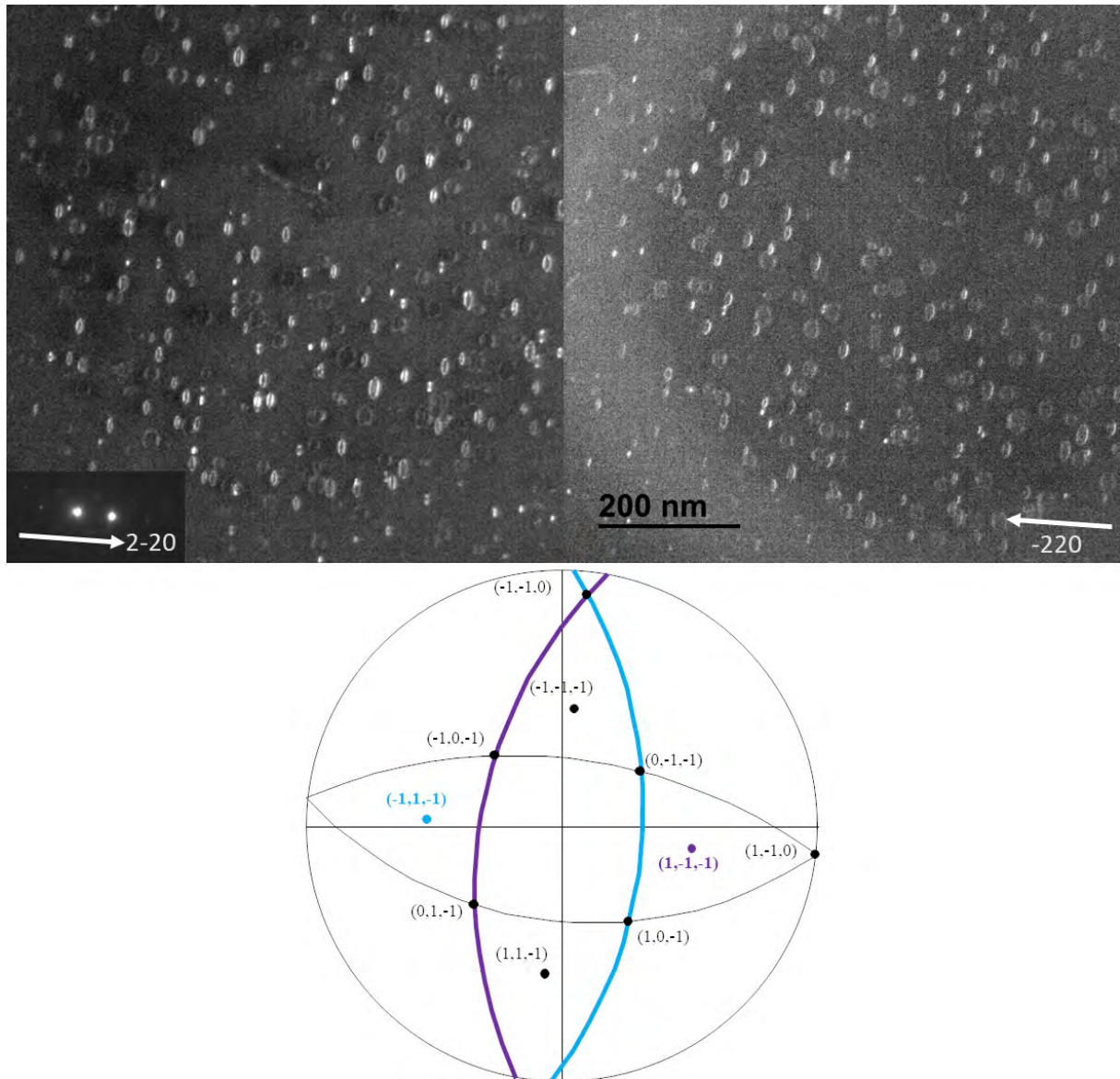


Figure 2.13 – Echantillon A2 orienté de façon à éteindre le contraste des boucles $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et $(11\bar{1})$. La projection stéréographique montre l'orientation des deux boucles visibles sur les micrographies. Le sens du vecteur de diffraction est opposé entre les deux images.

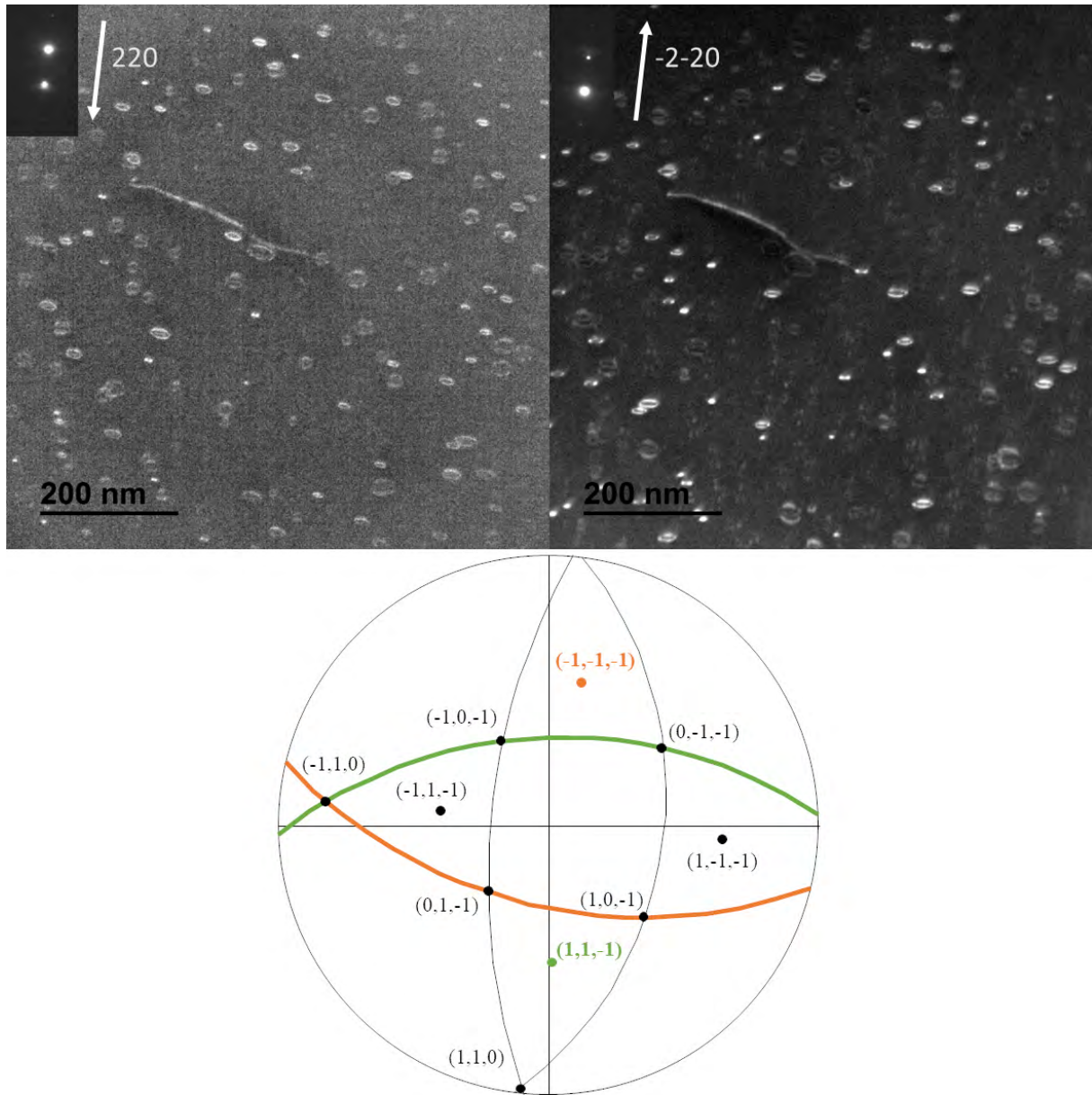


Figure 2.14 – Echantillon A2 orienté de façon à éteindre le contraste des boucles $(1\bar{1}\bar{1})$ et $(\bar{1}1\bar{1})$. La projection stéréographique montre l'orientation des deux boucles visibles sur les micrographies. Le sens du vecteur de diffraction est opposé entre les deux images.

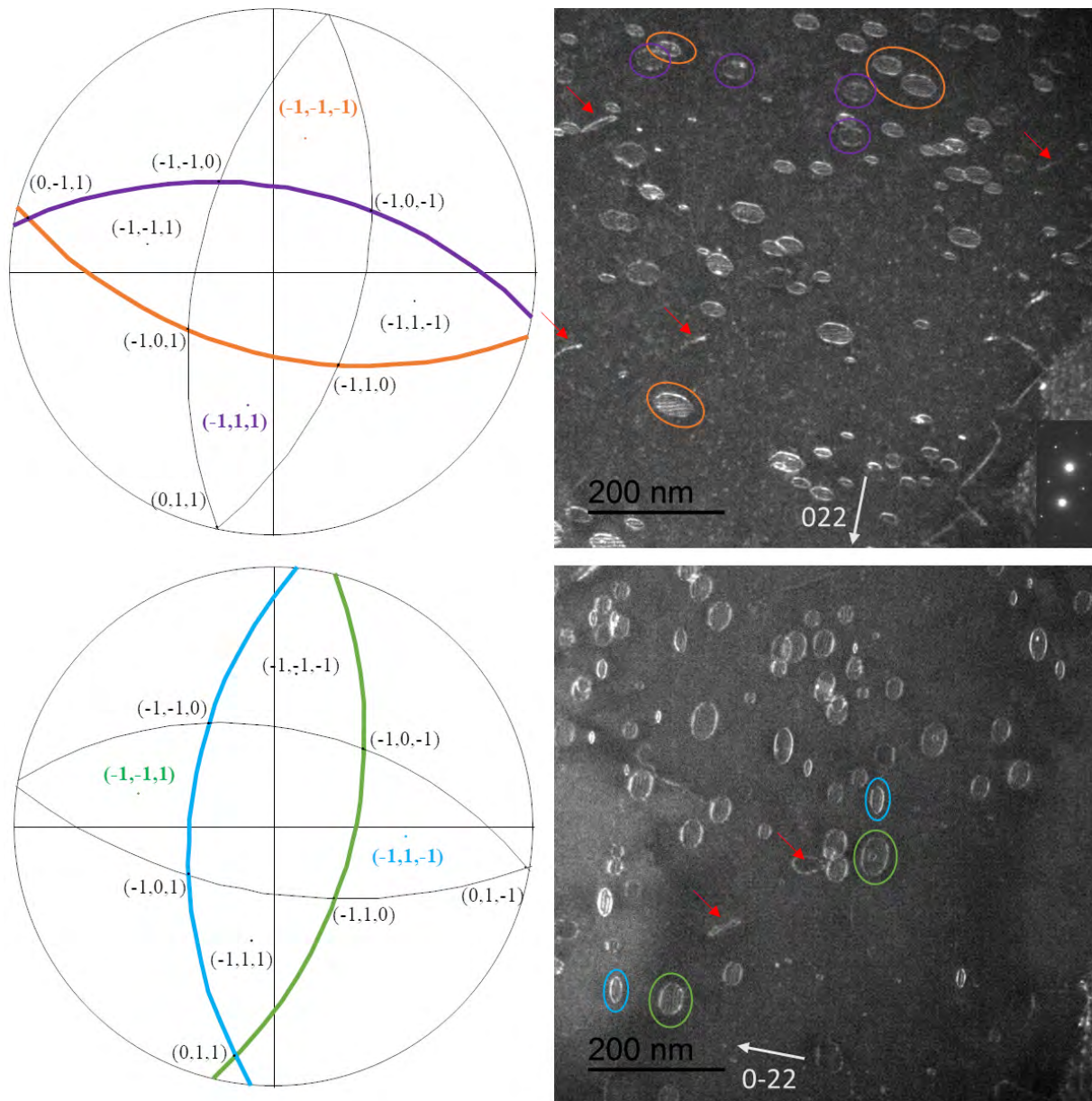


Figure 2.15 – Microstructure de l’irradiation dans l’échantillon A1 dans deux conditions d’imagerie avec lesquelles deux variants de boucles sur quatre sont éteintes. Les boucles visibles et leur orientation sur les projections stéréographiques sont associées par un code couleur. Les flèches rouges mettent en avant des boucles qui ne reposent pas sur les plans $\{111\}$.

Détermination de la nature des boucles de Frank

Afin de déterminer la nature interstitielle ou lacunaire de ces boucles, la méthode de contraste interne/externe adaptée aux boucles purement coin de Foll et Wilkens [104] est appliquée ici. Elle repose sur le signe du paramètre $(\mathbf{g}\cdot\mathbf{b})\cdot s$. Nous suivons la convention FS/RH, illustrée dans la figure 2.16, pour le choix du sens du vecteur de Burgers.

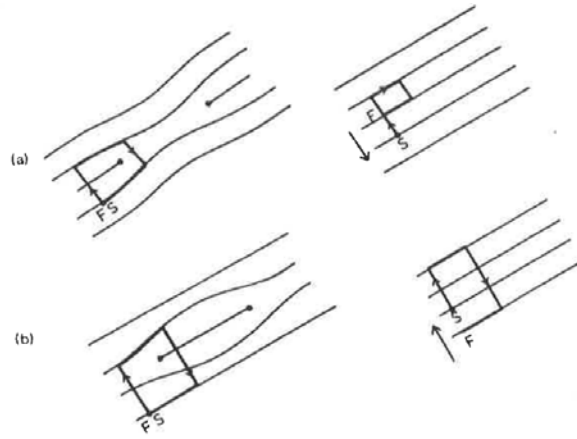


Figure 2.16 – Illustration de la convention FS/RH qui définit le sens de \mathbf{b} pour une boucle lacunaire (a) et une boucle interstitielle (b) [105].

Les images en MET sont prises avec un écart de Bragg s positif, ainsi la déduction de la nature des boucles dépend uniquement du signe de $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$. Comme illustré dans la figure 2.17, une boucle interstitielle présentera un contraste externe si le paramètre $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ est positif et un contraste interne si $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ est négatif, l’opposé est vrai pour une boucle lacunaire. En contraste externe, une boucle paraît plus grande qu’elle ne l’est alors qu’en contraste interne, elle apparaît plus petite. Il est important de prendre systématiquement les images en condition $\mathbf{g}/-\mathbf{g}$ afin d’écartier tout doute sur le type de contraste.

Les micrographies de l’échantillon A1, dans la figure 2.18, et de l’échantillon A2, en figure 2.19, montrent les microstructures en condition $\mathbf{g}/-\mathbf{g}$. Elles confirment que nos microstructures sont uniquement constituées de boucles interstitielles. Les quatre variants de boucles sont différenciés grâce à l’étape antérieure d’indexation des plans d’habitat. Le signe du paramètre $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ est déduit de la direction et du sens de \mathbf{g} par rapport à l’orientation des traces des plans $\{111\}$ qui figurent sur les projections stéréographiques. Les résultats sont réunis dans le tableau 2.3 pour l’échantillon A1 et dans le tableau 2.4 pour l’échantillon A2. L’inversion des contrastes est également présentée dans la section précédente avec les extinctions de boucles dans l’échantillon A2 (figures 2.13 et 2.14) mais les résultats sont plus probants avec $\mathbf{g} = (200)$ qu’avec $\mathbf{g} = (220)$, par rapport à l’intensité des contrastes.

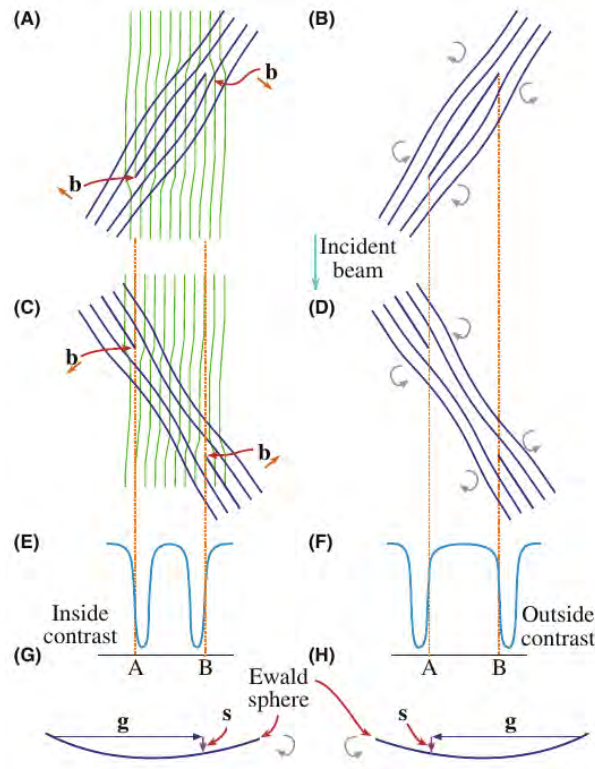


Figure 2.17 – Schéma du contraste d'une boucle apparente en MET en fonction de sa nature (interstitielle (A) et (B) ou lacunaire (C) et (D)) et de l'orientation du vecteur de diffraction (G) et (H) [92].

Tableau 2.3 – Contraste de chaque variant de boucle dans l'échantillon A1 en fonction du vecteur de diffraction d'après la figure 2.18 avec la valeur du produit $g \cdot b$. La couleur indiquée pour chaque vecteur de Burgers correspond à celle utilisée dans la projection stéréographique.

$b \backslash g$	$00\bar{2}$	002
$\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}1]$ (orange)	externe $(\frac{+2}{3})$	interne $(\frac{-2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}1\bar{1}]$ (violet)	interne $(\frac{-2}{3})$	externe $(\frac{+2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ (bleu)	externe $(\frac{+2}{3})$	interne $(\frac{-2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}11]$ (vert)	interne $(\frac{-2}{3})$	externe $(\frac{+2}{3})$

Tableau 2.4 – Tableau qui répertorie le contraste de chaque variant de boucle dans l'échantillon A2 en fonction du vecteur de diffraction d'après la figure 2.19 avec la valeur du produit $g \cdot b$. La couleur indiquée pour chaque vecteur de Burgers correspond à celle utilisée dans la projection stéréographique.

$b \backslash g$	$(\bar{2}00)$	(200)
$\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ (orange)	externe $(\frac{+2}{3})$	interne $(\frac{-2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}1\bar{1}]$ (violet)	interne $(\frac{-2}{3})$	externe $(\frac{+2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}1]$ (bleu)	externe $(\frac{+2}{3})$	interne $(\frac{-2}{3})$
$\frac{1}{3}[\bar{1}11]$ (vert)	interne $(\frac{-2}{3})$	externe $(\frac{+2}{3})$

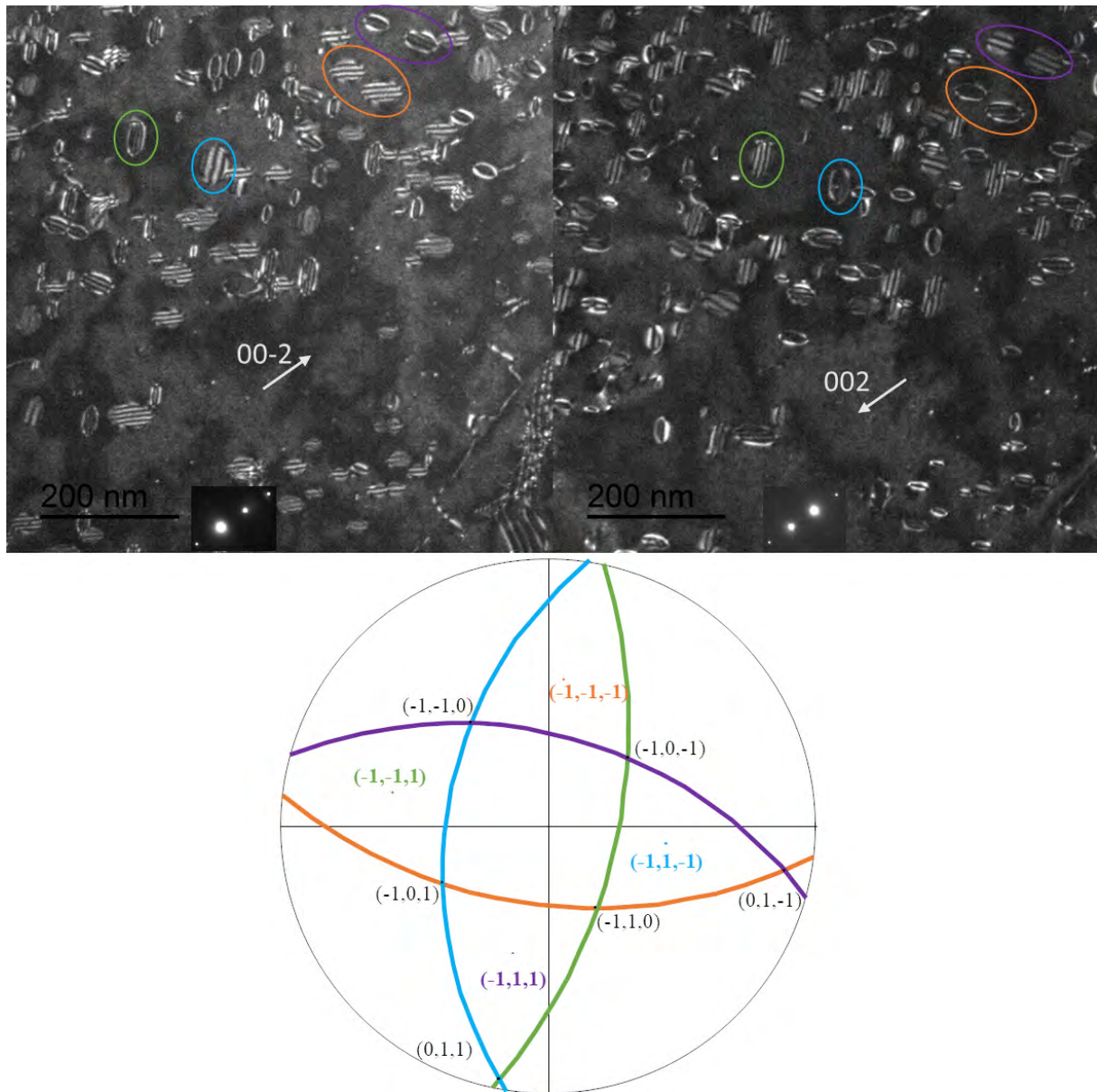


Figure 2.18 – Projection stéréographique de l'orientation des 4 variants de boucles de Frank dans l'échantillon A1. Des exemples pour chaque variant sont indiqués sur les images MET en utilisant le même code couleur que dans la projection stéréographique. La différence de contraste entre les deux micrographies est seulement due au sens du vecteur de diffraction. Par exemple la boucle $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ (en bleu) présente un contraste externe avec $\mathbf{g} = 00\bar{2}$ et un contraste interne avec le \mathbf{g} opposé.

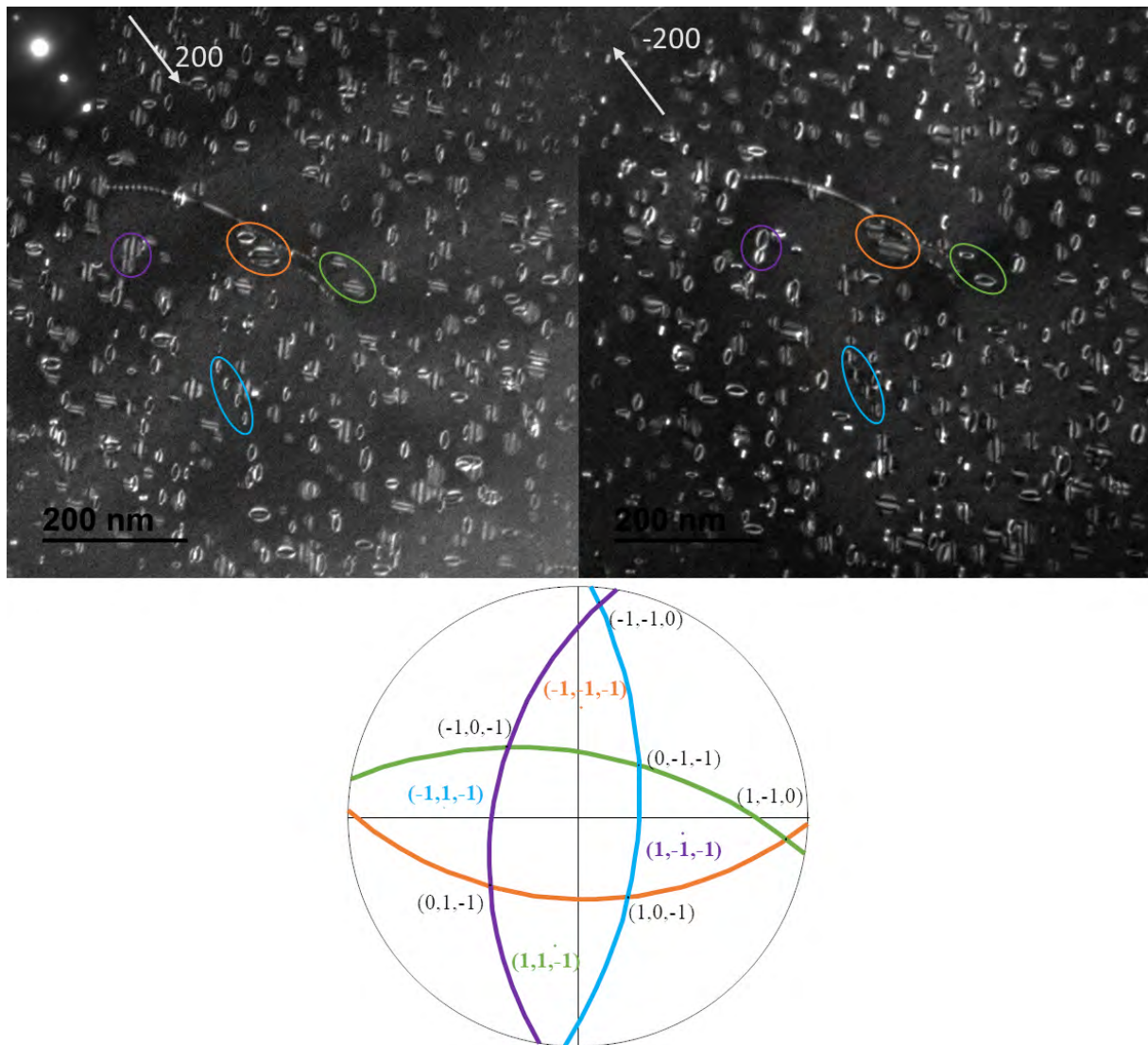


Figure 2.19 – Projection stéréographique de l'orientation des 4 variants de boucles de Frank dans l'échantillon A2. Des exemples de chaque variant sont indiqués sur les images MET en utilisant le même code couleur que dans la projection stéréographique. La différence de contraste entre les deux micrographies est seulement due au sens du vecteur de diffraction. Par exemple les boucles $(11\bar{1})$ (en vert) présentent un contraste externe avec $g = 200$ et un contraste interne avec le g opposé.

Résumé de la caractérisation des boucles

D’après nos résultats, les microstructures obtenues suite à une irradiation aux électrons à température ambiante sont constituées de boucles de Frank de nature interstitielle avec des vecteurs de Burgers $\frac{1}{3}\langle 111 \rangle$. Des boucles parfaites ou mixtes peuvent être observées également pour des temps d’irradiation longs ou lorsque la microstructure est analysée bien après l’expérience d’irradiation in-situ. Les micrographies prises en champ sombre faisceau faible dévoilent la faute d’empilement caractéristique des boucles de Frank. Dans ces conditions le contraste des boucles est plus fin et donc plus propice pour les observations in-situ. Nous avons par ailleurs vérifié par le calcul de la forme d’équilibre d’une boucle par élasticité anisotrope, avec le logiciel DISDI [106], que la boucle est bien circulaire.

2.4 Suivi in-situ de l’évolution des boucles interstitielles

Cette section présente la première mise en place du protocole d’irradiation in-situ dans le MET Tecnai à la SRMP et sert de référence concernant l’évolution des boucles sous un faisceau d’électrons dans l’aluminium. Ce premier suivi est réalisé sur l’échantillon A2 présenté dans la section sur la caractérisation des boucles (section 2.3.2), la lame mince n’ayant pas été préalablement irradiée.

L’étape de réglage avant l’irradiation consiste à évaluer le flux d’électrons, choisir une zone favorable pour l’irradiation (zone pas ou peu déformée, avec un repère) et incliner l’échantillon de façon à obtenir des conditions de diffraction permettant l’observation de toutes les boucles de Frank. Lorsque cela est possible, nous choisissons systématiquement un vecteur de diffraction de type $\mathbf{g} = 200$, tout en étant le plus proche possible de l’inclinaison nulle dans le porte-objet.

Pour cette expérience, nous avons choisi une zone présentant une dislocation qui sert de repère tout le long de l’irradiation, voir figure 2.20a. Ce choix nous permet de centrer facilement le faisceau condensé entre chaque prise d’image.

Avant de procéder à l’expérience d’irradiation, nous avons noté qu’en condition d’imagerie le flux d’électrons était d’environ $8 \times 10^3 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. A la fin de la phase de réglage du faisceau et de l’inclinaison de l’échantillon, nous obtenons la microstructure présentée sur la figure 2.20b. Les points blancs sont des boucles. Cela montre que la nucléation de boucles s’est produite en étant simplement en condition d’imagerie (faisceau non-condensé). Il est donc conseillé d’étaler le faisceau, en augmentant le temps de pose en caméra si nécessaire et de réaliser les prises d’images entre les périodes d’irradiation le plus rapidement possible. La valeur relevée précédemment pour le flux est donnée à titre indicatif puisque le flux en condition d’imagerie peut varier d’une expérience à l’autre.

Nous exposons cette même zone à un faisceau plus condensé. Le flux est fixé à $2,2 \times 10^4 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pendant 5 min. Nous obtenons la microstructure en figure 2.20c. La nucléation est plus importante que précédemment mais la taille des boucles reste relativement petite. Afin que les boucles atteignent des tailles exploitables étant donnée la fenêtre d’action restreinte, le flux est augmenté. A partir du stade présenté dans la figure 2.20c, cette zone est irradiée pendant 35 min additionnelles avec un flux moyen de $1,1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L’état de la microstructure est enregistré toutes les 5 min, au cours de l’irradiation. Avec une tension d’accélération de 200 kV, le taux moyen de dommage est de $1,4 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$, calculé avec l’équation 2.1.

L’évolution de la taille des boucles est donnée dans la figure 2.21 avec un exemple pour chaque variant. Le diamètre de 12 boucles est mesuré toutes les 5 min sur la dernière phase de 35 min d’irradiation. Pour chaque boucle, c’est le plus grand axe de l’ellipse qui est mesuré avec l’outil

ImageJ. Les 12 boucles en question sont désignées dans les figures 2.20c et 2.20d. L'erreur sur la mesure du diamètre d'une boucle est estimée à ~ 4 nm. Elle dépend fortement du contraste de la boucle, de la qualité d'imagerie et de la taille de la boucle. Plus une boucle est petite et plus son contour est mal défini. Globalement les boucles croissent de manière linéaire avec la dose. La littérature fait le même constat pour les irradiations aux électrons in-situ : la croissance est linéaire en fonction du temps d'irradiation à un taux de dommage constant, que ce soit dans l'aluminium [98, 107], ou dans d'autres métaux CFC [96, 26].

La vitesse de croissance moyennée sur les 12 boucles est $dd/dt = 0,0096 \pm 0,003$ nm.s⁻¹. On peut noter que les pentes varient d'une boucle à l'autre, même pour des boucles de même orientation comme le met en avant la figure 2.22a. En comparant les deux pentes, la boucle 1 a une vitesse au moins deux fois supérieure à la boucle 3, même si au départ de cette irradiation, celle-ci est de plus petite taille. Cela est à souligner puisque Jitsukawa *et al.* [107] ont constaté au cours d'irradiation in-situ que la vitesse de croissance des petites boucles est plus faible que celle des plus grandes boucles. L'explication plausible est l'influence de l'environnement des boucles.

Nous n'avons pas connaissance de la répartition des boucles au sein de la lame mais nous pouvons conjecturer de la projection des boucles dans le volume (figure 2.20d) que la boucle 1 est dans l'environnement proche de la dislocation. Or il est visible que la région autour de la dislocation est appauvrie en boucle par rapport au reste de la zone irradiée alors qu'il s'agit du centre du faisceau d'électrons où le flux est le plus intense. La boucle 1 fait donc partie des rares qui ont pu se former et croître dans cet environnement. Cette région présente moins de puits possibles pour les interstitiels (à part la dislocation) donc moins de concurrence dans la croissance des boucles ce qui peut expliquer, une fois la boucle nucléée, que la zone soit propice à une croissance plus rapide (du moins aux premiers stades d'irradiation où les lacunes n'ont pas encore migré sur de grandes distances). La nucléation est, quant à elle, plus difficile puisque les interstitiels peuvent être préférentiellement absorbés par la dislocation (effet de biais), ce qui explique qu'il y ait peu de boucles autour de la dislocation.

De légères modifications dans le contraste de la dislocation sont observables entre la figure 2.20c et 2.20d. Elles sont dues à la montée de la dislocation. Nous nous attendions à observer une mise en hélice de cette dernière mais cela n'a pas été observé dans cette expérience d'irradiation, ni dans d'autres. On peut noter que certaines boucles présentent des croissances moins linéaires, comme le cas de la boucle 6 en figure 2.22b. Des cas de changement de pente au cours de la croissance d'une boucle sont observés dans la littérature à fortes doses et des boucles ont tendance à se rétracter, au-delà de 3 dpa par exemple, d'après le travail de Jitsukawa et Hojou [107]. Nous n'atteignons pas de telles doses dans nos expériences, les doses atteintes sont de l'ordre du dixième de dpa.

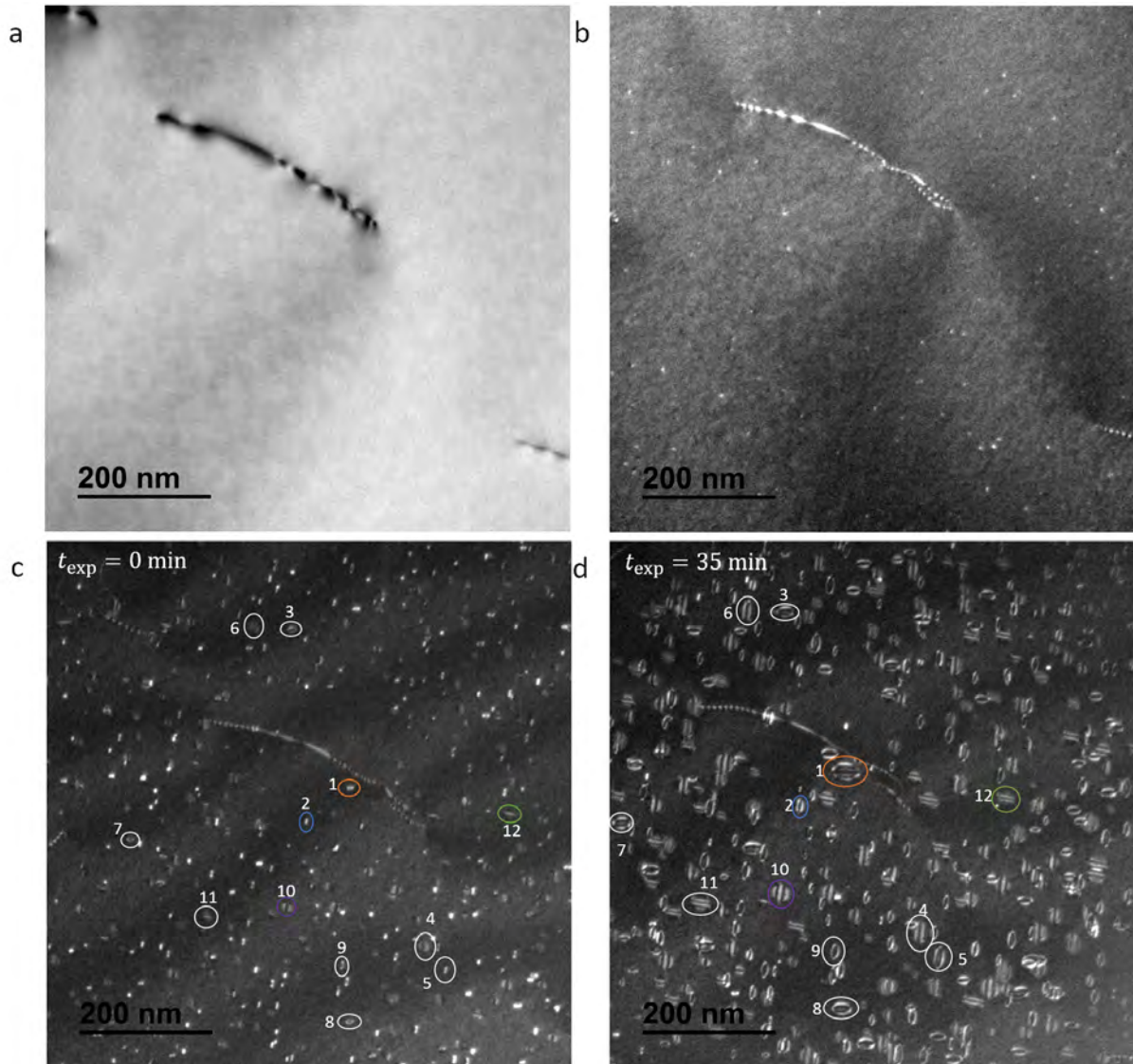


Figure 2.20 – Suivi in-situ des boucles dans l'échantillon A2. Il s'agit de l'irradiation qui a précédé la caractérisation en section 2.3.2. (a) Micrographie en champ clair de la zone choisie pour l'irradiation, avec une dislocation au centre de l'image. (b) Etat de la microstructure vue en champ sombre faisceau faible suite aux réglages (flux estimé à $\sim 8 \times 10^3 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). (c) Microstructure après avoir irradié pendant 5 min avec un flux de $2,2 \times 10^4 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. (d) Etat final après 35 min d'irradiation avec un flux moyen de $1,1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L'étude des boucles se fait sur cette dernière phase d'irradiation contrôlée entre la microstructure en (c) et (d).

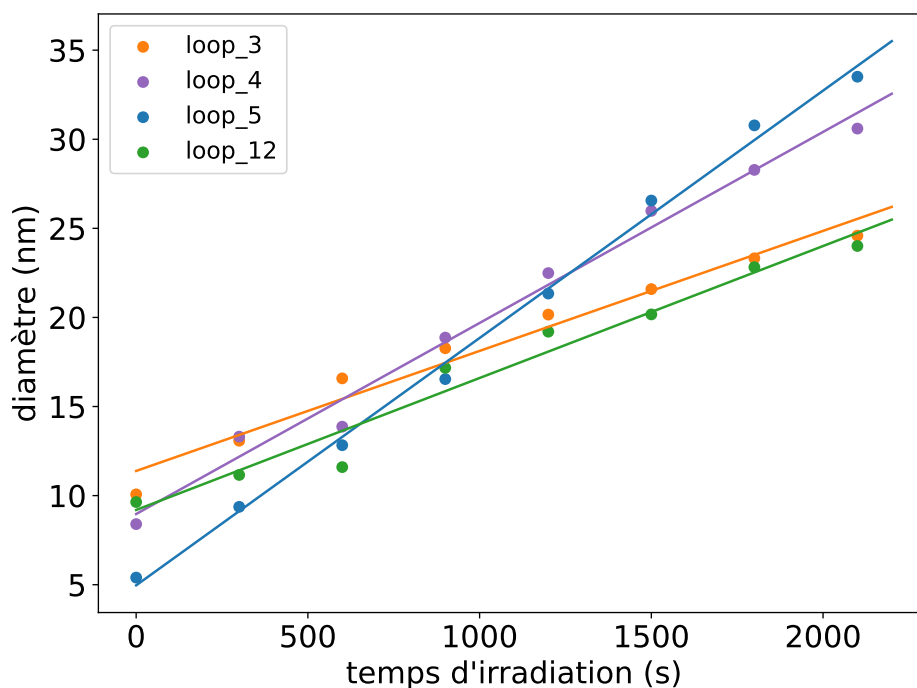


Figure 2.21 – Suivi in-situ du diamètre de quatre variants de boucles à un taux de dommage presque constant. Le code couleur utilisé pour la nature des plans est identique à ce qui est présenté dans la section 2.3.2. La nomenclature des boucles correspond à la figure 2.20. Des boucles sont déjà formées avant l'irradiation à $1,1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, c'est pour cette raison que ces défauts présentent des diamètres supérieurs à 5 nm à $t_{\text{exp}} = 0 \text{ s}$. Les droites sont les régressions linéaires de chaque série. L'erreur sur la mesure des diamètres des boucles est estimée à 4 nm environ.

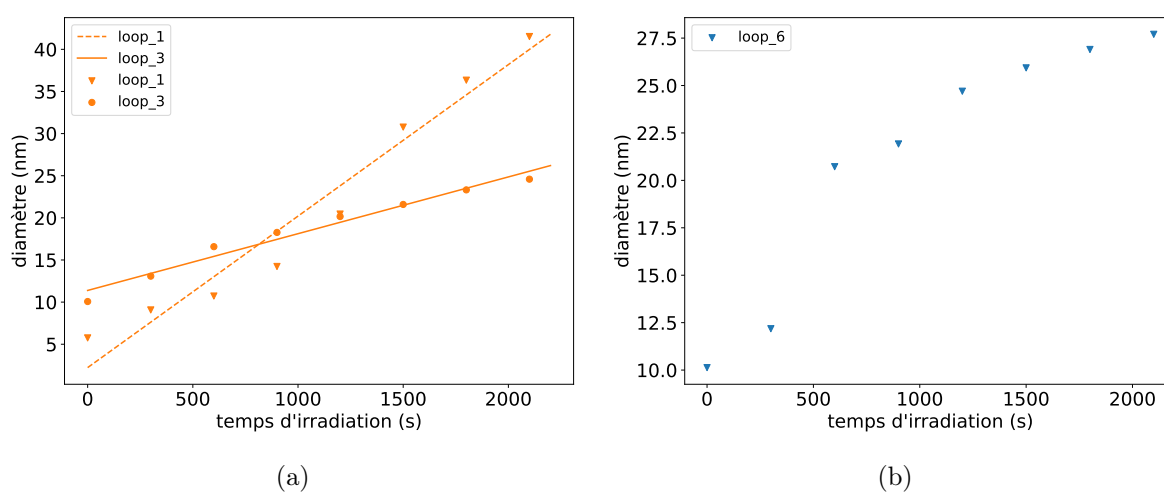


Figure 2.22 – Mise en lumière du comportement individuel de certaines boucles : (a) comparaison de la croissance de deux boucles de même orientation, elles ont toutes les deux une évolution à peu près linéaire mais présentent des vitesses différentes, (b) exemple d'une boucle dont la croissance n'évolue pas de manière linéaire au cours de l'irradiation.

2.5 Irradiation à différentes températures

Cette section présente les irradiations menées au CEMES dans une gamme de température allant de 17 à 170°C. Ces expériences ont pour but de récolter des informations sur l'activation thermique de la croissance des boucles hors contrainte. Cinq expériences sont réalisées dans le même échantillon et plus précisément dans le même grain. Les zones irradiées sont placées à proximité les unes des autres afin de pouvoir considérer que les épaisseurs sont équivalentes. L'épaisseur locale n'a pas été mesurée, elle devrait se situer entre 100 et 200 nm. L'échantillon est placé dans un porte-objet GATAN chauffant. L'échantillon utilisé, dénommé A4, est une languette d'aluminium qui a subi un recuit de 2 heures à 400°C avant d'être collée sur un masque de cuivre (pour plus de détails, voir la section 3.1.2). Les conditions d'irradiation sont décrites dans la section 2.2.

Nous constatons tout d'abord qu'il n'y a pas de nucléation de boucles lorsque la température imposée est supérieure à 170°C. Cette température limite dépend d'un échantillon à un autre et des conditions d'irradiation. Nous avons constaté avec un autre échantillon (irradié avec des électrons de 200 keV au MET TECNAI) que pour deux expériences distinctes la température limite différait. Pour l'une la nucléation n'était pas possible à partir de 180°C alors que pour la seconde, elle ne l'était pas dès 170°C, ce qui reste des valeurs proches. Kiritani [93] n'observe pas de nucléation dès 170°C également alors que Fischer *et al.* [97] arrivent à obtenir des boucles entre 125°C et 230°C. La température à laquelle ils n'observent plus de nucléation est donc au moins 50°C supérieure à celle de nos expériences. Nous pouvons supposer que la température limite de nucléation dépend du taux de dommage et également de l'épaisseur locale.

Les microstructures irradiées en température dans l'échantillon A4 sont réunies dans la figure 2.23. Le diamètre d'une boucle pour chaque condition de température est tracé en fonction du temps d'irradiation sur la figure 2.24. Dans l'expérience à 50°C, les boucles sont peu discernables avant 10 min d'irradiation, c'est pour cette raison qu'il y a peu de mesures associées à cette condition. Le diamètre de ces boucles évolue de façon linéaire avec le temps d'irradiation, en accord avec la première irradiation à température ambiante de la section 2.4. Les vitesses de croissance augmentent avec la température, tout comme la mobilité des défauts ponctuels augmente avec cette dernière. Cette observation est cohérente avec l'étude de Kiritani [94] qui prédit pour l'aluminium, une croissance linéaire des boucles avec la dose, du moins pour des températures d'opération supérieures à 0°C et inférieures à 200°C.

Les micrographies obtenues lors d'une irradiation à des températures entre 50 et 170 °C montrent que la densité surfacique des boucles diminue avec la température. Comme nous estimons que l'épaisseur varie peu entre les expériences, nous pouvons avancer que la densité volumique des boucles diminue de la même manière que la densité surfacique. La figure 2.25 issue de la littérature trace la dépendance de la densité de boucles en fonction de la température. Nous constatons que celle-ci commence à saturer en-dessous de 100°C.

Le tableau 2.5 répertorie les vitesses moyennes mesurées pour chaque température. Chaque valeur moyenne est calculée à partir de mesures sur environ dix boucles. Nous choisissons des boucles situées dans la zone centrale du faisceau et qui présentent un contraste satisfaisant afin de les suivre tout le long des enregistrements.

Il est possible de déduire l'énergie de migration des lacunes E_v^m à partir des vitesses de croissance des boucles d'après les travaux de Kiritani [96] et Hardouin Duparc [108, 109]. Si on considère que la concentration de défauts ponctuels est contrôlée par le phénomène de recombinaison, que $D_i \gg D_v$ et que le système est à l'état stationnaire, la vitesse de croissance d'une

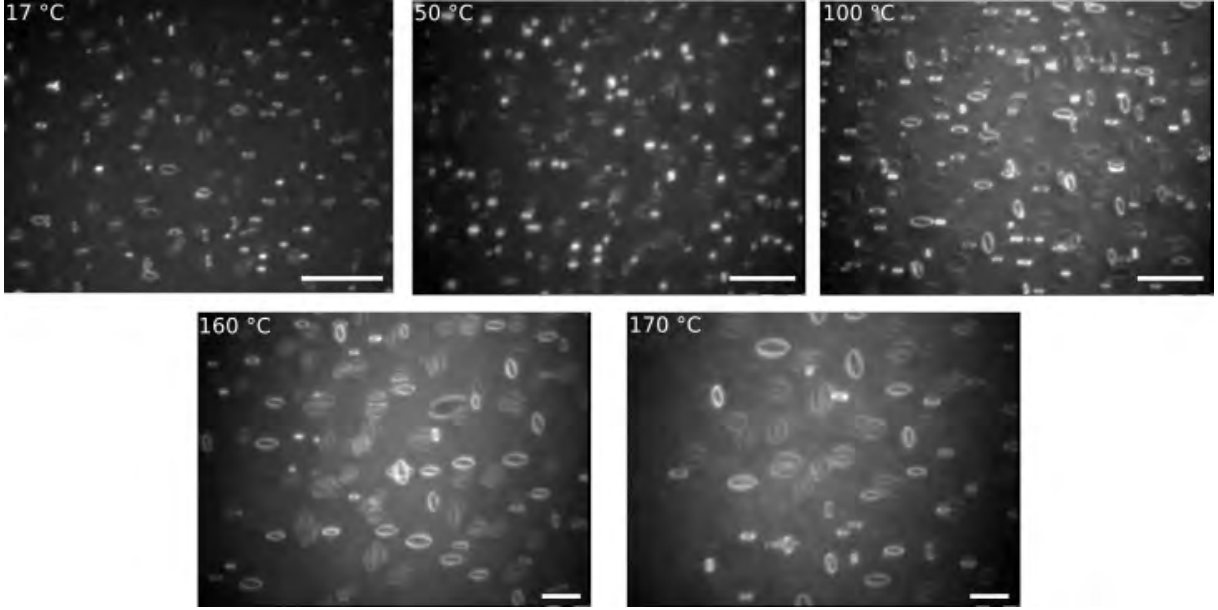


Figure 2.23 – Irradiations en température dans l'échantillon A4 au sein d'un même grain. Le flux moyen est de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ avec des électrons de 180 keV. Les différents temps d'irradiation Δt_{exp} pour chaque micrographie sont 29 min, 14 min 30 s, 11 min, 9 min et 8 min pour les micrographies de 17°C à 170°C. Les barres d'échelles correspondent à 100 nm.

Tableau 2.5 – Vitesses moyennes des boucles en fonction de la température imposée in-situ. Les moyennes sont faites sur 9 à 11 boucles pour chaque expérience.

Température (°C)	17	50	100	160	170
$dd/dt \text{ (nm.s}^{-1}\text{)}$	0,010	0,019	0,034	0,082	0,10

boucle donnée dans l'équation 1.11 devient :

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} Z_i (B - \langle B \rangle) \left(\frac{a_0^2 \nu k_{\text{tot},i}^2 G}{\alpha k_{\text{tot},v}^2} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{E_v^m}{2k_B T}\right), \quad (2.2)$$

où $\alpha = 4\pi r_{\text{iv}}$ avec r_{iv} le rayon de recombinaison. La vitesse de croissance du rayon d'une boucle dépend donc de l'énergie de migration de la lacune et suit une loi d'Arrhenius.

Nous traçons les vitesses en fonction de l'inverse de la température dans la figure 2.26. L'énergie de migration de la lacune est ensuite extraite de la pente d'après l'équation 2.2. La régression linéaire donne une énergie de migration de 0,32 eV. Cette valeur correspond à la moitié de la valeur théorique déterminée par calculs ab-initio qui est de 0,605 eV [55]. Dans le travail de thèse de Jacquelin [103], l'énergie de migration de la lacune est également estimée avec la même méthode et ils obtiennent 0,38 eV ce qui est proche de notre résultat. Kiritani [110] a obtenu des résultats plus proches de la valeur théorique (0,58 eV), figure 2.27.

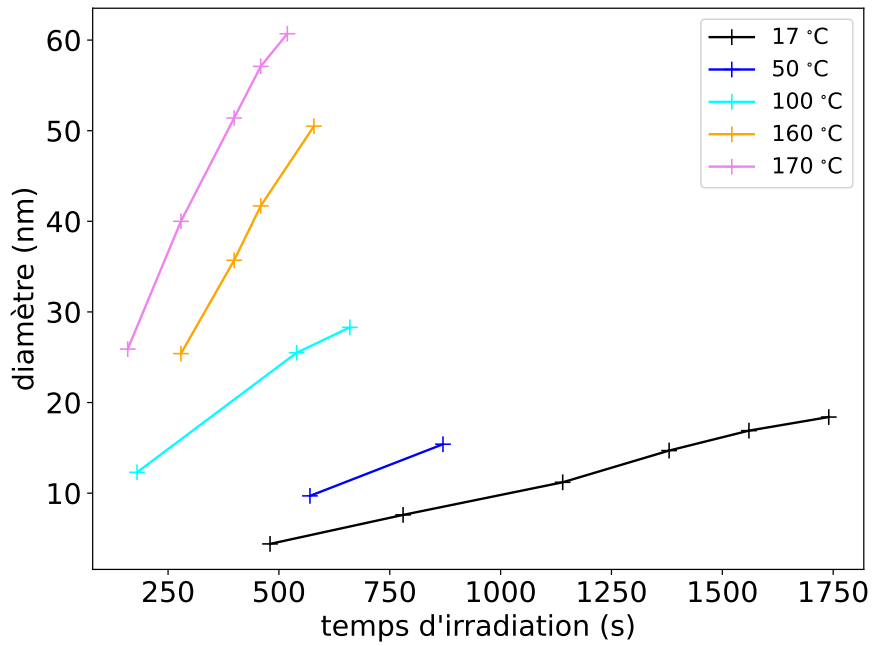


Figure 2.24 – Suivi du diamètre d'une boucle pour chaque expérience en température.

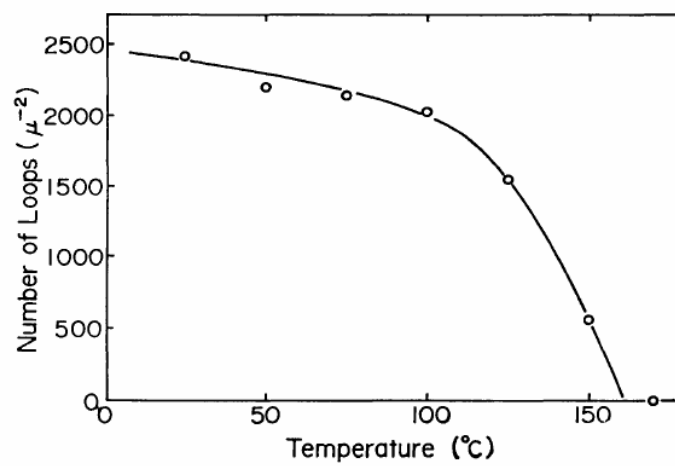


Figure 2.25 – Densité à saturation des boucles de dislocation pour une même épaisseur de lame (autour de 300 nm) avec un flux d'électrons de 1 MeV de $2,1 \times 10^{19} \text{ e}^{-} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ [93].

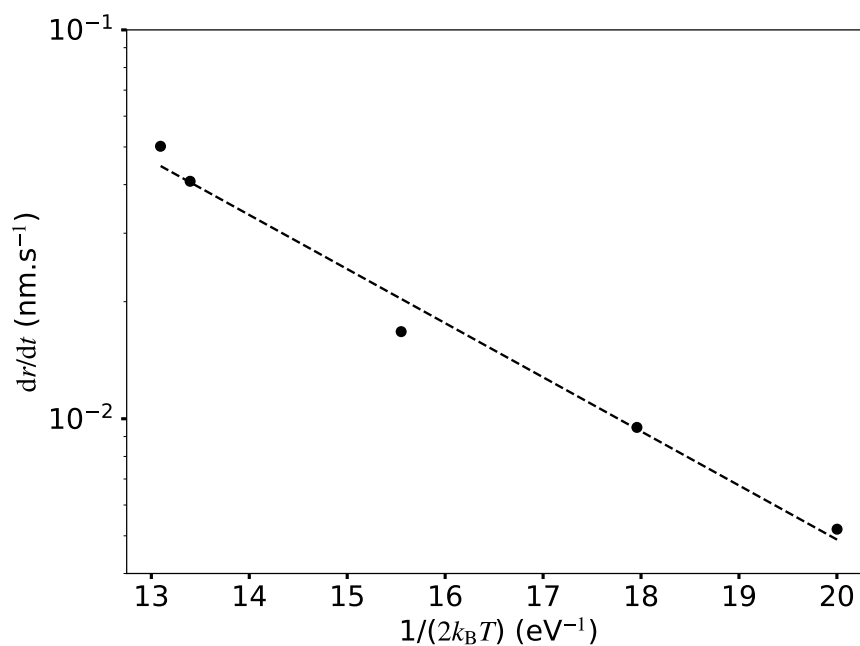


Figure 2.26 – Vitesses du tableau 2.5 en fonction de $1/2k_B T$. La pente de cette droite est censée correspondre à l'énergie de migration de la lacune. La pente de la régression linéaire de ces points est $-0,32$ eV. Les vitesses sont données en échelle logarithmique.

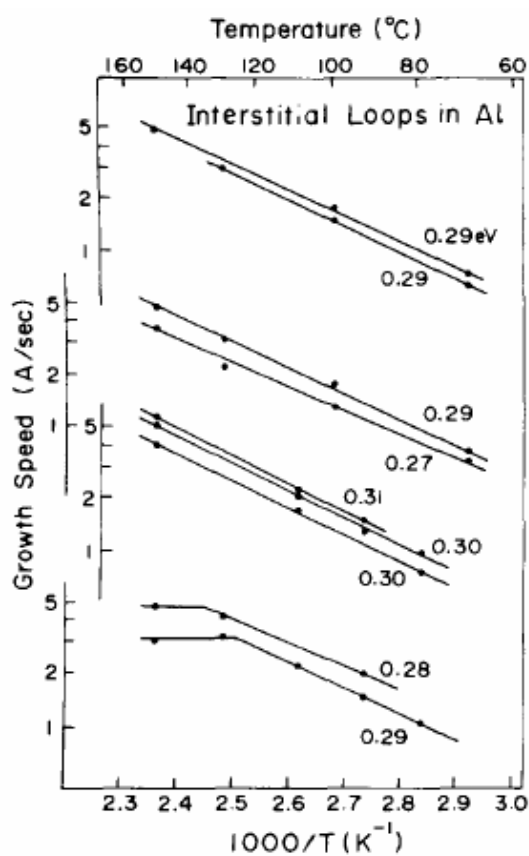


Figure 2.27 – Dépendance thermique de la croissance des boucles à des températures élevées où les lacunes sont mobiles dans de l'aluminium. Les valeurs indiquées correspondent à la moitié de l'énergie de migration calculée pour la lacune [110].

Lorsque l'énergie est inférieure à la valeur théorique, elle est justifiée dans la littérature comme étant une valeur moyenne de l'énergie d'activation d'une mono-lacune et d'une bi-lacune, cette dernière étant supposément plus mobile [94, 110]. Pour le cas de l'aluminium, cet argument ne peut pas s'appliquer puisque des simulations atomistiques montrent que les bi-lacunes sont instables [111, 112]. Hardouin-Duparc *et al.* [109] constatent avec le cas du fer que l'énergie déduite de courbes d'Arrhenius change entre l'expérience de montée en température et celle en descente. L'énergie lors de la montée en température est plus importante, ce qui laisse penser que la diminution de E_V^m est une conséquence de la désorption d'impuretés au premier recuit. Dans leur cas, les deux énergies qu'ils ont calculées restent dans l'intervalle théorique pour le cas du fer. Même si l'échantillon en question pour notre essai a subi un recuit au préalable, le calcul ab-initio ne prend pas en compte les impuretés. Si elles étaient impliquées dans notre expérience, l'énergie de migration calculée devrait être supérieure à la valeur théorique, ce qui n'est vraisemblablement pas le cas ici. Kiritani *et al.* [96] ont relevé E_V^m pour différentes épaisseurs connues dans le cas du cuivre. D'après leurs observations, la vitesse de croissance est indépendante de la température dans les régimes de températures élevées si les échantillons sont plus minces que $0,22 \mu\text{m}$. C'est donc sûrement pour cette même raison que certains points ne sont pas considérés dans leur figure 2.27.

En fonction des points considérés dans la figure 2.26, l'énergie E_V^m déduite est grandement modifiée. Cette variabilité suggère que nous n'avons pas obtenu une courbe d'Arrhenius. Cela signifie que la méthode n'est pas forcément très précise. D'autres méthodes semblent plus précises pour la mesure de l'énergie de migration comme les expériences de recuit de résistivité [113]. Des pistes d'explication sont données dans le chapitre 5.

En plus d'accélérer la croissance, l'augmentation de la température accélère les phénomènes de coalescence de boucles et de défautement puisque lesdites boucles atteignent plus rapidement des tailles importantes. Les figures 2.28 et 2.29 sont des exemples de défautement et/ou coalescence à 160 et 170°C respectivement. On peut noter que dans les deux cas, le défautement et la coalescence semblent se produire de manière simultanée, comme déjà observé dans la littérature [93]. Les boucles impliquées ne sont pas du même variant au vu de leur contraste opposé (externe/interne en figures 2.28a et 2.29b). Les boucles résultantes semblent orientées de la même façon pour les deux températures (figures 2.28b et 2.29b). A 160°C , la boucle parfaite de la figure 2.28c change de forme, peut-être du fait d'un début de glissement.

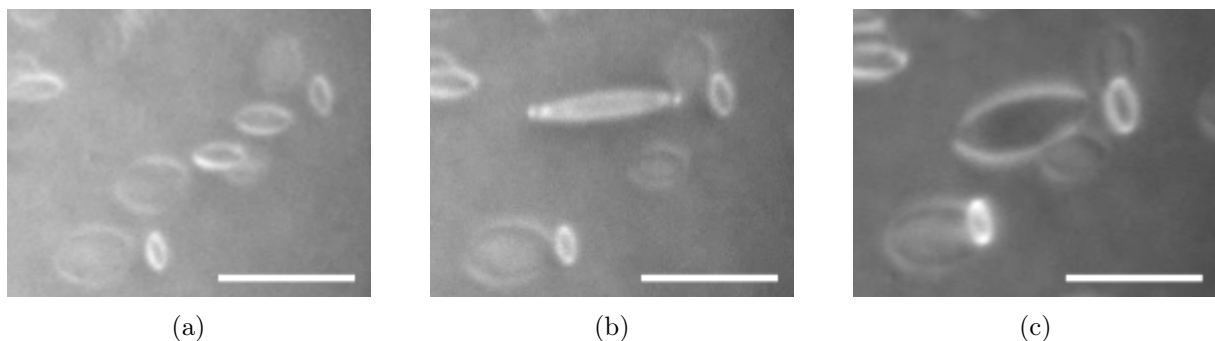


Figure 2.28 – Observation de la microstructure irradiée à 160°C à différents instants : (a) microstructure avant la coalescence des boucles, (b) microstructure après la coalescence et le défautement de trois boucles, (c) boucle parfaite vue dans la micrographie (b) après avoir changé de plan (probablement par glissement dans son cylindre). Le Δt entre (a) et (b) est de 1 min et entre (b) et (c) est de 2 min. Les barres d'échelle correspondent à 100 nm.

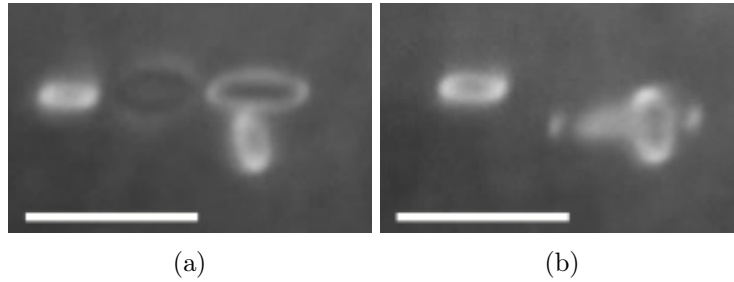


Figure 2.29 – Observation du défautement et de la coalescence de deux boucles orientées différemment en une boucle parfaite lors de l'irradiation à 170°C. Le Δt entre (a) et (b) est de 1 min. Les barres d'échelle correspondent à 100 nm.

Résumé de l'effet de la température

Au sein d'un même grain, un échantillon a été irradié à différentes températures. Nous avons constaté qu'il existe des températures limites au-delà desquelles il n'y a pas de nucléation de boucles interstitielles possible. Dans ces régimes, les interstitiels migrent rapidement vers les surfaces libres. L'évolution des boucles s'accélère avec l'augmentation de la température, que ce soit leur croissance ou les phénomènes de défautement et de coalescence. La densité volumique des boucles diminue avec la température. Nous avons essayé de déterminer l'énergie de migration de la lacune à partir du modèle analytique comme Kiritani, mais la méthode ne semble pas adaptée à nos expériences d'irradiation, au vu des contradictions entre nos mesures et celles de Kiritani.

2.6 Effet de l'épaisseur sur la dynamique des boucles

La connaissance de l'épaisseur locale d'une zone irradiée permet de remonter à une densité volumique des boucles à partir du comptage du nombre de boucles par unité de surface. D'autre part, l'évolution de la microstructure lors de l'irradiation d'une lame mince peut-être affectée par les surfaces libres [96, 114, 115]. Ce paramètre est donc à considérer et à déterminer pour l'interprétation des résultats. La suite de cette section présente les deux méthodes utilisées pour évaluer l'épaisseur locale en MET, suivie des résultats d'irradiations à différentes positions au sein d'un grain afin d'obtenir un premier aperçu de l'influence de l'épaisseur sur la microstructure.

2.6.1 Méthode pour la mesure d'épaisseur locale

Méthode géométrique de longueur de dislocation

La première méthode repose sur la détermination de la longueur et de la direction d'une dislocation qui émerge sur les deux surfaces d'une lame mince. Les dislocations sont choisies en périphérie des zones irradiées. Pour le calcul de l'épaisseur, la procédure décrite dans le travail de Mompou et Xie [116] est appliquée à l'aide du logiciel pycotem.

L'épaisseur t peut être déterminée à partir de la longueur apparente de la dislocation l_p et sa direction \mathbf{l}_p :

$$t = l_p \left| \frac{\cos(\mathbf{l}, \mathbf{s})}{\cos(\mathbf{l}_p, \mathbf{l})} \right|, \quad (2.3)$$

où \mathbf{l} est la direction de la ligne et \mathbf{s} la normale de la surface de la lame. La direction \mathbf{s} est supposée proche de la direction du faisceau lorsque l'échantillon n'est pas incliné. Ces paramètres sont schématisés dans la figure 2.30. Ils sont déterminés avec le logiciel pycotem à partir d'une série de micrographies de la dislocation d'intérêt à différentes inclinaisons de l'échantillon. L'orientation

du cristal à inclinaison nulle de l'échantillon est déterminée au préalable avant le traitement des images. L'erreur sur la mesure d'épaisseur avec la méthode de projection est de $\pm 5\%$.

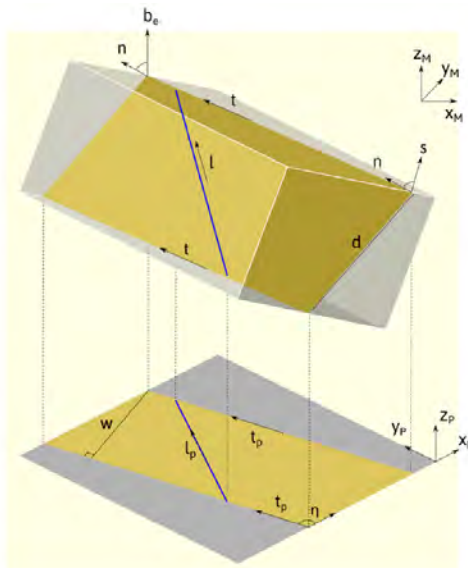


Figure 2.30 – Schéma montrant la géométrie d'une dislocation dans un plan d'une lame mince projetée sur l'écran d'observation. La connaissance de la direction du faisceau, la ligne de projection ou la direction d'une trace de glissement et de la largeur de la projection d'un plan ou de la longueur de la ligne à différentes inclinaisons permettent de déterminer la normale du plan ou la direction de la ligne l [116].

Méthode CBED

Il existe une autre méthode qui ne nécessite aucun objet tel qu'une dislocation ou la présence de traces de glissement : la méthode graphique en CBED (pour *Convergent-Beam Electron Diffraction*). Elle a été développée par Kelly *et al.* [117] puis revue par Allen [118, 119]. Elle repose sur la mesure de l'espacement des oscillations d'intensité dans le faisceau diffracté. Un des prérequis est de se placer en conditions exactes de Bragg comme illustré dans la figure 2.31.

En se reposant sur la théorie dynamique de la diffraction avec l'approximation deux ondes, l'épaisseur locale en fonction des minimums d'intensité dans le disque diffracté s'écrit [117] :

$$\frac{s_i^2}{n_k^2} = -\frac{1}{\xi_g^2 n_k^2} + \frac{1}{t^2}. \quad (2.4)$$

Cette expression fait le lien entre l'épaisseur traversée par le faisceau t , la distance d'extinction ξ_g correspondant à la condition g et s_i le i -ème écart par rapport à la position exacte de Bragg. n_k sont des nombres entiers. Les écarts de Bragg se calculent de cette façon :

$$s_i = \frac{\lambda \Delta\theta_i}{2\theta_d d_{hkl}^2}, \quad (2.5)$$

avec

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}, \quad (2.6)$$

avec λ la longueur d'onde du faisceau, $\Delta\theta_i$ la distance entre la i -ème frange secondaire et à la frange principale (franges sombres dans le motif de diffraction), $2\theta_d$ la distance entre les deux franges principales et d_{hkl} la distance interréticulaire des plans diffractés. Ces différentes distances

à mesurer sont indiquées sur une vraie figure CBED, sur la figure 2.32.

La méthode graphique pour remonter à la valeur de t consiste à tracer s_i^2/n_k^2 en fonction de $1/n_k^2$. La figure 2.33 est un exemple de l'application de cette méthode graphique. D'après l'équation 2.4, la pente correspond à l'opposé de l'inverse du carré de la distance d'extinction. L'intersection de la courbe avec l'axe des ordonnées en zéro donne l'épaisseur suivant les plans diffractés. Le choix de n_k est vérifié en comparant la valeur de ξ_g calculée graphiquement avec la valeur théorique. La distance d'extinction peut être déterminée théoriquement par cette équation [92] :

$$\xi_g = \frac{\pi V \cos(\theta_B)}{\lambda F_g}. \quad (2.7)$$

V est le volume de la maille élémentaire, θ_B est l'angle de Bragg, et F_g le facteur de structure. Comme nous utilisons un matériau pur, nous nous reportons directement au tableau de valeurs de Reimer et Kohl [120] où sont regroupées les distances d'extinction théoriques pour différents matériaux pour différentes conditions de diffraction. Les valeurs sont données pour une tension de 100 kV. Pour une autre tension d'opération U_{op} , la distance peut être convertie grâce au rapport de vitesse entre les deux tensions de cette façon [120, 92] : $\xi_g \times \frac{V_{U_{op}}}{V_{100}}$. Kelly et Allen affirment que la précision de leur méthode est de 2 et 3% respectivement. Cependant il a été souligné que des erreurs sont possibles dues aux effets de multi-diffraction, de la diffusion inélastique ou de l'absorption anormale qui peut entraîner un déplacement des franges sombres et claires [118, 121]. Il existe alors deux valeurs limites d'épaisseur (minimale et maximale) au-delà desquelles la méthode CBED n'est plus appropriée, par opposition à la méthode géométrique présentée précédemment. Par précaution et sur la base du travail de thèse de Ma [122], nous considérons l'erreur à $\pm 10\%$ pour toutes les mesures de CBED.

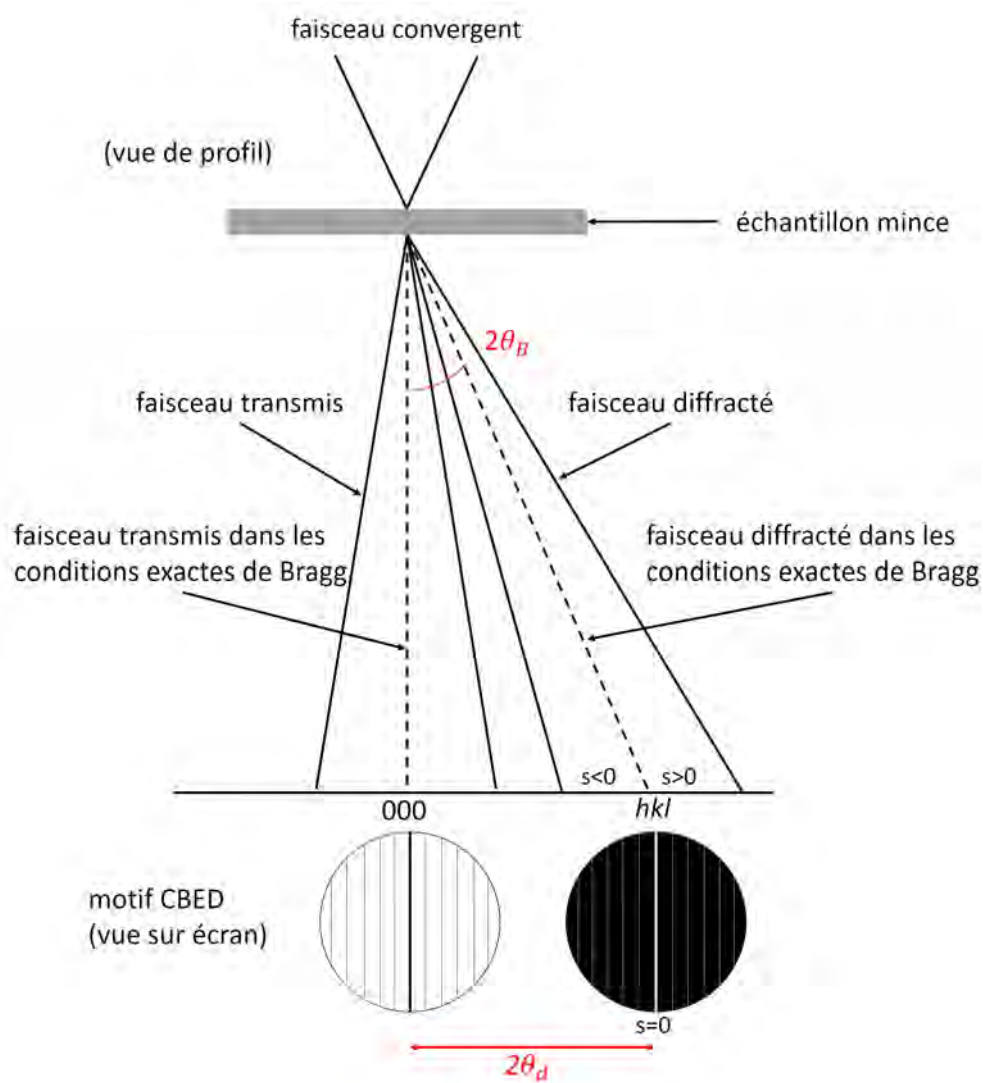


Figure 2.31 – Schéma de la figure CBED en condition deux ondes. Cela se traduit sur le motif CBED par le passage des lignes de Kikuchi (franges principales) par le centre de chaque disque.

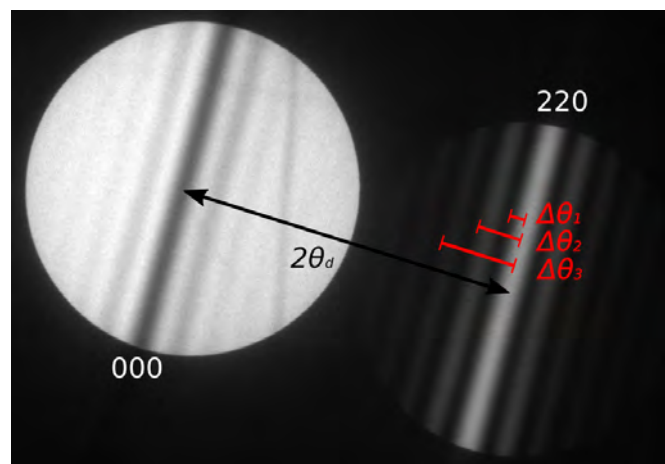


Figure 2.32 – Figure CBED prise en MET avec $g = 220$ dans un échantillon d'aluminium. Le disque de gauche est le faisceau transmis et celui de droite le faisceau diffracté. Les distances $2\theta_d$ et $\Delta\theta_i$ nécessaires pour l'estimation de l'épaisseur sont indiquées en noir et en rouge, respectivement.

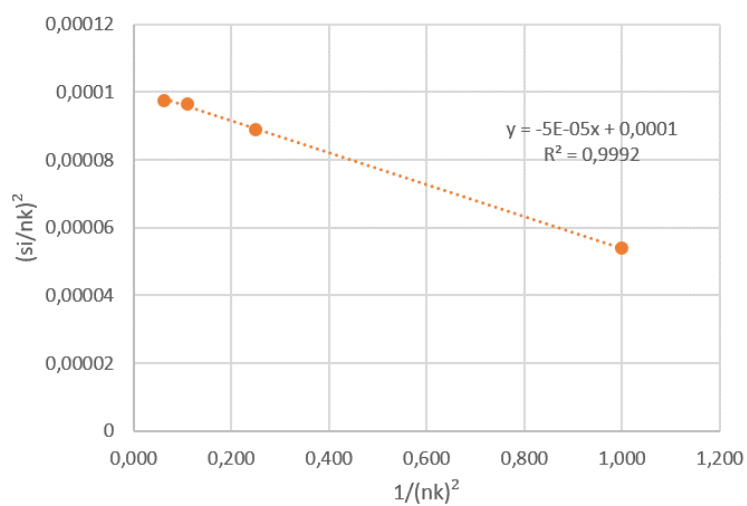


Figure 2.33 – Détermination de l'épaisseur locale à partir de la figure CBED de la figure 2.32. La distance d'extinction calculée à partir de la pente est de 146 nm, sachant que la valeur théorique est de 145 nm. Le choix du premier terme de la série d'entier n_k est donc validé. L'épaisseur locale peut être déduite de l'intersection de la droite avec l'axe des ordonnées en zéro, $t = 100$ nm.

2.6.2 Irradiation à différentes épaisseurs au sein d'un même échantillon

Pour ces expériences, nous irradiions avec des électrons de 200 keV un même échantillon qui n'a jamais été irradié auparavant. Il est irradié cinq fois et nous nous déplaçons entre chaque irradiation, tout en nous éloignant du bord du trou d'électro-polissage.

La zone 1 correspond à l'irradiation dans la plus grande épaisseur et la zone 5, la plus petite. Pour ces cinq expériences, le taux de dommage varie entre $1,2 \times 10^{-4}$ dpa.s⁻¹ et $1,4 \times 10^{-4}$ dpa.s⁻¹. La vue d'ensemble des essais au sein du grain et la distance entre les différentes zones irradiées peuvent être appréciées sur la figure 2.34. Dans la région la plus épaisse, la densité de dislocations est plus importante, elles forment des sous-joints de grains. Afin d'estimer les épaisseurs locales, une ou deux mesures CBED sont faites aux limites des zones irradiées. Nous avons privilégié la méthode CBED car il n'y a pas systématiquement une dislocation à proximité de la zone d'intérêt.

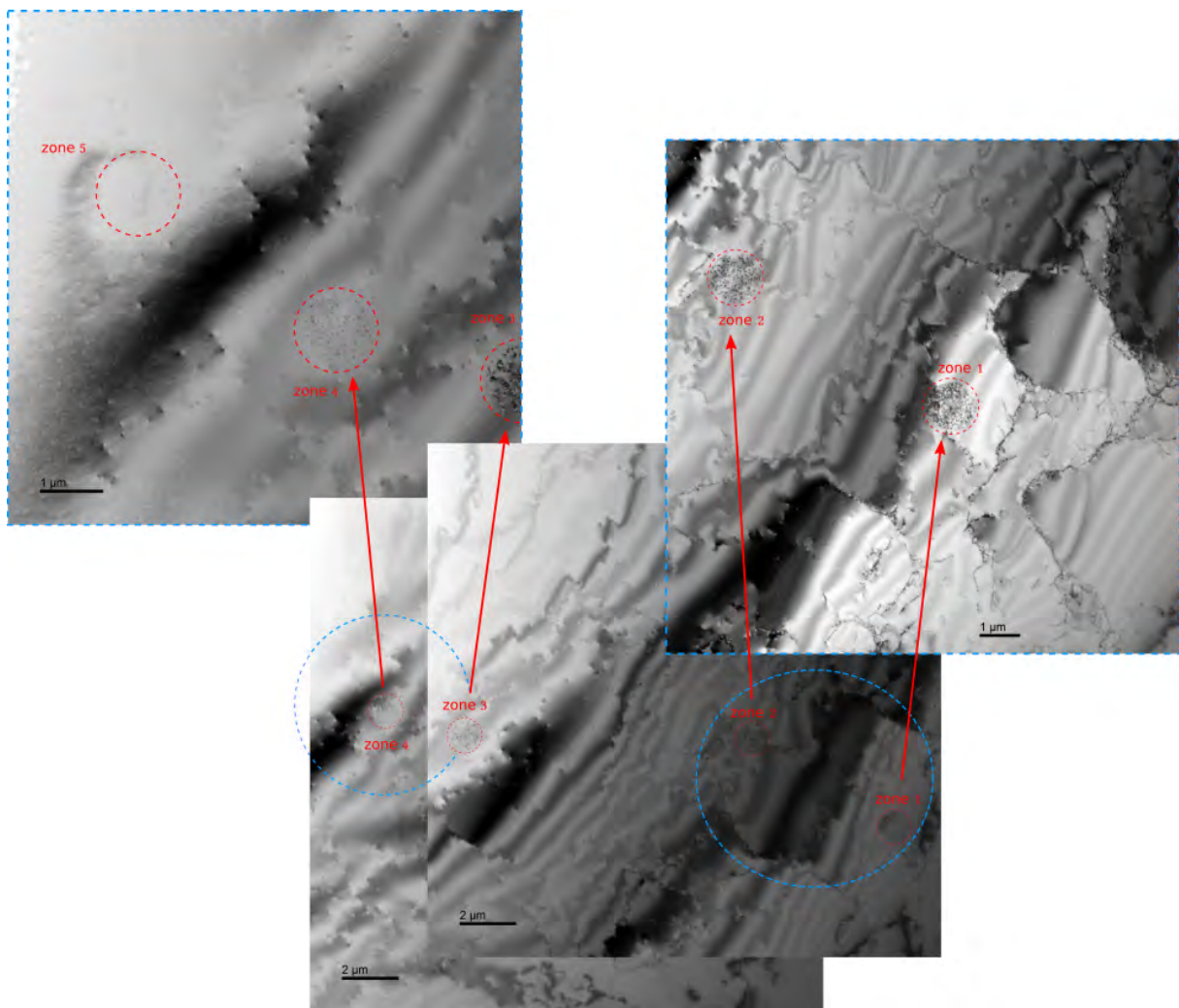


Figure 2.34 – Vue d'ensemble des zones irradiées à différentes épaisseurs au sein d'un même grain. Ces zones sont délimitées par des cercles rouges. Le trou d'électropolissage est situé à gauche par rapport aux zones irradiées. La zone 1 (vers la droite) est l'irradiation dans la zone la plus épaisse et la zone 5 dans la zone la plus mince.

Les microstructures après 35 min d'irradiation et les distributions de tailles de boucles associées sont réunies dans la figure 2.35. Les résultats des mesures CBED et les densités volumiques déduites sont présentés dans le tableau 2.6. L'épaisseur dans la zone 5 n'a pas pu être mesurée

car les limites de la méthode CBED sont atteintes, le disque de diffraction de la figure 2.36a ne présente pas de frange. Nous pouvons seulement affirmer que l'épaisseur de la zone 5 est inférieure à celle de la zone 4.

Tableau 2.6 – Mesures d'épaisseur et de la taille des boucles dans les cinq zones irradiées présentées dans la figure 2.34. Les densités volumiques des boucles sont déduites du décompte des boucles sur les micrographies de la figure 2.35.

zone irradiée	1	2	3	4	5
épaisseur locale mesurée par CBED (nm)	304 ± 30	236 ± 5	93 ± 25	60 ± 10	< 60
densité de boucles (m^{-3})	$3,1 \times 10^{21}$	$2,5 \times 10^{21}$	$5,5 \times 10^{21}$	$4,1 \times 10^{21}$	-
taille moyenne/maximale des boucles (nm)	12,8 / 34,1	17,1 / 31,2	17,1 / 36,6	17,2 / 38,6	5,5 / 15,1

Deux mesures CBED ont été réalisées de part et d'autre de la zone 2 et 3. Les surfaces irradiées mesurent toutes environ $1,2 \mu\text{m}$ de diamètre. Alors que pour la zone 2, les deux mesures d'épaisseurs sont similaires, pour la zone 3, l'écart entre les deux épaisseurs calculées par CBED est de 30 nm environ. L'épaisseur évolue donc différemment au sein des zones irradiées d'une expérience à l'autre. La micrographie de l'irradiation 5 (figure 2.35e) est une autre preuve de cette variation abrupte de l'épaisseur au sein de la zone irradiée. La nucléation n'a pas lieu au centre du faisceau d'électrons (où le flux est le plus intense) mais dans la bordure de la zone irradiée où l'épaisseur est la plus grande. Nous confirmons ce point en irradiant de nouveau entre le trou et la zone 5, c'est-à-dire une zone encore plus mince, et comme attendu, il n'y a pas de nucléation. Cette expérience correspond à la figure 2.37. Il existe donc une épaisseur limite en-dessous de laquelle la nucléation des boucles n'est pas possible.

Les micrographies en figure 2.35 montrent qualitativement que la densité surfacique des boucles diminue avec l'épaisseur après 35 min d'irradiation. Les densités volumiques de boucles calculées sont données dans le tableau 2.6. Lorsque le nombre de boucles est rapporté à l'épaisseur, il n'y a pas de tendance significative qui ressort. En plus de présenter des densités du même ordre de grandeur, les boucles ont des tailles moyennes équivalentes entre les zones 2 à 4, indiquant que le paramètre d'épaisseur n'a pas d'effet significatif sur la croissance des boucles, dans cette gamme de 60-240 nm. Les distributions associées présentent la même allure : elles sont assez larges, de par la présence de boucles relativement grandes grâce à un temps d'irradiation suffisamment long et des petites boucles, dont la croissance stagne ou qui apparaissent au cours de l'irradiation (nouvelles nucléations). En zone de forte épaisseur (zone 1), la distribution est plus étroite, ce qui est normalement le cas des irradiations sur une courte durée. La boucle la plus large mesurée est du même ordre de grandeur que les autres expériences (mais tout de même inférieure à celle en zone 4). La taille moyenne associée indique que la vitesse de croissance est légèrement inférieure. En comparant l'allure de l'histogramme et la taille moyenne des boucles, entre les différentes épaisseurs, nous pouvons conclure qu'irradier dans une épaisseur d'au moins 300 nm ralentit la cinétique des boucles. La décélération est bien plus significative si on se rapproche de l'épaisseur seuil de nucléation, figure 2.35e, c'est-à-dire en-dessous de 60 nm d'épaisseur dans nos conditions d'irradiation.

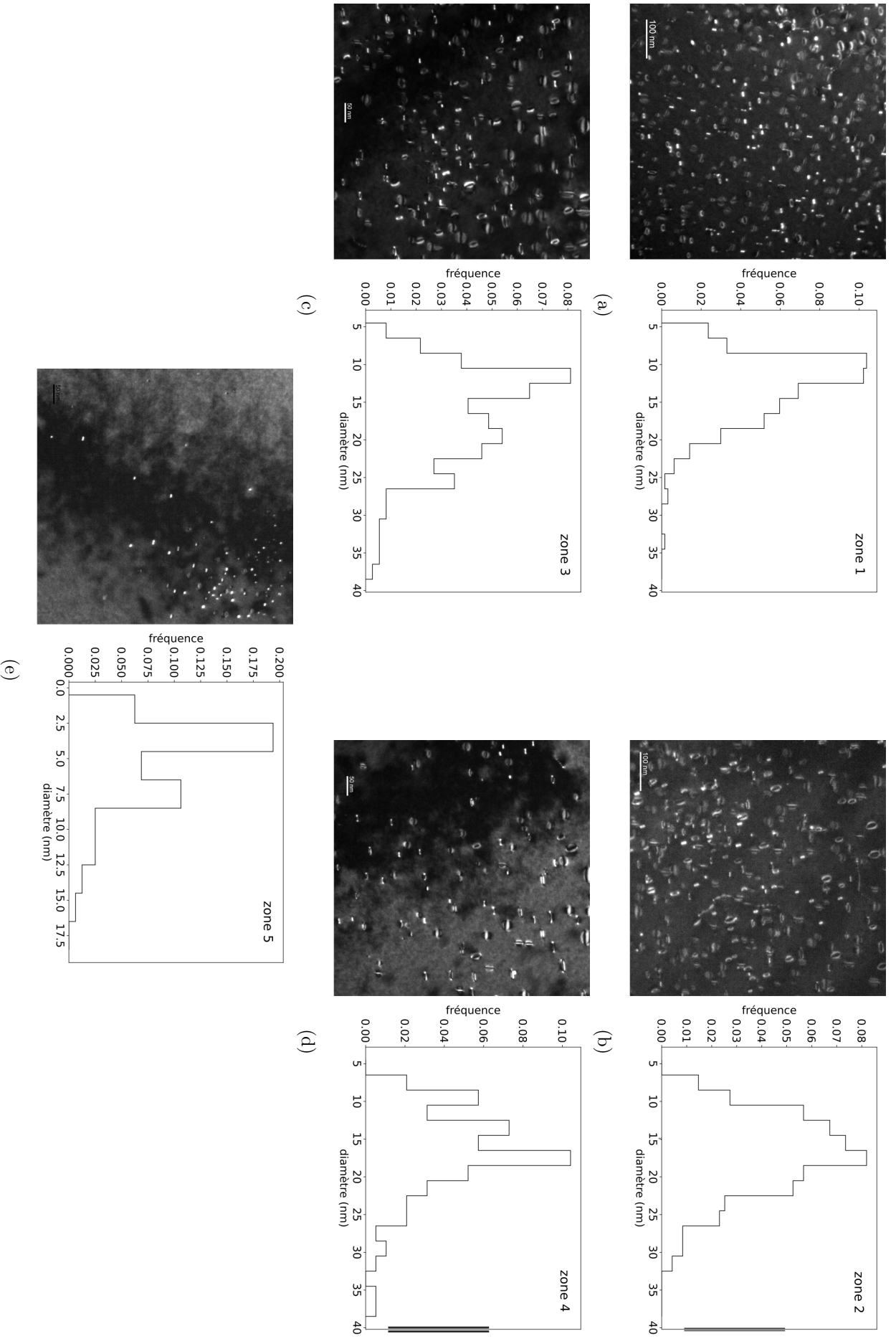


Figure 2.35 – Microstructures obtenues à différentes épaisseurs après 35 min d’irradiation et distributions associées des diamètres des boucles. De la figure (a) à (e), l’épaisseur locale irradiée diminue. Dans les distributions de tailles de boucles, les boucles de moins de 5 nm sont ignorées parce qu’en-dessous de cette taille leur contour est mal défini, exception faite pour la zone 5 puisque la grande majorité des boucles mesurent moins de 5 nm.

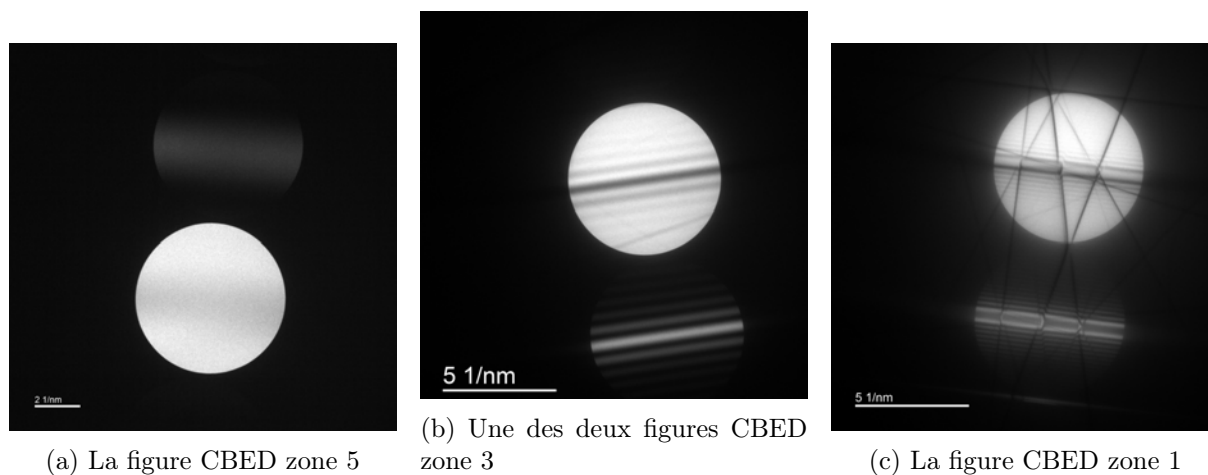


Figure 2.36 – Figures CBED à différentes épaisseurs, à proximité des zones irradiées. Les limites de la méthode CBED sont atteintes lorsque l'épaisseur traversée par le faisceau est trop mince ce qui induit que les franges de diffraction n'apparaissent plus dans les disques car trop distantes entre elles (a). Il existe aussi une limite supérieure au-delà de laquelle les franges sont tellement proches, qu'elles se confondent et leur distance ne peuvent pas être mesurée.

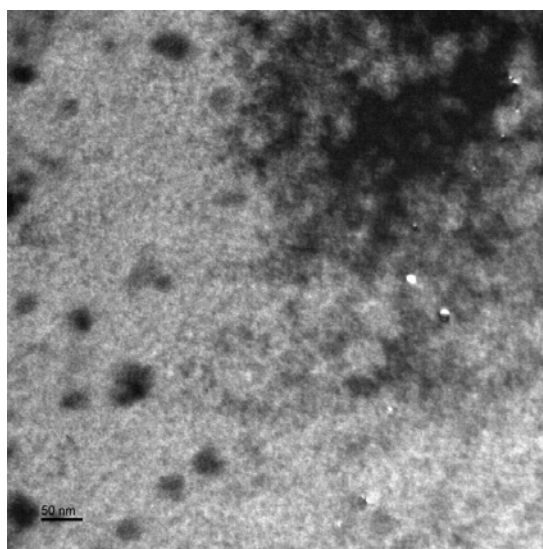


Figure 2.37 – Microstructure après 15 min d'irradiation réalisée entre la zone 5 et le trou de l'échantillon. L'épaisseur critique en deça de laquelle il n'y a plus de nucléation possible a été atteinte.

Résumé de l'effet de l'épaisseur

En conclusion, l'effet de l'épaisseur est un paramètre qui reste complexe à interpréter. Son effet est visible dans les cas extrêmes : zone épaisse (300 nm) où la croissance est ralentie et zone très mince (<60 nm) où elle est également ralentie voire impossible. La relative homogénéité des résultats pour les cas intermédiaires, en terme de taille moyenne de boucles et densité volumique, laisse penser que la nucléation est homogène dans la lame dans une certaine gamme d'épaisseur (60-240 nm).

2.7 Irradiation avec un flux plus élevé

L'objectif de cette section est d'étudier un possible effet de l'intensité du flux d'électrons sur la cinétique des boucles. Pour cela nous avons irradié un échantillon avec un flux trois fois plus élevé que dans l'expérience de la section 2.4.

L'irradiation est réalisée dans l'échantillon A1 de la section 2.3.2 avec un flux de $3,06 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ à température ambiante avec des électrons de 200 keV. Ces conditions correspondent à un taux de dommage d'environ $4 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$. L'irradiation est maintenue 25 minutes, l'état de la microstructure à différents instants et l'orientation du cristal sont donnés dans la figure 2.38.

La microstructure au début du suivi des boucles (à $t_{\text{exp}} = 0 \text{ min}$) présente des points brillants ce qui signifie que des boucles ont commencé à se former au cours des réglages. Ces boucles restent très petites. Certaines boucles apparaissent sur la tranche de par le choix du vecteur de diffraction ($\mathbf{g} = \bar{1}\bar{1}\bar{1}$), pour les autres, la faute d'empilement caractéristique des boucles de Frank est mise en valeur.

Si on compare la microstructure à 15 minutes et 25 minutes d'irradiation, le nombre de boucles diminue. Certaines régions de l'état final de la microstructure ne présentent plus de boucle. Des dislocations sont visibles à la place, elles sont indiquées par des flèches blanches. A partir des précédentes irradiations présentées dans ce chapitre, nous pouvons affirmer que la disparition de certaines boucles fait suite au défautement et/ou à leur coalescence.

L'épaisseur locale a été mesurée par méthode CBED, elle est de $102 \pm 11 \text{ nm}$. Nous avons vu qu'un certain nombre de boucles ont interagi entre elles avant la fin de l'irradiation, et par conséquent, qu'une partie de l'historique des boucles est effacée à l'état final. Pour cette raison nous calculons la densité volumique des boucles à partir de la micrographie prise à 15 minutes d'irradiation : $\rho = 5,4 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Cette valeur est similaire à celle calculée dans le tableau 2.6 pour l'expérience dans une épaisseur du même ordre de grandeur alors que le taux de dommage est à peu près trois fois supérieur.

Nous observons également que plusieurs boucles présentent un plan supplémentaire de forme triangulaire lorsque le contour de ce plan est bien défini. Elles sont indiquées par des triangles rouges dans la figure 2.38.

Cette microstructure est donc un peu différente de celle obtenue avec un flux trois fois plus faible (figure 2.20). L'expérience à fort flux dure moins longtemps (10 minutes de moins) et les boucles sont globalement plus grandes que dans la figure 2.20d.

Les tailles des boucles entourées dans la figure 2.38 sont tracées en fonction du temps d'irradiation dans la figure 2.39. Leur diamètre est mesuré toutes les 5 minutes. Parmi les 12 boucles suivies, certaines sont apparues au bout de 10 minutes d'irradiation. Les vitesses de croissance sont en effet plus élevées que celles de la figure 2.21, à plus faible flux. Dans cette expérience l'évolution des boucles reste linéaire, du moins sur les durées que nous avons expérimentées. A

partir des pentes des régressions linéaires, nous calculons que la vitesse moyenne sur le diamètre est $dd/dt = 0,027 \pm 0,011 \text{ nm.s}^{-1}$. Elle est environ trois fois plus élevée que la vitesse calculée dans l'expérience à plus faible flux. De ces deux expériences, nous concluons que la vitesse de croissance est proportionnelle au flux.

Ce comportement correspond au régime d'élimination vers les puits. Cela se comprend avec l'équation de la vitesse de croissance des boucles (équation 1.11). En effet, si nous considérons que le terme de recombinaison $K_{i,v}C_vC_i$ de l'équation 1.4 est négligeable, alors la concentration de lacunes s'écrit $C_v = G/k_{\text{tot},v}^2D_v$ (à l'état stationnaire). Dans ce cas, la vitesse de croissance ne dépend plus de D_v et elle est proportionnelle à G , le taux de création de défauts. A contrario, lorsque nous négligeons le terme de migration vers les puits, $k_{\text{tot},v}^2D_vC_v$, dans l'équation 1.4, la vitesse de croissance d'une boucle en régime de recombinaison est proportionnelle à \sqrt{G} comme cela avait déjà été démontré dans l'équation 2.2.

Le fait que nos irradiations se placent dans le régime d'élimination vers les puits peut expliquer la valeur erronée d'énergie de migration de la lacune déduite de nos expériences en température (section 2.5).

Grâce au suivi des tailles des boucles pour deux expériences avec des taux de dommage différents, nous avons constaté, dans le cadre de nos irradiations, que $dd/dt \propto G$. Dans ce cas, les tailles de boucles pour différents taux de dommage G , tracées en fonction de la dose devraient s'aligner sur une même droite. Nous vérifions si cela est vrai pour nos expériences sur la figure 2.40. Les 24 boucles issues des deux expériences d'irradiation sont regroupées sur ce graphique où les tailles sont tracées en fonction de la dose. Bien qu'il y ait quelques dispersions, l'évolution des boucles s'aligne à peu près. La dépendance linéaire de la taille des boucles par rapport au taux de création des défauts est vérifiée.

Comme pour l'échantillon A2 sur la figure 2.11, nous observons de nouveau la microstructure quelques jours après l'expérience d'irradiation. 21 jours séparent les deux micrographies montrées dans la figure 2.41. La micrographie de gauche est prise au cours de la même manipulation que dans la figure 2.38 avec un autre vecteur de diffraction \mathbf{g} . Les résultats sont cohérents avec ce que nous avons constaté au début de ce chapitre. Dans l'aluminium pur, la microstructure évolue après la fin de l'irradiation. La densité de boucles de Frank diminue et des dislocations se sont formées suite au défautement et à l'interaction entre les boucles. Il est donc nécessaire, dans le cas de l'aluminium, d'analyser la microstructure au cours et dès la fin de l'irradiation par précaution ou conserver les échantillons à l'azote liquide.

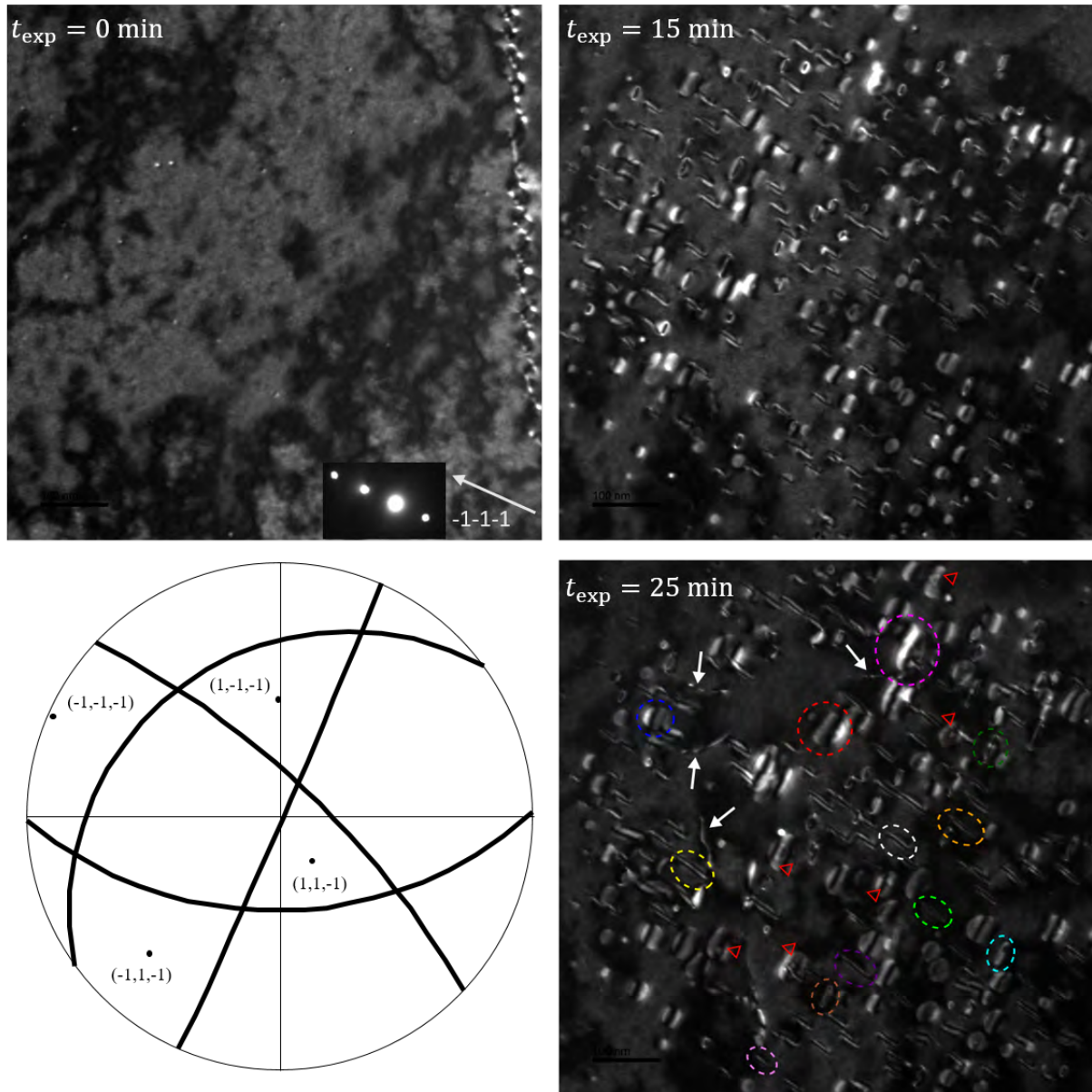


Figure 2.38 – Suivi in-situ de boucles au cours d’une irradiation avec un flux de $3,06 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L’état de la microstructure est donné à différents temps de l’irradiation. Les micrographies sont prises en condition $\mathbf{g} = \bar{1}\bar{1}\bar{1}$. L’orientation du cristal associée à ces images est indiquée par la projection stéréographique. Sur la dernière image, les flèches blanches mettent en valeur des dislocations et les triangles rouges des boucles qui présentent un plan supplémentaire en leur sein. Les boucles entourées sont celles dont le diamètre a été mesuré toutes les 5 minutes pour le calcul de la vitesse moyenne.

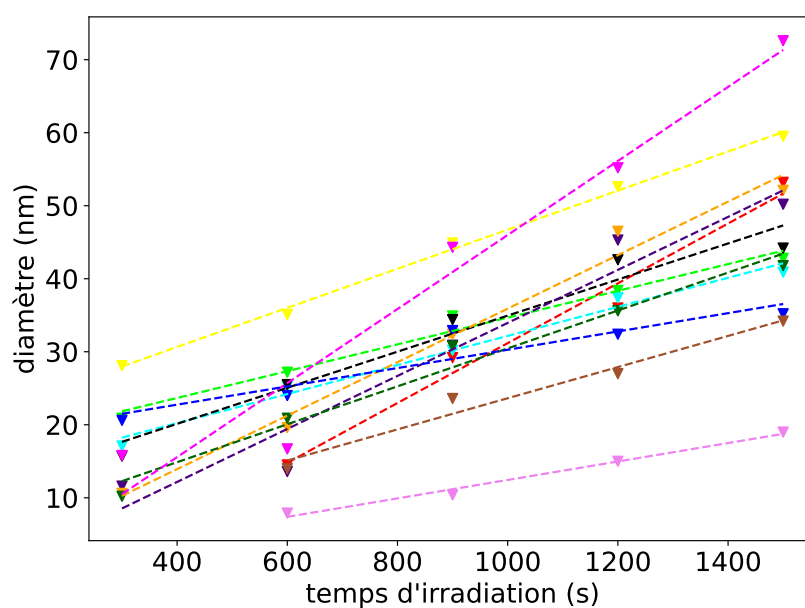


Figure 2.39 – Tailles des 12 boucles de la figure 2.38 au cours de l'irradiation. Le code couleur correspond à celui affiché dans l'image sauf pour la boucle blanche, qui est donnée en noir ici. Les droites en pointillé sont les régressions linéaires. L'erreur sur la mesure des diamètres des boucles est estimée à 4 nm environ.

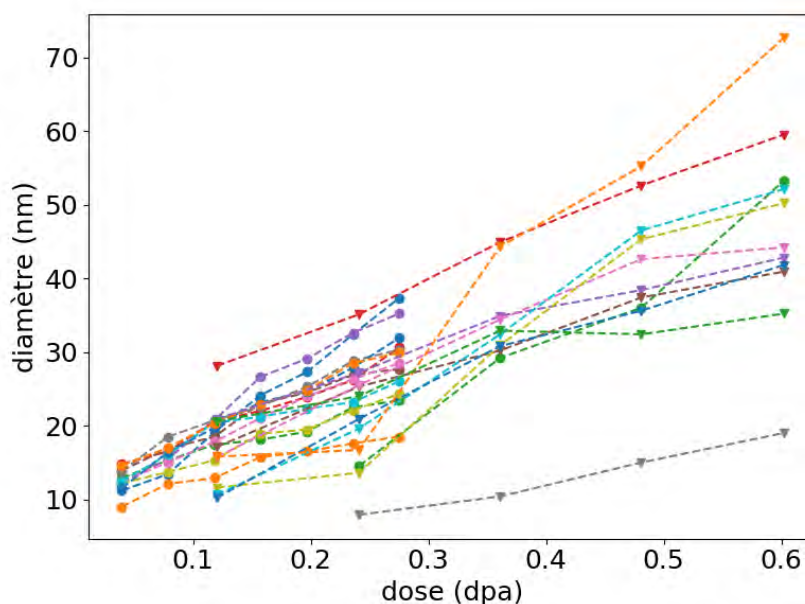


Figure 2.40 – Evolution du diamètre des boucles en fonction de la dose. Le graphique regroupe 12 boucles de l'échantillon A2 irradié avec un flux moyen de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, représentées par des cercles et 12 boucles de l'échantillon A1 irradié avec flux moyen de $3 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, représentées par des triangles.

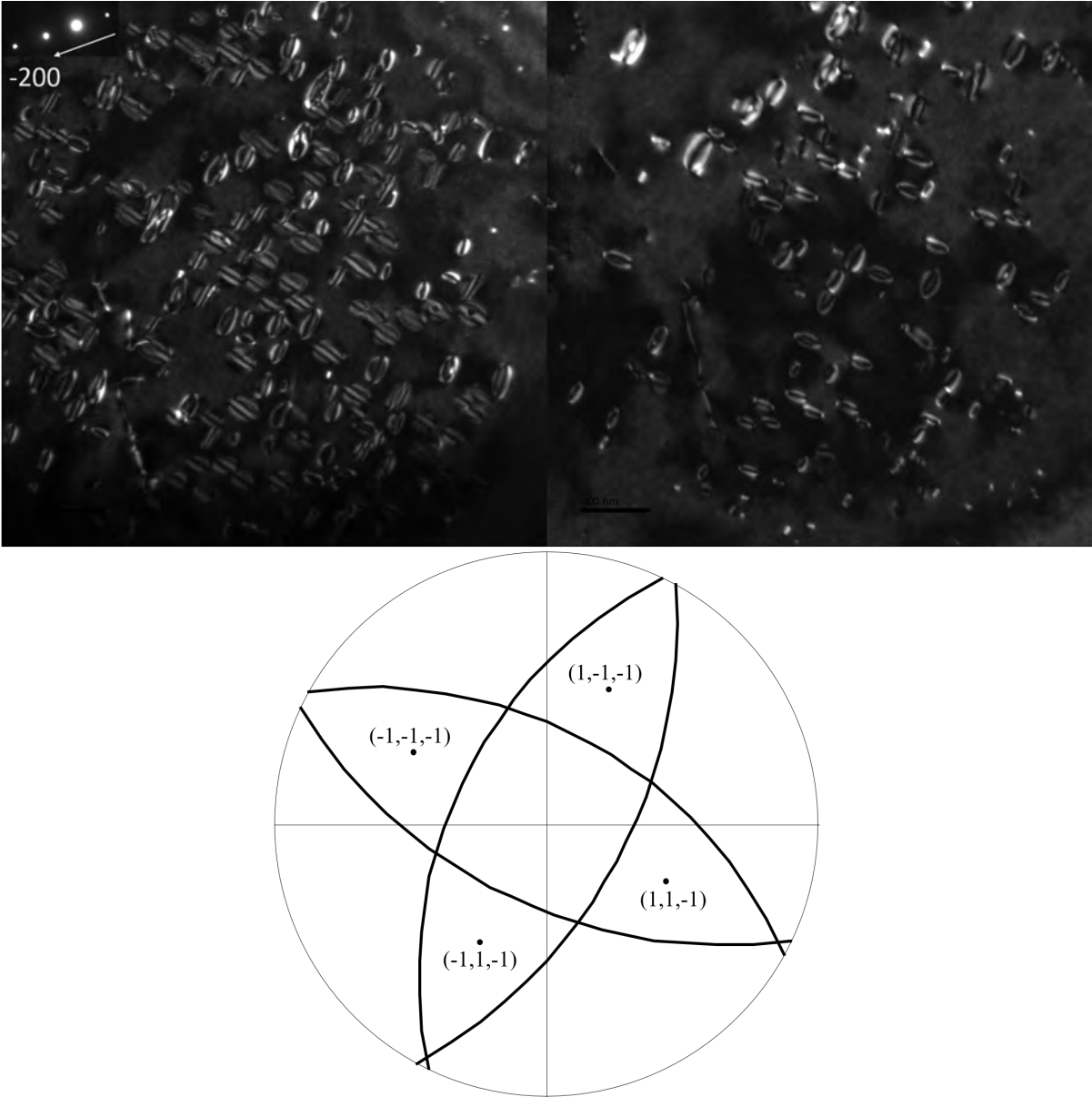


Figure 2.41 – A gauche, microstructure finale de la figure 2.38 en condition $g = \bar{2}00$, à droite, la même microstructure observée dans les mêmes conditions d'imagerie 21 jours plus tard. En-dessous la projection stéréographique associée.

Résumé de l'effet du flux

Nous avons réalisé une expérience d'irradiation avec un flux trois fois plus élevé que dans l'expérience de référence de notre étude (section 2.4). Visiblement il n'y a pas de modification de la densité volumique des boucles (si les boucles sont comptées avant les phénomènes de défautement et de coalescence). La vitesse de croissance est plus élevée. Nous avons calculé qu'elle est proportionnelle au taux de dommage. La taille des boucles évolue linéairement avec la dose. Comme la croissance des boucles est accélérée lorsque le flux est augmenté, à temps fixé, il en est de même des phénomènes d'interaction entre les boucles.

2.8 La possible présence de contraintes résiduelles en lame mince

2.8.1 Constat d'une sélectivité sans application de contrainte extérieure

Nous avons observé que la densité des quatre variants de boucles n'est pas toujours la même. Cette sélectivité même hors contrainte convient d'être étudiée et vérifiée pour la suite de notre étude.

La figure 2.42 est un exemple clair de la sélectivité des boucles sans application de contrainte extérieure. Nous avons préparé l'échantillon de façon à ce que les directions cristallographiques de type $\langle 110 \rangle$ soient proches de l'axe vertical et horizontal des micrographies comme le prouvent les projections stéréographiques associées. Avec cette orientation du cristal, deux variants de boucles de Frank apparaissent horizontalement et les deux restants, verticalement. Nous avons irradié cet échantillon à différents emplacements autour du trou d'électro-polissage au sein d'un même grain. Les conditions d'imagerie sont les mêmes pour les trois micrographies présentées sur la figure 2.42 et pourtant les trois microstructures sont très différentes les unes des autres. Nous avons, dans un premier temps, irradié un des côtés latéraux du trou et nous observons que la quasi-totalité des boucles sont orientées horizontalement (zone rouge sur la figure). Puis lorsque nous irradiions au-dessus du trou (zone verte), nous avons la sélectivité opposée. A peu près toutes les boucles sont verticales. Enfin la dernière irradiation se situe entre les deux premières, la tangente locale au bord du trou étant orientée à 45° par rapport à l'axe du porte-objet (zone bleue). Cette fois-ci les deux orientations principales de boucles semblent présentes en des proportions similaires. Ces résultats ne sont pas anodins puisque nous souhaitons étudier l'effet de la contrainte appliquée sur les boucles. Cette anisotropie de la microstructure de boucles est systématiquement observée lorsque des échantillons de traction sont directement prélevés de nos feuilles d'aluminium par électro-érosion.

Les résultats de la littérature (chapitre 1) montrent que les boucles dont le vecteur de Burgers est proche de l'axe de la contrainte sont favorisées. La combinaison des trois derniers résultats au sein d'un même échantillon (figure 2.42) laisse penser qu'il existe une contrainte résiduelle et qu'elle est tangentielle au trou. Du fait que nos feuilles proviennent de tôles laminées, notre hypothèse est que notre matière première présente des contraintes biaxiales de type tension en leur coeur, entre deux couches en compression. Après avoir percé les échantillons en leur centre (en partant du principe qu'il s'agit de contraintes biaxiales), la contrainte est relâchée suivant la direction normale à la bordure du trou et il reste la composante tangentielle. Cela expliquerait pourquoi la sélectivité des boucles dépend de la position de la zone irradiée autour de ce trou.

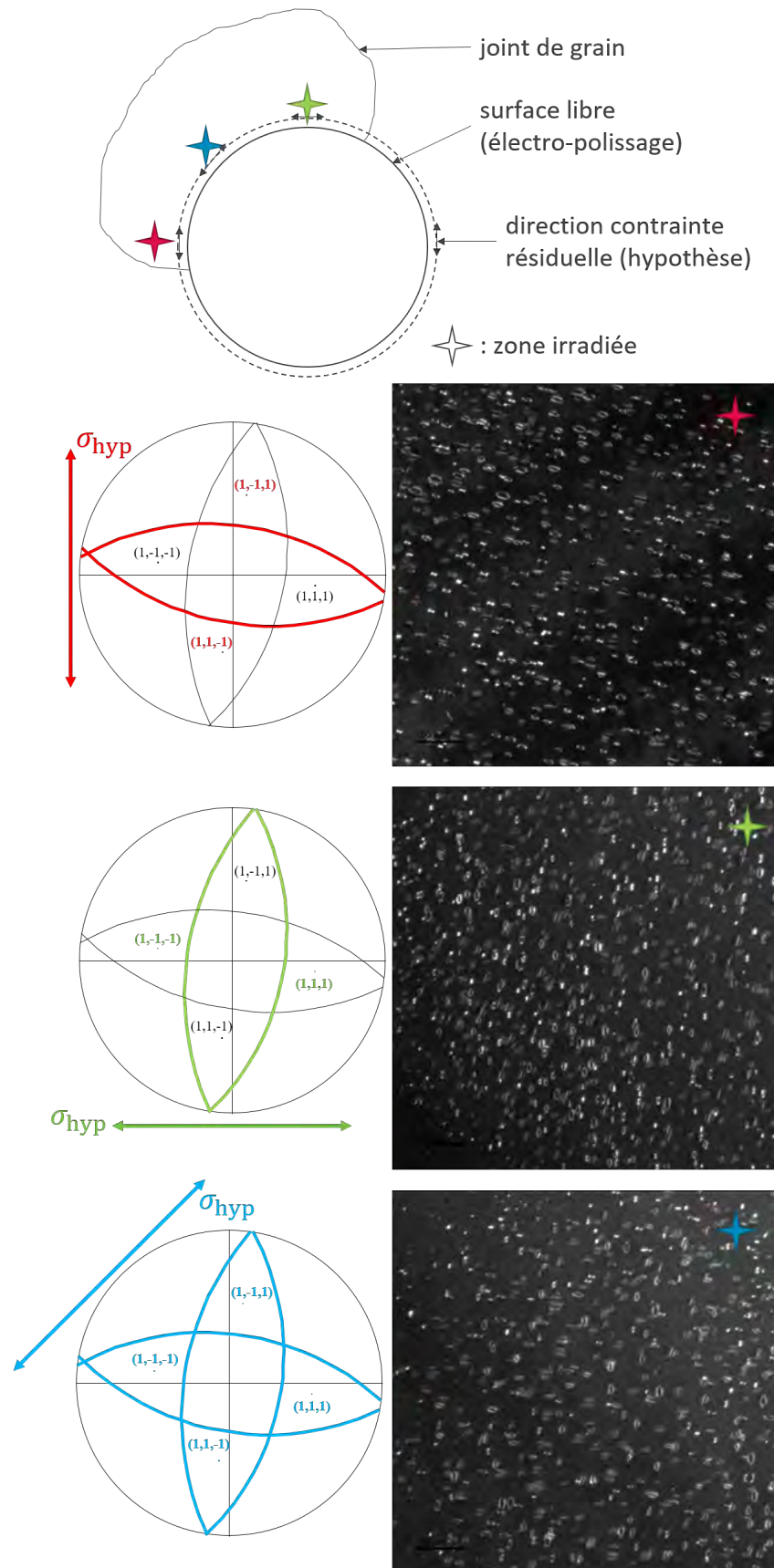


Figure 2.42 – Schéma et micrographies des trois irradiations réalisées sur un échantillon hors contrainte, en fonction de l'emplacement du faisceau autour du trou d'électropolissage. Les images sont prises en condition $g = 200$. Sur les projections stéréographiques, l'orientation des plans majoritairement présents dans chaque microstructure est indiquée, en plus de nos hypothèses sur l'orientation de la contrainte résiduelle de type traction.

2.8.2 Traitements thermiques

Afin de remédier à ces contraintes résiduelles, nous avons réalisé une campagne de traitements thermiques. Les lames sont déjà polies mécaniquement avant de procéder aux recuits. Les échantillons sont placés dans un four dans lequel un premier vide est réalisé, suivi d'un balayage d'argon puis une dernière étape de pompage jusqu'à obtenir un vide satisfaisant. Nous avons mis en place trois traitements décrits ci-après :

- R1 : vide de $2,7 \times 10^{-7}$ mbar, 300°C maintenue pendant 1 h,
- R2 : vide de $2,6 \times 10^{-7}$ mbar, 400°C maintenue pendant 2 h,
- R3 : vide de $1,4 \times 10^{-7}$ mbar, 400°C maintenue pendant 6 h.

Les résultats sont cependant peu probants puisque la plupart des microstructures irradiées suite au recuit de l'échantillon montrent encore des sélectivités entre les orientations de boucles, les proportions des boucles majoritaires peuvent aller de 70% à presque 100%. Un exemple est donné dans la figure 2.43 qui présente le résultat de trois irradiations au sein d'un échantillon qui a subi le traitement R3. L'échantillon présente une fissure sur un des côtés latéraux du trou. L'irradiation n°1, placée du côté sans fissure, présente en grande majorité des boucles orientées horizontalement. Ce résultat laisse penser qu'il existe toujours des contraintes résiduelles malgré le traitement thermique. Comme attendu, l'irradiation n°2, qui correspond à celle à 45° par rapport l'axe du porte-objet, ne présente pas de sélectivité : les proportions entre les deux orientations sont 48% et 52%. La présence d'une fissure est une opportunité de vérifier notre hypothèse de contraintes résiduelles puisque sous une fissure, le matériau est forcément libre de contrainte. En effet, la zone irradiée sous la fissure ne présente pas de sélectivité. Ce résultat permet d'affirmer que les importants déséquilibres entre certains variants sont dus à des contraintes internes dans le matériau.

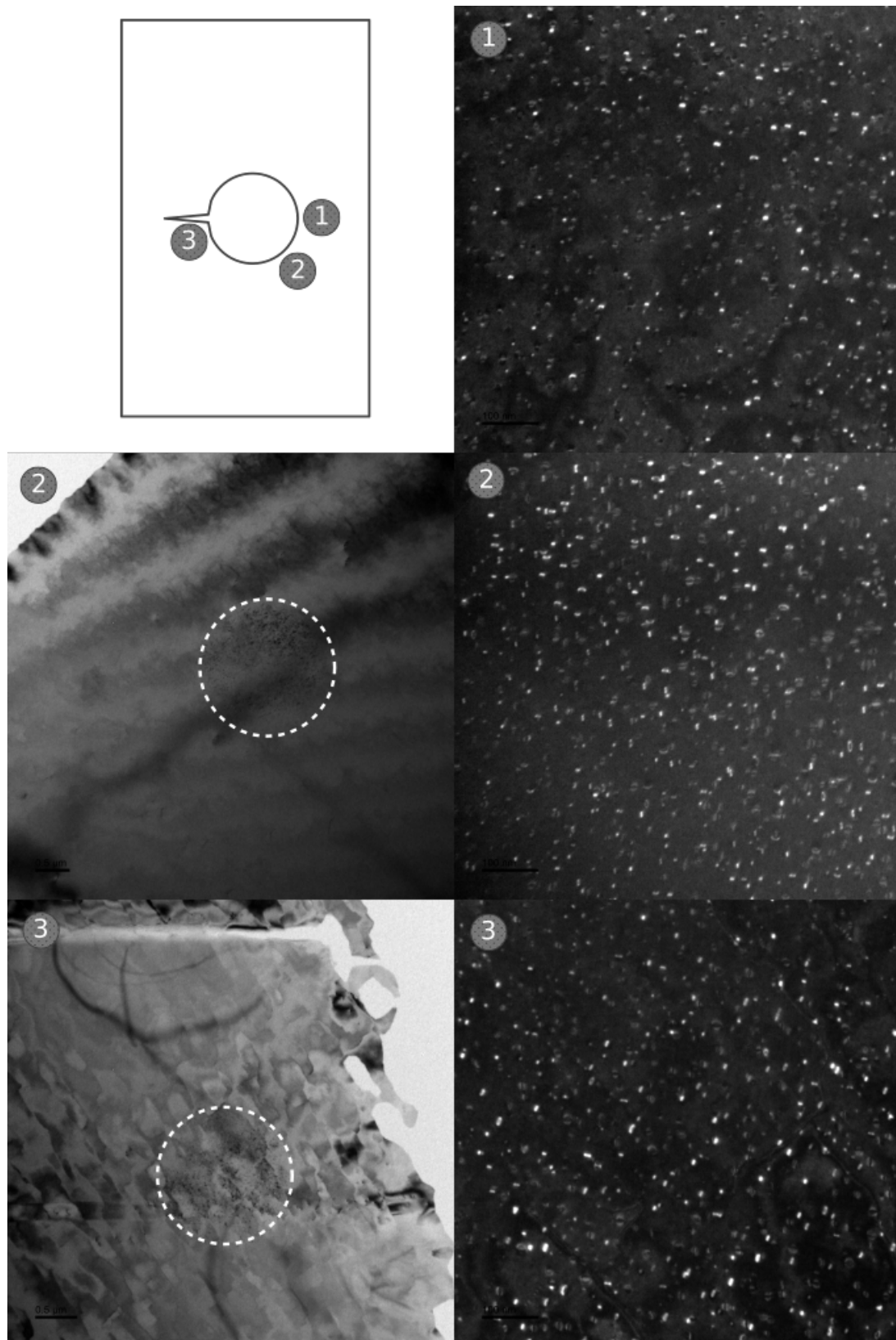


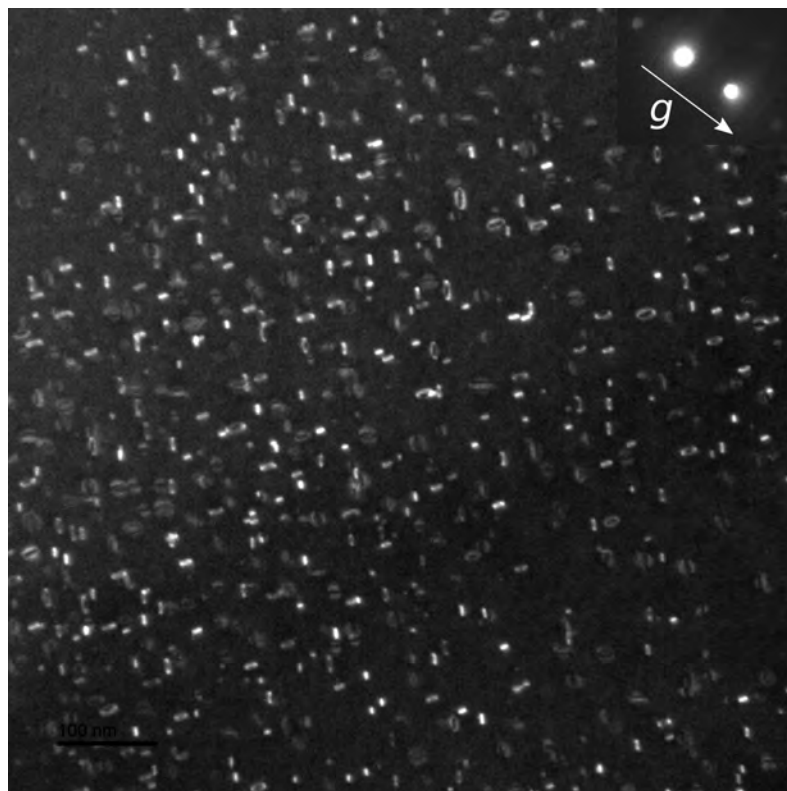
Figure 2.43 – Echantillon ayant subi un traitement thermique de 6 h à 400°C. La figure en haut à gauche est un schéma de l'échantillon et de la position des trois zones irradiées. Les deux images de gauche correspondent aux irradiations de droite avec une vue d'ensemble pour les situer par rapport au trou d'électropolissage et la fissure. Les zones irradiées y sont visibles (les points noirs sont les boucles).

2.8.3 Contraintes résiduelles générées lors de la manipulation de l'échantillon

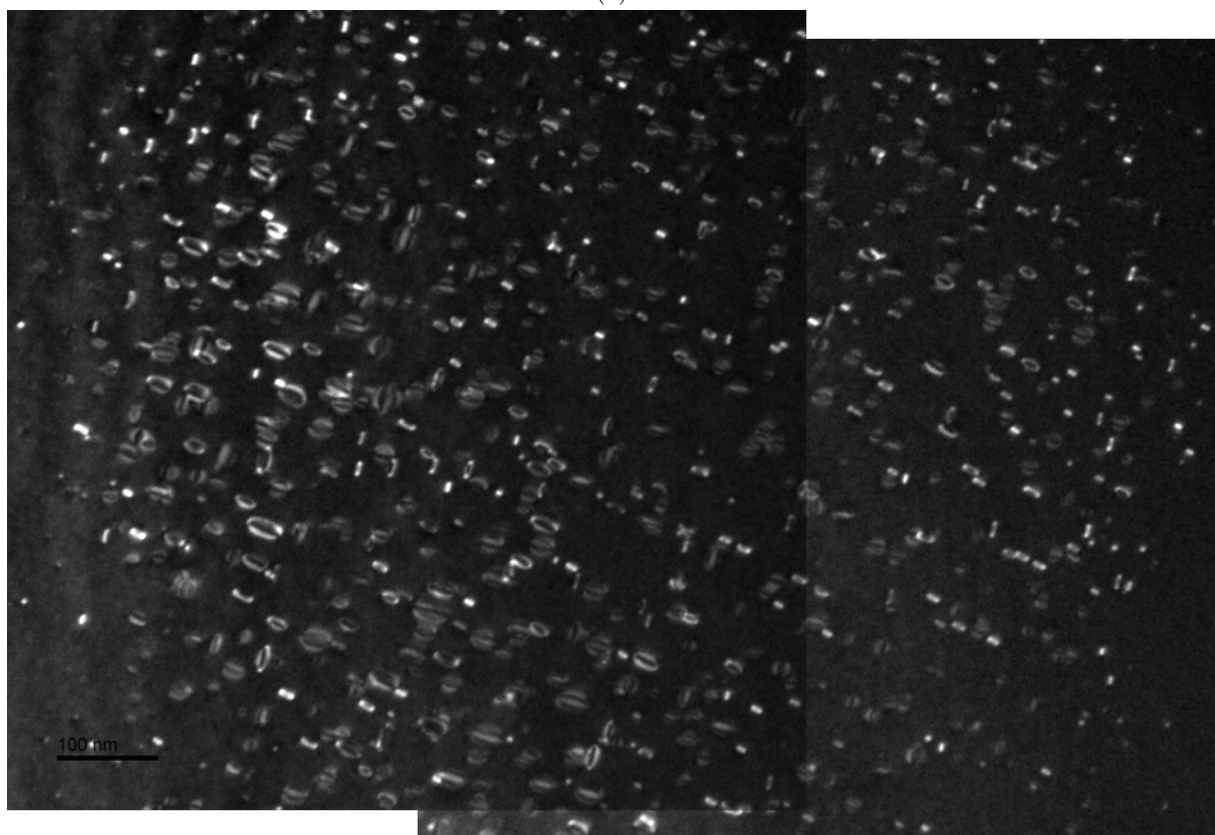
Un autre exemple de sélectivité non contrôlée est donné dans la figure 2.44. Il s'agit de deux irradiations distinctes réalisées au sein d'un même grain.

La figure 2.44a présente la microstructure à la fin de la première irradiation, lorsque la lame seule est placée dans un porte-objet double-tilt. L'irradiation a duré 30 min avec un flux moyen de $1,2 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Les deux orientations de boucles, verticale et horizontale, sont apparentes. Nous comptons 459 boucles en ne considérant que les boucles suffisamment grandes pour reconnaître leur orientation. 55% de ces boucles sont orientées verticalement et 45% horizontalement. Il n'y a donc pas de sélectivité.

Cet échantillon est ensuite collé sur un masque de cuivre (plus de détails sur la géométrie de l'échantillon sont donnés dans la section 3.1.2 du chapitre suivant) et une nouvelle irradiation est réalisée dans un porte-objet traction simple tilt. L'irradiation est maintenue 30 min avec un flux moyen de $1,7 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ sans appliquer de contrainte extérieure. La microstructure finale est présentée dans la figure 2.44b. Elle paraît dans un premier temps qualitativement isotrope avec les deux catégories de boucles de Frank apparentes. Cependant, dans un échantillon de 502 boucles, seulement 27% d'entre elles sont catégorisées comme étant verticales. Une majorité d'entre elles sont donc orientées horizontalement. Au vu du résultat précédent de la figure 2.44a, ce système semble être initialement sous contrainte. Des contraintes internes ont sûrement été générées lors de l'étape de collage de l'échantillon sur l'éprouvette de traction en cuivre.



(a)



(b)

Figure 2.44 – Microstructures obtenues après une irradiation sans appliquer de contrainte extérieure (a) avant et (b) après avoir collé l'échantillon sur un support de traction en cuivre.

Résumé sur les contraintes résiduelles

La sélectivité n'est pas complètement rétablie après les traitements thermiques et nous avons constaté qu'elle apparaît de manière aléatoire d'un échantillon à un autre (sauf à proximité d'une fissure où il n'y a jamais de sélectivité). Les traitements sont réalisés après l'étape d'amincissement par polissage mécanique, ce qui suggère que les contraintes sont générées entre l'étape d'amincissement par polissage électrolytique et l'étape d'insertion du porte-objet dans le MET. Les irradiations à proximité de fissures confirment que la sélectivité observée dans les autres irradiations est due à des effets de contrainte. L'aluminium pur est un matériau facilement déformable, ce qui rend la manipulation des échantillons MET difficile. Si les contraintes ne proviennent pas de la matière première, la manipulation de l'échantillon semble induire ces contraintes. A travers nos différents tests, nous avons constaté que les échantillons de traction directement extraits des feuilles d'aluminium présentent systématiquement des effets de contraintes internes comme dans l'exemple de la figure 2.42. Par précaution, nous n'utiliserons pas d'échantillon de traction fait d'une seule pièce en aluminium pour l'étude de l'effet de la contrainte sur les boucles. Nous utiliserons des disques que nous collerons sur des supports de cuivre, comme présenté plus loin. En plus de faire preuve de vigilance lors de la manipulation des échantillons, un soin particulier sera pris à vérifier l'absence de sélectivité des boucles sans contrainte appliquée avant de procéder aux irradiations sous contrainte, afin d'avoir systématiquement une microstructure de référence.

2.9 Conclusion du chapitre

Nous avons vu que les feuilles d'aluminium présentent une forte texture cristallographique de type cube, ce qui va nous permettre de contrôler l'orientation de la contrainte en fonction de la géométrie du prélèvement des échantillons par rapport aux axes cristallographiques. D'après la caractérisation de la microstructure suite à une irradiation aux électrons, seules des boucles de Frank de nature interstitielle sont générées aux premiers stades. Si l'irradiation dure un temps suffisamment long, le défautement et l'interaction des boucles entre elles peuvent être observés. A taux de dommage constant, la taille des boucles évolue globalement de façon linéaire avec le temps d'irradiation, pour des flux allant de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ à $3 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. La nucléation des boucles n'est pas possible si la distance entre les surfaces libres est trop petite ou si la température du système est trop élevée. A température ambiante, l'épaisseur de la lame affecte peu la distribution des tailles des boucles dans la gamme d'épaisseur où nous réalisons normalement nos expériences d'irradiation. D'après les expériences en température et à fort flux, nos irradiations se placent en régime d'élimination vers les puits. Enfin, nous avons constaté que des contraintes résiduelles peuvent être présentes dans nos expériences et qu'elles affectent l'évolution des boucles. Des précautions doivent être prises pour l'étude de l'effet de la contrainte appliquée afin que l'interprétation des résultats ne soit pas compromise.

Chapitre 3

Etude in-situ de l'effet de la contrainte sur les boucles de Frank

Ce chapitre présente les résultats des expériences de traction in-situ menées en MET sur trois échantillons différents. L'objectif est d'évaluer l'influence d'une contrainte extérieure sur l'évolution des boucles de Frank. La première partie des résultats présente les irradiations réalisées sans appliquer une contrainte extérieure. Celles-ci servent de référence et permettent d'assurer l'absence d'effet non contrôlé. Ensuite, ce sont les expériences sous contrainte qui sont présentées. Ces résultats sont comparés aux précédentes expériences sans contrainte. Afin de vérifier l'hypothèse du rôle déterminant du mécanisme SIPA dans la montée pure des dislocations sous contrainte, des expériences complémentaires ont été menées dans la troisième partie. Elles consistent à irradier en deux temps. Pour chaque échantillon, toutes les irradiations sont réalisées dans le même grain, sur un des bords latéraux du trou d'électropolissage et toutes les micrographies sont prises avec un vecteur de diffraction $g = 200$ permettant l'observation de toutes les boucles de Frank. Les tailles et proportions des boucles sont obtenues de façon manuelle. Certaines observations sont complétées par une méthode couplant détection par apprentissage profond et suivi automatique des boucles détectées.

3.1 Echantillon de traction in-situ et protocole d'irradiation électronique sous contrainte

3.1.1 Choix de l'orientation du grain par rapport à l'axe de traction

Nous profitons de la texture cristallographique de type cube pour laquelle la direction $\langle 100 \rangle$ est selon la direction de laminage, pour préparer nos échantillons de façon à ce que la contrainte appliquée soit proche de la direction $\langle 110 \rangle$. L'orientation idéale du cristal pour les expériences est présentée sur une projection stéréographique dans la figure 3.1a. L'orientation des plans $\{111\}$ par rapport à la direction de traction est schématisée sur la figure 3.1b.

En appliquant une contrainte suivant une direction $\langle 110 \rangle$, nous pouvons séparer les quatre boucles de Frank en deux groupes qui englobent chacun deux variants. D'une part, nous avons deux variants de boucles pour lesquels l'axe de la contrainte est contenu dans leur plan d'habitat, autrement dit, leur vecteur de Burgers est orthogonal à l'axe de la contrainte. Les plans de ces deux variants sont représentés en rouge sur la figure 3.1. D'après la projection stéréographique, le grand axe des projections elliptiques de ces deux variants de boucles apparaîtront de manière verticale lors des observations MET. D'autre part, les deux variants de boucles de Frank restants ont leur vecteur de Burgers incliné par rapport à l'axe de la contrainte ($\sim 35^\circ$). Ces plans sont représentés en vert sur la figure 3.1. Le grand axe des ellipses correspondant aux projections de ces boucles sera orienté de manière horizontale dans les micrographies MET. Pour des questions

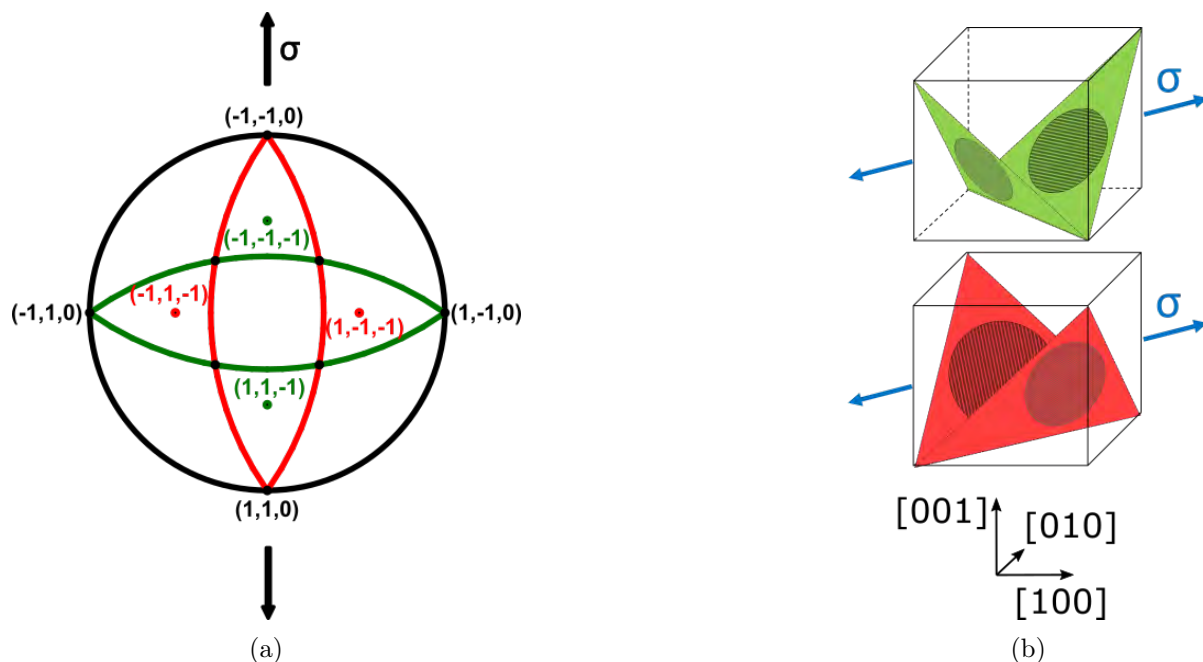


Figure 3.1 – (a) Projection stéréographique de l'orientation idéale du cristal pour les expériences sous contrainte. Les deux plans orientés favorablement par rapport à l'axe de la contrainte appliquée sont représentés en vert et ceux orientés défavorablement en rouge. (b) Représentation en perspective des plans $\{111\}$ par rapport à une contrainte uniaxiale suivant la direction $[110]$.

de clarté, ces boucles seront désignées par le terme “boucles verticales” et “boucles horizontales”, “boucles orientées défavorablement” et “boucles orientées favorablement” avec le code couleur rouge et vert, respectivement, tout le long de ce manuscrit.

Pour les quatre variants, ce choix d'orientation du grain est optimal afin d'obtenir un effet de la contrainte exacerbé entre les boucles de Frank. Elle repose sur la dissymétrie de la direction de la contrainte par rapport aux deux catégories de boucles de Frank, tout en conservant la même orientation des plans des boucles vis-à-vis des surfaces de la lame. D'après les observations de nos lames en MET, nous nous écartons peu de cette orientation idéale.

3.1.2 Géométrie des échantillons et porte-objet de traction

Les essais de traction sont inspirés des travaux pratiqués au CEA et au CEMES [123, 124, 125, 126, 66]. Pour ces essais de traction in-situ, il existe deux modèles de géométrie d'échantillons : les éprouvettes traction en aluminium et les masques de cuivre sur lesquels sont collés une lame d'aluminium. La figure 3.2 montre ces deux types d'échantillons placés dans un porte-objet de traction GATAN.

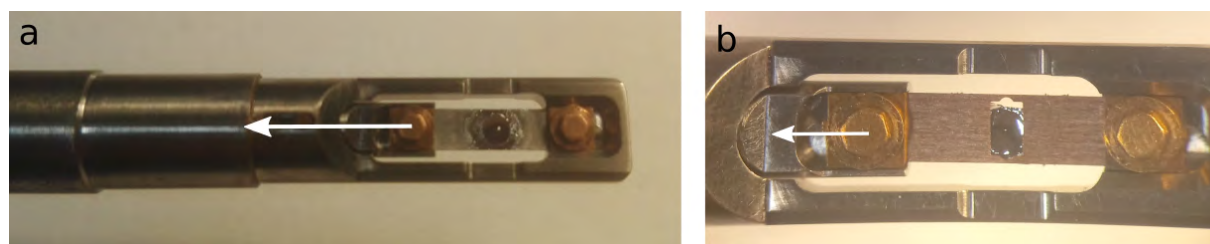


Figure 3.2 – Porte-objet de traction in-situ simple tilt GATAN avec a) un échantillon de traction en aluminium et b) une lame mince collée sur un masque en cuivre. La flèche blanche indique le mors mobile et la direction du déplacement imposé.

Pour cette étude, nous avons finalement adopté la deuxième option où des lames sont collées sur des échantillons de traction en cuivre. Les différentes étapes de préparation des échantillons sont schématisées sur la figure 3.3. Les étapes d'amincissement sont identiques à celles présentées pour lames minces classiques en section 2.1.2. Afin d'obtenir une direction de traction suivant la direction $\langle 110 \rangle$, des languettes de 2 mm de largeur sont découpées à la scie à fil à 45° de la direction de laminage. Ces languettes sont amincies par polissage mécanique. Découper les languettes à une largeur inférieure à 3 mm permet de conserver une trace de la direction de découpe après l'étape de poinçonnage (poinçon pour des disques de 3 mm). Les éprouvettes de traction en cuivre sont fabriquées par un sous-traitant. Elles présentent une ouverture en leur centre afin de ne pas entraver les observations MET de la lame. Cette dernière est fixée sur le masque par un point de colle cyanoacrylate (Loctite 431) de part et d'autre du trou suite à l'étape d'électro-polissage. Afin d'assurer la conductivité électrique entre la lame et le support de cuivre, de la laque d'argent est déposée sur l'échantillon (recouvrant la zone en contact avec la colle).

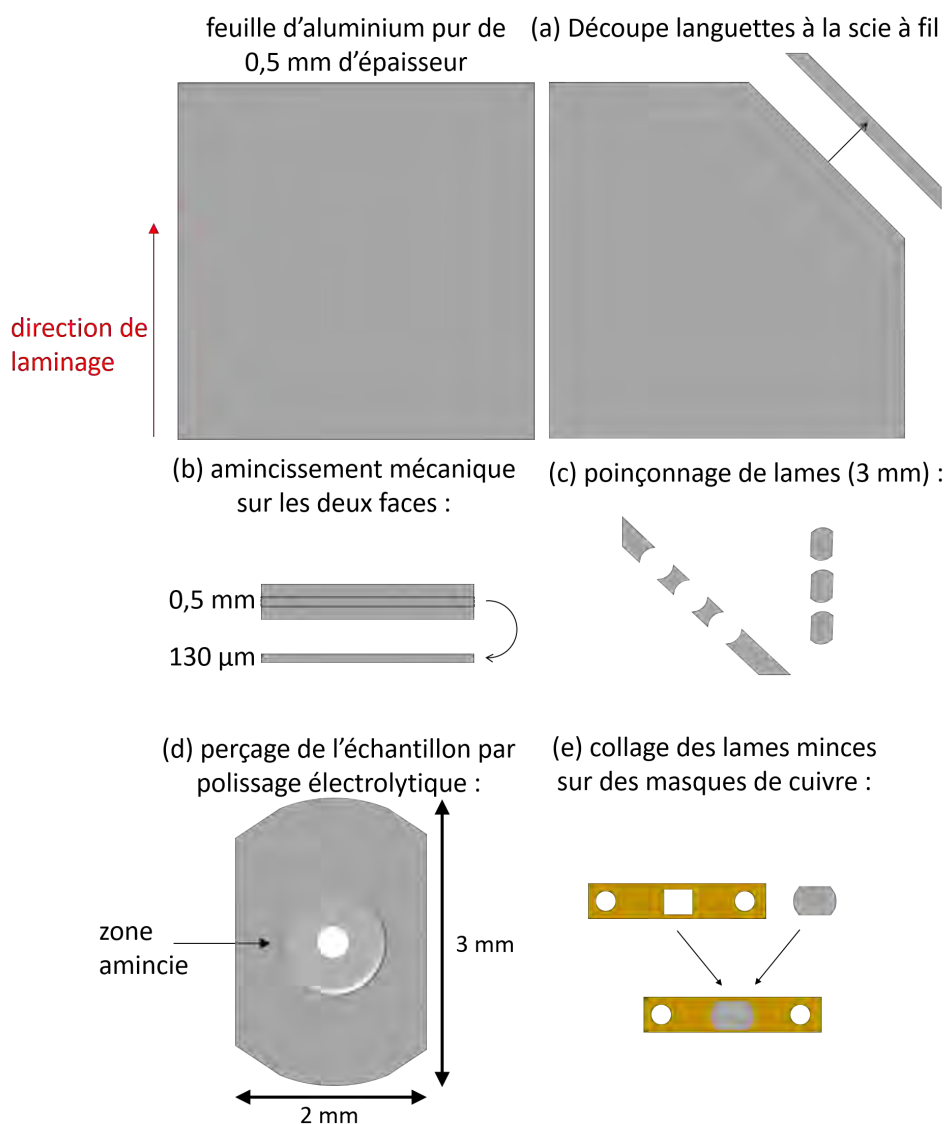


Figure 3.3 – Schéma des différentes étapes entre la réception des feuilles d'aluminium pur et les échantillons finaux pour les expériences in-situ.

Les irradiations sous contrainte in-situ sont réalisées à l'aide d'un porte-objet de traction GATAN simple tilt modèle 654. L'échantillon est mis sous tension par l'application d'un déplacement

contrôlé du mors mobile (figure 3.2). La figure 3.4a donne la direction de la contrainte principale dans un échantillon percé en son centre. Les figures 3.4b et 3.4c donnent la répartition de l'intensité de la contrainte au sein d'un échantillon, déterminée par la méthode des éléments finis. Ces calculs révèlent que la contrainte est concentrée aux bords latéraux du trou. Les expériences sous contrainte sont donc systématiquement menées aux bords latéraux du trou, où la contrainte locale peut être considérée comme un chargement uniaxial de type traction dont la direction est parallèle à l'axe du porte-objet comme l'indique la figure 3.4a.

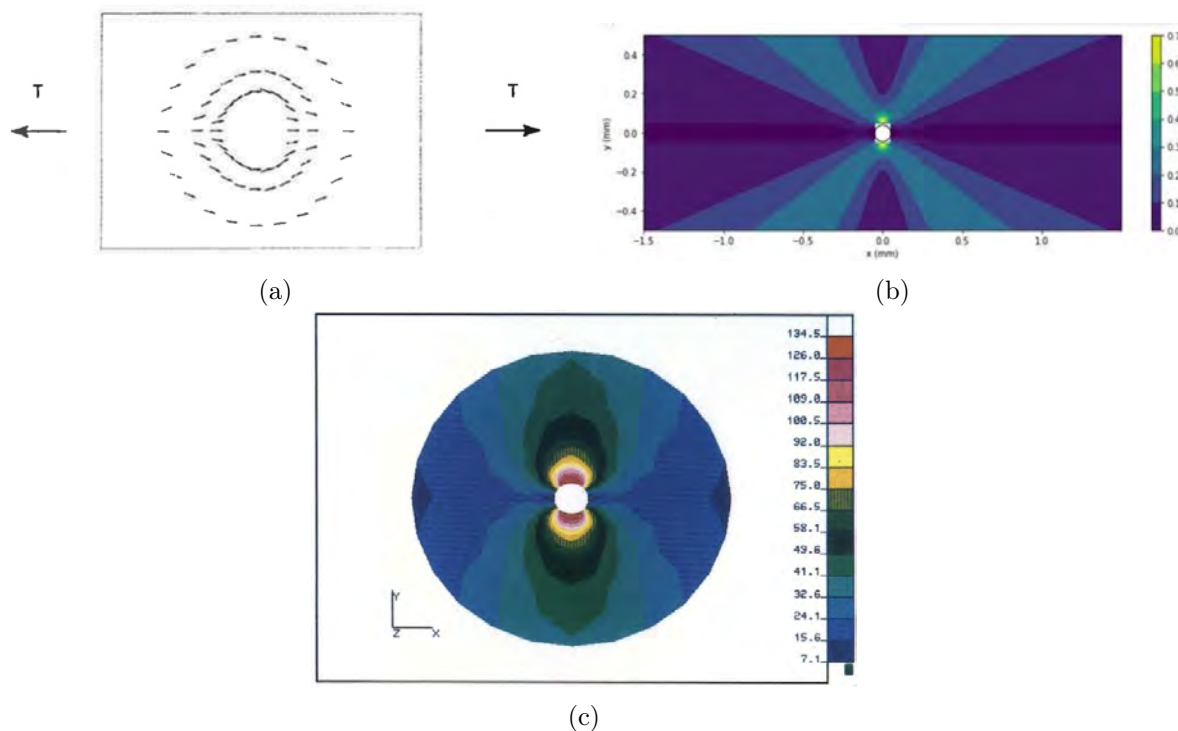


Figure 3.4 – (a) Schéma de l'orientation de la contrainte principale dans un microéchantillon percé en son centre [127]. (b) Simulations de la distribution de la contrainte autour d'un trou de $100 \mu\text{m}$ de diamètre dans un échantillon rectangulaire de 1 mm par 3 mm avec une charge de 1 MPa [128]. (c) Calculs des différents niveaux de contrainte au sein de la zone polie, pour une force appliquée de 1 N , la contrainte maximale calculée est de 134 MPa [129]. La direction de l'axe de traction en (b) et (c) est identique à celle du schéma en (a).

La procédure de mise sous contrainte consiste à appliquer un déplacement sur le mors mobile jusqu'à l'observation des premiers glissements de dislocations au sein du grain d'intérêt. Ce critère de glissement indique que nous avons atteint la limite élastique. Le déplacement est alors légèrement réduit ($< 1 \mu\text{m}$) afin d'arrêter le glissement des dislocations, éviter la relaxation complète de la contrainte et revenir dans le domaine élastique.

Une méthode pour déterminer la contrainte locale est d'utiliser la courbure des dislocations avant leur glissement. Pour une dislocation à l'équilibre, la courbure R en un point de la ligne est liée à la contrainte de cisaillement τ_0 par [101, 127] :

$$\tau_0 = \frac{T(\theta)}{bR}, \quad (3.1)$$

où b est le vecteur de Burgers, T est la tension de ligne qui dépend du caractère θ de la dislocation ($T \propto \mu b^2$, μ est le module de cisaillement). Le vecteur de Burgers de la dislocation peut être déterminé par la méthode d'extinction et le plan de glissement à partir des traces de glissement en ayant connaissance de l'orientation du cristal dans le grain.

Par la suite, l'image de la dislocation sous tension doit être transformée en la projetant dans son plan de glissement avec la correction des effets de projection. Ces différentes étapes sont réalisées avec l'aide du logiciel pycotem [116]. La contrainte locale de cisaillement est déterminée en comparant l'image projetée de la dislocation avec la forme théorique d'une dislocation à plusieurs niveaux de contrainte. Les courbures théoriques dérivées de la théorie de l'élasticité anisotrope sont calculées avec le logiciel DISDI [106] et les constantes élastiques de l'aluminium à 300 K [130]. Une fois la contrainte de cisaillement dans le plan de glissement déterminée, la contrainte appliquée σ_{appl} est estimée par cette relation [101] :

$$\sigma_{\text{appl}} = \frac{\tau_0}{\cos \phi \cos \lambda}. \quad (3.2)$$

Le facteur de Schmid correspond au terme $\cos \phi \cos \lambda$, ϕ est l'angle entre la contrainte et la normale au plan de glissement et λ entre la contrainte et la direction de glissement (vecteur de Burgers).

Il est à noter que la contrainte appliquée σ_{appl} est une estimation parce qu'elle dépend de la précision de l'orientation du grain, de la précision de la mesure de la forme de la dislocation, de l'état de la contrainte locale dans la lame mince dû à la forme du trou, à la position de la zone irradiée par rapport au trou, à la présence des autres grains, par exemple.

3.2 Méthode d'analyse des boucles

3.2.1 Méthode manuelle

Deux logiciels ont été testés dans la mesure des boucles sur les micrographies : ImageJ et VisiLog. La méthode appliquée pour la mesure d'une boucle est la même entre les deux logiciels. Les boucles qui apparaissent la majorité du temps en forme d'ellipse sont mesurées suivant leur plus grand axe. Sur ImageJ, l'angle entre l'axe mesuré et l'axe horizontal est donné en même temps que la mesure de la longueur. Le décompte des boucles est réalisé avec l'option "Multi-point" qui permet de suivre les boucles annotées, évitant ainsi de recompter les mêmes boucles. Afin de distinguer les deux catégories de boucles qui nous intéressent, le décompte est réalisé en deux temps. VisiLog est un logiciel de traitement d'images. Des macros VBA, développées au LA2M par B. Arnal, ont été intégrées dans le logiciel permettant un traitement automatique des données. Les mesures sont dans ce cas réalisées à l'aide d'une tablette graphique. L'avantage que présente ce logiciel est l'annotation des différentes boucles au cours des mesures, ce qui permet de ne pas mesurer plusieurs fois la même boucle. Ce logiciel est privilégié pour la mesure d'un grand nombre de boucles. La macro VBA, associée au module de la mesure des boucles, donne la distribution automatique des tailles de boucles sur des fichiers de sorties Excel, suite aux mesures. L'angle entre les diamètres mesurés par rapport à l'axe horizontal est également accessible dans le fichier de sortie.

Il est important de souligner que la méthode manuelle présente des erreurs dues à des oublis, aux sur ou sous interprétations. La méthode manuelle est globalement plus fiable que les méthodes numérique, l'erreur de comptage ne devrait pas excéder 5% pour des micrographies prises dans de bonnes conditions. Différentes mesures pour une même boucle montrent que le résultat peut varier de 4 nm. Nous prenons donc cette valeur comme erreur sur la mesure. Bien évidemment, la qualité de la mesure d'une boucle dépend de la qualité des conditions d'imagerie et de la taille de la boucle.

La mesure des boucles pouvant être fastidieuse, notamment pour un grand nombre de boucles sur plusieurs images (différents instants au cours d'une irradiation), la méthode automatique est plus propice pour ce type de tâche.

3.2.2 Méthode automatique

Les vidéos ont été analysées également de façon numérique. L'outil utilisé dans cette thèse a été développé au CEMES par F. Mompiau. Cette analyse des boucles automatique s'effectue en deux étapes. La première étape consiste à détecter les boucles individuellement. Pour cela un algorithme d'apprentissage profond utilisant un réseau de neurones, maskRCNN [131], a d'abord été entraîné à partir de 72 images en champ sombre contenant un total d'environ 800 boucles annotées manuellement. Le processus d'entraînement consiste à maximiser la proximité, par rapport à l'annotation manuelle prise en référence, à la fois sur la position des boucles, englobée dans des boîtes, et sur leur segmentation, c'est-à-dire, leur binarisation dans la boîte.

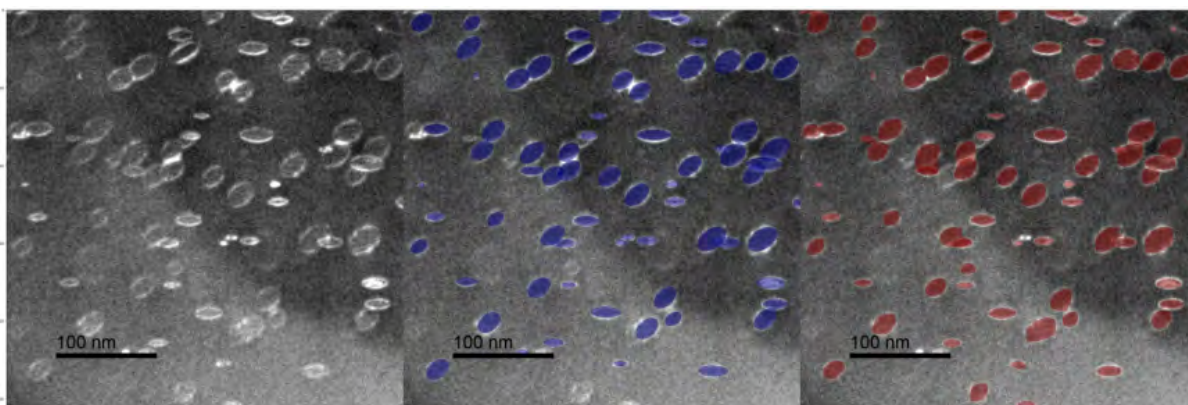


Figure 3.5 – Exemple de résultat de prédiction avec la méthode numérique sur une image en champ sombre faisceau faible (à gauche). L'image du centre correspond à l'annotation manuelle et celle de droite l'annotation par la méthode numérique.

La figure montre un exemple de prédiction : une annotation d'une nouvelle image (à droite), à partir d'une image en champ sombre (à gauche) et son annotation manuelle (au centre). L'accord entre le nombre de prédiction (77) et l'annotation manuelle (71) apparaît satisfaisant. Le modèle reproduit également correctement les segmentations individuelles. L'ensemble des boucles peut être analysé dans un second temps en approximant la zone segmentée par une ellipse, l'axe long étant ensuite considéré comme le diamètre de la boucle et son orientation par l'angle θ formé entre l'axe long et la verticale sur l'image. En mode de prédiction, les images peuvent être analysées en quelques secondes.

La seconde étape, le suivi des boucles, s'effectue en identifiant la position de boucles identifiées sur des prédictions effectuées sur des images prises à intervalle de 10 s. Pour cela, les boucles sont considérées comme fixes au cours de leur croissance. Il est cependant nécessaire de corriger les dérives de l'image au cours de l'irradiation, ce qui peut s'effectuer facilement par autocorrélation entre différentes images sur un point fixe ou une boucle isolée. Enfin, il s'agit d'identifier les "trajectoires" temporelles des boucles dont les prédictions se recouvrent au delà d'un certain seuil et sur une certaine durée. Les trajectoires trop proches sont éliminées et prolongées en l'absence de détections sur de courtes périodes. Les graphiques $d(t)$ peuvent ensuite être tracés pour des boucles prises individuellement. En raison des erreurs de détections, les données peuvent être lissées par moyenne glissante et les mesures aberrantes rejetées. La figure 3.6 présente une telle analyse.

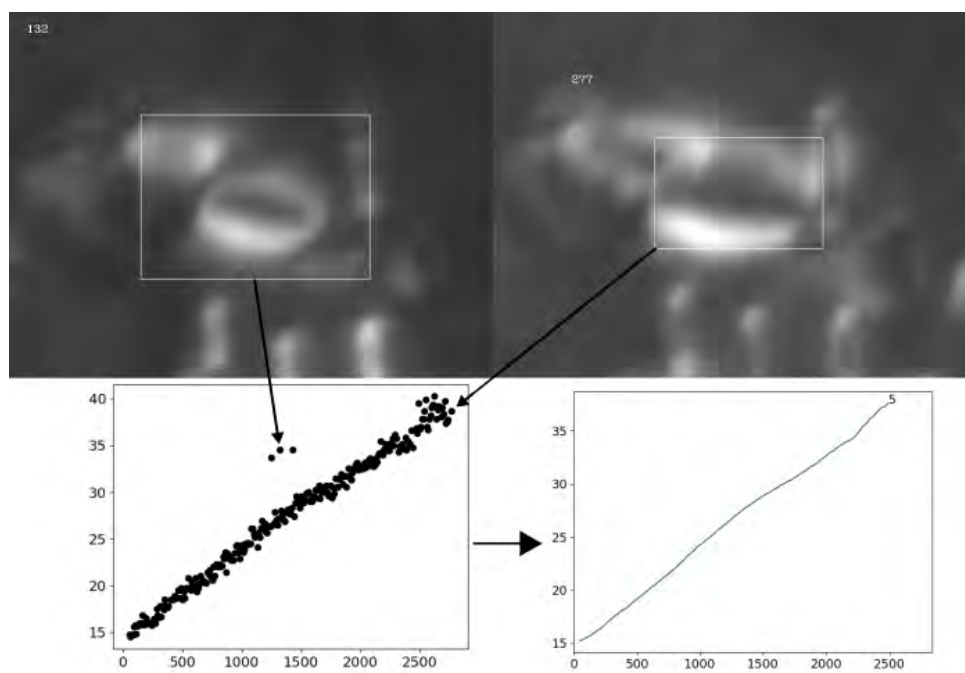


Figure 3.6 – Suivi d’une boucle par détection automatique. Le graphique de gauche correspond à la première étape d’analyse. Chaque point correspond à une détection. La micrographie de gauche est un exemple de mesure donnant lieu à une valeur aberrante (parce que plusieurs boucles ont été confondues en une boucle). La micrographie de droite correspond à la dernière mesure de la séquence où les limites de la boucle sont bien identifiées. Le graphique de droite est le résultat du traitement des données brutes du graphique de gauche. Les valeurs aberrantes ont été ignorées.

3.3 Microstructures de référence (sans contrainte appliquée)

Dans cette étude expérimentale de l’influence de la contrainte sur les boucles, nous présentons trois échantillons dans le but de montrer la reproductibilité des résultats. Ils sont irradiés dans différentes conditions : deux échantillons, 1 et 2, irradiés avec des électrons d’énergie de 200 keV et un échantillon, 3, irradié avec des électrons d’énergie de 180 keV. Cette partie regroupe les microstructures de référence. Elles servent de point de comparaison et vérifient l’absence de contrainte résiduelle (se reporter à la section 2.8).

3.3.1 Observation de l’état de la microstructure et proportions des boucles

Les échantillons 1 et 2 sont deux lames qui n’ont pas subi de traitement thermique et l’échantillon 3 a subi au préalable un recuit de deux heures à 400°C avant d’être collé sur une éprouvette traction en cuivre.

Les résultats des irradiations au sein de l’échantillon 1 avant et après avoir collé la lame sur le masque de cuivre ont été présentés plus tôt dans la section 2.8.3. Le même protocole est appliqué sur l’échantillon 2. Cet échantillon est dans un premier temps placé dans un porte-objet double tilt et une zone est irradiée pendant 30 min avec un flux moyen de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($1,31 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). La microstructure finale est présentée dans la figure 3.7.

Sur cette microstructure, 347 boucles sont jugées suffisamment grandes pour être annotées en fonction de leur orientation, 64% d’entre elles rentrent dans la catégorie des boucles verticales et 36% dans celle des horizontales.

L’épaisseur locale mesurée par la méthode CBED à proximité de la zone irradiée, est de

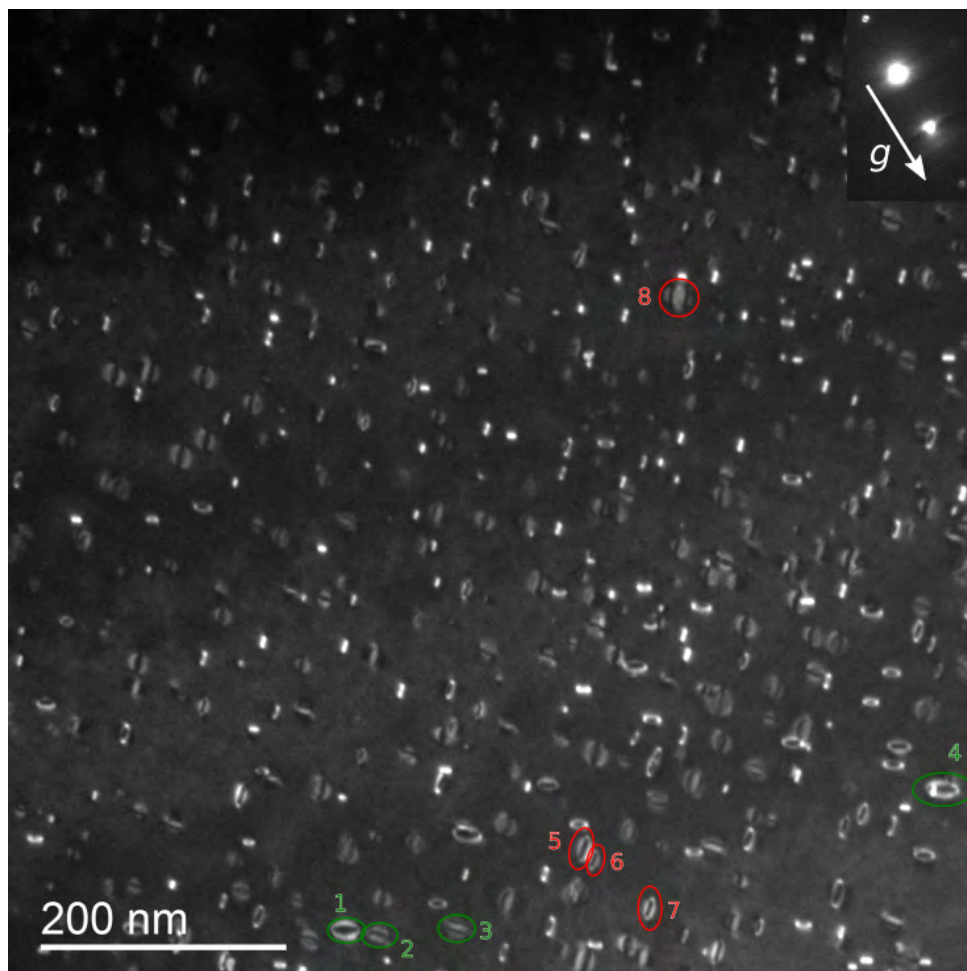


Figure 3.7 – Irradiation hors contrainte dans l'échantillon 2 avant de coller la lame sur une éprouvette de traction. Les boucles en rouge sont orientées verticalement et les boucles en vert sont orientées horizontalement. Les boucles entourées sont celles dont la taille est mesurée sur la figure 3.10.

176 nm. Nous calculons pour cette expérience que la densité de boucles est de $4,6 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Ce résultat est obtenu en comptant 507 boucles dans la zone irradiée, ce comptage considère les boucles dont l'orientation ne peut pas être déterminée parce qu'elles sont trop petites, afin que la densité de boucles calculée soit la plus représentative possible.

Cet échantillon est ensuite collé sur un masque en cuivre. Nous réitérons une expérience d'irradiation dans une nouvelle zone sans appliquer une contrainte et nous obtenons la microstructure de la figure 3.8. Cette zone est irradiée pendant 30 min avec un flux moyen de $1,6 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($2,09 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). Sur 538 boucles, nous comptons que 41% d'entre elles sont orientées horizontalement et 59% verticalement. La sélectivité est un peu moins prononcée par rapport à l'irradiation précédente (figure 3.7).

Le dernier échantillon 3 est préalablement collé sur une éprouvette de traction en cuivre avant les essais d'irradiation. La projection stéréographique de l'orientation du grain, dans lequel les irradiations sont menées, est donnée en figure 3.9a. La micrographie de la figure 3.9b correspond à l'état final de la zone irradiée sans appliquer de contrainte après 38 min d'irradiation. Toutes les irradiations réalisées dans l'échantillon 3 utilisent un flux moyen de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($4,95 \times 10^{-5} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). A partir de la micrographie de la figure 3.9b, nous comptons que sur 193

boucles, 60% ont une orientation verticale et 40% horizontale.

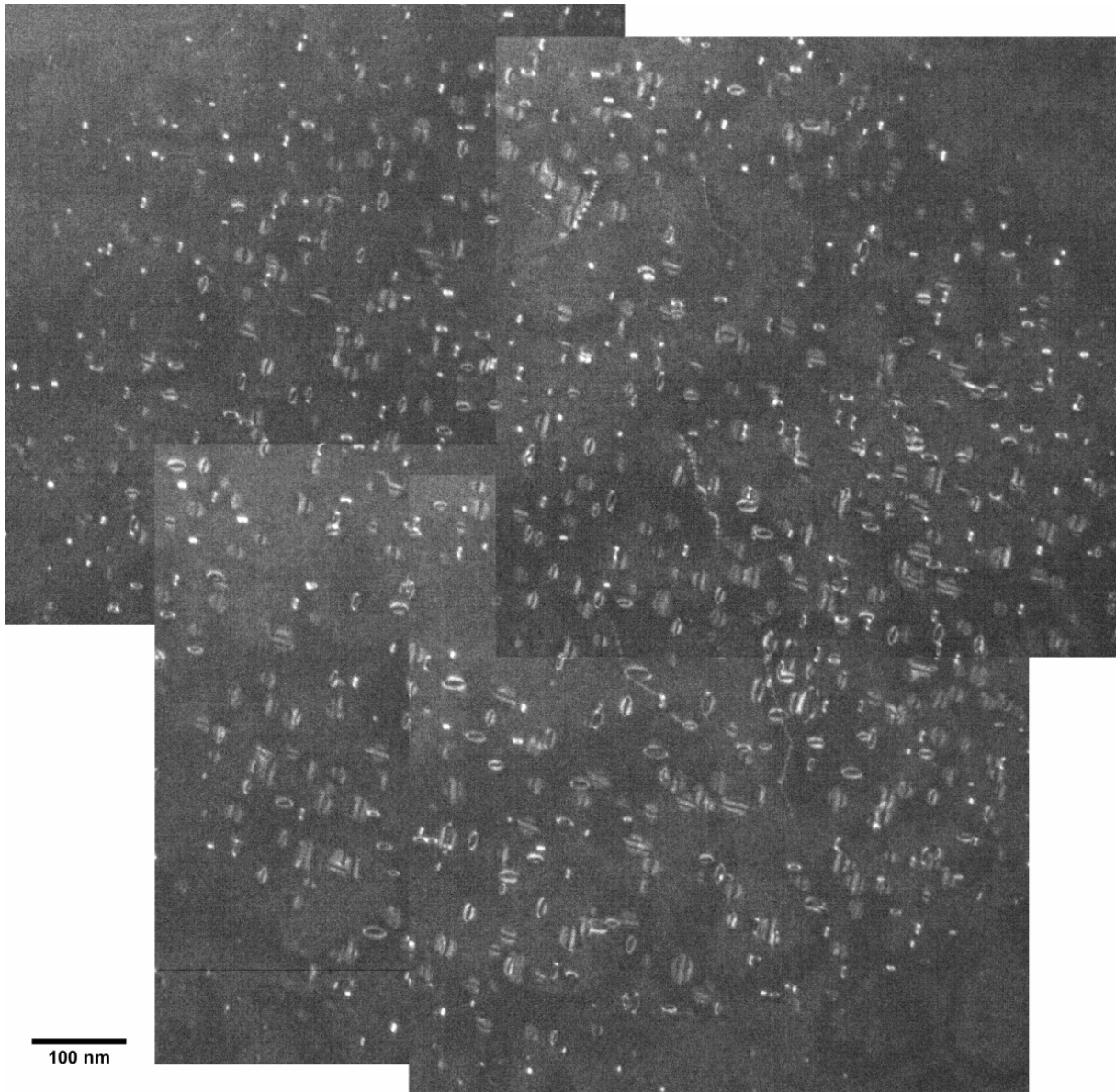


Figure 3.8 – Irradiation dans l'échantillon 2 après avoir collé la lame sur une éprouvette traction en cuivre. L'échantillon n'est pas mis sous tension au cours de l'irradiation.

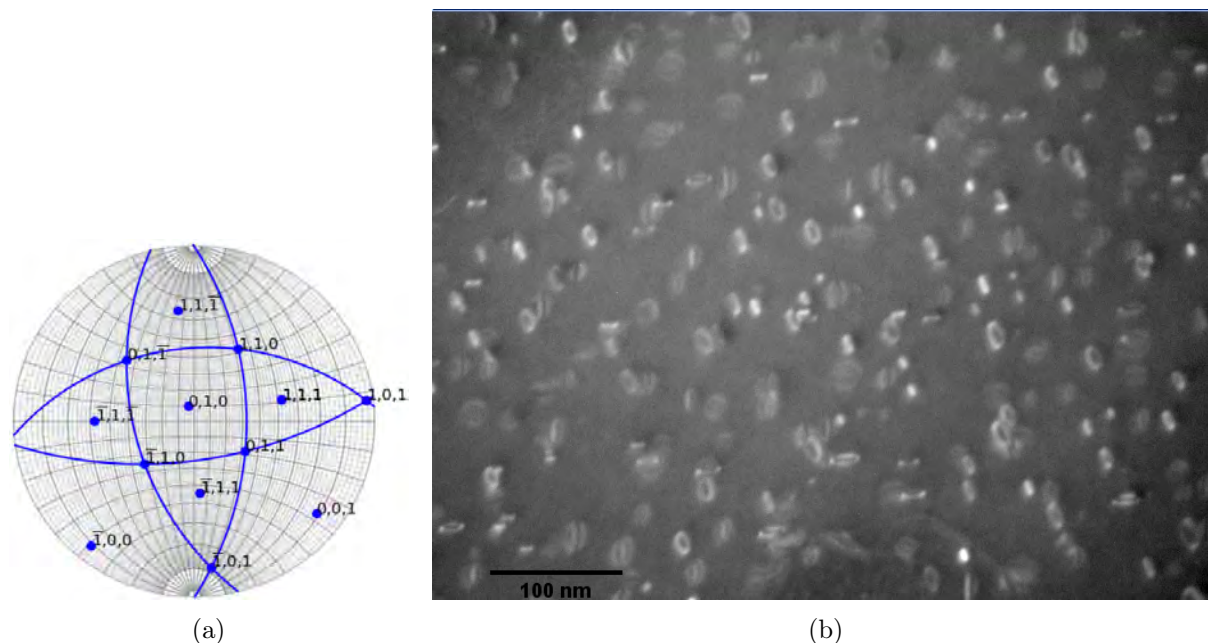


Figure 3.9 – (a) Projection stéréographique associée à l'orientation du cristal à inclinaison nulle dans le porte-objet. Les arcs de cercles correspondent aux quatre plans de boucles de Frank possibles. (b) Irradiation sans contrainte appliquée dans l'échantillon 3.

3.3.2 Taille des boucles

La taille des boucles a été mesurée pour les échantillons 2 et 3. Pour la première irradiation de l'échantillon 2, quelques boucles sont entourées sur la figure 3.7. Les diamètres de ces 8 boucles ont été mesurés à partir d'images prises toutes les 5 minutes au cours de l'irradiation. Le suivi du diamètre de ces boucles est donné sur le graphique de la figure 3.10. Il n'y a pas de mesure à 5 min d'irradiation parce que les boucles sont encore trop petites. Les vitesses de croissance de ces boucles sont déduites des régressions linéaires et sont répertoriées dans le tableau 3.1. La vitesse moyenne de ces huit boucles est $0,011 \pm 0,003 \text{ nm.s}^{-1}$. Cette vitesse est équivalente à celle mesurée dans l'expérience de référence de l'évolution des boucles in-situ qui était de $0,010 \pm 0,003 \text{ nm.s}^{-1}$ avec un flux moyen du même ordre de grandeur (section 2.4). Si nous distinguons les boucles dites verticales, de celles dites horizontales, nous obtenons des vitesses moyennes de $0,012 \pm 0,002 \text{ nm.s}^{-1}$ et $0,011 \pm 0,003 \text{ nm.s}^{-1}$, respectivement.

Pour ce qui est de la deuxième irradiation dans l'échantillon 2, le diamètre des boucles présentes sur la figure 3.8 a été mesuré. Seules les boucles suffisamment grandes pour reconnaître leur orientation ont été considérées. La distribution du diamètre de ces boucles en fonction de leur orientation est donnée en figure 3.11. Les tailles moyennes entre les deux catégories sont équivalentes : 13,1 nm pour les boucles horizontales et 13,7 nm pour les boucles verticales.

La taille des boucles à la fin de l'irradiation hors contrainte dans l'échantillon 3 a également été mesurée. L'histogramme associé à la figure 3.9b est donné en figure 3.12. La taille moyenne des boucles verticales est de 16,6 nm et celle des boucles horizontales est de 17,1 nm.

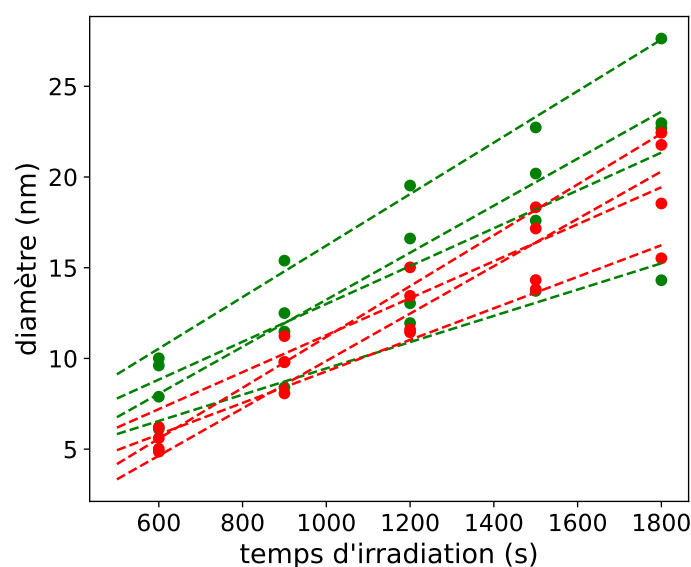


Figure 3.10 – Diamètre des boucles en fonction du temps d'irradiation dans l'échantillon 2. L'erreur sur la mesure est de 4 nm. Les deux populations de boucles correspondent à celle montrées sur la figure 3.7 avec le même code couleur. Les droites en pointillées correspondent aux régressions linéaires.

Tableau 3.1 – Vitesses moyennes des boucles annotées sur la micrographie de la figure 3.7. Elles sont déduites des pentes des régressions linéaires tracées sur le graphique de la figure 3.10.

Boucle	1	2	3	4	5	6	7	8
Vitesse de croissance du diamètre (nm.s^{-1})	0,013	0,007	0,010	0,014	0,014	0,009	0,010	0,013

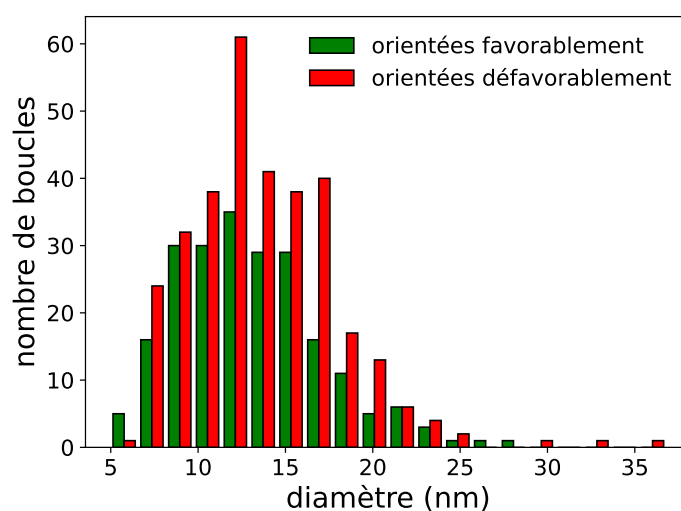


Figure 3.11 – Distribution des diamètres de boucles de la figure 3.8 en distinguant les deux orientations. Cet histogramme regroupe 538 boucles.

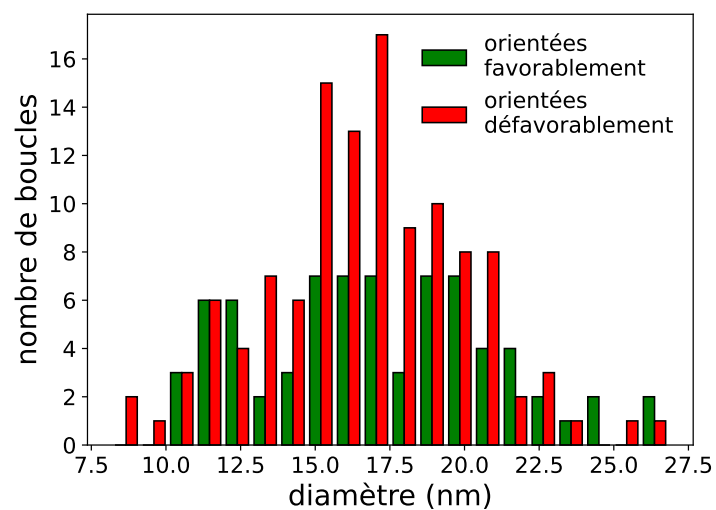


Figure 3.12 – Distribution des diamètres de boucles de la figure 3.9 en distinguant les deux orientations. Cet histogramme regroupe 193 boucles.

Résumé des expériences de référence

Trois échantillons ont été irradiés (une ou deux fois) sans l'application d'une contrainte. Le tableau 3.2 regroupe, pour chaque expérience de cette section, les différentes proportions entre les boucles orientées verticalement et celle orientées horizontalement. Les microstructures obtenues présentent des proportions non équiréparties entre les deux catégories. Il s'agit cependant des meilleurs états que nous avons réussi à obtenir. Toutefois, nous montrerons par la suite que ce déséquilibre de proportions reste modéré et permet de discriminer les mécanisme mis en jeu sous contrainte. De plus, les diamètres des boucles ont été mesurés. Les tailles moyennes et les vitesses de croissance sont similaires entre les deux catégories. Ces résultats serviront de référence pour les expériences sous contrainte.

Tableau 3.2 – Proportions entre les deux catégories de boucles dans les expériences sans contrainte appliquée dans les échantillons 1, 2 et 3. Pour les échantillons 1 et 2, les proportions sont données avant et après avoir collé la lame sur l'éprouvette de traction en cuivre.

échantillon	1		2		3
boucles verticales	55%	27%	64%	59%	60%
boucles horizontales	45%	73%	36%	41%	40%

3.4 Irradiations avec application d'une contrainte

Nous procédons aux irradiations sous contrainte au sein des mêmes grains que dans la section 3.3. Le protocole de mise sous contrainte est présenté dans la section 3.1.2.

Lors de l'étape de mise sous contrainte, nous attendons d'observer le glissement des dislocations au sein du grain avant d'arrêter le déplacement du mors mobile. La figure 3.13 est un exemple de l'observation du glissement des dislocations au sein de l'échantillon 1. On peut constater que la courbure des dislocations change au cours du glissement (figure 3.13a). Il est à noter que les traces de glissement dans nos échantillons d'aluminium se résorbent rapidement, ce qui rend difficile leur caractérisation.

Comme pour les expériences de référence, les proportions et les tailles de boucles sont mesurées à la fin des expériences afin de conclure sur l'influence de la contrainte appliquée sur les densités ou les vitesses de croissance des boucles.

Nous soulignons que les résultats qui suivent correspondent aux expériences où la contrainte est appliquée avant de procéder à l'irradiation in-situ.

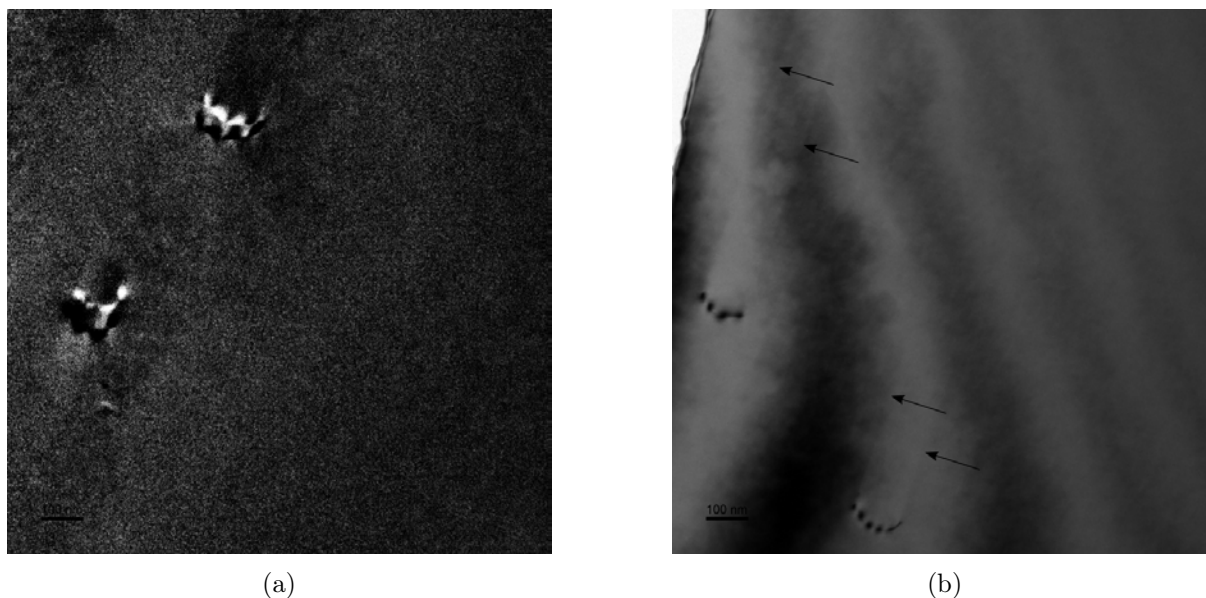


Figure 3.13 – Mise sous contrainte dans l'échantillon 1 : (a) Différence entre deux images MET prises à deux instants sans déplacer la caméra au cours du glissement de deux dislocations. Les dislocations au premier instant apparaissent en blanc et dans le deuxième instant en noir. (b) Traces de glissement qui témoignent du passage des dislocations aux surfaces de la lame.

3.4.1 Proportions des boucles

L'échantillon 1 est irradié pendant 20 minutes avec un flux moyen de $1,7 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($2,23 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). La microstructure à la fin de l'irradiation est montrée en figure 3.14. L'effet de la contrainte est incontestablement visible. A première vue, toutes les boucles de Frank semblent orientées de la même façon. En réalité 96% d'entre elles sont orientées favorablement par rapport à l'axe de la contrainte, ce pourcentage a été déduit sur un total de 547 boucles. Bien qu'il avait été constaté que les boucles horizontales (73%) étaient plus nombreuses que les boucles verticales lors de la deuxième expérience de référence (figure 2.44b), un effet de la contrainte est mis en évidence dans cette dernière expérience avec une sélectivité des boucles presque totale. La figure 3.15 est une image prise à plus faible grossissement. Elle montre l'emplacement des trois irradiations (deux expériences de référence et une sous contrainte appliquée) au sein du grain. Le diamètre de la surface irradiée mesure environ $1 \mu\text{m}$. L'épaisseur de l'échantillon 1 augmente rapidement au bord du trou, c'est pourquoi les trois expériences sont réalisées proche du trou.

L'échantillon 2 est irradié sous contrainte pendant 25 minutes avec un flux moyen de $1,9 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($2,49 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). La microstructure finale est présentée dans la figure 3.16. Nous retrouvons une forte sélectivité des boucles dites horizontales. Elles sont présentes à 87% sur 516 boucles au total.

Il peut être noté que la microstructure semble relativement hétérogène au sein du disque irradié en terme de densité surfacique des boucles et également de leur taille. En haut à droite de la micrographie en figure 3.16, les boucles paraissent qualitativement moins denses et plus grandes. Cette expérience n'est pas située à la même distance du trou que l'expérience hors contrainte comme le prouve la figure 3.17. L'irradiation sous contrainte est plus proche du trou où nous pouvons faire l'hypothèse que l'épaisseur varie fortement, ce qui expliquerait le comportement différent des boucles entre cette dernière expérience et les précédentes.

Afin de vérifier la reproductibilité sur un même échantillon, l'échantillon 3 est irradié deux

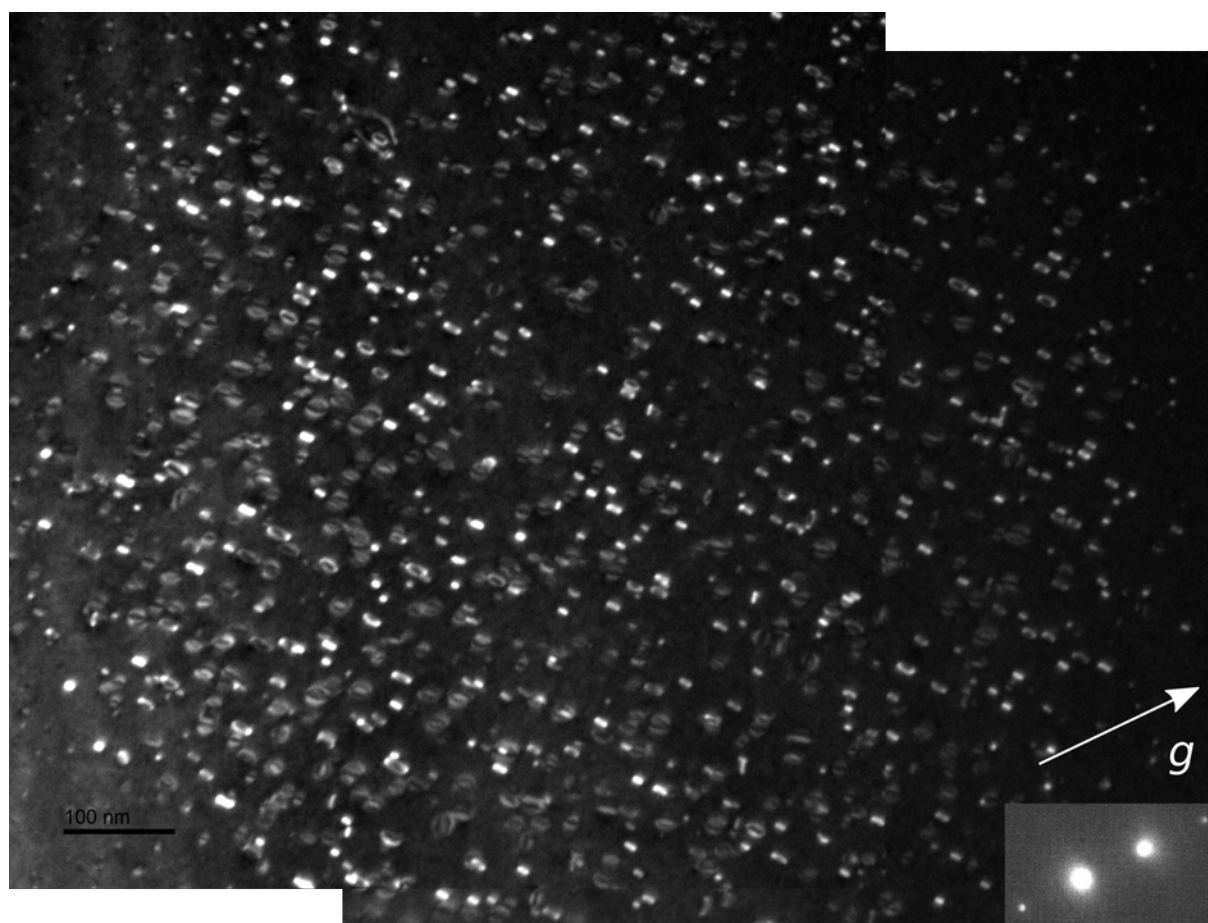


Figure 3.14 – Irradiation avec application d'une contrainte dans l'échantillon 1.

fois. L'état de la microstructure au bout de 30 minutes d'irradiation sous contrainte est présenté en figure 3.18. Les proportions entre les boucles verticales et horizontales sont 8% et 92% respectivement, sur un total de 484 boucles. Nous avons bien une sélectivité des boucles qui favorise celles orientées horizontalement.

Cette expérience d'irradiation in-situ a également été analysée de façon automatique. Le nombre de boucles détectées en fonction de leur orientation, est donné sur l'histogramme de la figure 3.19. La distribution en bleu correspond à la distinction des boucles en trois classes : les boucles dites verticales, les boucles horizontales et celles qui présentent une orientation intermédiaire. Les droites rouges correspondent à l'angle moyen des boucles pour chaque classe. La distribution en orange sur la même figure correspond aux orientations individuelles des boucles.

L'algorithme détecte 200 boucles dont 9 présentent une orientation intermédiaire. Parmi le reste des boucles, 15% sont des boucles verticales présentant un angle moyen avec l'axe vertical de 18° et 85% sont des boucles horizontales avec un angle moyen de 80° . La sélectivité des boucles horizontales est retrouvée avec la détection automatique. Elle est un peu plus faible par rapport à ce qui a été comptabilisé manuellement (92%). Les différences de contraste au sein de la micrographie de la figure 3.18 ne sont pas propice à la détection automatique de certaines boucles, c'est pourquoi seulement 200 boucles sont reconnues contre 484 boucles manuellement.

Suite à cette première expérience sous contrainte dans l'échantillon 3, nous procédons à une deuxième irradiation sous contrainte en se plaçant dans une zone proche de la première irradiation, en étant suffisamment éloigné de cette dernière afin d'éviter la présence de boucle préexis-

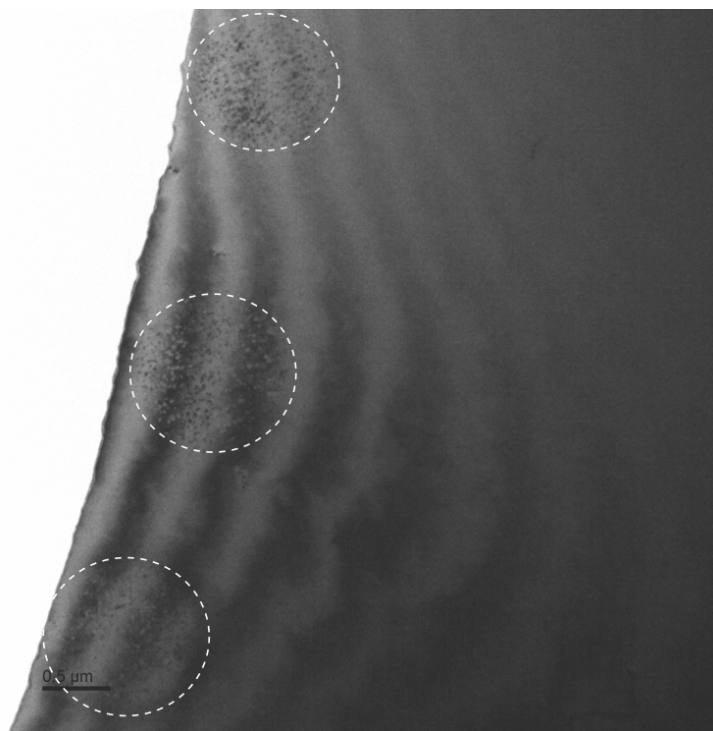


Figure 3.15 – Vue d'ensemble des trois irradiations menées au sein de l'échantillon 1, du bas vers le haut : première irradiation hors contrainte appliquée avant de coller la lame, deuxième irradiation hors contrainte appliquée après avoir collé la lame, irradiation avec application d'une contrainte.

tante. Avant d'irradier une seconde fois, nous avons vérifié que l'échantillon était encore sous tension à la fin de la première irradiation en ajoutant un déplacement de $\sim 1 \mu\text{m}$. Le glissement des dislocations au sein du grain est observé, le déplacement est ensuite très légèrement diminué. La micrographie en figure 3.20 est prise au bout de 41 min d'irradiation. 206 boucles sont identifiées et 90% d'entre elles sont considérées comme orientées favorablement. La reproductibilité de l'expérience au sein d'un même échantillon est donc vérifiée.

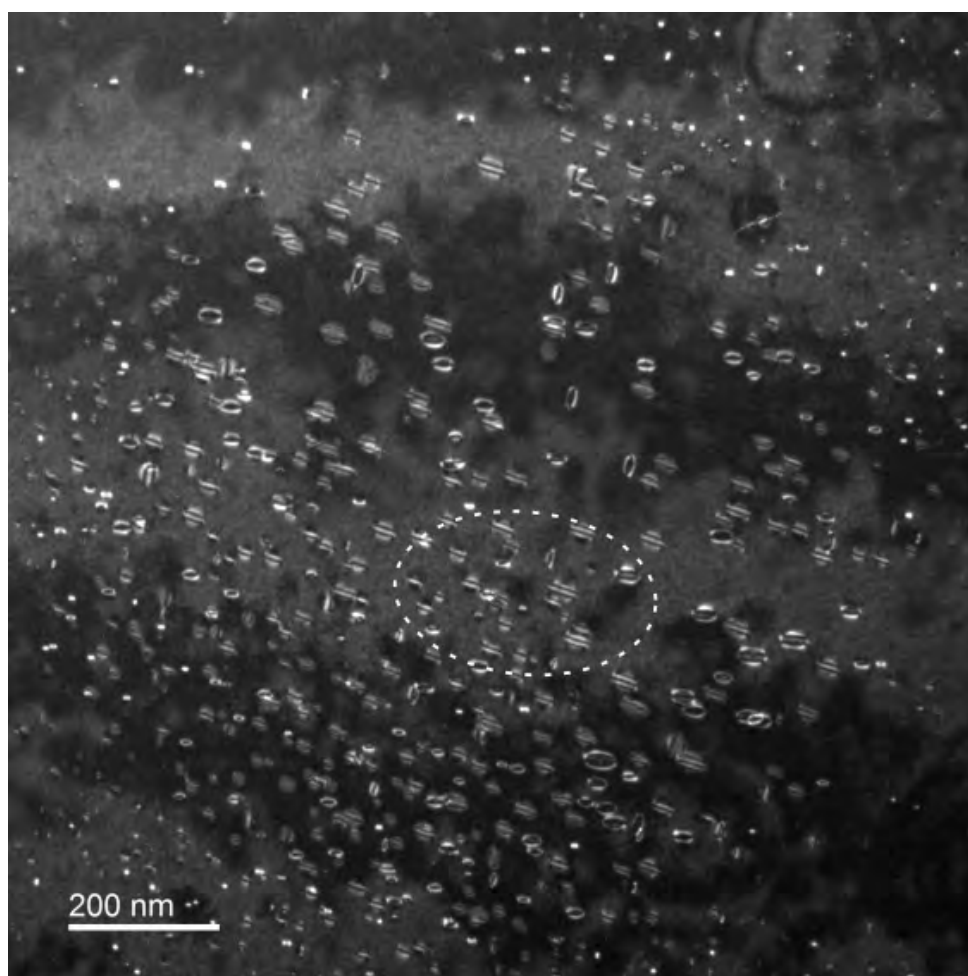


Figure 3.16 – Irradiation sous contrainte appliquée dans l'échantillon 2.

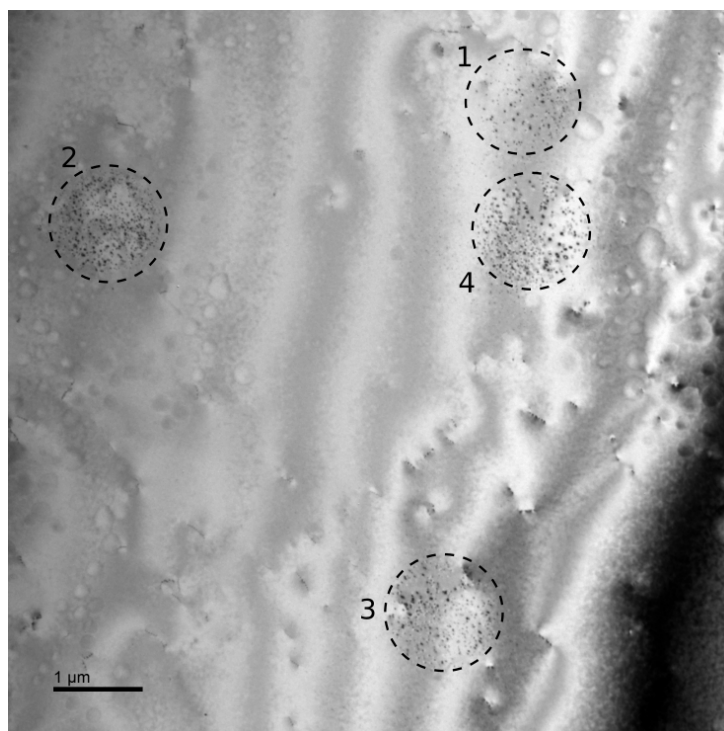


Figure 3.17 – (a) Vue d'ensemble des irradiations menées dans l'échantillon 2 : 1) irradiation test hors contrainte avant de coller la lame, 2) irradiation hors contrainte présentée dans la figure 3.7, 3) irradiation hors contrainte présentée dans la figure 3.8 et 4) irradiation sous contrainte de la figure 3.16. Le trou d'électropolissage n'est pas visible, il se situe à droite par rapport aux zones irradiées.



Figure 3.18 – Première irradiation sous contrainte de l'échantillon 3.

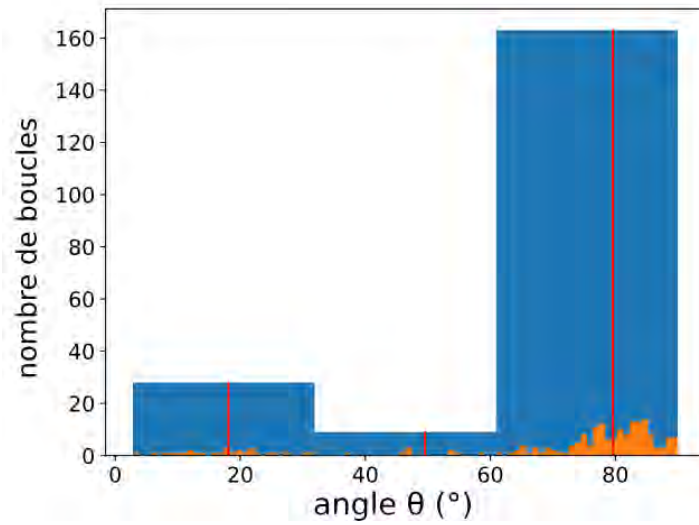


Figure 3.19 – En orange, la distribution des boucles en fonction de l'angle θ entre un axe vertical et le plus grand axe des ellipses ajustées sur les boucles par détection automatique. En bleu, regroupement des boucles en trois classes : celles dont l'angle d'orientation est inférieur à 32° , celles dont l'angle est supérieur à 61° et les boucles d'orientation intermédiaire. Les droites en rouge indiquent l'angle moyen des boucles pour chaque classe. Ces résultats sont calculées pour la première irradiation sous contrainte de l'échantillon 3, figure 3.18.

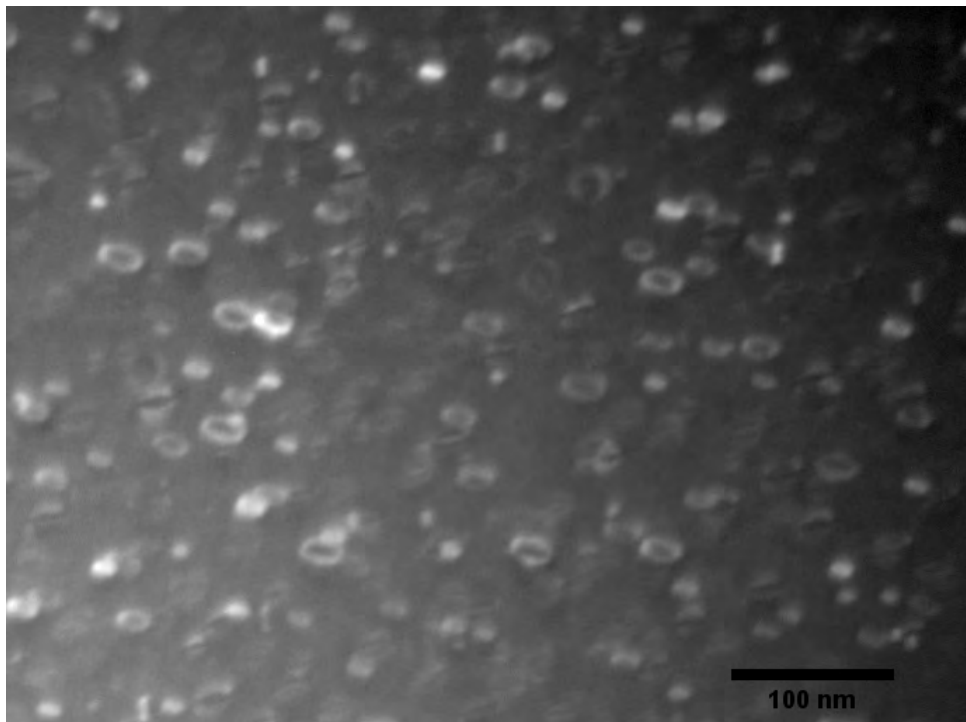


Figure 3.20 – Deuxième irradiation sous contrainte de l'échantillon 3.

3.4.2 Taille des boucles

L'objectif de cette section est de déterminer si la contrainte agit sur les vitesses de croissance des boucles en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de traction. Pour cela, le diamètre des boucles, dans les expériences réalisées dans les échantillons 2 et 3, est mesuré manuellement ou à l'aide de la méthode automatique.

Les distributions des tailles de boucles correspondantes à l'état final de la microstructure pour les trois expériences (une irradiation dans l'échantillon 2 et deux irradiations dans l'échantillon 3) sont données sur la figure 3.21. La distribution correspondante à la première irradiation dans l'échantillon 3 est obtenue avec la méthode de détection automatique des boucles, les deux autres sont obtenues à partir de mesures manuelles.

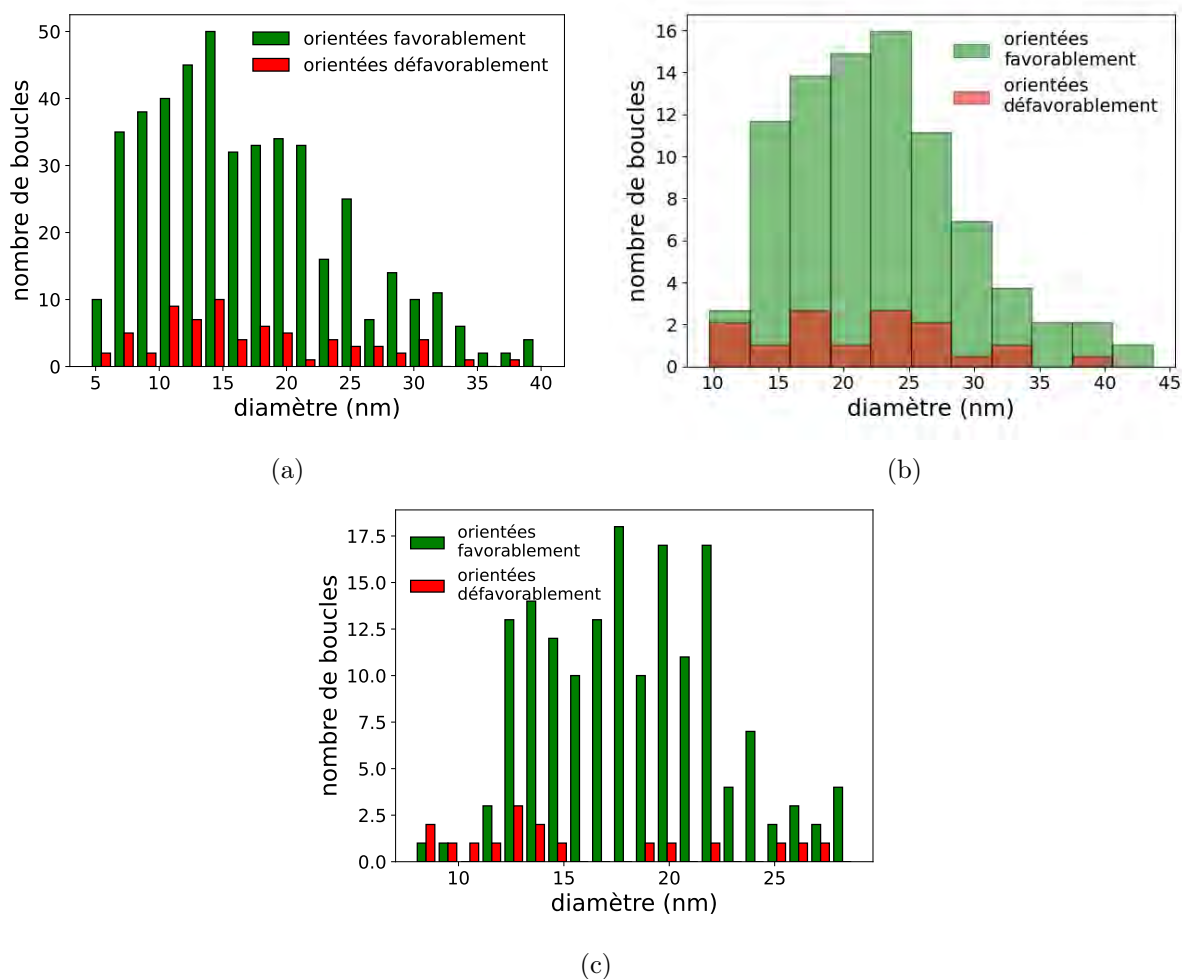


Figure 3.21 – Distributions des tailles de boucles dans les irradiations sous contrainte correspondant aux expériences (a) de la figure 3.16 dans l'échantillon 2, (b) de la figure 3.18, première irradiation dans l'échantillon 3 et (c) de la figure 3.20, deuxième irradiation dans l'échantillon 3. Les graphiques (a) et (c) sont obtenues avec des mesures manuelles et le graphique (b) avec la méthode automatique (en orange les boucles verticales et en bleu les boucles horizontales).

Les tailles moyennes des boucles orientées favorablement ou défavorablement par rapport à la contrainte, associées à ces distributions, sont données dans le tableau 3.3. Les résultats sur les deux premières colonnes indiquent que les tailles moyennes sont identiques entre les deux catégories de boucles, ce qui laisse penser que la contrainte appliquée n'affecte pas les vitesses de croissance des populations de boucles. Pour la troisième expérience d'irradiation sous contrainte,

Tableau 3.3 – Mesure des tailles moyennes entre les deux populations de boucles avec la méthode manuelle dans l'échantillon 2 (figure 3.16) et la deuxième irradiation de l'échantillon 3 (figure 3.18) et avec la méthode automatique pour la première irradiation de l'échantillon 3 (figure 3.20).

Expérience	échantillon 2	échantillon 3 - irradiation n°1	échantillon 3 - irradiation n°2
Tailles moyennes boucles verticales (nm)	17,2	22,6	15,6
Tailles moyennes boucles horizontales (nm)	17,0	21,7	18,4

les tailles moyennes présentent un écart supérieur à 2 nm entre les deux catégories en faveur des boucles horizontales. L'erreur sur la mesure des boucles est supérieure à l'écart constaté, il est donc prématuré de confirmer que cet écart soit dû à un potentiel effet du mécanisme SIPA ; d'autant plus que dans les deux premières expériences sous contrainte ne montrent pas d'écart entre les deux familles de boucles. L'hypothèse du mécanisme SIPA peut donc être contestée.

Comme les mesures des boucles à un instant donné ne donnent qu'un aperçu de l'évolution des boucles, nous complétons ces résultats par le suivi du diamètre de certaines boucles au cours de l'irradiation. Nous avons réalisé ce suivi pour l'irradiation dans l'échantillon 2 de façon manuelle et la première irradiation dans l'échantillon 3 avec la méthode automatique. Il est à noter qu'il est plus difficile de trouver des exemples pour les boucles orientées défavorablement puisque ces dernières sont moins nombreuses du fait de la forte influence de la contrainte appliquée sur les densités des boucles.

La région elliptique en blanc sur la microstructure de l'échantillon 2, dans la figure 3.16, englobe les boucles dont la taille a été mesurée toutes les 5 minutes. La figure 3.22 correspond à l'indexation de ces boucles. Au total, 29 boucles sont analysées dont 3 verticales.

L'évolution de la taille de l'ensemble de ces boucles au cours de l'irradiation est tracée sur la figure 3.23a. Comme pour les expériences hors contrainte, la croissance des boucles est globalement linéaire avec la dose. Nous n'observons pas décroissance de boucles, aux doses atteintes dans cette expérience. La vitesse moyenne calculée à partir des 29 boucles est de $0,014 \pm 0,005 \text{ nm.s}^{-1}$. Elle est équivalente à celle calculée pour l'expérience hors contrainte dans le même échantillon, dans la section 3.3.2 ($0,011 \text{ nm.s}^{-1}$).

Si nous considérons seulement les 3 boucles verticales, la vitesse moyenne des boucles orientées défavorablement est de $0,015 \pm 0,006 \text{ nm.s}^{-1}$. La vitesse moyenne de boucles orientées favorablement est, quant à elle, de $0,013 \pm 0,005 \text{ nm.s}^{-1}$. Il n'y a donc pas d'effet visible de la contrainte sur les vitesses de croissance des deux catégories de boucles.

De plus, nous observons que le comportement individuel diffère assez d'une boucle à l'autre. Nous avons par exemple constaté que le diamètre d'une des boucles stagnait dès 5 minutes d'irradiation alors qu'elle est orientée favorablement.

Jitsukawa et Hojou [107] ont constaté avec des expériences d'irradiation aux électrons dans l'aluminium pur que la vitesse de croissance des boucles dépend de leur taille. Afin de s'affranchir de cet effet de la taille des boucles sur la croissance, nous comparons des boucles de diamètres équivalents à 5 minutes d'irradiation (entre 8 et 9 nm). Ces boucles sont regroupées dans le graphique de la figure 3.23b. Parmi ces boucles, celle avec le plus grand diamètre à la fin de l'expérience est la boucle 3 qui est la seule boucle verticale du lot. Ces exemples de suivi de boucles dans l'échantillon 2 vont à l'encontre du mécanisme SIPA qui devrait au contraire conduire à

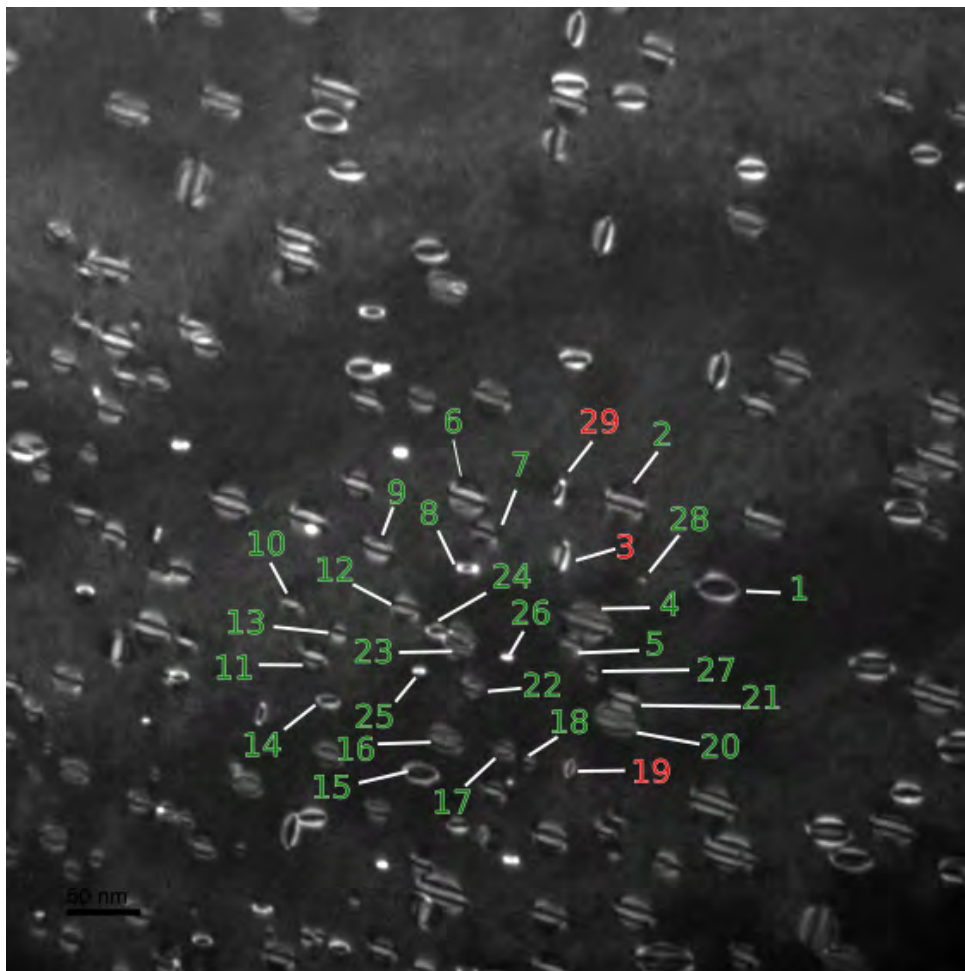


Figure 3.22 – Dénomination des boucles de l'irradiation en figure 3.16 pour le suivi de leur taille.

une vitesse de croissance des boucles bien orientées plus rapide.

A présent, nous comparons qualitativement la croissance des boucles dans l'échantillon 3 avec la méthode automatique. Les résultats du suivi de certaines boucles sont donnés dans la figure 3.24. Les boucles analysées sont celles de la microstructure de la figure 3.18. Comme nous avons besoin que les boucles soient présentes dès le début de la séquence analysée afin d'avoir des repères pour la stabilisation de l'image, l'évolution des boucles est analysée sur les 25 dernières minutes d'irradiation (expérience qui a duré 30 min au total).

Les évolutions de boucles verticales et horizontales sont tracées sur la figure 3.24a et 3.24b respectivement. Comme constaté sur l'échantillon précédent, la majorité des boucles grandissent linéairement avec le temps d'irradiation. La boucle 332 de la figure 3.24a est un contre-exemple, la taille de la boucle stagne sur la dernière phase du suivi in-situ. Au sein des deux catégories de boucles, les vitesses de croissance varient. La figure 3.24c compare directement des boucles orientées différemment dont le diamètre initial est supérieur à 10 nm et inférieur à 12,5 nm. Sur cette figure, les boucles présentant le diamètre le plus grand et le plus petit sont toutes les deux orientées défavorablement par rapport à l'axe de traction. Une deuxième fois, nous nous ne constatons pas d'effet clair de la contrainte sur les vitesses de croissance de boucles en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte.

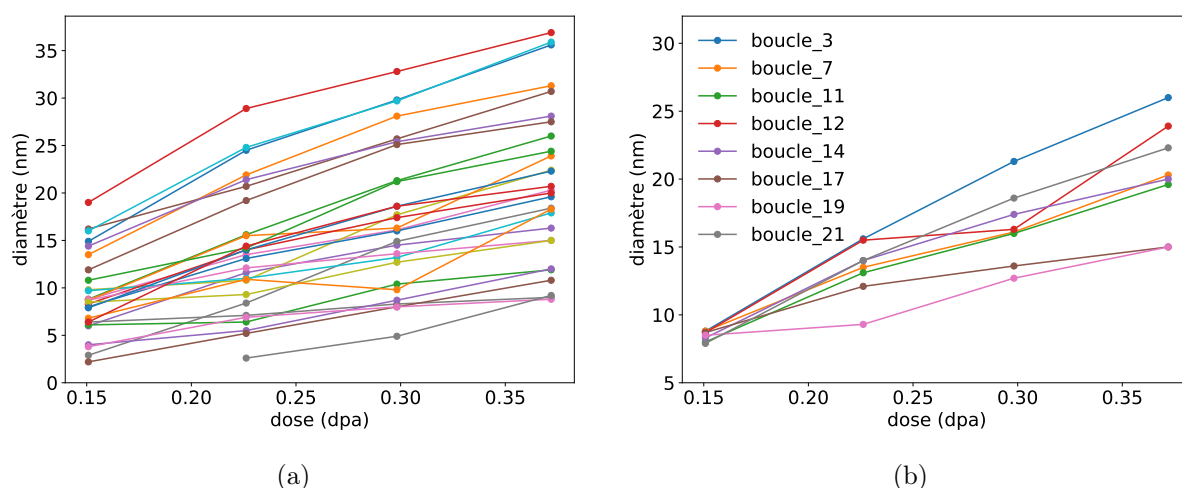


Figure 3.23 – (a) Diamètres de 29 boucles de la figure 3.22 en fonction de la dose. (b) Suivi de la croissance de boucles ayant un diamètre entre 8 et 9 nm à 5 min d'irradiation. L'erreur sur la mesure est de 4 nm.

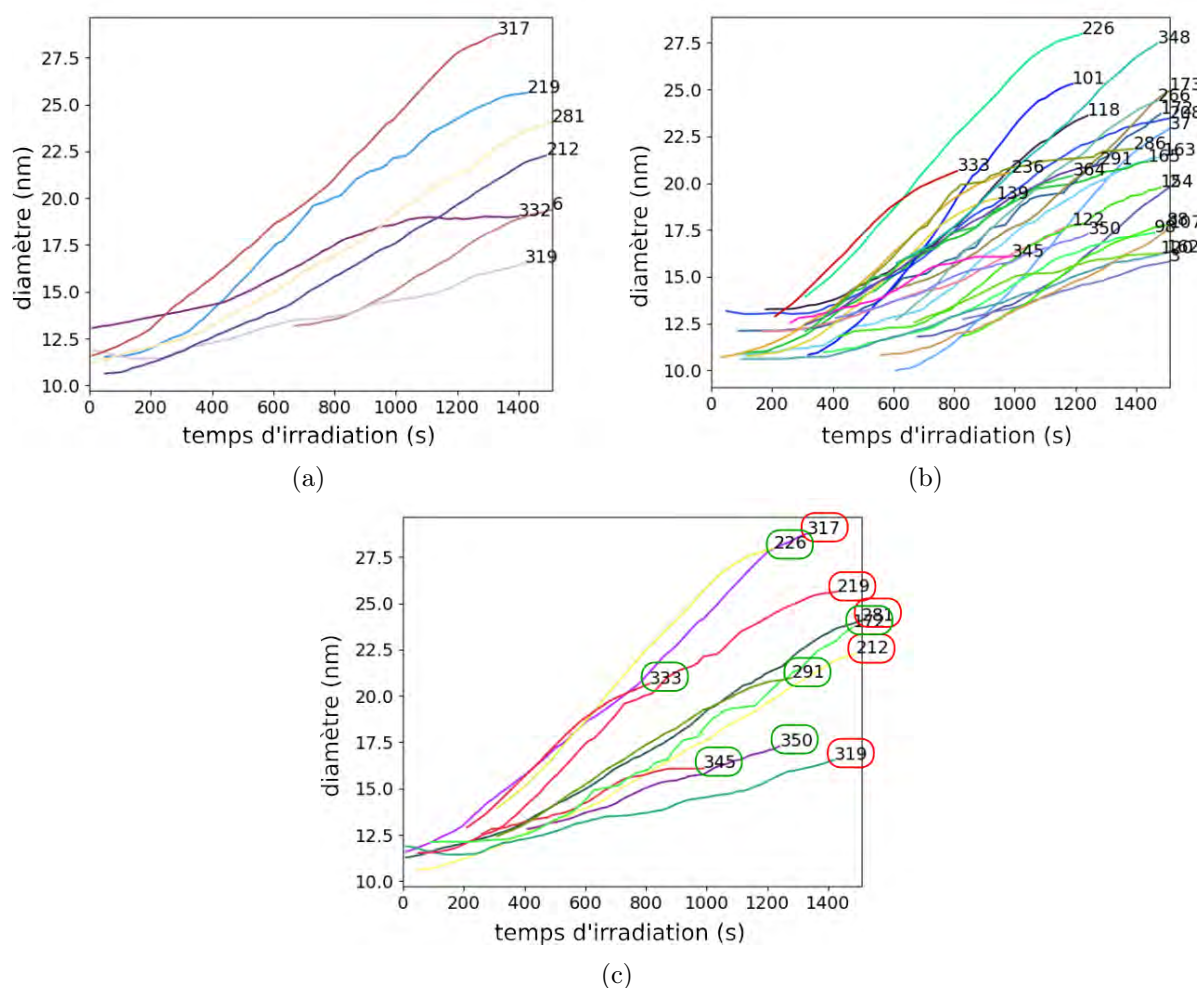


Figure 3.24 – Suivi des boucles au cours de l'irradiation de la figure 3.18 par la méthode automatique. En (a) des exemples de boucles orientées défavorablement, en (b) des boucles orientées favorablement par rapport à l'axe de traction. Le graphique (c) regroupe des boucles verticales (317, 212, 281, 319, 219) et des boucles horizontales (345, 350, 226, 333, 172, 291).

Résumé des observations sous contrainte

Le même protocole a été appliqué sur trois échantillons différents et le même type de résultat est obtenu à chaque fois. Ces expériences, dans lesquelles la contrainte est appliquée au début de l'irradiation, permettent de confirmer qu'une contrainte appliquée, en traction, agit bien sur les boucles. Cette contrainte uniaxiale favorise l'apparition de boucles dont le vecteur de Burgers est proche de l'axe de la contrainte, donnant lieu à une sélectivité de ces boucles. Cette sélectivité entre les variants de boucles que nous avons observée, a été expliquée dans des travaux récents [45, 11] par le mécanisme SIPA, entre autres. Cependant, nos résultats et ceux de la littérature ne prouvent pas de manière directe que le mécanisme SIPA est la source de cette sélectivité. En étudiant individuellement les boucles, un effet de la contrainte sur la croissance des boucles n'a pas été clairement observé. Ceci remet en question le rôle du mécanisme SIPA. Afin de discriminer l'influence du mécanisme SIPA et celle d'un mécanisme agissant lors de la formation des boucles, des expériences d'irradiation en deux étapes ont été menées, comme ce qui a été fait dans le passé par Khan et Leteurtre [63] puis Suzuki [72]. Ces expériences sont traitées dans la section qui suit.

3.5 Irradiations en deux parties (hors puis sous contrainte)

Dans cette section, nous reprenons les échantillons 2 et 3 des sections précédentes parce qu'ils présentaient les microstructures de référence les plus satisfaisantes (section 3.3). L'objectif de ces expériences en deux étapes est d'évaluer l'importance du SIPA sur la croissance des boucles, voire sur la densité des boucles. Si cela est le cas, un effet devrait être observable sur une microstructure déjà formée hors contrainte.

Le mécanisme repose sur l'absorption différentielle des défauts ponctuels en fonction de l'orientation des boucles vis-à-vis de la contrainte. D'après le mécanisme SIPA, la diffusion anisotrope des défauts ponctuels devrait favoriser la croissance des boucles orientées favorablement et défavoriser celles orientées défavorablement. Par conséquent, nous devrions observer sous l'effet de la contrainte le ralentissement de la croissance des boucles orientées défavorablement, voire leur rétrécissement par capture préférentielle de lacunes au cours de l'irradiation d'une microstructure de boucles préexistantes.

Les irradiations de cette section se déroulent en deux temps : dans un premier temps sans appliquer de contrainte, puis sous contrainte appliquée. La première phase d'irradiation est menée jusqu'à ce que les boucles soient suffisamment grandes pour facilement distinguer les deux catégories. L'irradiation est interrompue le temps de mettre le système sous contrainte suivant le protocole habituel décrit dans la section 3.1.2. Une fois passée cette étape, l'irradiation est reprise exactement au même endroit en étant donc sous contrainte. La durée de cette deuxième phase d'irradiation doit être suffisamment longue afin d'observer une tendance dans l'évolution des boucles.

3.5.1 Première phase : sans appliquer de contrainte

Les deux échantillons 2 et 3 ont déjà subi des irradiations sous contrainte (voir section 3.4). Avant de procéder à ces expériences, nous réduisons le déplacement imposé sur le mors mobile jusqu'à ce que l'échantillon ne se déplace plus sur l'écran, indiquant que l'échantillon est libre au sein du porte-objet de traction, c'est-à-dire jusqu'à annuler la contrainte appliquée.

L'échantillon 2 est irradié pendant 25 min à un flux de $1,7 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($2,23 \times 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). La microstructure à la fin de cette première étape est présentée sur la figure 3.25. Comme constaté durant l'expérience sous contrainte, la microstructure est hétérogène en terme

de densité surfacique. Ce constat est cohérent puisque l'emplacement de cette expérience d'irradiation se situe au-dessus de la microstructure de la figure 3.16.

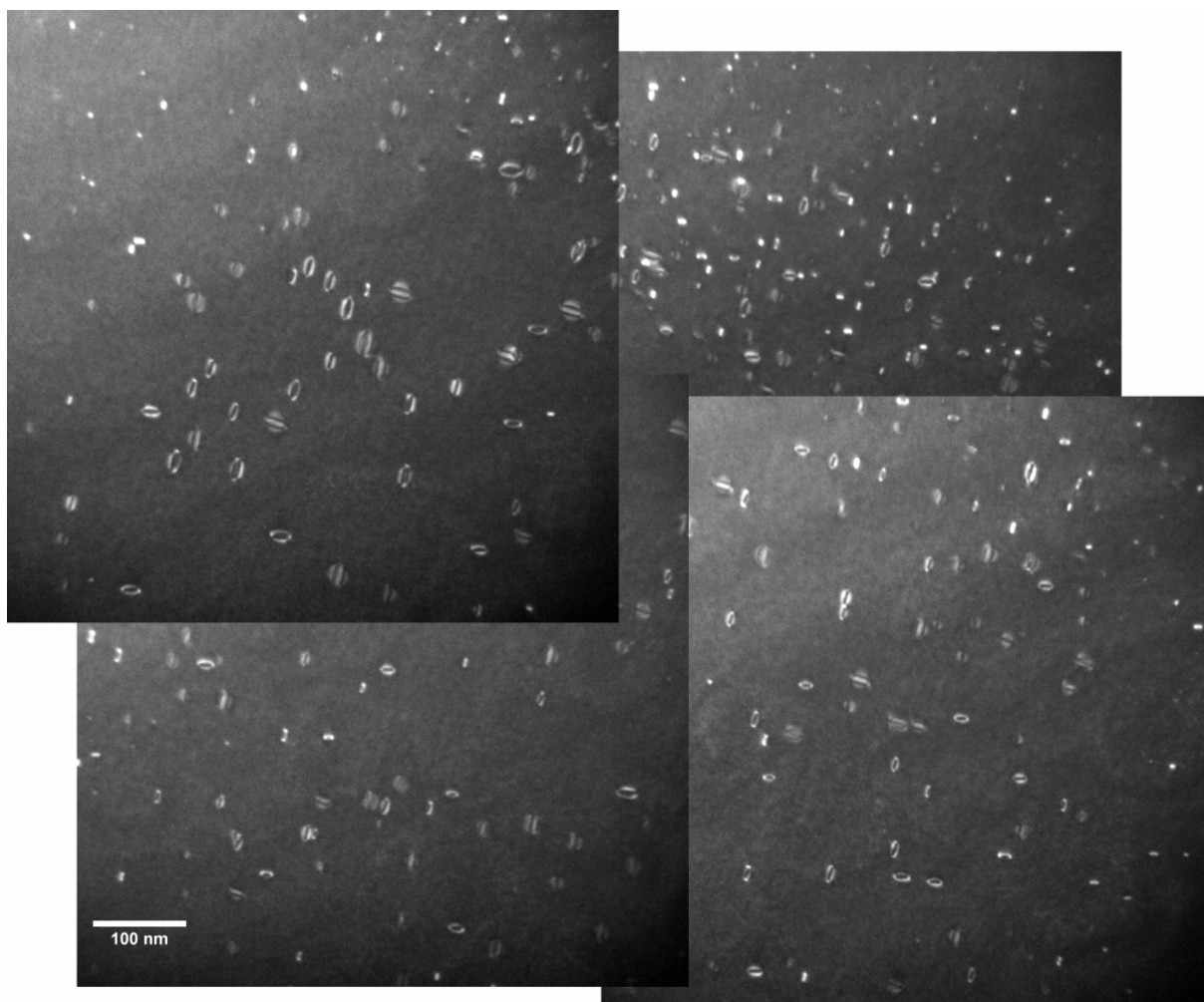


Figure 3.25 – Microstructure à la fin de la première étape d'irradiation dans l'échantillon 2 : hors contrainte.

La distribution des tailles de boucles de cette première phase d'irradiation est donnée dans la figure 3.26. Il en ressort que les boucles verticales sont plus nombreuses, elles atteignent presque un taux de 65% (déduit à partir de 258 boucles au total). La taille moyenne des boucles pour les deux catégories est de 13,0 nm. Cette microstructure initiale est idéale pour notre étude en terme de tailles et de proportions puisque l'objectif est d'observer l'effet de la contrainte, qui devrait favoriser la croissance des boucles horizontales.

L'échantillon 3 est irradié moins longtemps pour cette première phase, 16 min avec un flux moyen de $1 \times 10^5 \text{ e}^- \cdot \text{nm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ($4,95 \times 10^{-5} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$). Cette microstructure est présentée en figure 3.27. Les deux orientations de boucles sont apparentes.

La distribution des tailles de boucles en figure 3.28 permet de constater que les proportions sont équivalentes entre les deux groupes. Parmi les 191 boucles prises en compte dans la distribution, 47% sont orientées verticalement et 53% horizontalement avec un diamètre moyen de 13,3 nm et 12,4 nm respectivement. Nous pouvons donc avancer qu'il n'y a pas de sélectivité apparente à ce premier stade.

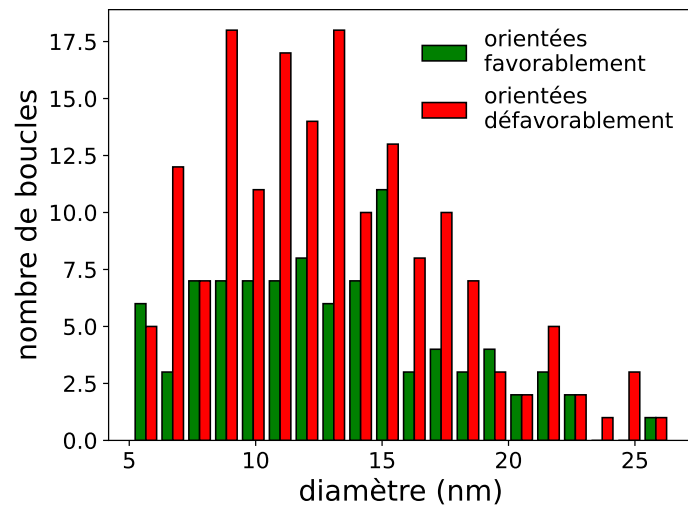


Figure 3.26 – Distribution des tailles de boucles de l'expérience de la figure 3.25.

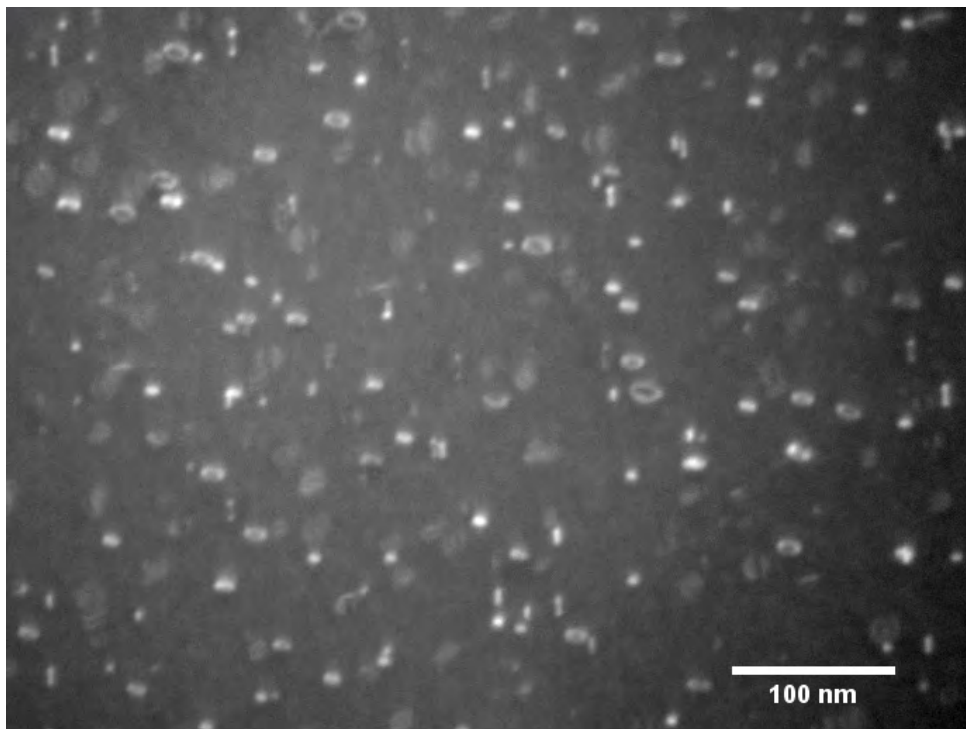


Figure 3.27 – Microstructure à la fin de la première étape d'irradiation dans l'échantillon 3 : hors contrainte.

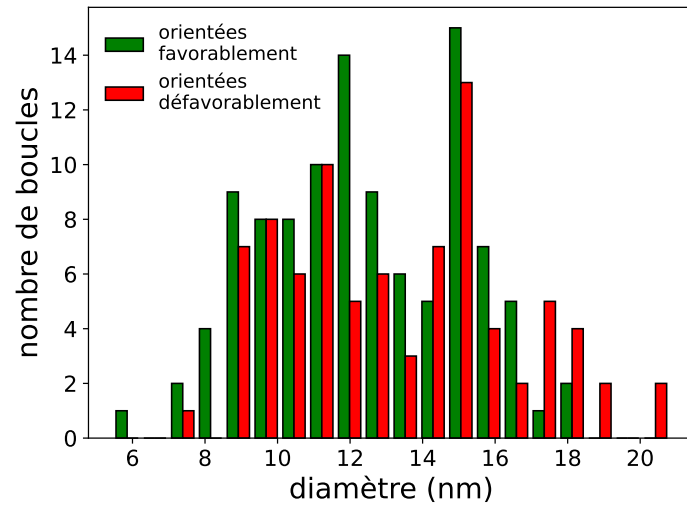


Figure 3.28 – Distribution des tailles de boucles de l'expérience de la figure 3.27.

3.5.2 Mise sous contrainte : évaluation de la contrainte et de l'épaisseur

La contrainte locale a été évaluée dans l'échantillon 3. Lors de l'étape de la mise sous contrainte, la tension d'accélération de 180 kV est baissée à 140 kV. Nous avons réussi à caractériser la dislocation de la figure 3.29, avant qu'elle ne glisse hors du champ de la caméra. A partir de la courbure de cette dislocation, nous sommes remontés à la contrainte appliquée localement. Le plan de glissement (111) est déduit de l'analyse des traces de glissement avec le logiciel pycotem [116] en ayant connaissance de l'orientation du grain et de l'épaisseur. Le phénomène de glissement dévié est ensuite observé dans le plan (001) déduit par l'analyse des traces de glissement, figure 3.30a. Nous en concluons que le vecteur de Burgers est suivant la direction $\langle 1\bar{1}0 \rangle$, ce vecteur correspond à l'intersection des deux plans de glissement comme illustré dans la projection stéréographique en figure 3.30b.

La contrainte de cisaillement dans le plan de glissement est déduite de la comparaison entre la forme théorique d'une dislocation pour une contrainte donnée et sa forme sur la micrographie après avoir corrigé l'effet de projection lors des observations en MET (figure 3.31). Nous estimons que la contrainte de cisaillement locale est de 45 ± 5 MPa. En considérant que le facteur de Schmid est 0,47, d'après l'orientation du système de glissement, et que la contrainte est localement une contrainte de traction pure, nous estimons que la contrainte appliquée est entre 85 et 106 MPa.

L'épaisseur locale a été mesurée autour d'une des cinq irradiations réalisées dans l'échantillon 3. Comme toutes ces expériences sont à peu près à la même distance du bord du trou de l'échantillon, il suffit de mesurer l'épaisseur pour une des régions irradiées pour avoir une estimation pour l'ensemble des expériences.

La méthode géométrique à partir de deux dislocations, une de chaque côté d'une zone irradiée, a été appliquée. Les deux dislocations pour cette caractérisation sont présentées en figure 3.32. L'épaisseur déduite se situe entre 210 ± 16 nm et 137 ± 16 nm, ce qui indique que la feuille présente localement un biseau. Nous considérons alors qu'en moyenne l'épaisseur est de 170 nm pour les irradiations dans l'échantillon 3.

Comme nous avons pu estimer la contrainte et l'épaisseur locale, les résultats associés à cet échantillon seront utilisés dans le chapitre 5 pour les simulations dans les conditions expérimentales.

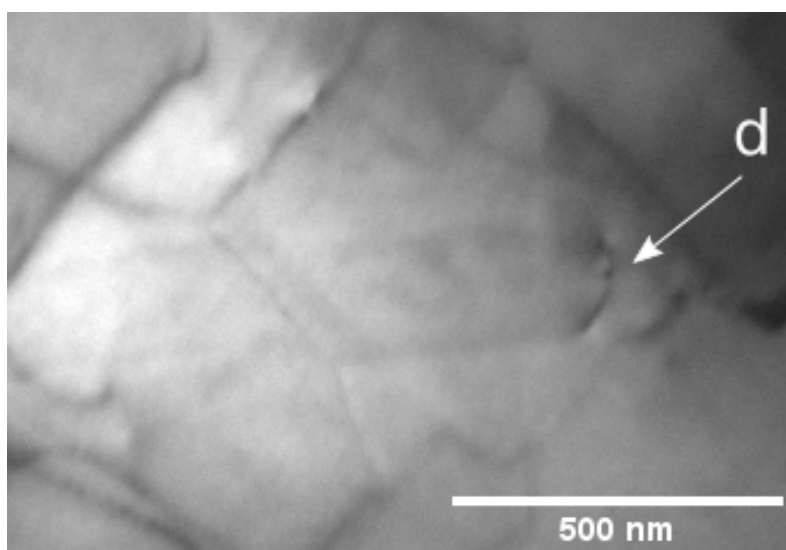


Figure 3.29 – Micrographie montrant la courbure de la dislocation d . Les traces de glissement aux surfaces sont visibles dans le sillage de la dislocation après son déplacement de la gauche vers la droite de l'image.

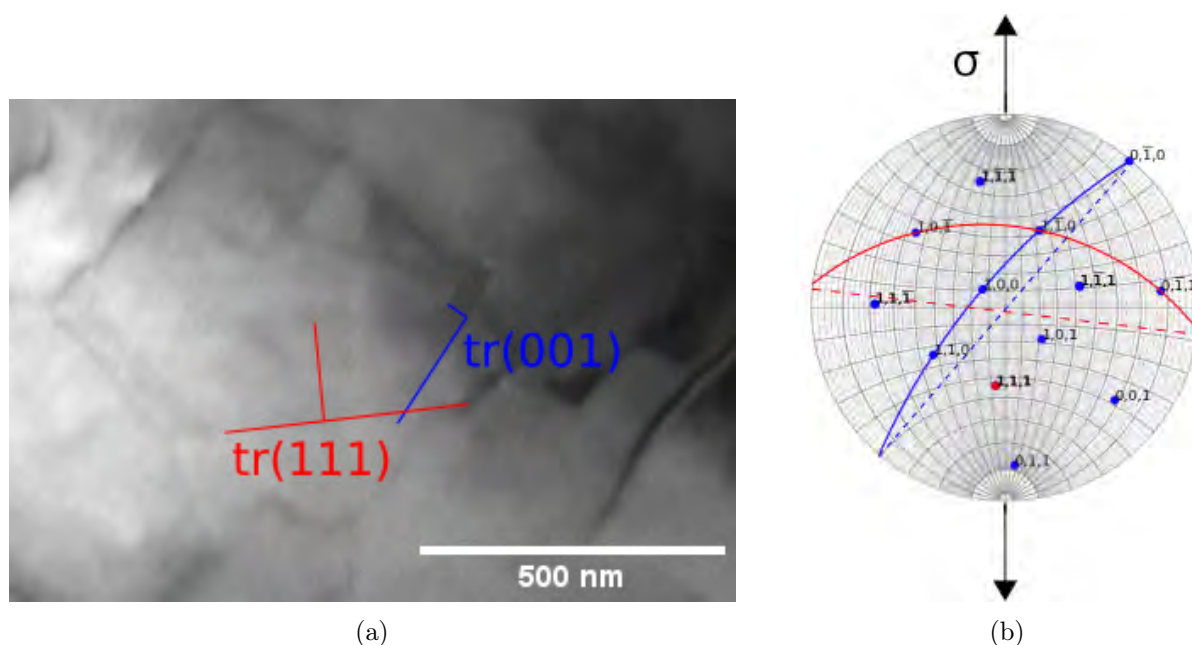


Figure 3.30 – (a) Micrographie qui montre le glissement dévié de la dislocation d . Les traces du premier glissement (figure 3.29) et du glissement dévié sont indiquées en rouge et bleu respectivement. Les épaisseurs apparentes sont également indiquées par les perpendiculaires aux traces. (b) Projection stéréographique du cristal comme observé et direction de la contrainte locale. Les traces de glissement correspondent aux plans indiqués dans la projection stéréographique.

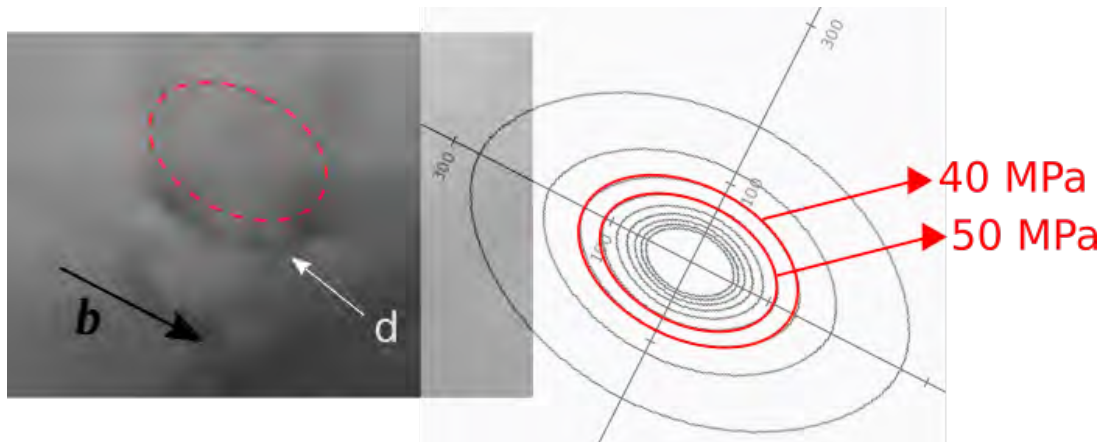


Figure 3.31 – A gauche, image de la dislocation d après correction des effets de projection et la forme théorique avec la meilleure correspondance. La correspondance est choisie à partir d'une série de formes théoriques en faisant varier la contrainte de cisaillement entre 20 et 100 MPa avec un pas de 10 MPa (à droite).

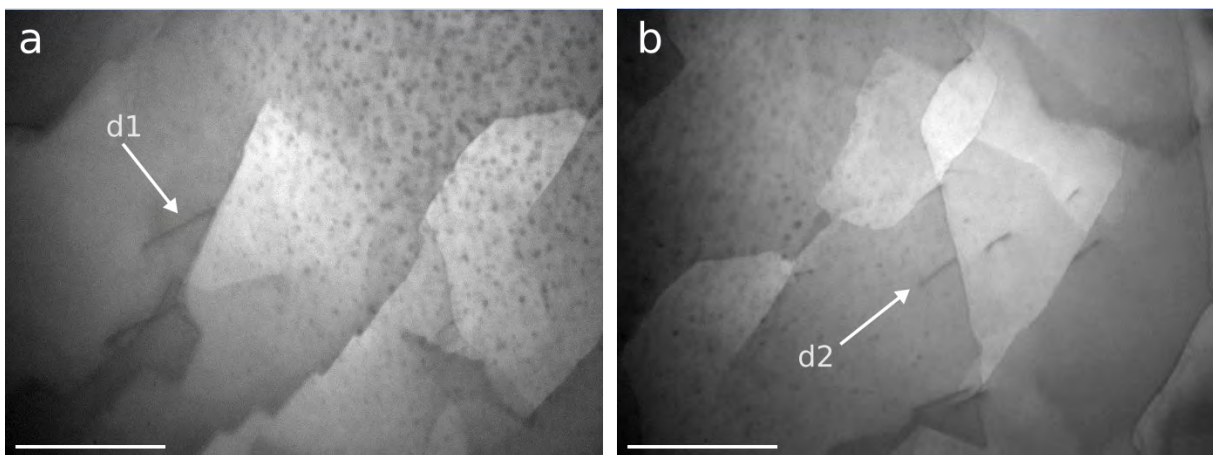


Figure 3.32 – Deux micrographies montrant deux dislocations d_1 et d_2 pour la mesure de l'épaisseur locale dans l'échantillon 3 : (a) à gauche d'une zone irradiée où l'échantillon est plus épais puisque la zone est plus éloignée du trou d'électro-polissage et (b) à droite de la même zone irradiée, à proximité du trou. Les barres d'échelle correspondent à 500 nm.

3.5.3 Deuxième phase : avec application d'une contrainte

Après s'être assuré que l'échantillon était bien sous contrainte suite à l'observation du glissement des dislocations au sein du grain, nous continuons les irradiations dans les échantillons 2 et 3 sur les mêmes zones présentées lors de la première phase d'irradiation en section 3.5.1. Pour des questions de clarté, nous présentons séparément les analyses des deux échantillons.

Echantillon 2

Proportions et tailles moyennes des boucles

La phase d'irradiation sous contrainte est maintenue 20 min. La microstructure finale est présentée en figure 3.34. Au total, 366 boucles sont catégorisées entre les deux familles de boucles et donnent la distribution en figure 3.26. Nous n'avons visiblement pas atteint la saturation du nombre de boucles (c'est-à-dire le nombre maximal de boucles qui se forment au cours de l'irradiation) à la fin de la première phase puisque le nombre de boucles augmente entre la fin de la première partie de l'expérience et celle-ci. Nous retrouvons un taux de 65% pour les boucles orientées défavorablement et 35% pour les boucles orientées favorablement. Les proportions n'ont donc pas évolué après avoir continué l'irradiation sous contrainte. Pour ce qui est des tailles moyennes, nous trouvons $24,0 \pm 9,3$ nm pour les boucles orientées favorablement et $22,1 \pm 8,1$ nm pour les boucles orientées défavorablement. Les boucles horizontales sont plus grandes mais l'écart de 2 nm entre les deux catégories reste relativement faible.

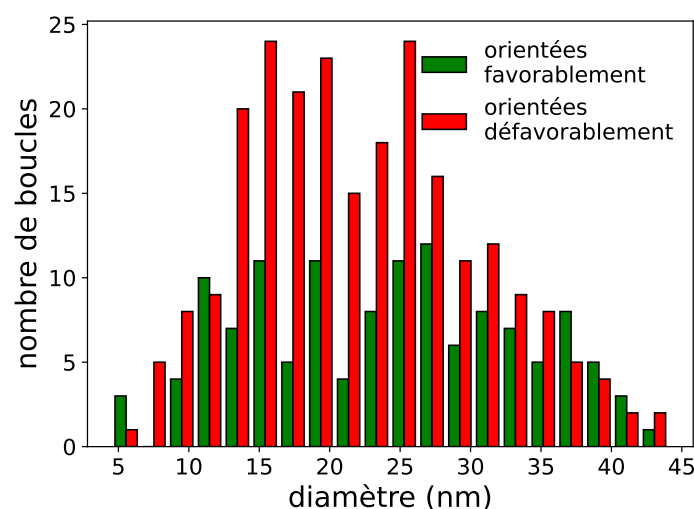


Figure 3.33 – Distribution des tailles de boucles de l'expérience de la figure 3.34.



Figure 3.34 – Microstructure à la fin de la deuxième étape d'irradiation dans l'échantillon 2 : sous contrainte.

Vitesses de croissance en fonction de l'orientation des boucles

La croissance de certaines boucles lors de cette expérience a été suivie, plus exactement 28 boucles dont 16 orientées verticalement et 12 horizontalement. La désignation de ces boucles est montrée dans la figure 3.35. Ces boucles se trouvent dans la région centrale de la zone irradiée et sont à proximité les unes des autres.

Les 28 mesures sont regroupées dans la figure 3.36. Pour le suivi des boucles, une photo de la microstructure a été prise deux fois durant la phase hors contrainte, au bout de 15 min puis 25 min d'irradiation. Ensuite, une micrographie est prise toutes les 5 min au cours de l'irradiation sous contrainte. Comme cela apparaît sur les graphiques 3.36, certaines boucles apparaissent plus tard au cours de l'irradiation.

Les mesures de la vitesse moyenne de croissance des boucles (sans distinguer les catégories), à partir de la mise sous contrainte, donnent $0,013 \pm 0,005 \text{ nm.s}^{-1}$. Celle estimée à partir des points correspondants à la phase avant la mise sous contrainte est de $0,013 \pm 0,003 \text{ nm.s}^{-1}$. La mise sous contrainte ne semble donc pas affecter l'évolution des boucles, ou de manière peu significative (du moins aux doses atteintes).

La figure 3.36a regroupe le suivi des boucles orientées défavorablement vis-à-vis de l'axe de la contrainte, la vitesse moyenne pour ces boucles est $0,013 \pm 0,005 \text{ nm.s}^{-1}$ et la figure 3.36b regroupe celles qui sont orientées favorablement et leur vitesse moyenne est $0,014 \pm 0,004 \text{ nm.s}^{-1}$

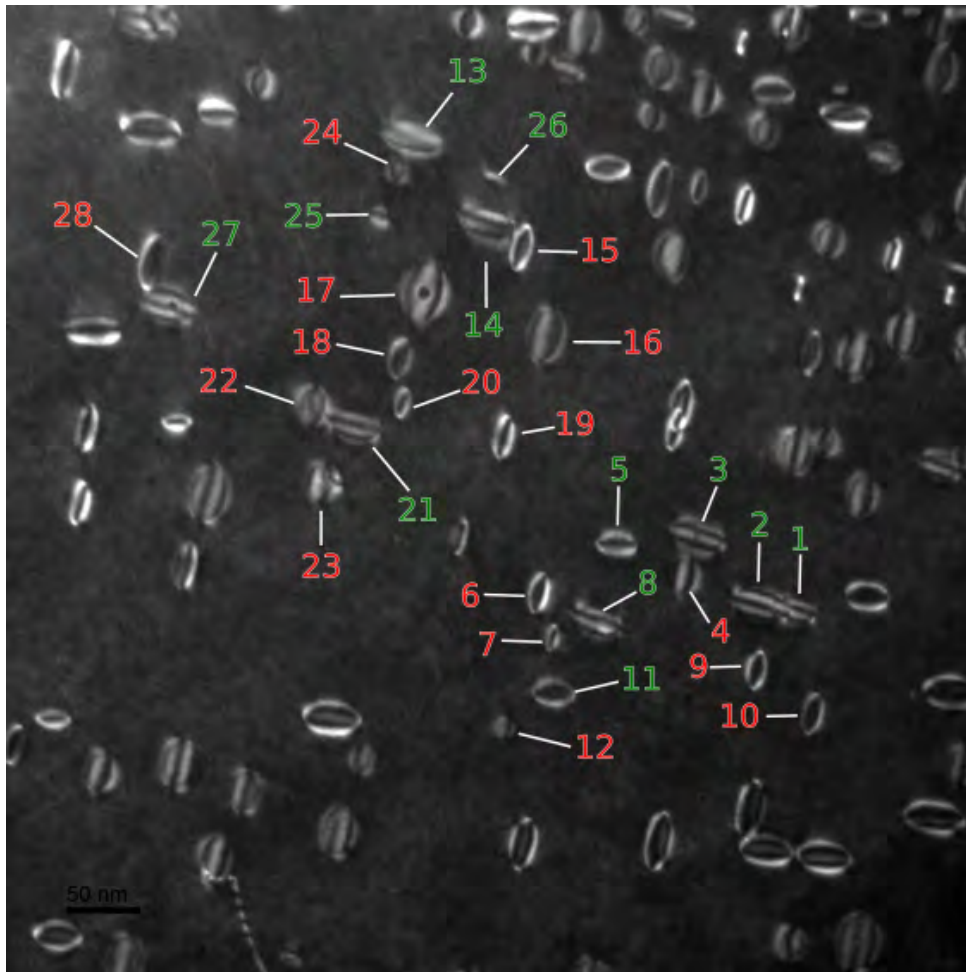


Figure 3.35 – Dénomination des boucles de l'irradiation en figure 3.34 pour leur suivi au cours de l'irradiation. Cette micrographie est prise au bout de 45 min d'irradiation (5 min avant la fin de l'expérience).

(en considérant seulement les points de la phase sous contrainte). Il n'y a donc pas de différence notable entre les vitesses de croissance selon l'orientation vis-à-vis de la contrainte. Ceci démontre donc que l'effet SIPA est trop faible pour être observé.

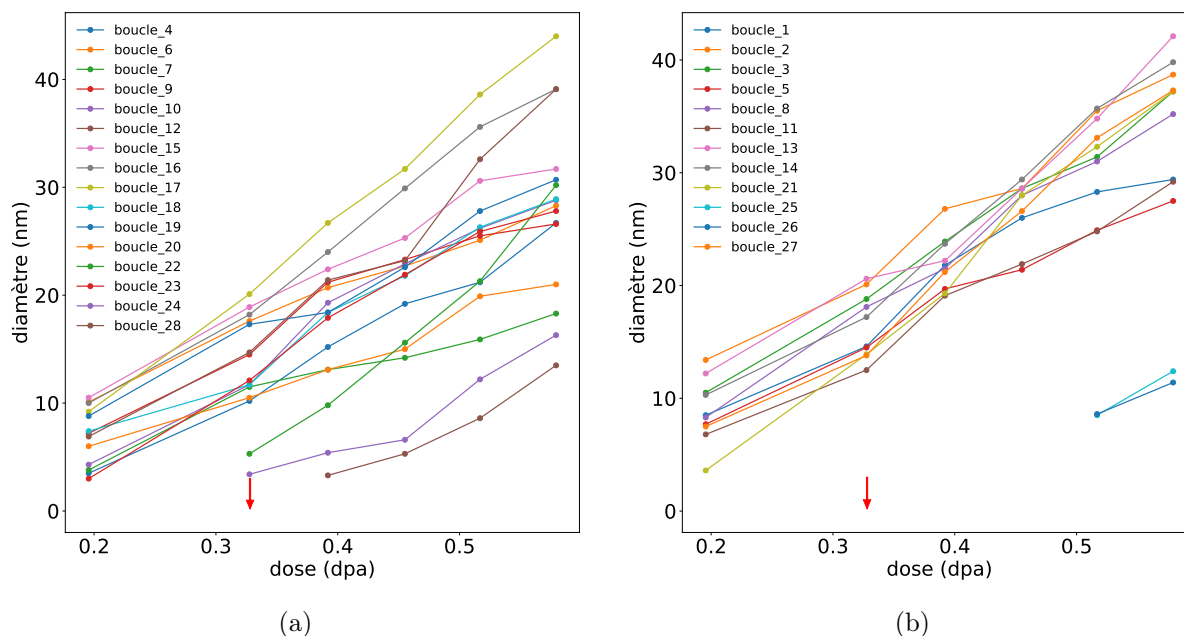


Figure 3.36 – Tailles des boucles orientées défavorablement (a) et favorablement (b) en fonction de la dose. La flèche rouge indique la limite entre la première phase hors contrainte et la seconde sous contrainte.

Effet de voisinage

Nous nous intéressons maintenant à l'évolution de certaines boucles en fonction de leur voisinage afin d'étudier un possible effet SIPA local. Nous n'avons pas vu d'effet généralisé de type SIPA précédemment, ce qui peut être dû à la présence des surfaces, par exemple, qui induirait la croissance de la majorité des boucles. Si deux boucles orientées différemment sont proches l'une de l'autre et qu'elles sont suffisamment éloignées des surfaces, on peut s'attendre à ce qu'une croisse et que l'autre décroisse.

Les boucles sont entourées d'autres boucles sur l'image, mais nous ne pouvons pas être certains que deux boucles en question soient dans un voisinage proche puisque nous n'avons accès qu'à la projection de ces boucles sur une micrographie.

Si nous commençons par regarder le comportement individuel des boucles de manière globale sur la figure 3.35, nous constatons que la plus grande boucle à la fin de l'expérience est la boucle 17, alors qu'elle est orientée défavorablement. On note par ailleurs qu'un plan secondaire se forme au sein de cette boucle, c'est également le cas de la boucle 27. Ces deux plans secondaires sont trop petits à ce stade pour que nous puissions confirmer s'ils sont de forme triangulaire comme ce que nous avons constaté dans le chapitre 2. Dans cette expérience, il apparaît clairement que la boucle 17 ne présente pas la vitesse la plus importante à partir de la mise sous contrainte. Durant les 20 min d'irradiation sous contrainte, c'est la boucle 22 qui présente la pente la plus rapide, sa vitesse moyenne est $0,022 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ et cette boucle est également orientée défavorablement.

Les graphiques de la figure 3.37 regroupent des paires de boucles de catégories opposées que nous supposons être proches l'une de l'autre. Différents cas de figure sont observés. Par exemple les boucles 3 et 4 sur la figure 3.37a : elles sont orientées différemment pourtant elles croissent avec la même allure, certes la boucle horizontale est plus grande mais elle l'était déjà lors de la première phase d'irradiation. Pour ce qui est de la boucle 14 (horizontale) et 15 (verticale) sur la figure 3.37b, la boucle 14 était de la même taille que la boucle 15 voire plus petite avant d'appliquer la contrainte, puis sa croissance s'est accélérée pour ensuite dépasser la boucle ver-

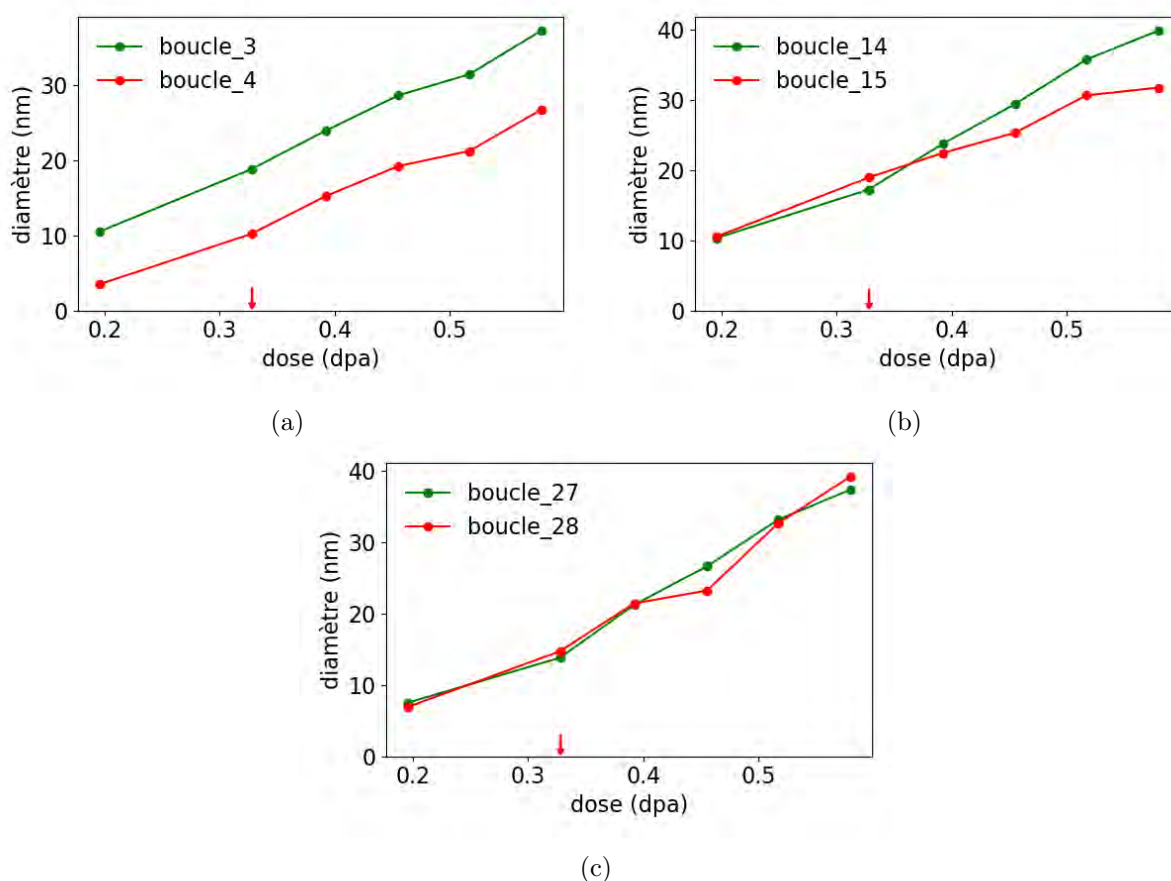


Figure 3.37 – Suivi de l'évolution de paires de boucles orientées différemment au cours de l'irradiation de la figure 3.34 : 3-4, 14-15 et 27-28. La flèche rouge indique la limite entre la première phase hors contrainte et la seconde sous contrainte.

ticale en taille, ce qui est cohérent avec le mécanisme SIPA. Enfin les boucles 27 et 28 de la figure 3.37c ont au départ des diamètres équivalents et leurs diamètres restent similaires tout le long de l'expérience.

Un effet du mécanisme SIPA qui agirait de manière locale n'est pas systématiquement observé dans cette expérience. Le mécanisme SIPA n'est pas perceptible ou bien d'autres phénomènes présents plus prédominants cachent l'effet de ce mécanisme.

Echantillon 3

Proportions des boucles

Après avoir mis l'échantillon sous contrainte, nous reprenons l'irradiation avec une tension de 180 kV. L'état de la microstructure au début et à la fin de l'irradiation sous contrainte est présenté en figure 3.38.

Dans cet échantillon, nous étudions les proportions et tailles de boucles avec les deux méthodes : manuelle et automatique. Nous étudions la microstructure en figure 3.38b après 48 min d'irradiation additionnelles depuis la fin de la première phase.

Avec la méthode manuelle, nous arrivons à indexer sur cette image 196 boucles au total, 38% sont considérées comme verticales et 62% comme horizontales. Le résultat obtenu par la méthode de détection automatique est donné en figure 3.39. 167 boucles sont détectées, ce qui

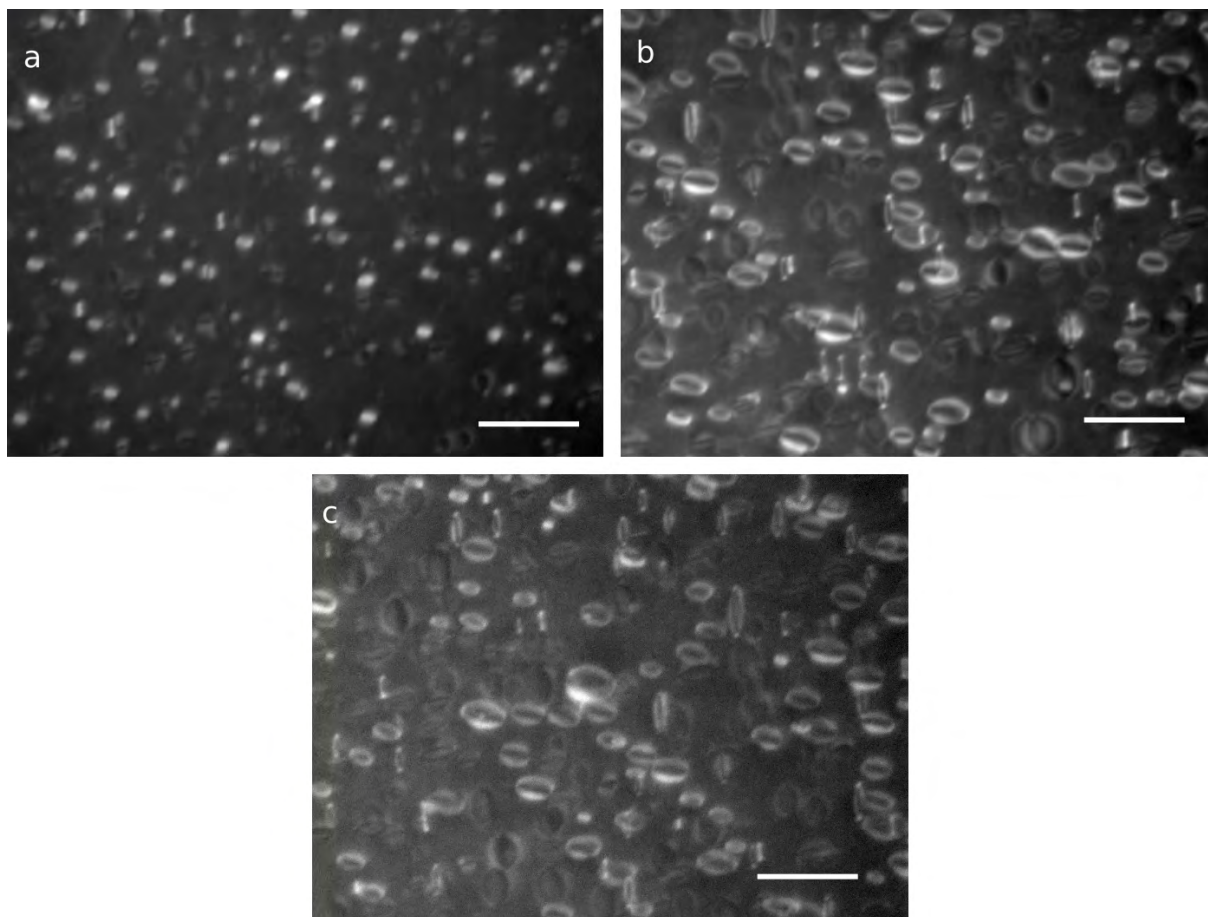


Figure 3.38 – Micrographies de l'irradiation dans l'échantillon 3 lors de la deuxième phase sous contrainte : à 3 min (a), 48 min (b) et 50 min (c), depuis la mise sous contrainte. Nous nous sommes déplacés au sein de la zone irradiée entre l'image (b) et (c). Les barres d'échelles correspondent à une distance de 100 nm.

représente seulement 15% de boucles en moins par rapport à ce qui a été détecté manuellement. Sur les 167 boucles, 32% et 68% des boucles sont orientées défavorablement et favorablement, respectivement. Les différences sur les calculs de pourcentage entre les deux méthodes sont du même ordre de grandeur que ce qui a été relevé dans le cas de l'expérience sous contrainte dans la section 3.4.1. Ici nous avons un écart de 6% et précédemment il était de 7%.

D'autre part, nous constatons que les proportions ont évolué par rapport à la fin de l'irradiation hors contrainte qui étaient de 47%/53% (figure 3.27), contre 38%/62% en fin d'irradiation sous contrainte (figure 3.38b). La question qui peut se poser est si ce changement de proportion est significatif pour être attribué à un effet de la contrainte.

Pour cela nous regardons la microstructure plus tôt pendant la deuxième phase d'irradiation. La figure 3.38a correspond exactement au même endroit que dans la figure 3.38b, à seulement 3 min d'irradiation après avoir mis l'échantillon sous contrainte. D'après le décompte manuel des boucles (173 au total), les proportions ont déjà atteint 40% pour les boucles orientées défavorablement et 60% pour les autres. De plus, la microstructure en figure 3.38c qui correspond une autre région au sein de la même irradiation après s'être légèrement déplacé (dans une région de la zone irradiée qui est plus grande que le champ de vue) donne des proportions de 40% et 60% (sur 199 boucles) comme vu plus tôt durant l'irradiation 3.38a. Le changement de proportion entre les deux distributions (3.28 et 3.40) peut être dû à un effet de statistique combiné à l'erreur inhérente du décompte des boucles manuellement. De plus, il y a une modification du contraste

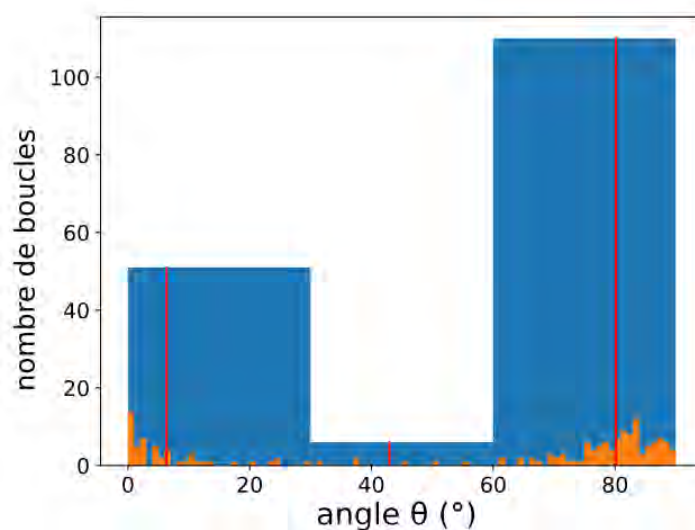


Figure 3.39 – En orange, la distribution des boucles en fonction de l’angle θ entre un axe vertical et le plus grand axe des ellipses ajustées sur les boucles par la méthode automatique. En bleu, regroupement des boucles en trois classes : celles dont l’angle d’orientation est inférieur à 30° , celles dont l’angle est supérieur à 60° et les boucles d’orientation intermédiaire. Les droites en rouge indiquent l’angle moyen des boucles pour chaque classe. Ces résultats sont calculés pour l’irradiation de l’échantillon 3, figure 3.38b.

entre les deux prises d’images qui peut expliquer qu’il y ait un meilleur comptage des boucles sur la deuxième micrographie. Il est peu probable que ce soit dû à un effet de la contrainte, qu’elle soit de type SIPA ou de type germination préférentielle puisque le changement de proportion est constaté dès le début de la deuxième phase sous contrainte (figure 3.38a).

Taille moyenne des boucles

Les distributions de la taille des boucles associées à la figure 3.38b calculées par les deux méthodes sont données en figure 3.40. D’après ces distributions, nous avons mesuré de très grandes boucles (> 50 nm) qui n’ont pas été détectées par la méthode automatique. Ce dernier a mesuré des boucles de tailles inférieures à 10 nm, ce qui n’est pas notre cas.

D’après nos mesures, la taille moyenne est de 27,5 nm et 27,6 nm pour les boucles horizontales et verticales respectivement. En parallèle, la méthode automatique calcule que la taille moyenne est de 25,1 nm et 25,5 nm pour les boucles horizontales et verticales respectivement. Les résultats des deux méthodes montrent qu’il n’y a pas eu de croissance différentielle des boucles suite à l’application d’une contrainte.

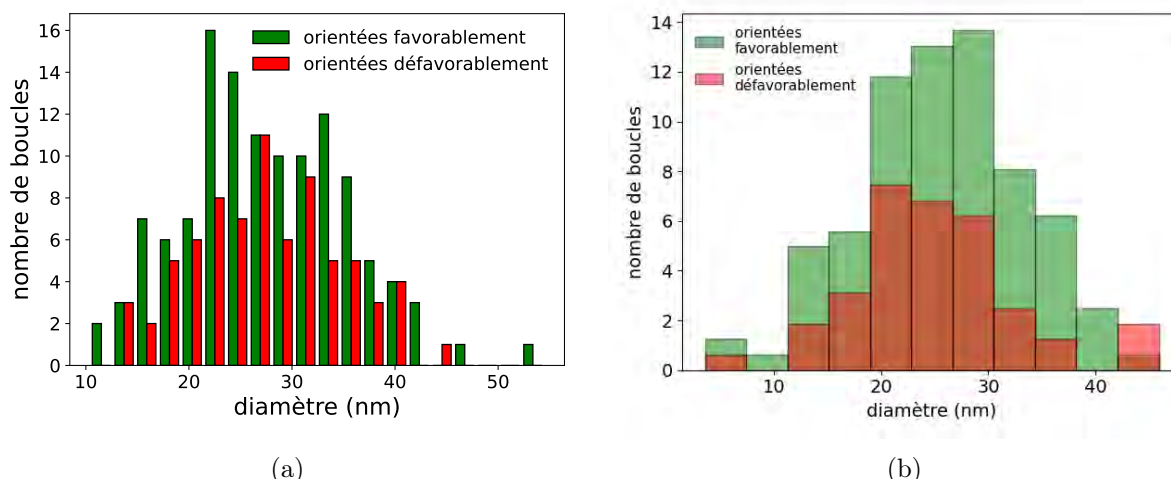


Figure 3.40 – Distribution des tailles de boucles de la figure 3.27b, à partir (a) de mesures manuelles et (b) de mesures automatiques.

Suivi individuel des boucles

Comme pour l'échantillon 2, nous avons suivi la croissance des boucles au cours de la phase d'irradiation sous contrainte, cette fois-ci avec la méthode de détection automatique des boucles. Les boucles concernées sont annotées sur la figure 3.41.

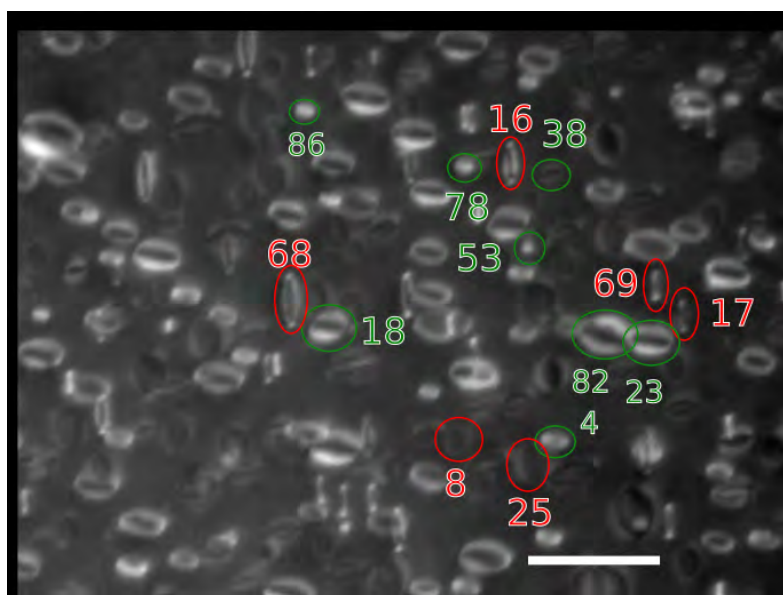


Figure 3.41 – Positions des boucles les unes par rapport aux autres au cours de la deuxième phase d'irradiation sous contrainte dans l'échantillon 3. Le suivi de ces boucles est donné sur la figure 3.42. La barre d'échelle correspond à une distance de 100 nm.

Les résultats des suivis sont présentés sur la figure 3.42. Nous n'avons pas constaté de comportement systématique des boucles. Par exemple, les figures 3.42a et 3.42b correspondent au suivi de boucles qui se trouvent à proximité les unes des autres sur l'image 3.41. Dans le graphique de la figure 3.42a, les boucles 69 et 17, qui sont verticales, présentent une croissance bien plus lente que les boucles 82 et 23 qui sont orientées favorablement par rapport à la contrainte. Le diamètre de la boucle 82 est similaire à celui des boucles orientées défavorablement au départ

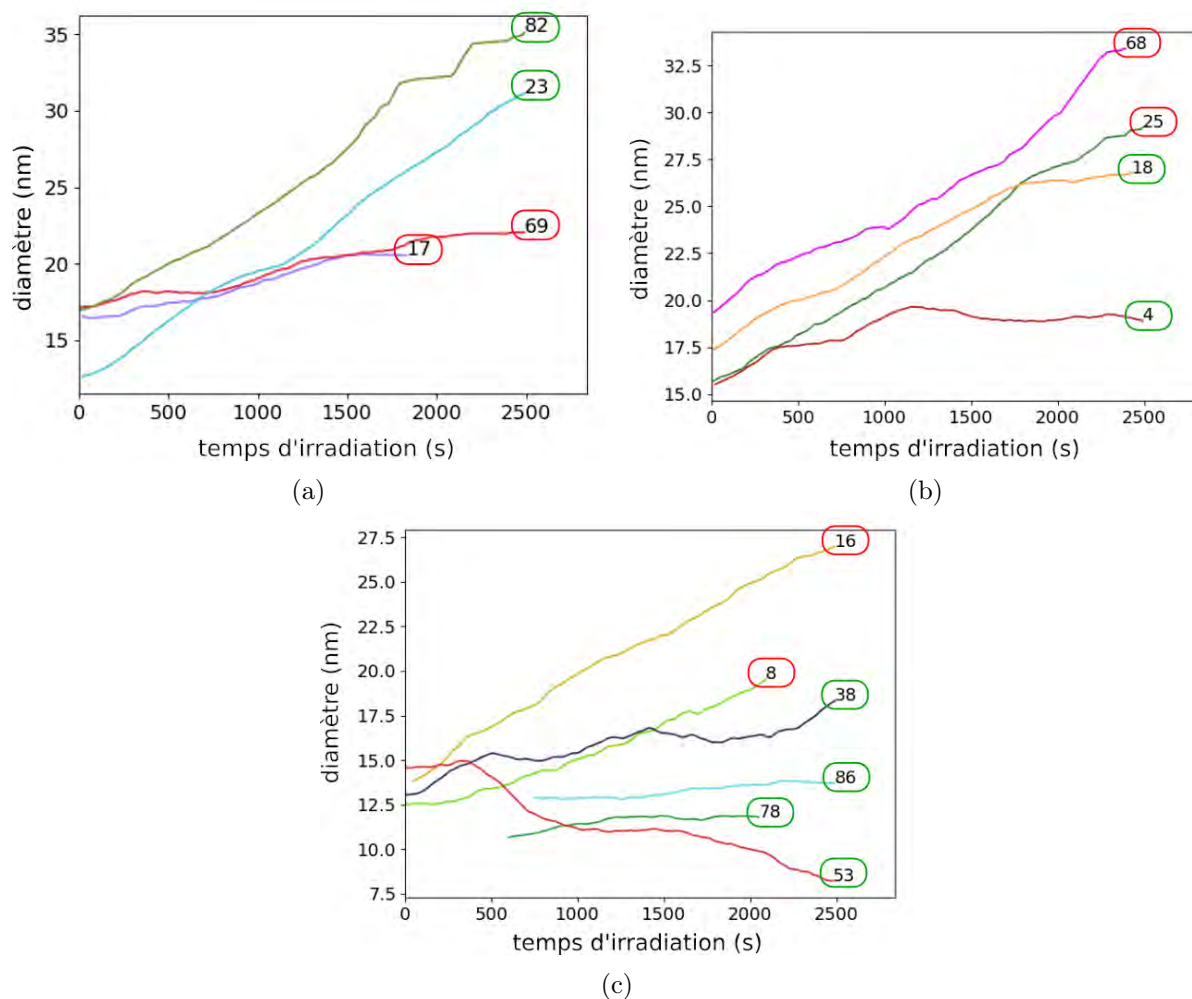


Figure 3.42 – Suivi des boucles annotées sur la micrographie de la figure 3.41 avec l'algorithme d'apprentissage profond.

de la séquence, alors que la boucle 23 est plus petite en taille au départ, et elle les dépasse très rapidement. Ce résultat isolé est en accord avec ce que prédit le mécanisme SIPA, c'est-à-dire une croissance accélérée des boucles orientées favorablement par rapport à la contrainte.

Cependant ce type de comportement n'est pas généralisé dans la microstructure et les graphiques des figures 3.42b et 3.42c sont des contre-exemples. Nous commençons par la figure 3.42b qui présente deux paires de boucles dans le même voisinage. Sur la plus grande partie de la séquence, les boucles 68 et 18 grandissent de façon similaire jusqu'à ce que la croissance de la boucle 68 (verticale) s'accélère et au même moment, celle de la boucle 18 (horizontale) décélère. La question qui peut se poser est si l'accélération de la croissance d'une des boucles est corrélée au ralentissement de l'autre. Ce qui est observé ici n'est pas en accord avec le mécanisme SIPA. Comme tout le long de la séquence la boucle 18 est plus petite que la boucle 68, l'effet de la taille des boucles sur la vitesse de croissance peut être avancé.

Afin de s'affranchir de ce possible effet, nous suivons les boucles 25 (verticale) et 4 (horizontale) proche l'une de l'autre sur la micrographie et qui présentent le même diamètre aux premiers instants de la séquence. D'après le graphique, la croissance de la boucle orientée favorablement stagne au cours de l'irradiation, alors que l'autre boucle a une croissance linéaire.

Le graphique 3.42c montre d'autres exemples de stagnation ou de décroissance de boucles orientées favorablement, en contraste avec la croissance linéaire de boucles orientées défavorablement.

Ce graphique montre que ce phénomène n'est pas rare au sein de la microstructure générée.

Vérification de l'état de contrainte

Afin de s'assurer que la deuxième phase d'irradiation dans l'échantillon 3 était bien sous contrainte, nous réalisons une dernière irradiation sans modifier le déplacement imposé au départ de la deuxième phase de l'expérience précédente. Nous nous plaçons directement au-dessus de la zone irradiée en deux étapes. La nouvelle microstructure après 32 min d'irradiation est présentée sur la figure 3.43 et nous constatons bien une forte sélectivité des boucles. Sur 205 boucles, 91% sont orientées favorablement. L'anisotropie de la microstructure est donc aussi forte que dans la première irradiation sous contrainte dans le même grain (section 3.4.1). Il n'y a donc aucun doute que la microstructure en figure 3.38 était bien sous contrainte durant les 48 min d'irradiation de la deuxième phase.

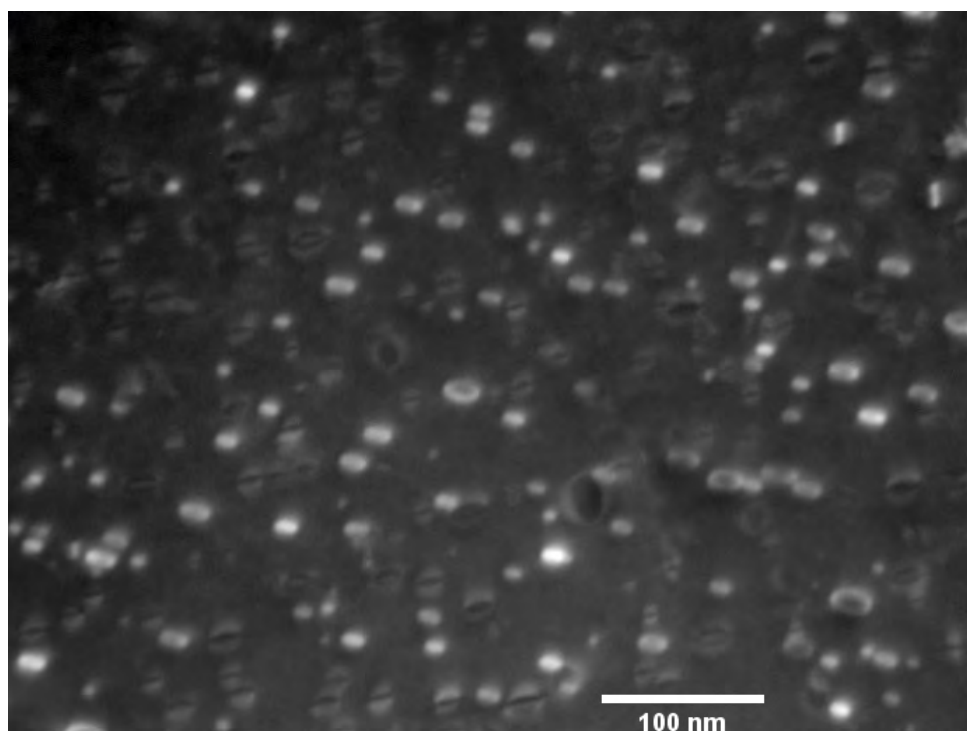


Figure 3.43 – Troisième irradiation sous contrainte dans l'échantillon 3, après l'irradiation en deux étapes.

Résumé des expériences en deux étapes

Les expériences en deux étapes au sein de deux échantillons ne montrent pas que la contrainte agit sur la croissance des boucles. Les résultats confortent l'idée que la contrainte agit aux premiers stades de croissance des boucles, où il est difficile de les observer dans un MET conventionnel parce qu'elles sont trop petites. Nous avons observé que les tailles moyennes des boucles sont similaires pour les deux catégories à la fin de la deuxième phase d'irradiation sous contrainte. Nous avons également mesuré les vitesses de croissance qui s'avèrent être également similaires entre les deux orientations. Enfin nous avons suivi la taille des boucles au cours de l'irradiation afin d'étudier le comportement individuel des boucles sous contrainte. Les résultats montrent que la croissance d'une boucle ne dépend pas de son orientation par rapport à la contrainte, que cette dernière n'est pas le facteur principal du moins.

3.6 Conclusion du chapitre

Ce chapitre présente trois types d'expériences : hors contrainte, sous contrainte et en deux parties. Les échantillons ont été préparés de façon à ce que l'axe de traction soit proche de la direction cristallographique $\langle 110 \rangle$ afin que deux variants de boucles de Frank sur quatre soient orientées favorablement par rapport à la contrainte, et les deux autres soient orientés défavorablement (ces derniers ont l'axe de la contrainte contenu dans leur plan d'habitat). Les expériences sans application d'une contrainte servent de références. Les expériences où la contrainte est appliquée avant de débiter l'irradiation montrent un fort effet de la contrainte sur les proportions entre les deux catégories de boucles. Aucun effet significatif n'est constaté sur la croissance des boucles en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte.

Afin de s'affranchir de la sélectivité des boucles, nous réalisons des irradiations en deux étapes où la contrainte est appliquée sur une microstructure déjà formée hors contrainte. Aucun effet sur la croissance des boucles n'est observé dans ces conditions.

Le mécanisme SIPA ne joue donc pas un rôle principal dans l'anisotropie des microstructures de boucles en fluage d'irradiation, ou bien le mécanisme est trop faible pour être détecté dans nos expériences. Ces résultats sont en accord avec les rares expériences de la littérature, semblables aux nôtres [63, 72].

La reproductibilité des résultats a été vérifiée. De plus nous avons comparé les mesures manuelles avec celles obtenues avec une méthode automatique basée sur la détection par apprentissage profond et suivi des boucles. Les résultats entre les deux méthodes sont cohérents, ce qui indique le potentiel de la méthode automatique d'une part pour gagner en temps d'analyse et d'autre part pour accumuler une statistique plus grande et acquérir un suivi précis. Les capacités de cette méthode sont toutefois limitées par la capacité de détection dans des situations plus complexes (grandes densités de boucles) ou pour les boucles présentant de faibles contrastes. Ces difficultés peuvent être dans une certaine mesure atténuées par un ré-entraînement du modèle d'apprentissage avec des images décrivant ces situations.

Nous pouvons conclure à partir des trois types d'expérience que la contrainte agit sur les boucles principalement aux premiers stades d'irradiation. La croissance différentielle des boucles n'a pas été constatée, un mécanisme de type SIPN reste plausible. Cependant, ces expériences ne permettent pas d'écarter l'hypothèse que la sélectivité des boucles sous contrainte soit le résultat d'un mécanisme SIPA agissant sur les boucles de petites tailles [28]. Afin d'étudier l'effet du mécanisme SIPA sur la sélectivité, cette étude expérimentale est complétée par une étude numérique présentée ci-après.

Chapitre 4

Etude du mécanisme SIPA sur un dipôle de dislocations

Dans ce chapitre nous étudions l'importance relative des mécanismes SIPA-AD et SIPA-I. Pour cela nous déterminons l'efficacité d'absorption Z d'un dipôle de dislocations droites comme système de référence pour différentes orientations d'une contrainte uniaxiale appliquée, en considérant dans un premier temps le mécanisme SIPA-AD puis le mécanisme SIPA-I.

Sous irradiation, si un seul type de défaut ponctuel est créé, en présence uniquement de dislocations, l'équation en champ moyen décrivant l'évolution de la concentration moyenne en défaut ponctuel \bar{C} est :

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = G - Z\rho_d D_0 \bar{C}, \quad (4.1)$$

avec G le taux de création de défaut ponctuel, ρ_d la densité de dislocations et D_0 le coefficient de diffusion hors contrainte. En régime stationnaire, l'efficacité d'absorption Z peut donc être déduite de la concentration de défauts ponctuels dans un système de cette façon :

$$Z = \frac{G}{\rho_d D_0 \bar{C}}. \quad (4.2)$$

Nous avons calculé l'efficacité d'absorption d'un dipôle de dislocations à l'aide de la méthode Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC pour *Object Kinetic Monte-Carlo*) et du modèle de diffusion continue (CDM pour *Continuous Diffusion Model*). Ces deux méthodes sont brièvement présentées au début de ce chapitre. La géométrie du système choisie est présentée par la suite, ainsi que les paramètres utilisés. Dans un premier temps, le mécanisme SIPA-AD est étudié avec la méthode OKMC pour ensuite être comparé au modèle analytique de Borodin et Ryazanov [39] (B&R) et dans un second temps, le mécanisme SIPA-I est étudié avec la méthode CDM avant d'être comparé au modèle analytique de Heald, Speight et Woo [53] (HSW). Ces deux modèles analytiques ont été rappelés dans le chapitre 1.

Enfin, la confrontation des deux résultats permet de conclure sur le mécanisme prédominant dans la montée des dislocations sous contrainte et sous irradiation. L'ensemble de ces travaux a été publié en 2023 dans la revue *Acta Materialia* [132].

4.1 Méthode OKMC

4.1.1 Généralités sur la méthode Monte-Carlo cinétique

Une des méthodes appropriées pour la détermination de \bar{C} est la méthode OKMC [133]. Cette méthode est couramment utilisée pour simuler l'évolution d'une microstructure sous irradiation [134, 135, 136, 137, 138]. Comme toute méthode de Monte Carlo cinétique, le prérequis

est d'établir les différents évènements possibles et leur taux de transition respectif. Les évènements sont choisis suivant un algorithme à temps de résidence. Les différentes étapes pour passer d'un état initial à un instant t , à état final à $t + \Delta t$ sont les suivantes [134, 139, 140, 59] :

- Les taux de transition Γ_i des N évènements possibles à partir de l'état du système à l'instant t sont calculés.
- Ces taux de transition sont sommés : $\Gamma_{\text{tot}} = \sum_{i=1}^N \Gamma_i$.
- Le choix de l'évènement qui se produit à t dépend du résultat $r_1 \times \Gamma_{\text{tot}}$ avec r_1 choisi aléatoirement entre 0 et 1. L'évènement sélectionné j est tel que $\sum_{i=1}^{j-1} \Gamma_i < r_1 \Gamma_{\text{tot}} \leq \sum_{i=1}^j \Gamma_i$ et tous les évènements spontanés qui découlent de ce dernier sont exécutés. Le processus est illustré avec un cas simple en figure 4.1.
- Le pas de temps associé à cet évènement est calculé comme suit : $\Delta t = -\ln(r_2)/\Gamma_{\text{tot}}$, où r_2 est un nombre aléatoire tel que $r_2 \in]0, 1]$. Le temps physique est incrémenté de Δt .

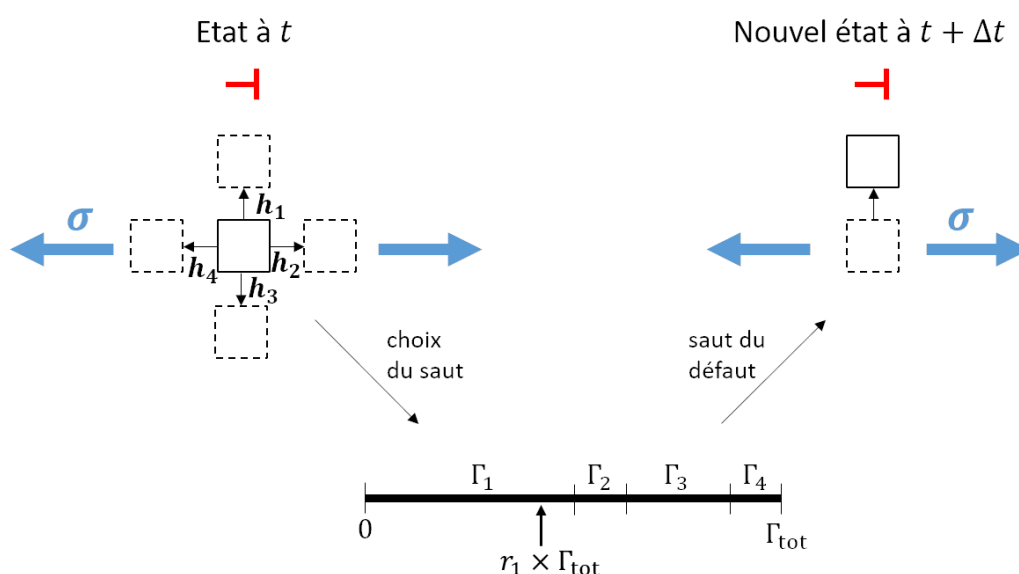


Figure 4.1 – Représentation schématique du saut atomique d'une lacune à proximité d'une dislocation coin, choisi suivant un algorithme à temps de résidence sur un réseau 2D sous contrainte. \mathbf{h}_i est une direction de saut atomique et Γ_i est la fréquence de saut associée.

La particularité de l'OKMC par rapport à d'autres simulations Monte-Carlo cinétique réside dans la simulation des objets du système. Les amas de défauts sont considérés comme des objets uniques et seuls les défauts sont simulés, sans considérer les atomes de la matrice. Le système est vu comme un "gaz d'amas". Cette approximation permet de réduire le temps de calcul et de simuler des systèmes de plus grandes dimensions qu'avec la méthode de Monte Carlo cinétique atomique. Un autre avantage de l'OKMC par rapport à d'autres modèles cinétiques est de considérer explicitement les corrélations spatiales entre les éléments du système. Il est de plus possible d'inclure de manière assez simple l'effet d'une contrainte appliquée et du champ de contrainte généré par les éléments de la microstructure tels que les dislocations, boucles de dislocations, etc., sur la diffusion des défauts ponctuels. Cette méthode est donc bien adaptée à l'étude des mécanismes SIPA.

4.1.2 Spécificités du code utilisé

Pour nos simulations, nous utilisons le code STACCATO développé au CEA [136, 59, 55, 133]. Le fonctionnement du code est expliqué en détail par Jourdan [136] et il est rappelé dans les grandes lignes dans cette section.

Les différents évènements considérés dans nos systèmes dans le cadre de cette thèse (illustrés

dans la figure 4.2) sont :

- la création d’une paire de Frenkel. Ces paires sont introduites à taux constant et de manière homogène,
- le saut atomique d’un défaut ponctuel.

Des événements spontanés sont exécutés, faisant généralement suite au saut atomique d’un défaut ponctuel :

- la recombinaison d’une lacune et d’un interstitiel ou l’agglomération de deux interstitiels ou de deux lacunes, donnant lieu à une boucle de dislocation ou à une cavité, respectivement
- la capture d’un défaut ponctuel par un puit (surface libre, dislocation droite, boucle interstitielle ou cavité)
- évolution de la taille d’un amas de défauts (boucle ou cavité) suite à la capture d’un défaut ponctuel, l’objet augmente ou réduit en taille en fonction du type de défaut absorbé.

Nous précisons que la montée de la dislocation n’est pas considérée. De plus, le code peut également considérer l’émission des défauts ponctuels par les puits [141], mais ce phénomène n’est pas pris en compte dans le cadre de nos simulations car il est négligeable à température ambiante.

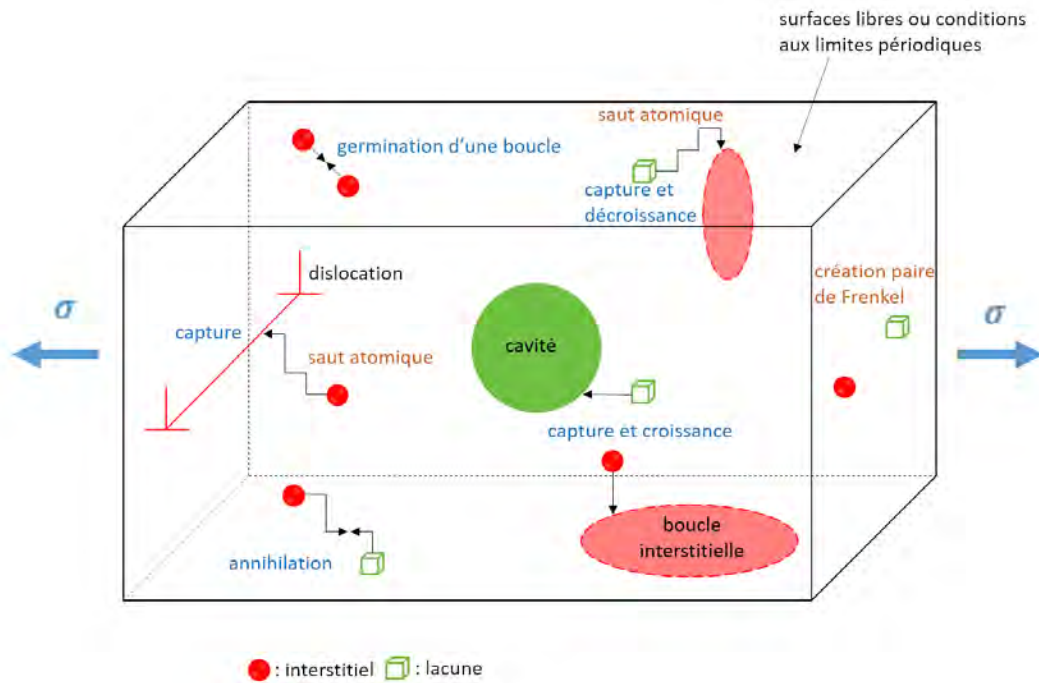


Figure 4.2 – Schéma des différents événements possibles au sein d’un système dans nos simulations OKMC. Les événements écrits en orange correspondent à ceux dont le taux de transition est calculé à chaque pas par le code et ceux en bleu sont associés aux événements spontanés.

Il est possible en OKMC de prendre en compte de manière relativement simple l’effet d’un champ élastique local sur la migration des défauts [142, 143, 144, 59, 55, 145, 146, 137]. Pour un défaut localisé en \mathbf{r} , ses fréquences de saut sont calculées pour chaque direction de saut \mathbf{h} , avec l’expression suivante [147, 144, 49] :

$$\Gamma^{\mathbf{h}}(\mathbf{r}) = \nu_0 \exp\left(-\frac{E_0^m + E^{\text{col}}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2) - E^{\text{sta}}(\mathbf{r})}{k_B T}\right), \quad (4.3)$$

où ν_0 , E_0^m , E^{sta} et E^{col} sont la fréquence d’attaque, l’énergie de migration sans les interactions élastiques et les énergies d’interaction avec le champ de déformation local au point stable et au point col, respectivement. Après que le code a sélectionné un saut de direction \mathbf{h} d’un défaut

suivant l'algorithme à temps de résidence, le défaut réalise ce saut suivant la direction en question dans le système, ce qui implique que les défauts ponctuels migrent sur un réseau atomique sous-jacent. La considération de l'énergie du défaut au point stable et au point col permet de décrire correctement l'évolution du paysage énergétique d'un défaut ponctuel à proximité d'un puits comme illustré sur la figure 4.3. Le calcul de la fréquence de saut de l'équation 4.3 nécessite donc une estimation efficace et la plus juste possible du champ élastique local à chaque étape de la migration de chaque défaut ponctuel. Pour ce faire, nous nous plaçons en élasticité isotrope. Les travaux de Carpentier [55, 133] comparent des résultats de calculs de Z obtenus en l'élasticité isotrope et en élasticité anisotrope et ils montrent que l'hypothèse d'un système élastiquement isotrope pour le cas de l'aluminium est correct.

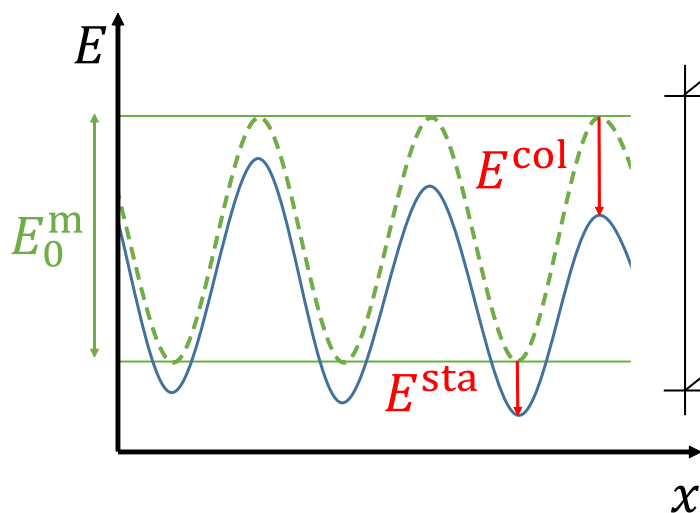


Figure 4.3 – Schéma de la modification du paysage énergétique d'un défaut ponctuel au fur à mesure qu'il se déplace vers une dislocation droite.

Le champ de déformation local ε_{ij} pour un défaut ponctuel est considéré dans le calcul de son énergie d'interaction, au point stable et au point col. Selon Schober [50], cette énergie E s'écrit :

$$E^{\text{sta/col}} = -P_{ij}^{\text{sta/col}} \varepsilon_{ij}^{\text{sta/col}} - \frac{1}{2} \varepsilon_{ij}^{\text{sta/col}} \alpha_{ijkl}^{\text{sta/col}} \varepsilon_{kl}^{\text{sta/col}}, \quad (4.4)$$

où la convention de sommation d'Einstein sur les indices répétées est appliquée. Les termes P_{ij} et α_{ijkl} sont les termes du dipôle élastique et de la polarisabilité du défaut ponctuel.

Le champ de déformation calculé par le code considère celui dû à la contrainte appliquée et ceux générés par les puits présents dans le système. Cette dernière contribution est directement déduite des formules analytiques connues pour les segments de dislocation, les boucles de dislocation et les cavités. Pour des questions d'efficacité, le calcul du champ ignore les champs générés par les défauts ponctuels, négligeables à côté de ceux associés aux grands objets. Pour des systèmes plus complexes où de nombreux puits sont présents dans la boîte de simulation, par exemple des microstructures de boucles, le champ de déformation généré par les différents éléments de la microstructure est calculé par la méthode multipolaire rapide (FMM pour *Fast Multipole Method*) [148, 149]. La méthode FMM est illustrée dans la figure 4.4.

Chaque puits est décomposé en points qui sont des sources de déformation. Un nombre fini de points sont répartis sur les dislocations et boucles de dislocations. Pour les cavités le champ associé est calculé à partir d'un seul point source localisé au centre de cette dernière. Dans l'exemple de la figure 4.4, le système est divisé en cubes par un maillage homogène. Les composantes du champ de déformation au point \mathbf{r} situé dans la boîte b est calculé de manière

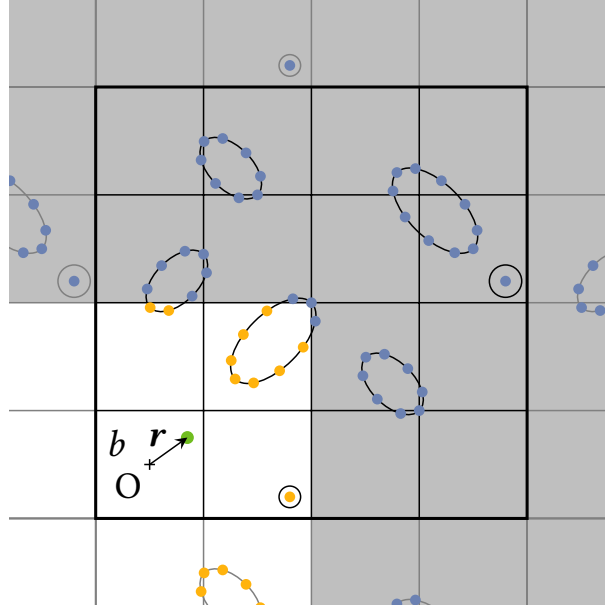


Figure 4.4 – Vue schématique du calcul du champ de déformation par FMM dans une microstructure contenant des boucles et des cavités [136].

générale par la somme de deux termes :

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{N_s} \varepsilon_i(\mathbf{r}) + \sum_{l=0}^p \sum_{m=-l}^l L_l^m x^l Y_l^m(\theta, \varphi). \quad (4.5)$$

Le premier terme correspond à la somme des sources discrètes contenues dans les cellules voisines de la cellule b . Elles sont représentées en orange sur la figure 4.4. Le deuxième terme correspond au champ des sources dans les cellules éloignées représentées en bleu sur la figure 4.4. Leur contribution est calculée par un développement local en harmoniques sphériques. Ce terme englobe notamment les images périodiques de la boîte de simulation selon les conditions limites utilisées. p est l'ordre du développement. Pour un compromis entre le coût de calcul et la précision, p est fixé à 7 [136].

A chaque déplacement de défaut ponctuel, les composantes de la déformation sont recalculées. Les coefficients L_l^m sont mis à jour lorsque la structure évolue par absorption de défauts ponctuels. En plus du maillage uniforme, il est possible de calculer le champ avec un maillage adaptatif, c'est-à-dire que les boîtes du maillage sont subdivisées en sous-boîtes jusqu'à ce que le nombre de points sources dans chaque boîte soit inférieur à un seuil n_{\max} .

4.2 Méthode CDM

Une alternative à l'OKMC est le modèle de diffusion continue comme décrit par Jourdan et Vattré [145]. L'approche CDM peut considérer correctement l'effet des interactions des défauts ponctuels avec les puits sur la diffusion, comme explicitement réalisé en OKMC. Il a été montré que cette approche donne des valeurs de Z en bon accord avec les simulations OKMC. Comme pour l'OKMC, on considère un certain nombre de puits dans une boîte de simulation. L'équation à résoudre pour calculer les concentrations de défauts ponctuels et ainsi remonter à la valeur de Z (équation 4.2) est la suivante [145] :

$$G - \nabla \cdot \mathbf{J} = 0, \quad (4.6)$$

avec

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = -\tilde{D}(\mathbf{r})\nabla u(\mathbf{r}). \quad (4.7)$$

\tilde{D} est le tenseur de diffusion renormalisé [42] à la position \mathbf{r} ,

$$\tilde{D}_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4}D_0 \sum_{\mathbf{h}} \hat{h}_i \hat{h}_j \exp\left(-\frac{E^{\text{col},\mathbf{h}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (4.8)$$

les termes $\hat{\mathbf{h}}$ sont les vecteurs unitaires associés au saut \mathbf{h} . Dans l'équation 4.7, l'équilibre thermodynamique entre les différentes configurations est supposé. u est la concentration renormalisée à la position \mathbf{r} . Elle s'écrit $u(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^s u^i(\mathbf{r})$, où s est le nombre de configurations au point stable pour un type de défaut (trois configurations pour les interstitiels). $u^i(\mathbf{r})$ est calculée à partir de la concentration de défaut $c^i(\mathbf{r})$ pour la configuration i :

$$u^i(\mathbf{r}) = c^i(\mathbf{r}) \exp\left(\frac{E^{\text{sta},i}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (4.9)$$

En supposant l'équilibre thermique entre les configurations, u^i est indépendant de i , d'où :

$$c^i(\mathbf{r}) = \frac{1}{s}u(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{E^{\text{sta},i}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (4.10)$$

Contrairement à l'OKMC, le CDM est une approche locale, c'est-à-dire que l'énergie du défaut au point col E^{col} est calculée en \mathbf{r} au lieu de $\mathbf{r}+\mathbf{h}/2$. En pratique, cette approche est valide pour des faibles variations spatiales du champ de déformation. Les calculs CDM sont similaires aux calculs en champ de phase dans ce contexte [57]. Comme l'approche CDM est déterministe par nature, elle produit des résultats exempts d'erreur statistique.

Les équations 4.6 et 4.7 sont résolues par la méthode des éléments finis avec le logiciel FEniCS [150]. La résolution par FEM peut être coûteuse en terme de mémoire puisqu'un maillage fin est requis près des puits où les concentrations de défauts et le champ de déformation varient fortement. Ceci est particulièrement vrai pour les systèmes tridimensionnels. Par conséquent, la méthode est surtout utile pour des systèmes qui sont invariants suivant au moins une direction, selon laquelle des conditions aux limites périodiques peuvent être utilisées et peu de matière est considérée.

4.3 Géométrie du système et paramètres d'entrée

L'efficacité d'absorption des interstitiels et des lacunes est calculée pour un dipôle de dislocations. Nous utilisons le même arrangement que celui d'une étude antérieure menée hors contrainte [55]. La configuration du système est présentée en figure 4.5. Le système contient deux dislocations de vecteurs de Burgers opposés $\mathbf{b} = \pm a/2[10\bar{1}]$ avec une direction de ligne $\mathbf{l} = 1/\sqrt{6}[\bar{1}2\bar{1}]$. Dans ce chapitre, le calcul du champ du dipôle de dislocations est simplement dérivé des expressions analytiques des dislocations droites. Le vecteur normal au plan de glissement est $\mathbf{n} = 1/\sqrt{3}[111]$. Le réseau est tourné de façon à ce que les dislocations soient alignées suivant la direction \mathbf{u}_z de la boîte orthorhombique et les vecteurs de Burgers suivant \mathbf{u}_x . Les dimensions du système sont d suivant y et $2d$ suivant x avec $d = 100$ nm, et les dislocations sont positionnées en $d/2$ et $3d/2$ suivant la direction x . Cette configuration correspond à une densité de dislocations de $\rho_{\text{d}} = 10^{14} \text{ m}^{-2}$, typique de la densité de dislocations en régime stationnaire des microstructures irradiées [27]. Suivant la direction z la dimension du système est de 1 nm.

Des conditions aux limites périodiques sont appliquées dans les trois directions. Cet arrangement assure une convergence correcte du champ de déformation lorsque la contribution des répliques périodiques des dislocations est prise en compte [151], à condition que le champ de déformation soit calculé en élasticité isotrope. D'autres arrangements de dislocations auraient pu

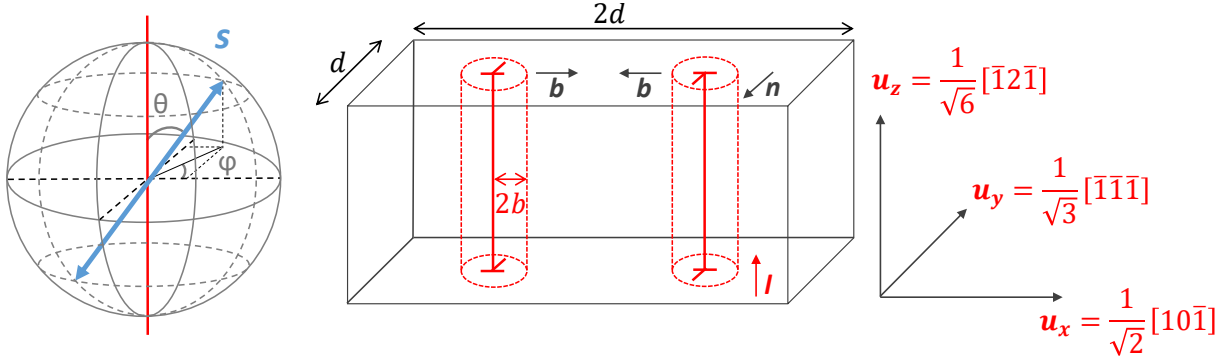


Figure 4.5 – Système simulé contenant un dipôle de dislocations droites. Une contrainte de traction est appliquée selon la direction \mathbf{s} , donnée par les deux angles (θ, φ) .

être choisis. Avec de telles densités de dislocations, ils donneraient des valeurs d'efficacité d'absorption légèrement différentes [152]. Néanmoins, il est attendu que la dépendance de l'orientation de la contrainte sur les valeurs de Z soit inchangée.

Tableau 4.1 – Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations OKMC pour le système de la figure 4.5.

Paramètres du système	
paramètre de maille	$a_0 = 0,40496 \text{ nm}$ [54]
énergie de formation des interstitiels/lacunes	$E_i^f = 3,0 \text{ eV} / E_v^f = 0,670 \text{ eV}$ [54]
énergie de migration des interstitiels/lacunes	$E_i^m = 0,105 \text{ eV} / E_v^m = 0,605 \text{ eV}$ [54]
rayon du défaut ponctuel	$r_{i,v} = 0,15826 \text{ nm}$
module de cisaillement	$\mu = 26 \text{ GPa}$ [55]
coefficient de Poisson	$\nu = 0,35$ [55]
rayon du cylindre de capture centré sur les dislocations	$r_c = 2b$
fréquence d'attaque	$\nu_0 = 10^{13} \text{ Hz}$
température	$T = 300 \text{ K}$

Le tableau 4.1 réunit les différents paramètres caractéristiques de notre matériau dans ces simulations. De plus, les propriétés élastiques des défauts ponctuels sont prises en compte au point stable et au point col (équations 4.3, ??). Le tableau 4.2 regroupe les dipôles élastiques et les polarisabilités pour l'interstitiel et la lacune dans l'aluminium. Ces quantités ont été calculées antérieurement à ce travail, par la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT pour *Density-Functional Theory*). Elles ont été déterminées en appliquant la méthode de la contrainte. Les détails sur la détermination des P_{ij} et α_{ijkl} sont explicités dans le premier article lié à ce travail [132]. Les dipôles et polarisabilités en configuration col sont donnés pour un saut suivant la direction $[110]$ et pour l'interstitiel, le point stable est donné pour un défaut orienté suivant la direction $[100]$. Les données pour les autres configurations et les autres sauts s'obtiennent par changement de base.

La transition des interstitiels d'une configuration haltère de type $\langle 100 \rangle$ en haltère $\langle 110 \rangle$, récemment simulée dans le cuivre sous forte déformation de cisaillement locale [153], n'est pas considérée dans notre étude.

Pour déterminer les efficacités d'absorption, les lacunes et les interstitiels sont considérés séparément. Les défauts ponctuels sont générés uniformément dans le système à un taux constant et ils sont absorbés s'ils atteignent les cylindres de rayon $r_c = 2b$ centrés sur les dislocations, c'est-à-dire si $d < r_c + r_{i,v}$, où d est la distance du cylindre au défaut.

Tableau 4.2 – Valeurs des dipôles élastiques \mathbf{P} et polarisabilités α pour les interstitiels et les lacunes données au point stable et au point col. Ces paramètres ont été déterminés par des calculs ab initio à l'échelle atomique [132].

	Interstitiel	Lacune
$\mathbf{P}_{i,v}^{\text{sta}} =$	$\begin{pmatrix} 18,71 & 0 & 0 \\ 0 & 17,80 & 0 \\ 0 & 0 & 17,80 \end{pmatrix} \text{ eV}$	$\begin{pmatrix} -2,49 & 0 & 0 \\ 0 & -2,49 & 0 \\ 0 & 0 & -2,49 \end{pmatrix} \text{ eV}$
$\mathbf{P}_{i,v}^{\text{col}} =$	$\begin{pmatrix} 18,57 & 1,45 & 0 \\ 1,45 & 18,57 & 0 \\ 0 & 0 & 18,40 \end{pmatrix} \text{ eV}$	$\begin{pmatrix} -2,15 & -0,22 & 0 \\ -0,22 & -2,15 & 0 \\ 0 & 0 & 1,96 \end{pmatrix} \text{ eV}$
$\alpha_{i,v}^{\text{sta}} =$	$\begin{pmatrix} -10 & -60 & -60 & 0 & 0 & 0 \\ -60 & -13 & -45 & 0 & 0 & 0 \\ -60 & -45 & -13 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 103 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 41 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 41 \end{pmatrix} \text{ eV}$	$\begin{pmatrix} 23 & 13 & 13 & 0 & 0 & 0 \\ 13 & 23 & 13 & 0 & 0 & 0 \\ 13 & 13 & 23 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 4 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 4 \end{pmatrix} \text{ eV}$
$\alpha_{i,v}^{\text{col}} =$	$\begin{pmatrix} 4 & -71 & -56 & 0 & 0 & -12 \\ -71 & 4 & -56 & 0 & 0 & -12 \\ -56 & -56 & 8 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 73 & 25 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 25 & 73 & 0 \\ -12 & -12 & 0 & 0 & 0 & 62 \end{pmatrix} \text{ eV}$	$\begin{pmatrix} 41 & 19 & 2 & 0 & 0 & -1 \\ 13 & 23 & 13 & 0 & 0 & -1 \\ 2 & 2 & -3 & 0 & 0 & 9 \\ 0 & 0 & 0 & 7 & 10 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 10 & 7 & 0 \\ -1 & -1 & 9 & 0 & 0 & 15 \end{pmatrix} \text{ eV}$

Une contrainte uniaxiale de traction est appliquée selon (θ, φ) . Ces deux angles sont définis sur la figure 4.5. θ est l'angle entre le vecteur de contrainte \mathbf{s} et la ligne de la dislocation, et φ est l'angle par rapport au vecteur de Burgers des dislocations droites. Nous déterminons des valeurs de Z tous les 10° selon θ et φ .

Dans le cadre des calculs OKMC, les efficacités d'absorption sont déduites du nombre de défauts ponctuels moyen \bar{N} dans la boîte en régime stationnaire :

$$\frac{d\bar{N}}{dt} = G - Z\rho_d D_0 \bar{N}, \quad (4.11)$$

$$Z = \frac{G}{\rho_d D_0 \bar{N}}. \quad (4.12)$$

Afin de garantir que \bar{N} est non nul, le taux de création G (en nombre de défauts créés par unité de temps dans la boîte) est adapté. L'erreur sur Z est calculée avec la méthode des moyennes par blocs [154], appliquée de la même façon que dans la thèse de D. Carpentier [133] dans laquelle la méthode est expliquée en détail. Sur toutes les courbes des figures de ce chapitre, les barres d'erreur correspondent à l'écart-type.

Avant de procéder à l'étude approfondie des mécanismes SIPA, l'amplitude de la contrainte est définie. Elle doit être aussi élevée que possible afin d'observer un effet, tout en restant dans le régime linéaire des "faibles" contraintes. Pour cela, nous calculons l'efficacité d'absorption du dipôle de dislocations, vis-à-vis des lacunes et des interstitiels ($Z_{i,v}$), pour différents niveaux de contrainte, allant de 25 MPa à 1 GPa. Les deux termes, dipôle élastique et polarisabilité, sont considérés dans le calcul de l'énergie des défauts ponctuels. L'axe de la contrainte appliquée est colinéaire aux vecteurs de Burgers. Ce choix de direction fait suite aux résultats expérimentaux (section 3.4) qui montrent que l'effet de la contrainte sur les boucles de dislocation est d'autant plus important que la direction de la contrainte est proche de celle du vecteur de Burgers des

boucles. Les valeurs de Z_i et Z_v en fonction de l'amplitude de la contrainte sont tracées sur la figure 4.6. D'après cette figure, les efficacités d'absorption évoluent linéairement avec la contrainte au moins jusqu'à une contrainte de 100 MPa. Afin d'optimiser la convergence des calculs OKMC, la contrainte imposée dans l'ensemble des calculs de cette étude est de 100 MPa. La dépendance de Z en σ étant linéaire, ce niveau de contrainte permet d'extrapoler facilement les résultats pour des contraintes plus faibles.

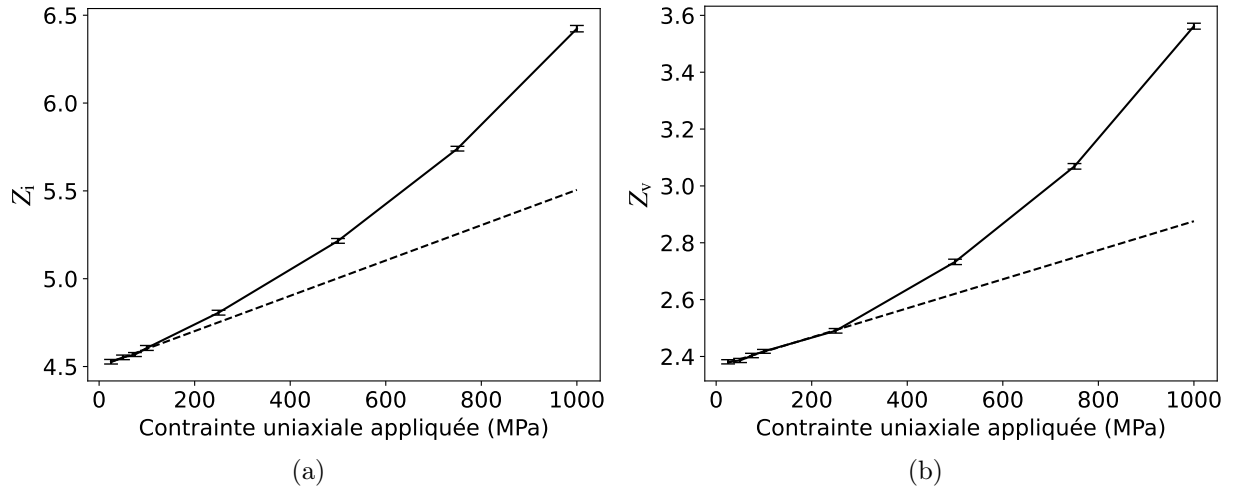


Figure 4.6 – Efficacité d'absorption d'un dipôle de dislocations (figure 4.5) vis-à-vis des interstitiels (a) et des lacunes (b) pour une contrainte colinéaire aux vecteurs de Burgers. La barre d'erreur correspond à l'écart-type calculé par la méthode des moyennes par blocs [154]. La droite en pointillé est la régression linéaire ajustée sur les points aux faibles contraintes.

4.4 SIPA-AD

Comme expliqué dans le premier chapitre, l'énergie d'interaction d'un défaut ponctuel repose uniquement sur le dipôle élastique dans le mécanisme SIPA-AD. Cet effet d'élastodiffusion est étudié avec notre méthode de référence, l'OKMC, en considérant uniquement les dipôles élastiques dans le calcul de l'énergie d'interaction du défaut ponctuel.

Des cartes 3D représentant l'influence de l'orientation d'une contrainte de traction sur les efficacités d'absorption sont montrées dans la figure 4.7. Nous représentons la différence entre l'efficacité d'absorption pour une contrainte de traction uniaxiale d'amplitude σ et une contrainte hydrostatique avec la même valeur de $\text{Tr}(\boldsymbol{\sigma})$, désignées par le terme ΔZ_i^{AD} pour les interstitiels et ΔZ_v^{AD} pour les lacunes. Ce terme correspond à $\Delta Z^{\text{AD,dev}}$ dans la décomposition montrée dans l'équation 1.23. D'après la figure 4.7, la capture des lacunes augmente si l'orientation de la contrainte est proche d'une direction ($\theta = 30^\circ$, $\varphi = 90^\circ$). Les directions qui favorisent l'absorption des interstitiels sont plus ou moins réparties sur une bande inclinée par rapport à la direction de ligne.

Pour apporter une représentation plus quantitative et faciliter les comparaisons avec le CDM et le modèle B&R (équation 1.23), ΔZ^{AD} est tracée sur la figure 4.8 pour l'interstitiel et la figure 4.9 pour la lacune, en fonction de θ , pour $\varphi = 0^\circ$ (dans le plan de glissement (\mathbf{l}, \mathbf{b})) et $\varphi = 90^\circ$ (dans le plan de montée (\mathbf{l}, \mathbf{n})).

Les résultats obtenus par CDM sont en très bon accord avec l'OKMC, ce qui valide l'utilisation de la méthode CDM pour le calcul des forces de puits pour cette configuration du système.

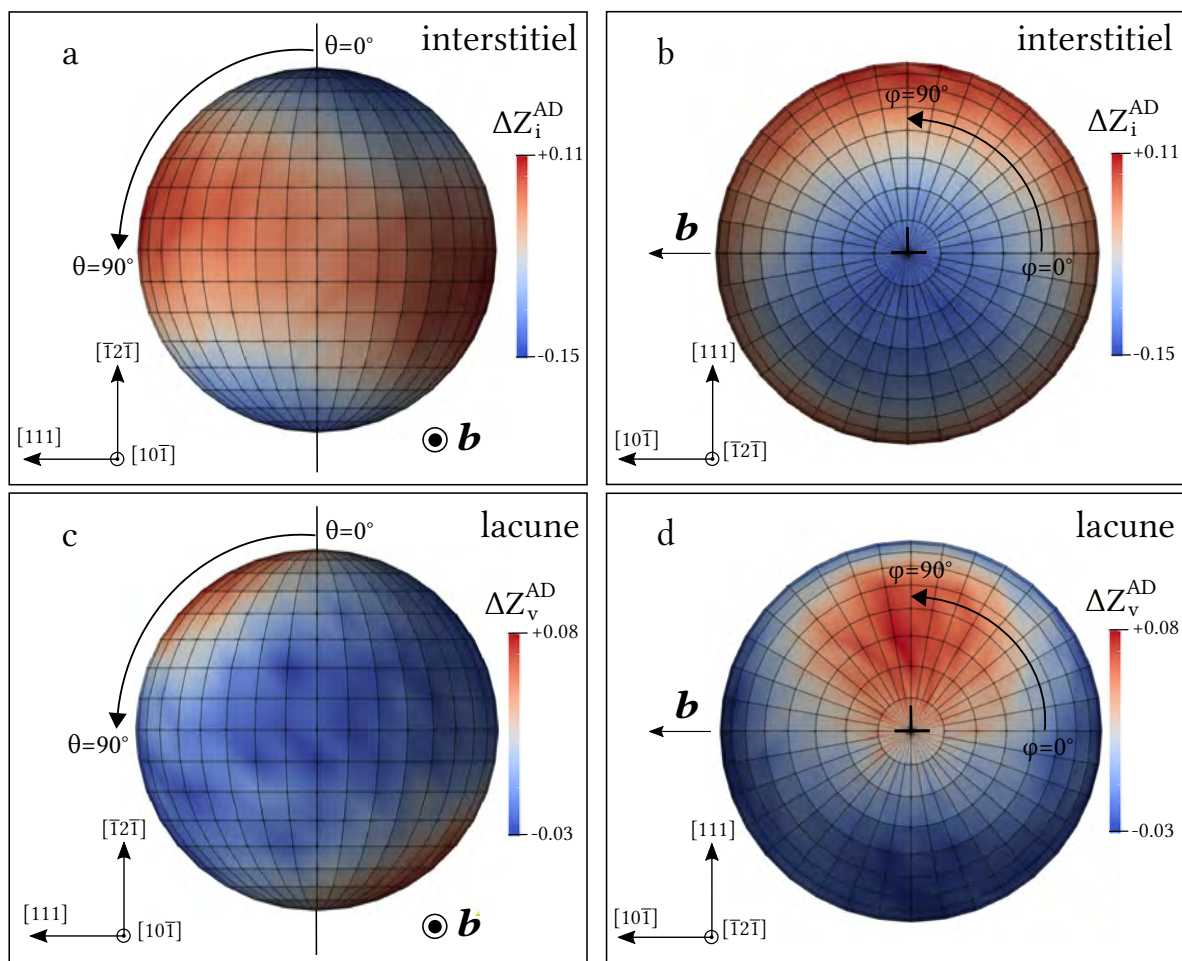


Figure 4.7 – Différence d’efficacité d’absorption ΔZ_i^{AD} pour un dipôle de dislocations en fonction de l’orientation de la contrainte de traction, représentée sur une sphère unitaire par une échelle de couleur pour le mécanisme SIPA-AD lorsque seuls les dipôles élastiques P_{ij} sont considérés dans l’énergie d’interaction. Une contrainte de traction de 100 MPa est appliquée. La dislocation est suivant $[\bar{1}2\bar{1}]$ et le vecteur de Burgers suivant $\pm[10\bar{1}]$. Les résultats de l’interstitiel sont présentés en (a) et (b) et ceux de la lacune en (c) et (d). Pour des questions de clarté seule une dislocation est représentée schématiquement.

Le modèle B&R arrive qualitativement à reproduire l’effet de la contrainte sur l’efficacité d’absorption. En particulier la dépendance en φ est correctement prise en compte, contrairement au modèle SIPA-AD de Woo qui dépend uniquement de θ (équation 1.26). Néanmoins, l’amplitude de ΔZ^{AD} est sous-estimée dans le modèle B&R, particulièrement pour les lacunes avec un facteur trois pour $\theta = 30^\circ$ et $\varphi = 90^\circ$, où l’efficacité d’absorption atteint son maximum.

La contribution de l’anisotropie intrinsèque du dipôle au point col dans le SIPA-AD a été discutée par différents auteurs [22, 37, 38, 39, 41, 42]. Il a été montré que l’efficacité d’absorption est principalement dépendante de la direction de la contrainte par rapport à la ligne de dislocation [22, 37]. Cette dépendance en θ apparaît clairement dans le modèle analytique de Woo [38]. Sous contrainte, le tenseur de diffusion devient anisotrope, du fait de l’anisotropie de la configuration au point col. Une dislocation orthogonale à la direction de diffusion la plus rapide capturera plus de défauts ponctuels qu’une dislocation colinéaire à celle-ci, puisque sa “section efficace” d’absorption du défaut est plus élevée (le terme de “section efficace” est valide unique-

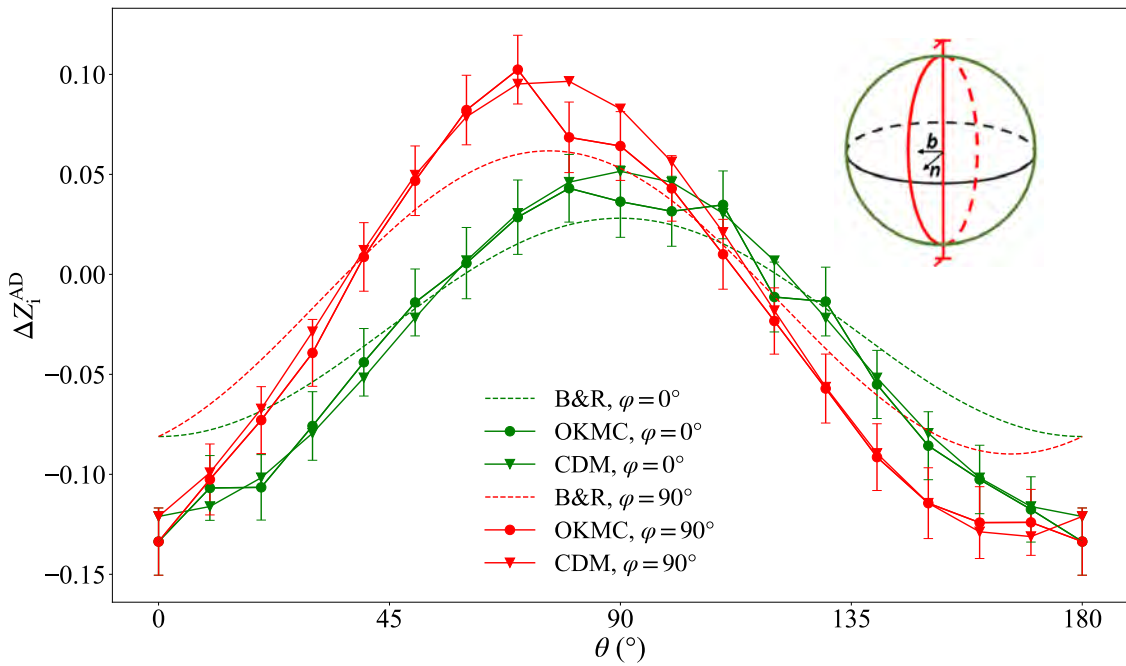


Figure 4.8 – Différence d'efficacité d'absorption ΔZ_I^{AD} pour un dipôle de dislocations droites pour les interstitiels en fonction de θ (angle entre la contrainte de traction et la ligne de dislocation \mathbf{l}) pour le mécanisme SIPA-AD. Les résultats par OKMC et CDM sont comparés. Le modèle analytique B&R de l'équation 1.23 est montré par les courbes en pointillé. L'efficacité d'absorption est présentée pour deux valeurs de φ : $\varphi = 0^\circ$, c'est-à-dire dans le plan contenant \mathbf{l} et \mathbf{b} et $\varphi = 90^\circ$, c'est-à-dire dans le plan contenant \mathbf{l} et \mathbf{n} .

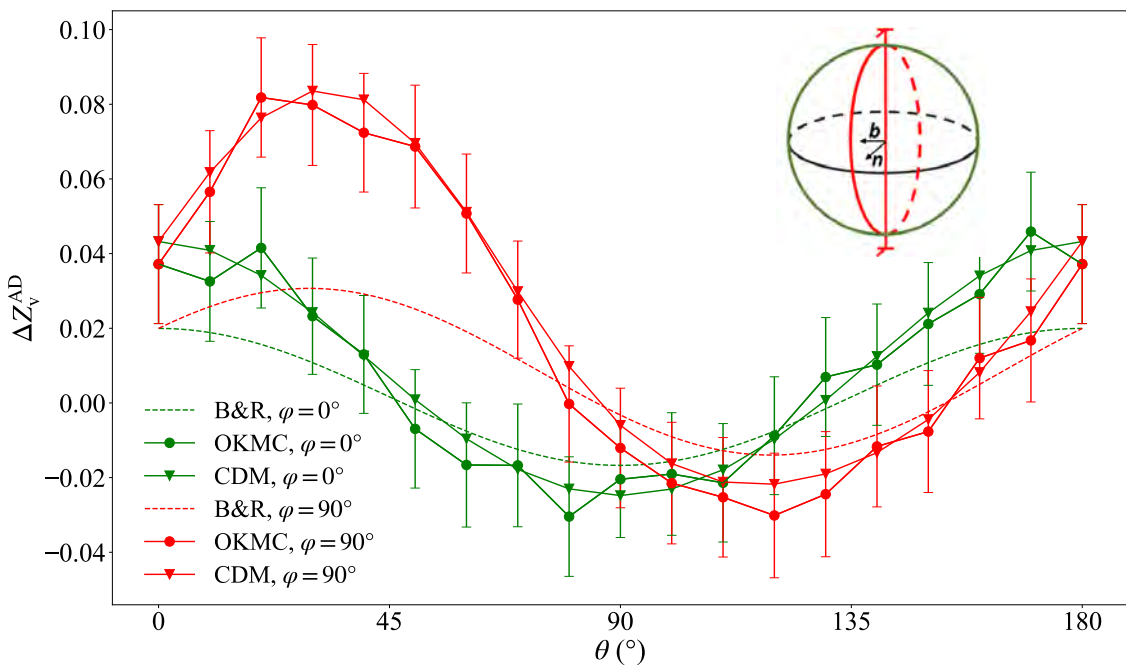


Figure 4.9 – Différence d'efficacité d'absorption ΔZ_V^{AD} pour un dipôle de dislocations droites pour les lacunes en fonction de θ (angle entre la contrainte de traction et la ligne de dislocation \mathbf{l}) pour le mécanisme SIPA-AD. Les résultats par OKMC et CDM sont comparés. Le modèle analytique B&R de l'équation 1.23 est montré par les courbes en pointillé. L'efficacité d'absorption est présentée pour deux valeurs de φ : $\varphi = 0^\circ$, c'est-à-dire dans le plan contenant \mathbf{l} et \mathbf{b} et $\varphi = 90^\circ$, c'est-à-dire dans le plan contenant \mathbf{l} et \mathbf{n} .

ment pour une diffusion purement 1D, c'est-à-dire pour un effet de la contrainte extrêmement important). Les directions de diffusion rapide dépendent des valeurs du tenseur de dipôle élastique au point col. Les lacunes diffusent préférentiellement dans le plan orthogonal à la direction de la contrainte de traction [155], ce qui explique pourquoi l'absorption des lacunes est accentuée lorsque la direction de traction est colinéaire à la ligne de dislocation. Le comportement des interstitiels s'explique avec le même raisonnement [38]. Les interstitiels diffusent préférentiellement dans le plan parallèle à la direction de la contrainte.

Nous voyons dans la figure 4.7 que nos simulations et le modèle B&R sont qualitativement en accord avec ces conclusions. Cependant, la direction donnant l'absorption maximale des lacunes est inclinée de 30° par rapport à la ligne de dislocation, dans le plan défini par (\mathbf{l}, \mathbf{n}) ($\varphi = 90^\circ$). De même pour les interstitiels, pour lesquels la bande d'absorption maximale est inclinée, avec un maximum autour de $\theta = 70^\circ$ dans le plan (\mathbf{l}, \mathbf{n}) et $\theta = 90^\circ$ dans le plan (\mathbf{l}, \mathbf{b}) ($\varphi = 0^\circ$). Ces écarts aux modèles simplifiés comme celui de Woo peuvent être expliqués par l'absence de prise en compte des effets du réseau dans ces modèles, contrairement au modèle B&R (équation 1.23).

Pour expliquer ces résultats, nous considérons une contrainte uniaxiale $\sigma_{ij} = \sigma s_i s_j$, avec $s_1 = \sin \alpha \cos \beta$, $s_2 = \sin \alpha \sin \beta$, $s_3 = \cos \beta$ les trois cosinus directeurs de \mathbf{s} dans la base $([100], [010], [001])$. Nous obtenons :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{\sigma}{E} (s_i s_j (1 + \nu) - \nu \delta_{ij}), \quad (4.13)$$

avec $E = 2\mu(1 + \nu)$ le module d'Young. Considérons un saut suivant la direction $[110]$, pour lequel le tenseur du dipôle élastique au point col est donné par :

$$\mathbf{P}^{\text{col}} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 \\ P_{12} & P_{11} & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} \end{pmatrix}. \quad (4.14)$$

En négligeant la polarisabilité, l'énergie au point col s'écrit

$$E^{\text{col}} = -\frac{\sigma}{E} (P_{11}(1 + \nu) \sin^2 \alpha - 2\nu P_{11} + P_{33}(1 + \nu) \cos^2 \alpha - \nu P_{33} + P_{12}(1 + \nu) \sin^2 \alpha \sin 2\beta). \quad (4.15)$$

Etant donné les signes des composantes du tenseur de dipôle élastique pour une lacune (voir le tableau 4.2), il est clair que l'énergie est minimale pour $\alpha = 0^\circ$, c'est-à-dire pour une contrainte appliquée suivant la direction $[001]$. Pour un interstitiel, comme $P_{12} > 0$, il est nécessaire que $\beta = 45^\circ$. De plus, avec $P_{11} + P_{12} > P_{33}$ l'énergie est minimale pour $\alpha = 90^\circ$. Cela signifie que la contrainte doit être appliquée suivant la direction du saut pour minimiser l'énergie du point col.

Comme dit précédemment, pour obtenir l'efficacité d'absorption maximale d'une dislocation, il est nécessaire de favoriser les sauts les plus orthogonaux possibles à la dislocation. Pour une dislocation suivant $\mathbf{l} = [\bar{1}2\bar{1}]/\sqrt{6}$, il existe deux sauts de lacunes orthogonaux à la ligne de dislocation, montrés en rouge dans la figure 4.10a. Ces sauts associés à la lacune sont favorisés si la contrainte est appliquée suivant la direction $[010]$. Cette configuration correspond à $\theta = 35^\circ$, ce qui est en accord avec nos résultats OKMC et CDM ($\theta \approx 33^\circ$, figure 4.9) et les résultats de B&R ($\theta = 29^\circ$).

Pour ce qui concerne les interstitiels, le taux d'absorption devrait être important si la contrainte est appliquée suivant la direction des deux sauts orthogonaux à la ligne de dislocation, représentés en vert dans la figure 4.10.b. La direction de saut est suivant \mathbf{b} , et on peut voir qu'effectivement, cette direction est localisée dans la bande du fort taux d'absorption dans le plan (\mathbf{l}, \mathbf{b}) ($\varphi = 0^\circ$). D'après la figure 4.8, l'efficacité d'absorption maximale est obtenue dans le plan (\mathbf{l}, \mathbf{n}) ($\varphi = 90^\circ$). Pour une contrainte appliquée dans ce plan, la projection de \mathbf{s} sur les sauts représentés en rouge dans la figure 4.10 est la plus grande avec $\theta = 71^\circ$. Ces quatre sauts ne sont pas orthogonaux

à la dislocation, mais leur projection sur \mathbf{l} est petite. Le fait que ces quatre sauts contribuent à l'augmentation de la diffusion des interstitiels explique pourquoi la capacité d'absorption est plus élevée que lorsque \mathbf{s} est suivant \mathbf{b} . La valeur de θ trouvée est très proche des résultats OKMC et CDM ($\theta = 76^\circ$, figure 4.8) et le résultat de B&R ($\theta = 76^\circ$). L'évolution avec φ de la valeur de θ donnant un maximum d'absorption, de $\theta = 90^\circ$ à 71° , explique l'inclinaison de la bande en figure 4.7.

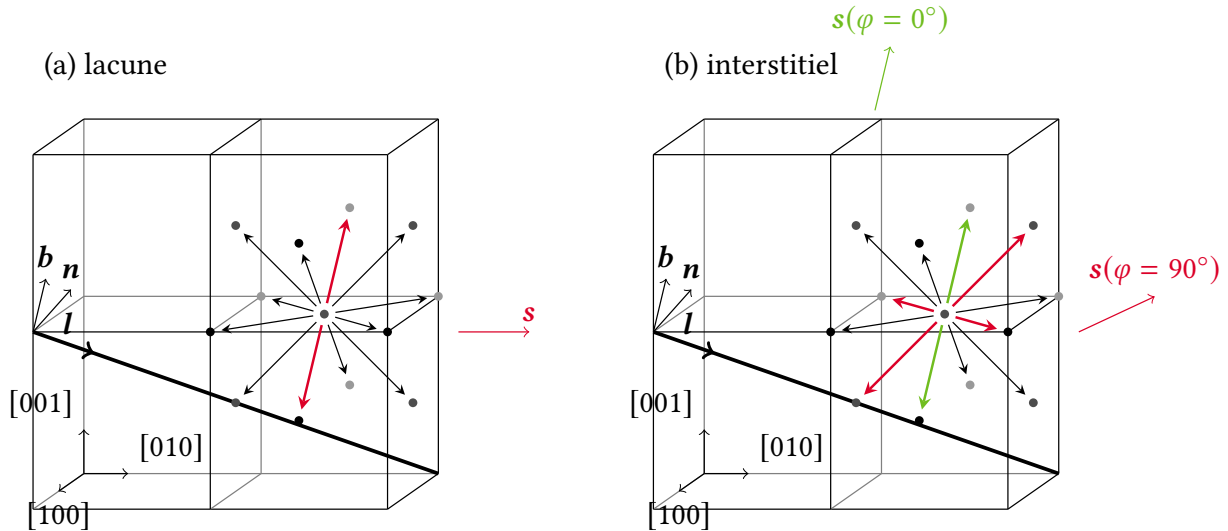
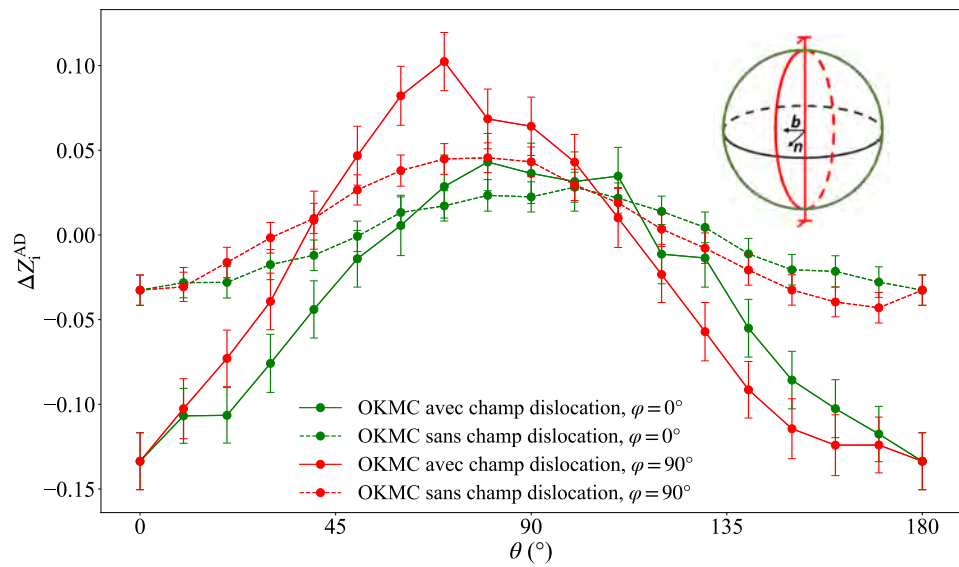


Figure 4.10 – Orientation d'une contrainte uniaxiale \mathbf{s} générant l'absorption maximale des défauts ponctuels par une dislocation $\mathbf{l} = [\bar{1}2\bar{1}]/\sqrt{6}$ et un vecteur de Burgers $\mathbf{b} = [\bar{1}01]/\sqrt{2}$ ($\mathbf{n} = [111]/\sqrt{3}$), et sauts associés responsables de ce taux d'absorption élevé en couleurs. (a) Absorption des lacunes (b) Absorption des interstitiels; pour ce cas nous donnons l'orientation de la contrainte si elle est appliquée dans les plans définis par (\mathbf{l}, \mathbf{b}) ($\varphi = 0^\circ$) et (\mathbf{l}, \mathbf{n}) ($\varphi = 90^\circ$). Le taux d'absorption maximal est obtenu dans le dernier cas, avec les quatre sauts contribuant significativement à l'absorption des interstitiels.

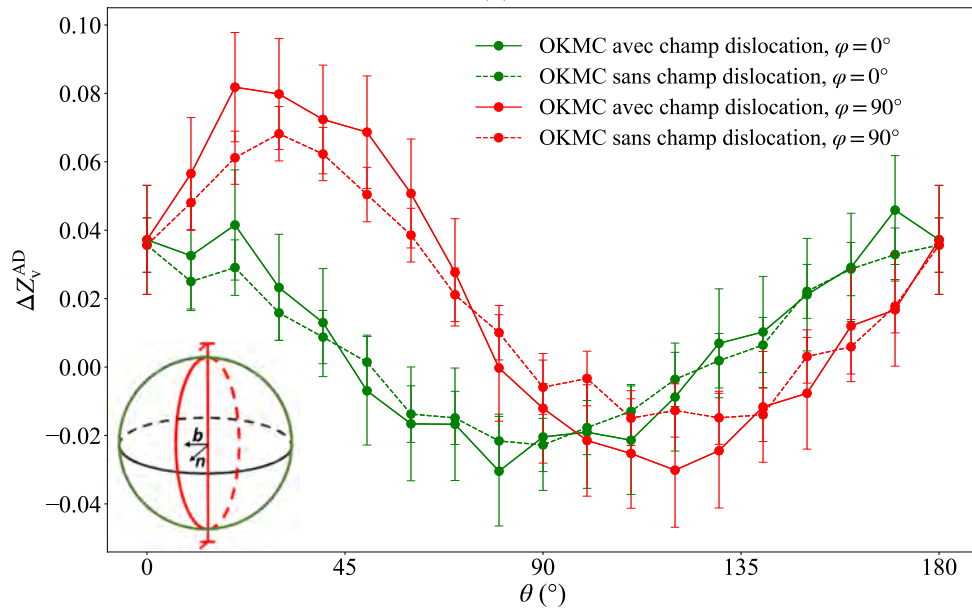
Au vu des résultats, la considération des effets du réseau dans son intégralité, comme cela est fait dans le modèle de B&R, semble nécessaire pour obtenir un accord raisonnable avec l'OKMC et le CDM. Bien que les termes du second ordre dans l'équation 1.16 (cinquième terme et deuxième partie du septième terme) peuvent en principe contribuer également au SIPA-AD, nous notons qu'ils ont peu d'impact vu qu'ils sont inclus en OKMC et CDM mais pas dans le modèle de B&R.

Jusqu'à maintenant l'effet du champ de déformation généré par les dislocations n'a pas été discuté. Il se trouve que Woo fait l'hypothèse de négliger le champ de la dislocation dans son traitement analytique [38]. La figure 4.11 compare les résultats OKMC des figures 4.8 et 4.9 avec des calculs OKMC où la seule différence est de négliger le champ des dislocations. La dépendance de ΔZ^{AD} à l'orientation de la contrainte n'est pas affectée par l'absence du champ généré par les dislocations, seules les amplitudes sont affectées. L'hypothèse de Woo ne modifie donc pas le comportement de ΔZ^{AD} avec la direction de la contrainte, mais elle joue sur l'amplitude du phénomène. A ce titre, il est préférable d'utiliser le modèle de B&R.

Même si le modèle de B&R reproduit avec succès les effets de réseau et prend en compte l'effet du champ de la dislocation, l'amplitude de ΔZ^{AD} est significativement différente de nos calculs pour les deux défauts ponctuels. C'est particulièrement le cas pour les lacunes. Dans la direction de la contrainte appliquée où l'efficacité d'absorption est la plus élevée, l'écart atteint environ un facteur 3. Pour cette direction, les effets de l'anisotropie du dipôle au point col sont les plus forts. Dans le modèle développé par Borodin et Ryazanov, la partie déviatorique du dipôle élastique



(a)



(b)

Figure 4.11 – Valeurs de ΔZ^{AD} calculées en OKMC pour les interstitiels (a) et les lacunes (b) en considérant le champ de la dislocation dans le calcul de l'énergie de migration des défauts et sans le considérer (courbes en pointillé).

est considérée comme faible comparée à la partie hydrostatique. Ce n'est pas vrai pour la lacune, donc ce n'est pas surprenant que le modèle ne puisse pas reproduire quantitativement les valeurs de ΔZ^{AD} lorsque l'anisotropie du dipôle participe significativement à l'efficacité d'absorption.

4.5 SIPA-I

Pour déterminer l'effet de la polarisabilité, les efficacités d'absorption obtenues avec le dipôle élastique seulement sont soustraites à celles obtenues en considérant à la fois le dipôle élastique et le terme de polarisabilité. Ces quantités sont notées ΔZ^{I} . Pour ce mécanisme, la méthode OKMC n'est pas utilisée car elle nécessite des temps de calculs trop importants pour obtenir des valeurs de ΔZ^{I} convergées. Comme nous verrons par la suite, le mécanisme SIPA-I est plus faible que le SIPA-AD, ce qui explique l'utilisation du CDM. En effet, le CDM est utilisé pour les deux calculs de Z dans le but d'obtenir des résultats exempts d'erreurs statistiques. L'accord entre le CDM et l'OKMC a été vérifié dans la section sur le SIPA-AD.

Les résultats sur une carte 3D sont présentés en figure 4.12. Les efficacités d'absorption des interstitiels et lacunes sont les plus élevées suivant deux directions différentes bien spécifiques de la contrainte appliquée. L'absorption des interstitiels est plus efficace si la contrainte est appliquée suivant le vecteur de Burgers, en accord avec les estimations antérieures du SIPA-I [19, 43, 53]. L'influence de la polarisabilité sur l'absorption des lacunes sous contrainte est plus surprenante. Elle semble similaire à l'effet de l'anisotropie du dipôle élastique, avec une direction d'absorption préférentielle suivant ($\theta = 30^\circ$, $\varphi = 90^\circ$). Avec le modèle SIPA-I existant, il est attendu que l'efficacité d'absorption soit faible si la contrainte est appliquée suivant le vecteur de Burgers et plus importante pour les autres orientations de la contrainte.

Pour apporter une comparaison plus quantitative avec le modèle HSW (équations 1.19, 1.20, 1.21, 1.22), qui conjecture que les défauts ponctuels ont les mêmes propriétés isotropes au point stable et au point col, les valeurs du dipôle élastique P et des polarisabilités α^μ et α^K sont déduites des propriétés des défauts prises au point stable (voir tableau 4.2). P , calculé comme $\text{Tr}(\mathbf{P})/3$, vaut 18,10 eV pour les interstitiels et -2,49 eV pour les lacunes. La polarisabilité de cisaillement peut être exprimée avec la moyenne de Voigt :

$$\alpha^\mu = \frac{3}{5}\alpha_{44}^* + \frac{2}{5}\alpha'^*, \quad (4.16)$$

où α_{44}^* et α'^* sont données par les équations :

$$\alpha_{44}^* = \frac{1}{3}(\alpha_{44} + 2\alpha_{55}), \quad (4.17)$$

$$\alpha'^* = \frac{1}{3}\left(\frac{\alpha_{11} - \alpha_{12}}{2} + \frac{\alpha_{22} - \alpha_{12}}{2} + \frac{\alpha_{22} - \alpha_{23}}{2}\right). \quad (4.18)$$

Nous obtenons $\alpha^\mu = 45,6$ eV pour les interstitiels et $\alpha^\mu = 4,4$ eV pour les lacunes. La polarisabilité de compression isostatique est calculée avec

$$\alpha^K = \frac{1}{3}\left(\frac{1}{3}(\alpha_{11} + 2\alpha_{12}) + \frac{2}{3}(\alpha_{22} + \alpha_{12} + \alpha_{23})\right), \quad (4.19)$$

et donne $\alpha^K = -40,7$ eV pour les interstitiels et $\alpha^K = 16,3$ eV pour les lacunes.

L'effet du SIPA-I est généralement discuté pour une contrainte de traction orthogonale à la ligne de dislocation ($\theta = 90^\circ$), soit suivant le vecteur de Burgers ($\varphi = 0^\circ$), soit orthogonale à cette dernière ($\varphi = 90^\circ$) [43]. La variation de l'efficacité d'absorption en fonction de φ , avec $\theta = 90^\circ$, est montrée dans les figures 4.13 et 4.14, pour les interstitiels et les lacunes, respectivement.

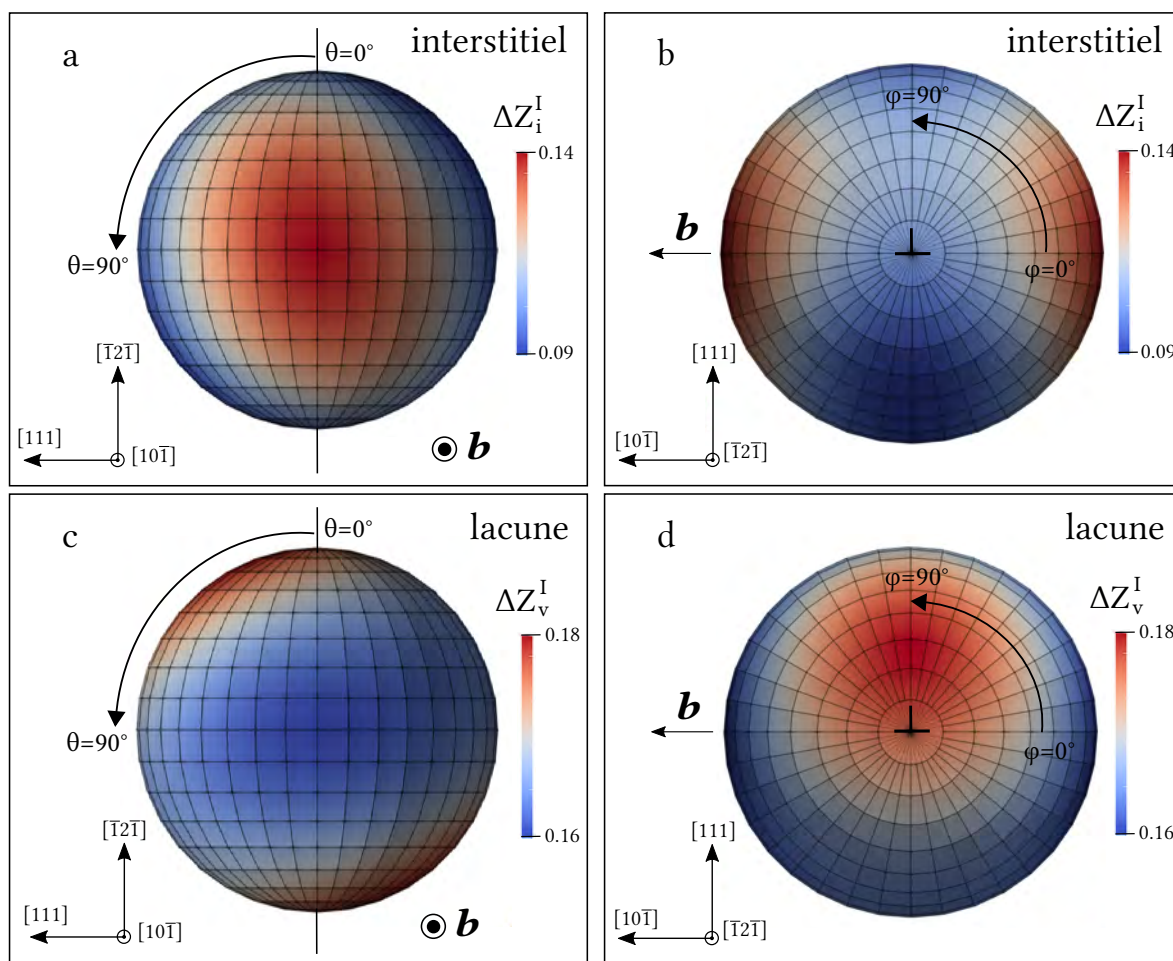


Figure 4.12 – Incrément de l'efficacité d'absorption ΔZ^I des défauts ponctuels par un dipôle de dislocations droites en fonction de l'orientation de la contrainte dû à la polarisabilité α_{ijkl} (SIPA-I), représenté sur une sphère unitaire par une échelle de couleur. Les valeurs sont obtenues par CDM. Elles résultent de la différence entre l'efficacité d'absorption lorsque P_{ij} et α_{ijkl} sont considérés et lorsque seul P_{ij} est inclus. Une contrainte de traction de 100 MPa est appliquée. La dislocation est suivant $[\bar{1}2\bar{1}]$ et le vecteur de Burgers suivant $\pm[10\bar{1}]$. Les résultats de l'interstitiel sont présentés en (a) et (b) et ceux de la lacune en (c) et (d).

Certains termes ne sont pas pris en compte dans l'équation 1.18, ce qui expliquerait pourquoi les résultats sont décalés par rapport au CDM. Cet écart n'est pas pertinent pour notre étude. En laissant de côté cet aspect, l'accord entre les résultats CDM et le modèle de HSW pour $\theta = 90^\circ$ est remarquable pour les deux types de défauts. Les résultats pour $\theta = 30^\circ$, incluant la direction où ΔZ_v^I est maximale, sont également présentés sur ces figures. La solution analytique s'écarte considérablement du CDM, notamment pour les lacunes. L'amplitude du SIPA-I pour la lacune est plus faible que le résultat CDM de plus d'un facteur deux.

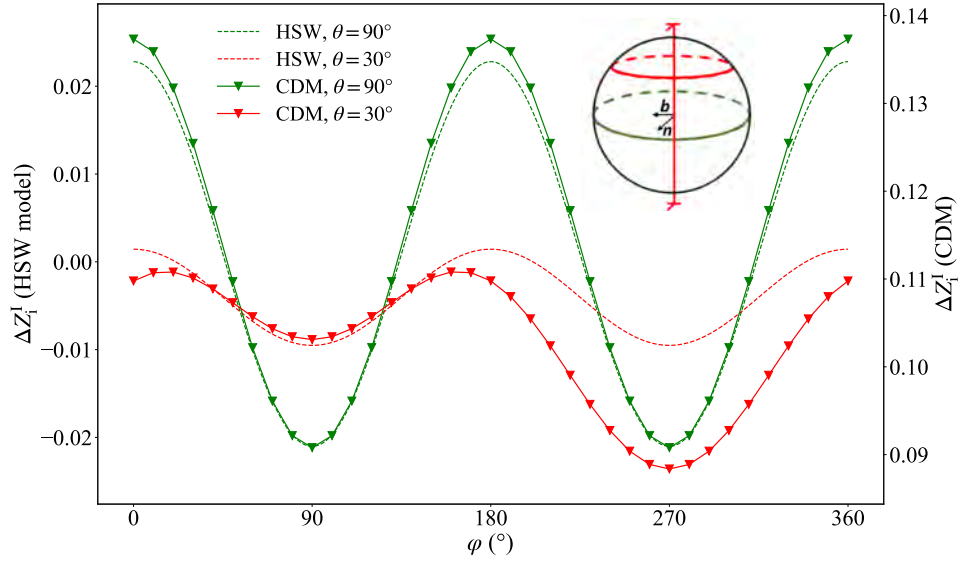


Figure 4.13 – Efficacité d’absorption ΔZ_i^I due à la polarisabilité des interstitiels, en fonction de φ , pour deux valeurs de θ (30° et 90°). Les résultats sont obtenus avec le CDM et sont comparés au modèle HSW donné par les équations 1.19, 1.20, 1.21, 1.22.

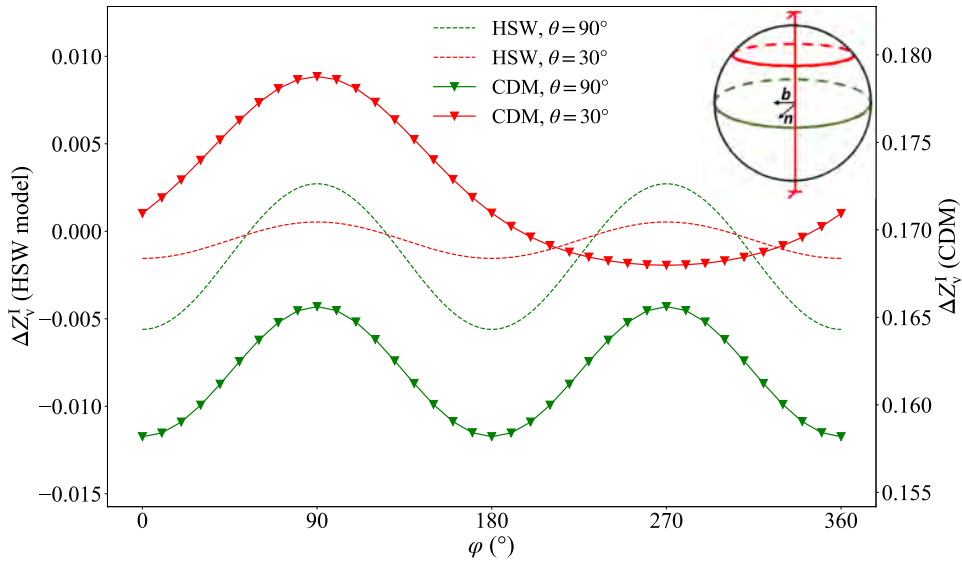


Figure 4.14 – Efficacité d’absorption ΔZ_v^I due à la polarisabilité des lacunes, en fonction de φ , pour deux valeurs de θ (30° et 90°). Les résultats sont obtenus avec le CDM et sont comparés au modèle HSW donné par les équations 1.19, 1.20, 1.21, 1.22.

Contrairement au SIPA-AD, le champ de la dislocation est un paramètre essentiel du SIPA-I. Le quatrième terme dans l'équation 1.16, qui induit un couplage entre le champ de déformation appliquée et le champ de la dislocation, engendre une diffusion préférentielle des défauts ponctuels vers certaines dislocations. Généralement, on considère que les interstitiels sont les contributeurs principaux au SIPA-I, de par leur grande polarisabilité [36, 53, 156, 157, 158]. Le modèle HSW (équations 1.19,1.20,1.21,1.22) prédit que les interstitiels sont préférentiellement absorbés par les dislocations dont le vecteur de Burgers est aligné avec la direction de la contrainte appliquée [44, 43, 53].

Les calculs DFT confirment que les interstitiels sont bien plus polarisables que les lacunes (tableau 4.2). Les polarisabilités de cisaillement des interstitiels et des lacunes au point stable, qui sont utilisées dans le modèle analytique, diffèrent d'environ un ordre de grandeur. Toutefois, l'effet des lacunes sur le SIPA-I n'est pas complètement négligeable (figure 4.12) : l'amplitude de leur effet est seulement trois fois plus faible que celui des interstitiels. Cela est essentiellement dû à l'efficacité d'absorption élevée des lacunes lorsque la contrainte est appliquée dans le plan (\mathbf{b}, \mathbf{n}) , pour $\theta = 25^\circ$, proche de la direction correspondant à l'efficacité d'absorption maximale pour le SIPA-AD ($\theta = 33^\circ$). Ce comportement n'est pas capturé par le modèle HSW. Des calculs complémentaires réalisés avec le CDM en utilisant des tenseurs isotropes et présentant des propriétés identiques au point stable et au point col, présentés sur les figures 4.15 et 4.16, donnent des résultats en bon accord avec le modèle HSW en ce qui concerne la dépendance angulaire. Nous pouvons donc conclure que ce modèle HSW est exact dans ce cadre et que l'écart observé ici est certainement dû aux effets du réseau. L'accord entre le modèle et le CDM est plutôt satisfaisant pour les interstitiels, même si quelques écarts apparaissent si la contrainte n'est pas normale à la ligne de dislocation. Cela montre que de manière générale, puisque les polarisabilités induisent des contributions du second ordre, elles ne devraient pas être considérées sans prendre en compte les contributions du premier ordre, c'est-à-dire l'anisotropie du dipôle élastique. A notre connaissance, nos simulations sont les premières estimations du SIPA-I reposant sur la considération totale des termes du premier ordre et des polarisabilités au point col.

Comme pour le SIPA-AD, d'autres termes contribuant potentiellement au SIPA sont incluses en CDM mais pas dans le modèle. La première partie du septième terme dans l'équation 1.16 entraîne une diffusion anisotrope, et par conséquent contribue au SIPA. Cependant, ce terme peut être négligé pour des champs de déformation appliquée de l'ordre de 10^{-3} comme ceux considérés dans ce travail.

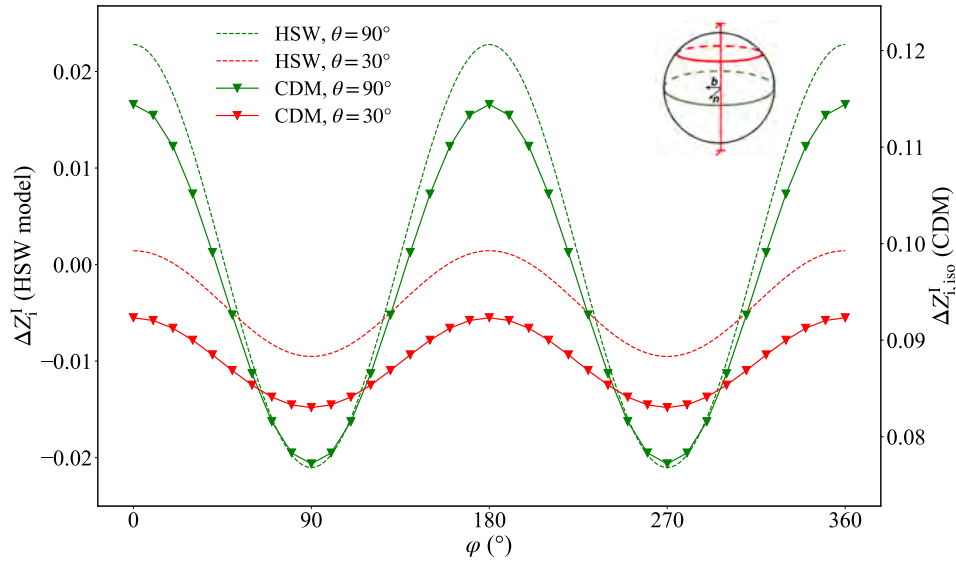


Figure 4.15 – Efficacité d'absorption ΔZ_i^I due à la polarisabilité des interstitiels, en fonction de φ , pour deux valeurs de θ (30° et 90°). Dans ces calculs avec le CDM, les dipôles sont isotropes et présentent des propriétés identiques au point stable et au point col.

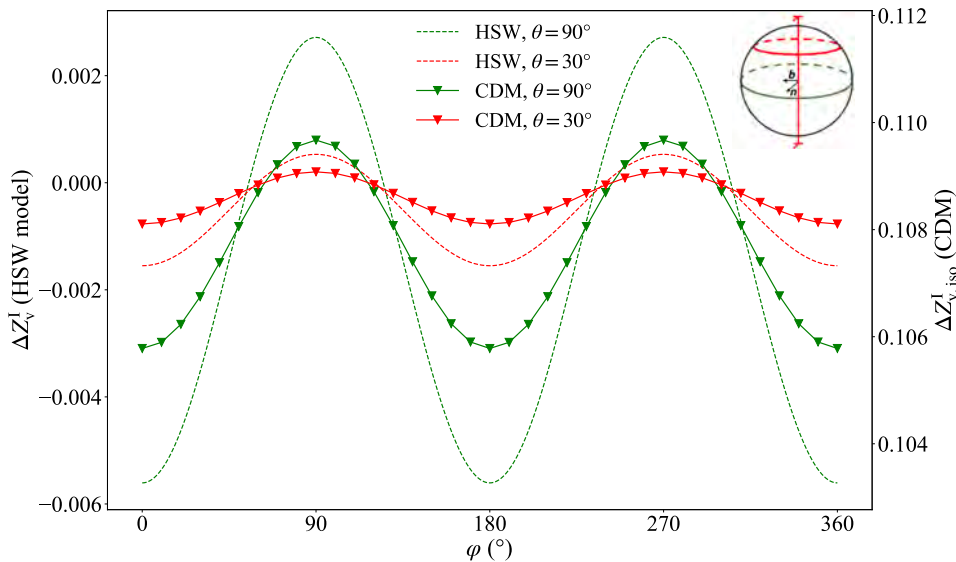


Figure 4.16 – Efficacité d'absorption ΔZ_v^I due à la polarisabilité des lacunes, en fonction de φ , pour deux valeurs de θ (30° et 90°). Dans ces calculs avec le CDM, les dipôles sont isotropes et présentent des propriétés identiques au point stable et au point col.

4.6 Contributions relatives du SIPA-AD et SIPA-I dans la montée des dislocations sous contrainte

En utilisant les expressions analytiques telles que l'équation 1.18 et l'équation 1.23, il a été suggéré que l'amplitude du SIPA-AD soit trente fois supérieure à celle du SIPA-I [21, 36, 38]. Il est intéressant de voir si les calculs effectués dans ce travail de thèse, avec des valeurs de dipôles élastiques et polarisabilités plus précis, confirment cette conclusion. En effet, considérer les polarisabilités induit une complexité additionnelle dans le code de cinétique, il est donc utile d'évaluer la pertinence de les inclure. D'après les figures 4.7 et 4.12, on remarque que l'amplitude des efficacités d'absorption considérant uniquement l'anisotropie du dipôle (SIPA-AD) est environ cinq fois supérieure à celle due à la polarisabilité (SIPA-I), peu importe le défaut. Cependant, comme cela est montré sur la figure 4.17, pour une contrainte appliquée dans le plan normal à la ligne de dislocation, la polarisabilité inverse les directions qui favorisent l'absorption des interstitiels. La raison de ce phénomène est le faible effet de l'anisotropie du dipôle dans ce plan, en opposition avec la polarisabilité. Cela suggère que les polarisabilités ne peuvent pas être ignorées pour les études sous contrainte.

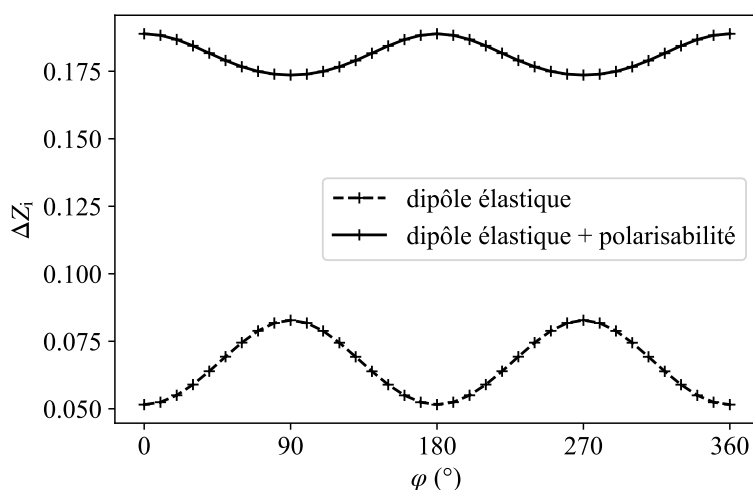


Figure 4.17 – Différence d'efficacité d'absorption des interstitiels ΔZ_i en fonction de φ , calculée avec le CDM pour $\theta = 90^\circ$. Le calcul de référence à soustraire correspond à une contrainte hydrostatique en ne considérant que le dipôle élastique P_{ij} . La courbe en pointillé montre l'évolution de ΔZ_i lorsque seul P_{ij} est pris en compte et la courbe en traits pleins correspond au cas où P_{ij} et α_{ijkl} sont considérés.

Inclure l'anisotropie du dipôle et de la polarisabilité dans les calculs permet de conclure sur les directions de contrainte appliquée qui favorisent l'absorption des interstitiels ou des lacunes. D'après nos résultats, nous pouvons conclure que pour une contrainte approximativement orthogonale à la ligne de dislocation, et en particulier suivant le vecteur de Burgers, le taux d'absorption net des interstitiels devrait être le plus élevé. Au contraire, une contrainte uniaxiale appliquée proche de la direction $\langle 100 \rangle$ avec la plus grande projection sur la ligne de dislocation devrait minimiser le taux d'absorption net des interstitiels. Comme la vitesse de montée sous contrainte est généralement pilotée par un surplus d'interstitiels absorbés à cause de l'EID, il est attendu que la vitesse de montée augmente dans la première configuration et diminue dans la seconde.

4.7 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre nous avons étudié l'effet de l'application d'une contrainte uniaxiale sur l'absorption des défauts ponctuels par des dislocations droites dans l'aluminium. Les dipôles élastiques et les polarisabilités diaélastiques des lacunes et interstitiels ont été utilisés dans un code OKMC et CDM dans le but d'évaluer les efficacités d'absorption sous contrainte. Nos résultats confirment que l'amplitude du SIPA-I, dû à la polarisabilité, est plus faible que celle du SIPA-AD, dû à l'anisotropie du dipôle, par un facteur cinq environ. Cependant, le comportement exact de l'efficacité d'absorption dans le plan orthogonal à la ligne de dislocation ne peut être obtenu que si la polarisabilité est prise en compte. Par conséquent, négliger la polarisabilité dans les études sous contrainte n'est pas approprié.

Les résultats des simulations ont été comparés aux expressions analytiques du SIPA-AD et SIPA-I. Pour les interstitiels, les modèles sont en accord raisonnable avec les simulations. Les lacunes sont très anisotropes dans leur configuration col, ce qui induit un fort effet du réseau dans leur diffusion sous contrainte. Dans ce cas la prédiction des modèles n'est pas très juste. L'expression de Borodin et Ryazanov (B&R) pour le SIPA-AD inclut les effets du réseau mais les défauts sont supposés faiblement anisotropes au point col. Le modèle prédit correctement un taux d'absorption maximum des lacunes si la contrainte est appliquée suivant une direction $\langle 100 \rangle$, celle avec la plus grande projection sur la ligne de dislocation. Cependant, l'amplitude du SIPA-AD est sous-estimée d'un facteur trois. L'expression du SIPA-I donnée par Woo (modèle HSW) repose sur une description simple et isotrope des défauts et le modèle est incapable de reproduire la dépendance angulaire de l'efficacité d'absorption pour les lacunes, qui est similaire à celle du SIPA-AD.

Nos résultats montrent que la vitesse de montée des dislocations sous contrainte en traction devrait être la plus élevée si la contrainte est approximativement orthogonale à la ligne de dislocation, particulièrement suivant le vecteur de Burgers, et la plus faible si la contrainte est appliquée proche de la direction $\langle 100 \rangle$ avec la plus grande projection sur la ligne de dislocation. Comme ces résultats dépendent de la symétrie des défauts ponctuels dans leurs configurations au point col, ils sont probablement transposables aux autres métaux CFC.

Chapitre 5

Simulations de boucles de Frank dans les conditions expérimentales

Les résultats expérimentaux du chapitre 3 ont montré que l'application d'une contrainte au début de l'irradiation entraîne une forte sélectivité des boucles de dislocation en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de traction. L'action du mécanisme SIPA sur les petites boucles et d'un mécanisme de type SIPN sont les deux mécanismes proposés pour expliquer cette sélectivité. L'objectif de ce chapitre est de vérifier par la simulation lequel de ces deux mécanismes agit sur la sélectivité observée expérimentalement. D'après la caractérisation des boucles en MET, toutes les boucles aux premiers stades d'irradiation sont des boucles de Frank (purement prismatiques) de nature interstitielle, nous nous intéressons donc à l'effet de la contrainte sur ce type de boucles. Nous simulons le mécanisme SIPA avec la méthode OKMC en considérant à la fois le dipôle élastique et la polarisabilité dans la description du défaut ponctuel, conformément aux conclusions du chapitre précédent. Dans un premier temps, nous simulons une boucle de Frank isolée hors contrainte. Nous vérifions que l'effet de la taille d'une boucle sur son efficacité d'absorption Z est cohérent avec le travail antérieur de Carpentier [133]. Puis nous calculons la vitesse de croissance d'une boucle isolée dans une lame mince pour différentes températures afin d'interpréter les expériences de la section 2.5 du chapitre 2.

Nous passons ensuite à l'étude des effets de contrainte. A l'instar du dipôle de dislocations dans le chapitre 4, l'effet de la contrainte est évalué pour une boucle isolée, en calculant l'efficacité d'absorption Z pour différentes orientations de la contrainte. Après la boucle isolée, nous simulons les microstructures de boucles dans les conditions expérimentales, en considérant uniquement le mécanisme SIPA. La méthode OKMC nous permet de mener des simulations aux mêmes échelles d'espace et de temps que l'irradiation en MET et ainsi de comparer directement ces résultats à ceux du chapitre 3. Par la suite, les différents paramètres en jeu lors des simulations en conditions expérimentales sont étudiés de manière isolée afin de mieux appréhender leur influence sur la cinétique de croissance des boucles. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous réalisons des calculs en dynamique moléculaire avec la méthode d'accumulation de paires de Frenkel, dans l'objectif d'étudier l'effet de la contrainte aux premiers stades de la formation des boucles. Cette méthode permet d'exclure les mécanismes de diffusion à longue distance dans la compréhension des phénomènes et de conclure sur le rôle des mécanismes de type SIPN sur la sélectivité.

5.1 Boucle isolée hors contrainte

5.1.1 Effet de la taille de la boucle

L'efficacité d'absorption Z d'une boucle de Frank isolée¹ de nature interstitielle hors contrainte est calculée de la même façon que pour le dipôle de dislocations droites (voir le chapitre 4). Pour rappel, les efficacités d'absorption vis-à-vis des interstitiels et des lacunes sont calculées séparément par la méthode OKMC. Les valeurs de Z sont déduites du nombre moyen de défauts ponctuels dans la boîte simulée par cette relation :

$$Z = \frac{G}{2\pi r \rho D_0 \bar{N}}, \quad (5.1)$$

où r est le rayon de la boucle et ρ est la densité volumique des boucles.

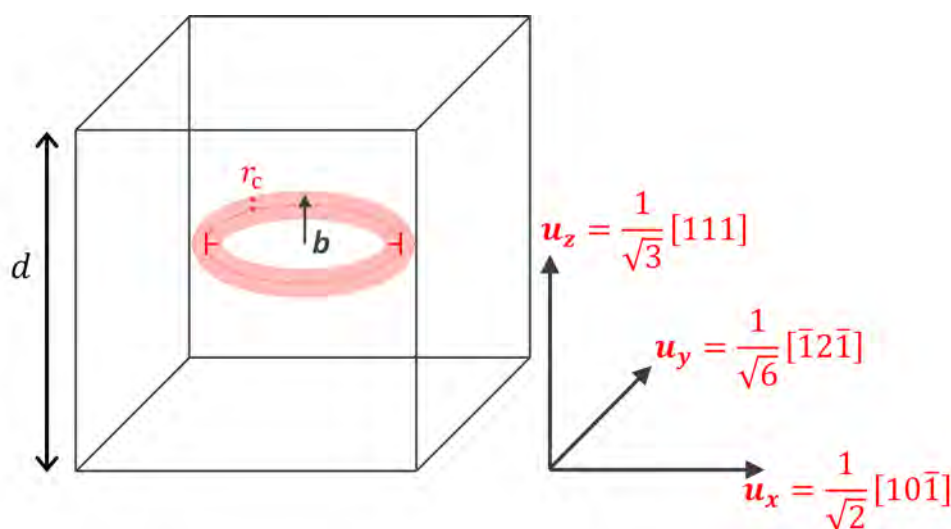


Figure 5.1 – Système simulé contenant une boucle de Frank. Celle-ci est placée au centre d'une boîte cubique de dimension d .

Le système simulé est présenté sur le schéma de la figure 5.1. Le système contient une boucle de Frank de vecteur de Burgers $\mathbf{b} = \pm a/3[111]$ placée au centre d'un cube de dimension d . Nous simulons différentes tailles de boucle, pour des rayons allant de 1 à 10 nm. La taille de la boucle est fixée et n'évolue pas au cours de la simulation. Le cristal est orienté de façon à ce que le vecteur de Burgers, qui est colinéaire à la normale de la boucle, soit selon la direction \mathbf{u}_z .

La densité volumique est donnée par $\rho = 1/d^3$. Elle ne doit pas être trop petite pour que les calculs soient bien convergés, ni trop grande de façon à ce que le champ de déformation généré par la boucle soit faible sur les bords de la boîte. La dimension d est fixée à 70 nm, correspondant à une densité volumique de boucles de $2,9 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$, ce qui est du même ordre de grandeur que les densités trouvées expérimentalement (voir section 2.6.2 du chapitre 2).

Les défauts ponctuels sont absorbés lorsqu'ils atteignent le tore centré sur la boucle, dont la section circulaire a un rayon de capture $r_c = 2b$. Les conditions aux limites périodiques pour la diffusion des défauts ponctuels sont appliquées suivant les trois directions. Pour des questions d'efficacité numérique, le champ de déformation de la boucle est directement calculé à partir des expressions analytiques (déterminées par Khraishi *et al.* [159]) et la contribution des champs des boucles voisines n'est pas considérée. Enfin, comme il a été conclu dans la partie précédente, les termes de dipôle élastique et de polarisabilité sont tous les deux considérés dans le calcul de

1. Il s'agit en fait d'un réseau de boucles (cas des boucles voisines équidistantes), du fait de l'utilisation de conditions aux limites périodiques.

l'énergie de migration du défaut ponctuel.

La figure 5.2 présente l'évolution de l'efficacité d'absorption Z_i et Z_v en fonction de la taille de la boucle. L'évolution aux petites tailles de boucle est en accord avec les modèles analytiques avec ou sans champ élastique [160, 161, 162, 163, 152] qui prédisent une évolution en $1/\ln(r)$. La légère augmentation de l'efficacité d'absorption entre 7 et 10 nm pour le cas de l'interstitiel peut s'expliquer par un effet de taille de boîte [152].

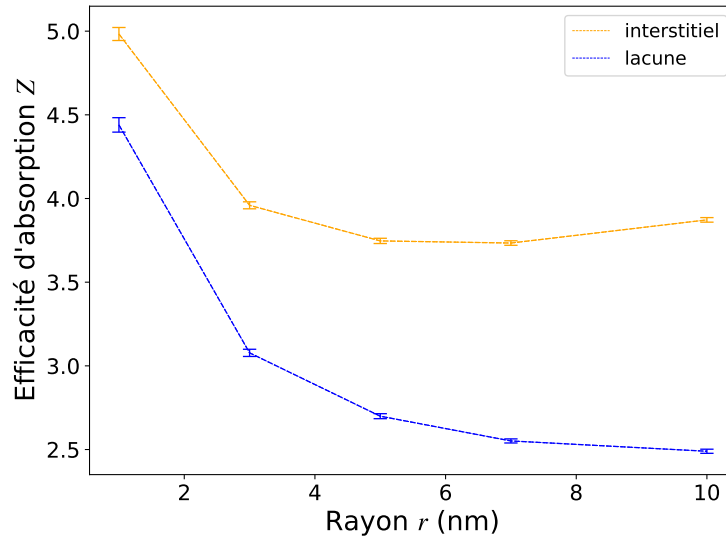


Figure 5.2 – Efficacités d'absorption calculées avec la méthode OKMC pour une boucle isolée, hors contrainte, en fonction de la taille de la boucle. Les intervalles de confiance correspondent à trois fois l'écart-type, déterminé par la méthode des moyennes par blocs.

Nous déduisons le biais de la boucle isolée B (équation 1.8) des valeurs de Z de la figure 5.2, $B = (Z_i - Z_v)/Z_i$. Les valeurs de B en fonction de la taille de la boucle sont données dans la figure 5.3. Le biais d'absorption augmente bien avec la taille de la boucle comme attendu, et il devrait tendre vers le biais pour une dislocation droite de densité de dislocations équivalente. En effet, la géométrie et le champ d'une grande boucle sont similaires à ceux d'une dislocation droite, suffisamment près des segments de dislocations.

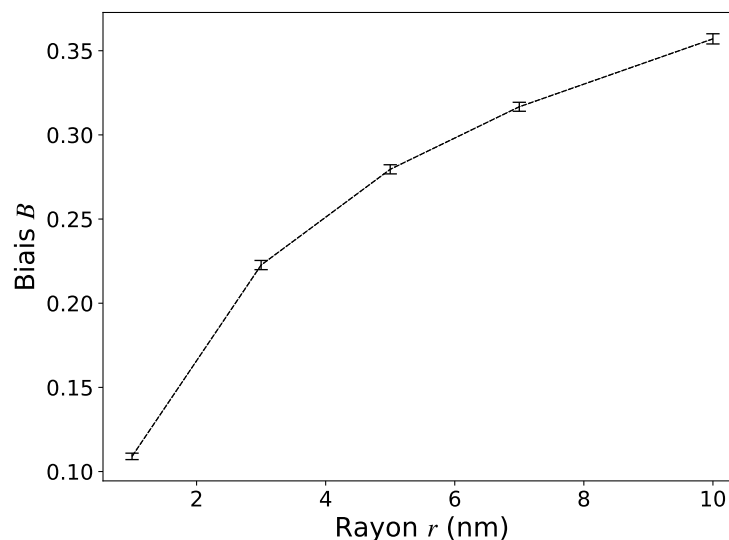


Figure 5.3 – Biais d'absorption d'une boucle isolée en fonction de sa taille. Les intervalles de confiance correspondent à trois fois l'écart-type.

L'évolution de Z et de B en fonction de la taille d'une boucle interstitielle est cohérent avec ce qui a été calculé dans la thèse de Carpentier [133]. Dans ce travail, le rôle de la densité de puits sur l'efficacité d'absorption et sur le biais avait été souligné.

Nous avons montré dans le chapitre 1 que l'expression analytique de la vitesse de croissance d'une boucle, lorsque le système atteint l'état stationnaire, peut s'écrire en fonction du biais de la boucle B et du biais moyen du système $\langle B \rangle$ (équation 1.11). L'intérêt de calculer le biais d'absorption est donc d'estimer le comportement cinétique d'une boucle en présence d'autres puits. Dans l'équation 1.11, si le terme $(B - \langle B \rangle)$ est positif, la boucle aura tendance à croître, s'il est négatif, elle rétrécira. D'après la figure 5.3, si nous considérons deux boucles de tailles différentes dans un milieu infini, la plus grande boucle (telle que $B > \langle B \rangle$) pourra croître au détriment de la petite boucle ($B < \langle B \rangle$). Ce phénomène a ponctuellement été observé en MET à des temps d'irradiation longs ; si la densité de boucles est suffisamment élevée, les nouvelles petites boucles qui germent ont tendance à rétrécir. Ce comportement de boucles sacrificielles dans l'aluminium a déjà été souligné par Jitsukawa *et al.* [107].

5.1.2 Effet de la température et de l'épaisseur de la lame sur la croissance des boucles

Dans le chapitre 2, nous avons montré qu'il n'est pas possible, dans nos conditions expérimentales, de remonter à l'énergie de migration de la lacune à partir de mesures de vitesses de croissance des boucles. L'objectif de cette section est d'expliquer ces résultats expérimentaux, c'est-à-dire la déviation par rapport au modèle analytique [164, 110, 109], par des simulations OKMC.

Comme dans la section 5.1.1, nous simulons une boucle isolée avec $\mathbf{b} = \pm a/3[111]$ et le cristal est orienté de la même façon. Le système est illustré dans la figure 5.4. Le rayon de la boucle est fixé à 1 nm. Des surfaces libres sont considérées dans la direction \mathbf{u}_z afin de se placer dans des conditions équivalentes à celles de l'expérience. Les dimensions de la boîte dans les directions \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_y sont de 100 nm. La distance entre les deux surfaces libres varie de 50 à 250 nm. La boucle est placée au centre de la boîte. Les simulations sont menées à différentes températures, de 200 à 500 K.

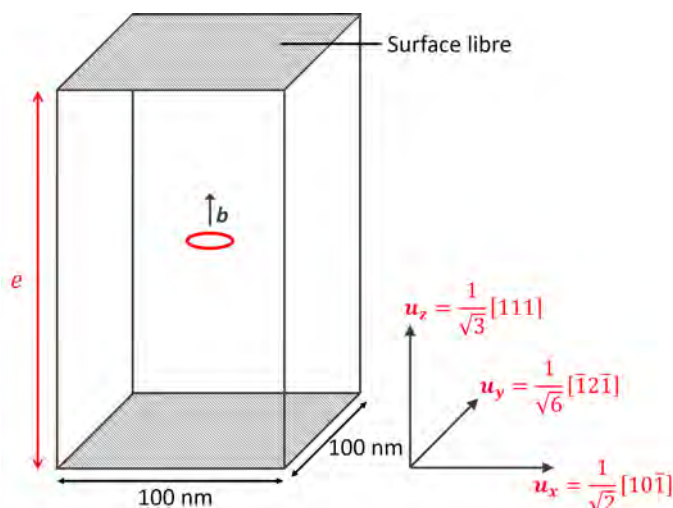


Figure 5.4 – Système simulé pour la détermination de l'énergie d'activation de la lacune.

Les paires de Frenkel sont générées à taux constant de 4×10^{-5} dpa.s⁻¹, ce qui est du même ordre de grandeur que celui des expériences en température ($4,95 \times 10^{-5}$ dpa.s⁻¹). La recombinaison interstitiel-lacune est autorisée dans les simulations, mais pas la formation de nouveau puits, c'est-à-dire l'agglomération des interstitiels ou des lacunes. Les défauts ponctuels peuvent être

absorbés par la boucle isolée ou par les surfaces libres. Aucun de ces deux puits n'est modifié après absorption d'un défaut ponctuel. Il s'agit donc bien d'estimer la vitesse de croissance de la boucle dans une configuration donnée, qui est déduite du nombre d'interstitiels et de lacunes absorbés par la boucle. Les paramètres du système sont répertoriés dans le tableau 5.1.

Pour des questions d'efficacité de calculs, les interactions élastiques entre la boucle et les défauts ponctuels ne sont pas considérées. Ces calculs sont une première approche qualitative dans l'objectif de comprendre le résultat obtenu expérimentalement. Afin que la boucle présente un biais d'absorption malgré l'absence de considération des interactions élastiques, le rayon de capture de la boucle est différent pour les interstitiels ($r_{c,i}$) et les lacunes ($r_{c,v}$). D. Carpentier [133] a montré que le biais de la boucle évolue avec la densité, plus précisément que le biais calculé augmente avec la densité. Afin d'être cohérent avec ce résultat, le rayon de capture de la boucle pour les interstitiels est adapté pour chaque épaisseur (tableau 5.2) et celui pour les lacunes est fixé.

Tableau 5.1 – Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations OKMC pour le système de la figure 5.4. Les paramètres communs au tableau 4.1 du chapitre 4 ne sont pas redonnés dans ce tableau.

Paramètres du système	
volume atomique	$\Omega = a_0^3/4$
rayon de recombinaison	$r_{iv} = 2a_0$ [165]
distance entre les défauts ponctuels lors de la création d'une paire de Frenkel	$d_{FP} = 4a_0$
fréquence d'attaque pour l'interstitiel	$\nu = 4,57 \times 10^{13}$ Hz *
fréquence d'attaque pour la lacune	$\nu = 3,05 \times 10^{13}$ Hz *
taux de création	$G = 4 \times 10^{-5}$ dpa.s ⁻¹
épaisseur de la lame	$e = [50 - 250]$ nm
température du système	$T = [200 - 500]$ K
rayon de capture de la boucle pour les lacunes	$r_{c,v} = 0,62$ nm
rayon de capture de la boucle pour les interstitiels	$r_{c,i}$ voir le tableau 5.2

* : Les fréquences d'attaque ont été calculées de façon à ce que le préfacteur de diffusion soit égal à $0,05 \times 10^{-4}$ m².s⁻¹ [54].

Tableau 5.2 – Rayons de capture d'une boucle de dislocation utilisés pour les interstitiels en fonction de l'épaisseur du système simulé (figure 5.4). Le rayon de capture pour les lacunes est donné dans le tableau 5.1.

épaisseur e (nm)	$r_{c,i}$ (nm)
50	1
100	0,908
150	0,862
200	0,816
250	0,784

Dans un premier temps, nous réalisons des simulations dans le but d'atteindre les concentrations stationnaires des défauts ponctuels, pour chaque condition de température et d'épaisseur.

Ensuite, nous faisons une deuxième simulation pour chaque condition en régime stationnaire dans laquelle nous enregistrons les nombres d'interstitiels et de lacunes capturés par la boucle pour un certain temps physique. Nous en déduisons ϕ_i et ϕ_v , le nombre de défauts (interstitiels et lacunes respectivement) absorbés par unité de temps. La vitesse de croissance d'une boucle isolée de rayon r peut être calculée en OKMC avec cette équation :

$$\frac{dr}{dt} = \frac{(\phi_i - \phi_v)\Omega}{2\pi r b}. \quad (5.2)$$

La figure 5.5 donne les vitesses de croissance calculées pour chaque épaisseur de lame en fonction de l'inverse de la température. D'après ces résultats, nous obtenons bien un comportement arrhénien, sauf à haute température où la vitesse de croissance sature. Ce comportement a été mis en évidence par Kiritani [164, 110]. L'expression de la vitesse de croissance d'une boucle, donnée par

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} Z_i (B- < B >) \left(\frac{a^2 \nu_0 k_{\text{tot},i}^2 G}{\alpha k_{\text{tot},v}^2} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{E_v^m}{2k_B T}\right), \quad (5.3)$$

s'applique si la concentration de défauts est contrôlée par la recombinaison ($G - K_{i,v} C_i C_v \simeq 0$, chapitre 1) [109]. Ce régime correspond à l'intervalle de températures pour lequel nous avons un comportement arrhénien des courbes. D'après la figure 5.5, cet intervalle de températures est d'autant plus étroit que la lame est mince. D'autre part, nous constatons un changement de pente aux basses températures pour l'épaisseur de 50 nm. En effet, à mesure que la température baisse, la concentration de lacunes augmente jusqu'à saturer du fait de la recombinaison des lacunes avec les interstitiels voisins. C'est l'atteinte de cette saturation de la concentration de lacune qui induit ce changement de pente. Ce phénomène n'existe pas dans les calculs en champ moyen où les corrélations spatiales ne sont pas considérées.

À plus haute température, lorsque la vitesse de croissance sature, le système n'est plus en régime de recombinaison mais en régime d'élimination des défauts vers les puits ($G - k_{\text{tot},v}^2 D_v C_v \simeq 0$). La vitesse de croissance ne dépend plus de l'énergie de migration de la lacune,

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\Omega}{b} Z_i (B- < B >) \frac{G}{k_{\text{tot},v}^2}. \quad (5.4)$$

Nous pouvons noter que plus la distance entre les surfaces libres est grande, plus le régime d'élimination des défauts vers les puits débute à plus haute température. En effet, plus les surfaces sont éloignées, moins l'élimination des défauts vers les puits est efficace.

Afin de comparer les résultats avec ceux du chapitre 2 dans les mêmes régimes, nous repreneons la figure 5.5 en considérant les points entre les températures 300 et 450 K. Cet intervalle correspond à celui pris lors des irradiations en MET pour l'estimation de l'énergie de migration de la lacune. Dans la figure 5.6a, nous suivons la même démarche que celle de nos expériences, l'énergie d'activation de la lacune est déduite de la pente de la régression linéaire. Ces valeurs de pente sont tracées en fonction de l'épaisseur dans la figure 5.6b et sont directement comparées à l'énergie de migration (0,605 eV). Le résultat montre que l'énergie d'activation calculée dépend fortement de l'épaisseur, du moins dans l'intervalle de l'étude. Plus la lame est épaisse, plus l'énergie calculée se rapproche de l'énergie de migration. Nous n'avons pas de mesure d'épaisseur associée aux expériences en température, cependant l'épaisseur a été mesurée pour d'autres irradiations au sein du même échantillon (~ 170 nm). Nous supposons que l'épaisseur doit se situer entre 100 et 200 nm. Les énergies d'activation calculées sur cette gamme d'épaisseur sont cohérentes avec notre résultat expérimental (0,32 eV) et également avec l'énergie calculée expérimentalement dans la thèse de Jacquelin [103] (0,38 eV). Cependant nous ne connaissons pas

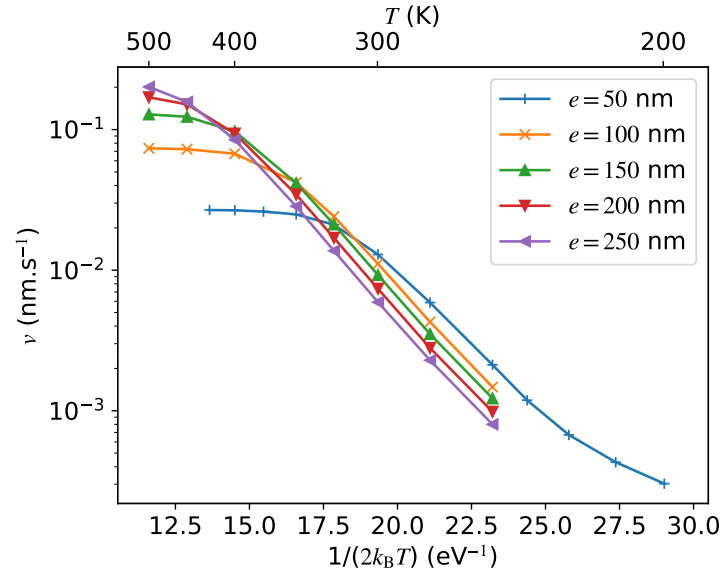


Figure 5.5 – Vitesses de croissance calculées pour une boucle isolée en fonction de $1/2k_B T$. Chaque courbe correspond à une épaisseur de lame mince simulée. Les vitesses sont données en échelle logarithmique.

l'épaisseur locale de la zone irradiée dans leur expérience, tout comme Kiritani et Takata [164] qui ont déterminé avec la même méthode une énergie d'activation de 0,58 eV. Dans cette dernière expérience, l'épaisseur de la lame est forcément supérieure à la nôtre puisqu'ils irradient dans un microscope à très haute tension.

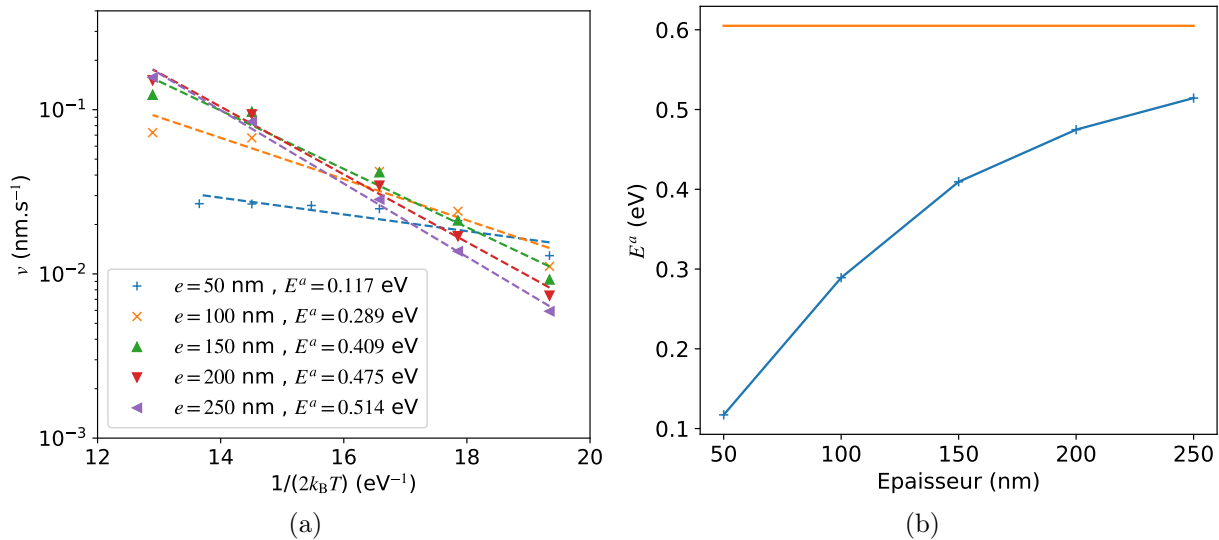


Figure 5.6 – (a) Régression linéaire des points extraits de la figure 5.5 entre 300 et 450 K, droites en pointillé. L'énergie d'activation déduite des pentes est donnée dans la légende pour chaque épaisseur simulée. (b) Les énergies calculées en (a) sont tracées en fonction de l'épaisseur. La droite orange correspond à la valeur théorique de l'énergie de migration de 0,605 eV.

Résumé des simulations sur le calcul de l'énergie de migration de la lacune

Ces calculs OKMC sont en cohérence avec la valeur mesurée expérimentalement. Ils nous permettent d'expliquer pourquoi il nous était impossible de retrouver la valeur théorique de E_V^m

avec nos expériences de mesure de la taille des boucles en température. Dans notre gamme de température et d'épaisseur, l'irradiation ne se place pas strictement en régime de recombinaison, ce qui est requis pour déterminer l'énergie d'activation par les vitesses de croissance de boucles. Nous avons essayé d'irradier à des températures plus basses, telle que 0°C , mais la vitesse de croissance des boucles est tellement lente qu'elle n'est pas mesurable sur un temps d'expérience raisonnable. L'autre solution serait d'irradier une lame d'une épaisseur plus importante, supérieure à 250 nm.

5.2 Boucle isolée sous contrainte

Dans la même logique que le dipôle de dislocations, nous réalisons des simulations sous contrainte uniaxiale à différents angles pour vérifier la dépendance de l'efficacité d'absorption Z d'une boucle par rapport à l'orientation de la contrainte sur la capture des défauts ponctuels. Pour cela, nous calculons Z avec la même méthode que dans la section 5.1.1 (l'interaction élastique entre la boucle et les défauts ponctuels est considérée), à la seule différence que dans ces calculs, la sommation des champs dus aux boucles dans les boîtes images est considérée.

Nous appliquons une contrainte de traction de 100 MPa dont la direction est définie par (θ, φ) . θ est l'angle par rapport à la normale de la boucle, soit le vecteur de Burgers (direction \mathbf{u}_z) et φ est l'angle par rapport à la direction \mathbf{u}_x . Nous faisons varier ces angles avec un pas de 10° . Les valeurs de Z_i et Z_v sont calculées pour une boucle isolée de 1 et 10 nm de rayon.

Des cartes 3D représentant l'influence de l'orientation d'une contrainte de traction sur les efficacités d'absorption sont montrées dans la figure 5.7. Les cartes correspondent à une boucle de 10 nm de rayon, celle de 1 nm n'est pas décrite car elle présente les mêmes symétries. Les valeurs maximales et minimales des Z sont indiquées pour les deux tailles de boucles sur les échelles.

Dans le cas des interstitiels, nous trouvons que l'absorption des défauts est favorisée lorsque la contrainte est colinéaire au vecteur de Burgers. Ce résultat est cohérent avec le résultat du chapitre 4 sur la dislocation droite (figure 4.17). L'efficacité d'absorption est minimale si la direction de traction est contenue dans le plan d'habitat. Pour le cas de la lacune, l'influence de l'orientation de la contrainte sur les valeurs de Z présente une symétrie d'ordre 3. Il s'agit des trois directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ qui favorisent l'absorption des lacunes pour les segments de dislocations de la boucle orientés selon les directions $\langle 2\bar{1}\bar{1} \rangle$ ($[\bar{1}2\bar{1}]$ pour $[010]$, $[\bar{1}\bar{1}2]$ pour $[001]$, $[2\bar{1}\bar{1}]$ pour $[100]$). Ces résultats sont donc cohérents avec ceux obtenus pour le cas du dipôle de dislocations droites (chapitre 4) lorsque les termes de dipôle élastique et de polarisabilité sont considérés.

L'évolution du terme ΔZ , qui est la différence entre l'efficacité d'absorption sous contrainte et hors contrainte, est présentée dans les graphiques 5.8a et 5.8b pour les interstitiels et les lacunes respectivement. ΔZ est tracé en fonction de θ pour $\varphi = 90^\circ$. Ce plan comprend une des directions qui favorise l'absorption des lacunes. Ces graphiques permettent de comparer quantitativement des boucles de 1 nm et de 10 nm de rayon. La dépendance en θ est la même pour les deux tailles, quel que soit le type de défaut. Seule l'amplitude de ΔZ est différente. Alors que pour le cas de l'interstitiel, l'intervalle des valeurs calculées est un peu plus élevé pour la plus grande boucle ($\sim 40\%$), nous trouvons une tendance opposée pour la lacune. L'intervalle de valeurs ΔZ_v pour la boucle de 1 nm de rayon est presque 2 fois plus élevé que pour une boucle de 10 nm. Nous pouvons également noter que pour une taille de boucle donnée, l'intervalle des efficacités d'absorption est plus élevé pour les interstitiels que pour les lacunes. L'effet de la contrainte sur le biais d'une boucle est donc principalement dû aux interstitiels.

Nous rappelons que dans nos expériences sous contrainte, les quatre variants de boucles de Frank sont classés en deux catégories en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte appliquée. Dans le cas idéal de nos expériences, la contrainte est appliquée suivant une direction

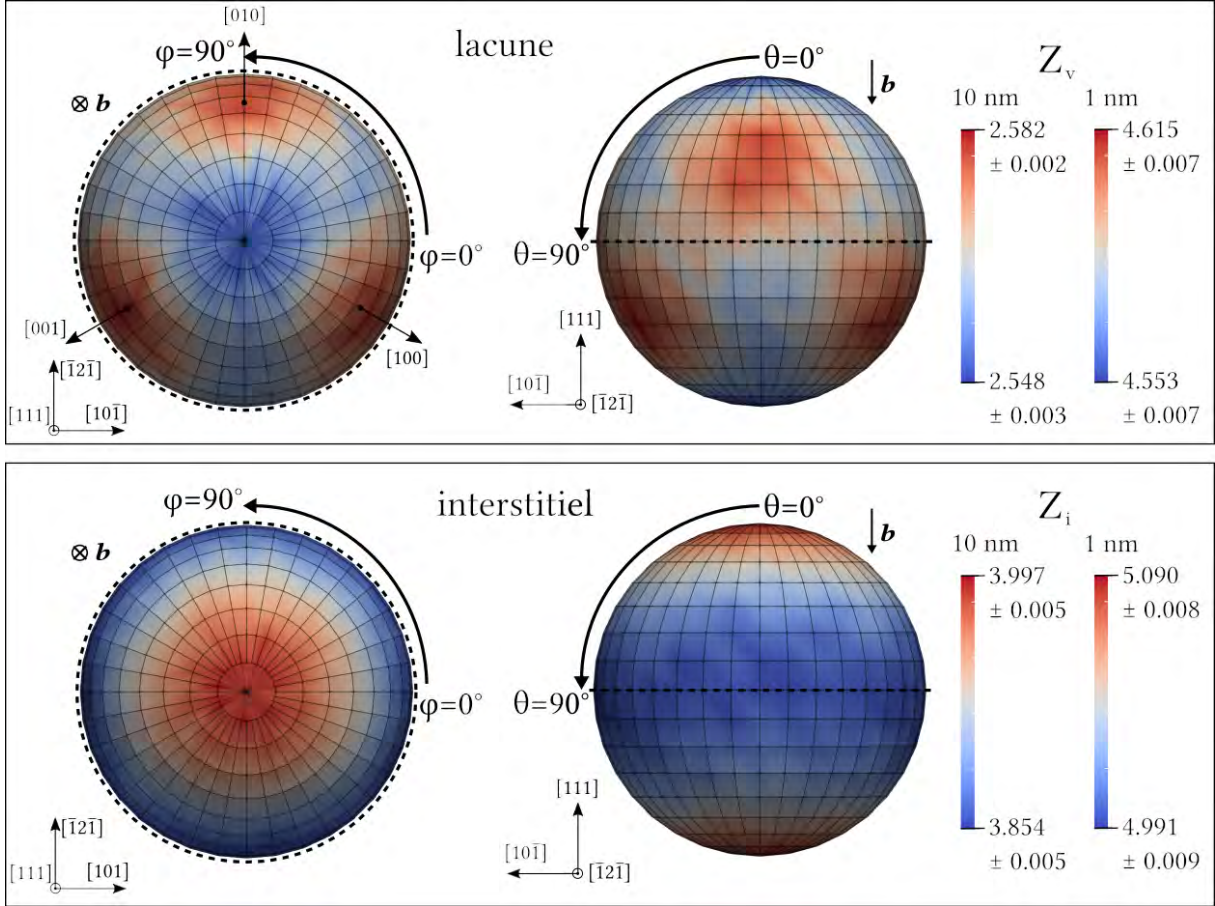


Figure 5.7 – Efficacités d’absorption Z des défauts ponctuels par une boucle de Frank interstitielle en fonction de l’orientation de la contrainte, en prenant en compte le dipôle élastique et la polarisabilité. Les valeurs sont représentées sur une sphère unitaire par une échelle de couleur. Les cartes sont les mêmes pour une boucle de 1 et 10 nm de rayon. Les échelles donnent les valeurs maximales et minimales et chaque échelle est associée à une taille de boucle.

$\langle 110 \rangle$. Parmi les quatre variants de boucles, deux ont l’axe de la contrainte contenu dans leur plan d’habitat, les deux restants ont la direction de la contrainte à 35° du vecteur de Burgers. Les deux premiers sont identifiés comme ceux orientés défavorablement et les deux autres comme étant orientés favorablement par rapport à la contrainte.

A partir des valeurs de la figure 5.7, nous pouvons calculer un biais théorique pour les deux catégories de boucles. Ces valeurs de biais sont données dans le tableau 5.3 pour les deux orientations et pour une boucle isolée de 1 et 10 nm de rayon. Comme attendu, le biais est supérieur pour la boucle orientée favorablement pour les deux tailles de boucles.

Tableau 5.3 – Biais d’une boucle de rayon de 1 et 10 nm orientée favorablement ou défavorablement par rapport à une contrainte uniaxiale selon $[110]$.

	1 nm	10 nm
biais boucle orientée favorablement	$0,0946 \pm 0,0003$	$0,3512 \pm 0,0008$
biais boucle orientée défavorablement	$0,0834 \pm 0,0003$	$0,3343 \pm 0,0008$

Nous pouvons évaluer le comportement cinétique théorique d’une boucle en présence d’autres boucles en calculant le terme $Z_i(B - \langle B \rangle)$. Les résultats en considérant deux boucles présentant

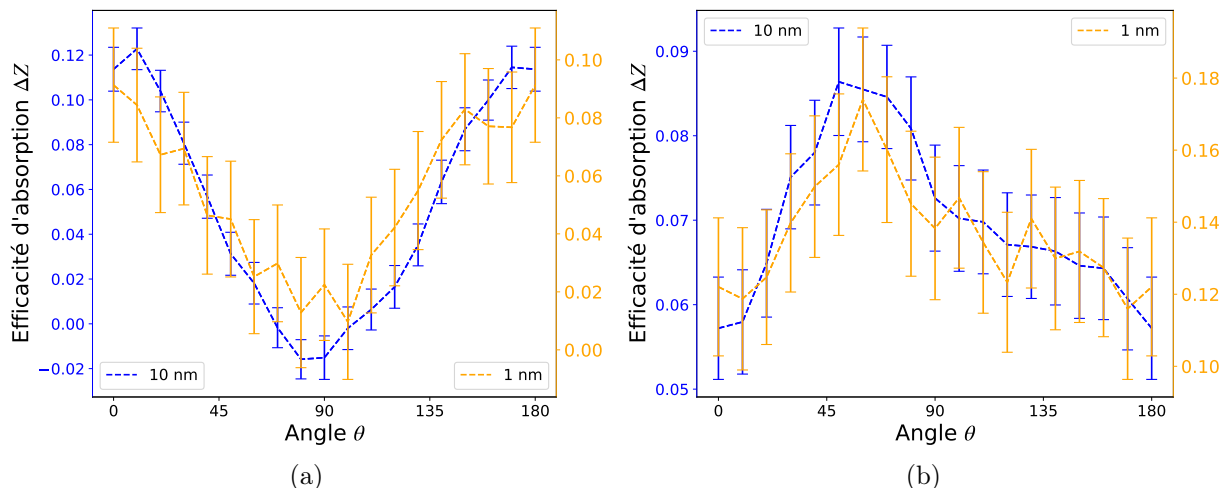


Figure 5.8 – Valeurs de ΔZ calculées pour une boucle de Frank pour (a) les interstitiels et (b) les lacunes en fonction de θ (angle entre la contrainte de traction et le vecteur de Burgers \mathbf{b}). Les intervalles de confiance correspondent à l'écart-type calculé avec la méthode des moyennes par blocs.

le même rayon mais une orientation différente sont donnés dans le tableau 5.4. Comme attendu, le résultat est négatif pour les boucles orientées défavorablement, ce qui indique qu'elles devraient décroître sous l'effet de la contrainte (il s'agit du cas théorique d'un système contenant uniquement les deux boucles comme puits). D'après le tableau, l'effet SIPA devrait être plus fort entre deux boucles de grandes tailles que deux boucles de petites tailles. Comme nous avons vu expérimentalement (section 3.5.3) qu'il n'y avait pas de croissance différentielle observable sous contrainte pour des boucles de diamètre de l'ordre de la dizaine de nanomètres, nous pouvons avancer que l'effet d'un mécanisme SIPA sur les petites tailles de boucles devrait avoir encore moins d'impact sur l'évolution des boucles. Ceci va donc à l'encontre de l'hypothèse présentée au début du chapitre.

Tableau 5.4 – Valeurs de $Z_i(B - \langle B \rangle)$ pour chaque taille et orientation de boucles. Le biais moyen pour chaque boucle est calculé en considérant deux boucles de tailles identiques et orientées différemment.

rayons (nm)	orientations	
	favorable	défavorable
1	0,0282	-0,0278
10	0,0330	-0,0327

5.3 Simulation d'irradiations aux électrons en lame mince incluant le mécanisme SIPA

5.3.1 Evolution des microstructures de boucles avec la méthode OKMC

Présentation du système

Nous avons étudié précédemment l'effet de la contrainte sur une boucle isolée. Afin de confirmer le faible rôle du mécanisme SIPA sur l'évolution des microstructures de boucles, nous réalisons des simulations OKMC dans les conditions expérimentales décrites au chapitre 3. En premier

lieu nous vérifions la validité de nos calculs en prenant comme référence la première phase, hors contrainte, de l'irradiation en deux étapes de l'échantillon 3 (celle à 180 kV, section 3.5.1).

Le système simulé est présenté dans la figure 5.9a. Les directions cristallographiques associées aux axes u_x , u_y et u_z sont $[1\bar{1}0]$, $[110]$ et $[001]$ respectivement. Les dimensions de la boîte suivant ces directions sont 100, 100 et 200 nm. L'épaisseur de 200 nm dans la direction z est proche de celle estimée expérimentalement (170 nm). Des conditions aux limites périodiques sont appliquées suivant les deux directions u_x et u_y . La température du système est de 300 K.

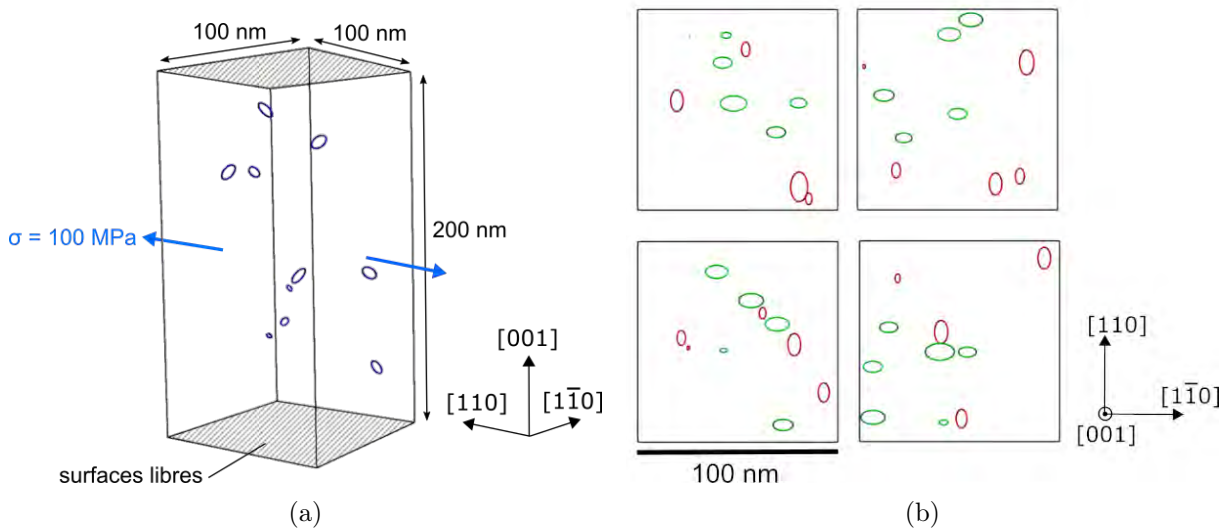


Figure 5.9 – (a) Géométrie du système simulé en OKMC dans les conditions expérimentales, avec une configuration de boucles à $t = 500 \text{ s}$. (b) 4 exemples parmi les 100 systèmes simulés sous contrainte à $t = 600 \text{ s}$, visualisés dans la direction $[001]$. Les boucles orientées favorablement sont indiquées en vert et celles défavorablement en rouge. Les défauts ponctuels ne sont pas représentés en (a) et (b).

Le système ne présente pas de défaut au début de la simulation. Les paires de Frenkel sont générées à un taux de dommage de $5 \times 10^{-5} \text{ dpa.s}^{-1}$ dans le but de reproduire l'irradiation en MET ($4,95 \times 10^{-5} \text{ dpa.s}^{-1}$). Lorsque deux défauts ponctuels se rencontrent, ils peuvent s'annihiler s'ils sont de nature opposée ou former une boucle interstitielle ou une cavité en fonction de leur nature. Ils peuvent être absorbés par les puits présents dans le système (y compris la surface libre). Les boucles ont un rayon de capture $r_c = 2b$. La taille d'un amas évolue à chaque fois qu'il absorbe un défaut ponctuel. Nous avons constaté que lancer des simulations dans ces conditions ne permet pas d'obtenir des microstructures de boucles. En effet, les interstitiels migrent rapidement vers les surfaces libres ou se recombinent avec des lacunes qui sont des espèces plus lentes, avant de pouvoir rencontrer un autre interstitiel et ainsi former une boucle.

En réalité les matériaux étudiés contiennent une certaine concentration d'impuretés. Il est possible que certaines d'entre elles piègent les interstitiels et les lacunes, et servent ainsi de site de germination. Pour représenter ces impuretés nous plaçons des points de piégeage de manière aléatoire dans la boîte à l'état initial. Comme l'épaisseur a été estimée dans notre grain, nous avons déduit la densité volumique des boucles à partir du décompte des boucles sur une micrographie. Elle est estimée à $4,6 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Par conséquent nous avons choisi de placer 10 impuretés dans chaque système dans le but de reproduire la densité trouvée expérimentalement.

Les bi-lacunes sont présumées instables conformément aux calculs DFT [112, 166]. L'énergie de liaison choisie entre un interstitiel et une impureté est égale à 1 eV afin d'éviter la dissociation thermique. L'énergie de liaison entre une lacune et une impureté est supposée inférieure au cas précédent. Elle est choisie égale à 0,4 eV, ce qui correspondrait probablement à la limite

supérieure pour l'énergie de liaison d'une lacune avec les impuretés [54]. Avec cette valeur, des cavités se forment parfois mais leur nombre est bien inférieur à celui des boucles. Cela prouve que les cavités ne devraient pas être visibles, comme cela a été confirmé expérimentalement. Les entités interstitiel-impureté et lacune-impureté peuvent croître par absorption d'interstitiels et de lacunes, respectivement. Les amas composés de deux interstitiels ou plus sont modélisés par des boucles de Frank. Leur plan d'habitat est choisi aléatoirement entre les quatre variants avec la même probabilité. L'orientation est inchangée durant leur croissance et les boucles sont immobiles puisque nous étudions des boucles de Frank (sessiles). L'énergie de liaison entre une lacune et une cavité qui s'est formée sur une impureté est égale à l'énergie de liaison avec une impureté (0,4 eV) si le nombre de lacunes liées à l'impureté est plus petit que le nombre de premiers voisins de l'impureté (supposé égal à 12) et si l'énergie de liaison lacune-impureté est supérieure à l'énergie de liaison avec une cavité. Cette dernière est calculée avec la loi capillaire [167] à partir de l'énergie de liaison d'une bi-lacune (0 eV) et l'énergie de formation d'une lacune (0,67 eV). L'ensemble des paramètres sont rappelés dans le tableau 5.5.

Tableau 5.5 – Valeurs des paramètres utilisés dans les simulations OKMC dans les conditions expérimentales. Les paramètres communs au tableau du chapitre 4 ne sont pas redonnés dans ce tableau.

Paramètres du système	
temps simulé	$t = 600 \text{ s}$
taux de création	$5 \times 10^{-5} \text{ dpa.s}^{-1}$
rayon de recombinaison	$r_{iv} = 2a_0$ [165]
distance entre les défauts ponctuels lors de la création d'une paire de Frenkel	$d_{FP} = 4a_0$
contrainte dans la direction [1 1 0]	0 MPa ou 100 MPa
température	$T = 300 \text{ K}$
nombre d'impuretés	10
énergie de liaison di-interstitiel	$E_{i_2}^b = 0,8 \text{ eV}$ [54]
énergie de liaison bi-lacune	$E_{v_2}^b = 0 \text{ eV}$
énergie de liaison lacune-cavité	Loi capillaire [167]
énergie de liaison interstitiel-impureté	$E_{i-imp}^b = 1 \text{ eV}$
énergie de liaison lacune-impureté	$E_{v-imp}^b = 0,4 \text{ eV}$ [54]
taille minimale d'une boucle	deux interstitiels

Afin que nos résultats soient représentatifs sans avoir à simuler un système beaucoup trop grand qui représenterait un coût numérique trop important, nous simulons 100 systèmes, ce qui représente une statistique suffisante au vu du nombre de boucles comptées au cours d'une expérience MET. La seule différence entre les 100 systèmes avant de commencer la simulation est la position des dix impuretés.

Dans le calcul de l'énergie d'interaction d'un défaut ponctuel, le dipôle élastique et la polarisabilité sont considérés. Du fait de la complexité des microstructures simulées, le champ de déformation est calculé par la méthode multipolaire rapide en prenant en compte les images périodiques du système. Le calcul du champ prend en compte la contrainte si elle est appliquée. Nous utilisons les expressions pour le champ élastique établies en milieu infini. Pour des questions de coût numérique, nous négligeons la correction du champ élastique due aux surfaces libres. Le travail de Jourdan [136] montre qu'il n'y a pas d'effet de la correction sur la vitesse de croissance d'une boucle si elle est située à plus de 2 nm de la surface. Sur l'ensemble des systèmes que nous simulons, le nombre de points de piégeage à moins de 2 nm de la surface est négligeable (< 2%), de plus ces boucles restent petites puisqu'elles sont éliminées lorsqu'elles touchent une

des surfaces libres. Les quatre variants sont orientés de la même façon par rapport à la surface et leur plan d'habitat n'est pas parallèle à la surface libre. Pour ces raisons, nous prenons le parti de ne pas appliquer de correction aux surfaces libres, ce qui permet d'accélérer les calculs.

La figure 5.9a donne un exemple de configuration de boucles au cours d'une simulation, les lacunes et les interstitiels ne sont pas représentés. Dans cet exemple, tous les sites d'impuretés sont occupés par une boucle, ce qui n'est pas toujours le cas au cours d'une simulation. Dans quelques cas des cavités se forment ou bien à un instant aucun défaut n'est lié à l'impureté.

Résultats

Dans un premier temps nous simulons les systèmes hors contrainte et comparons les résultats à notre expérience de référence afin de vérifier la validité des calculs. Les simulations OKMC sont menées jusqu'à 10 min. Ce temps est du même ordre de grandeur que la phase hors contrainte de notre expérience de référence (16 minutes).

En regroupant les systèmes simulés hors contrainte à l'état final, nous obtenons un échantillon de 949 boucles. La distribution de taille de ces boucles est représentée sur la figure 5.10a. Les quelques cavités obtenues sur l'ensemble des systèmes sont minoritaires et leur rayon est inférieur à 2 nm. Ces amas ne sont pas étudiés car ils ne sont pas l'objet de l'étude. De plus, aucune cavité de quelques nanomètres n'est observée expérimentalement.

Les proportions sont équivalentes entre les deux catégories de boucles : 50,6% pour les boucles orientées favorablement contre 49,4% pour les boucles orientées défavorablement. Il en est de même pour le diamètre moyen : 7,99 nm contre 7,67 nm. De ces valeurs nous déduisons que la vitesse moyenne sur le diamètre est de $0,013 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$. Cette valeur est identique à la vitesse de croissance de l'expérience de référence, déduite à partir de la distribution de taille de boucles à 16 min, figure 3.28. Ces résultats montrent que les simulations OKMC sont en excellent accord avec l'expérience hors contrainte. Ce résultat est d'autant plus remarquable qu'il a été obtenu sans ajustement des paramètres.

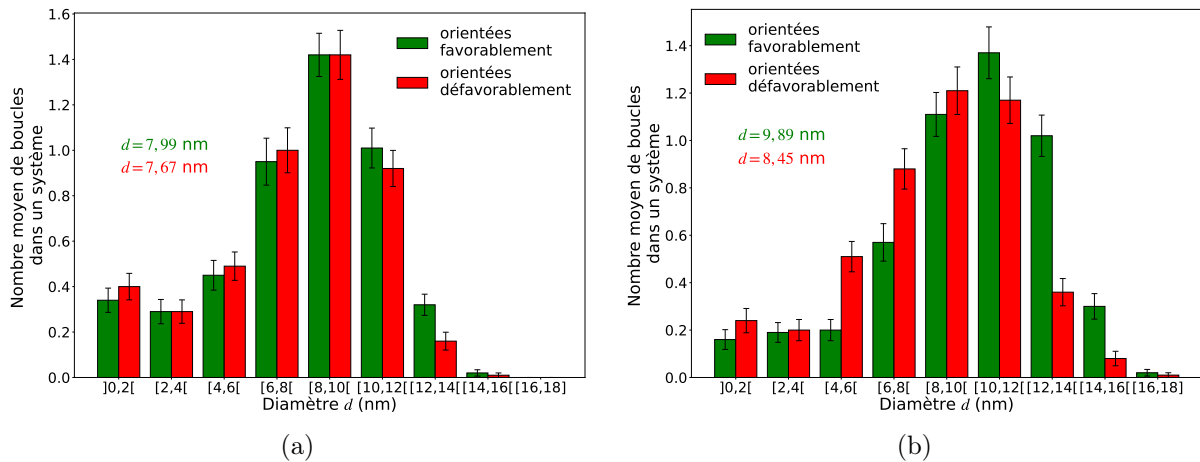


Figure 5.10 – Distributions des tailles moyennes des boucles dans les 100 systèmes à $t = 600 \text{ s}$ en fonction de leur orientation (a) sans et (b) avec une contrainte de 100 MPa. Les diamètres moyens des boucles sont donnés dans les graphiques.

A présent nous reprenons les 100 boîtes de départ (avec les impuretés mais sans défaut) et nous effectuons des simulations en appliquant cette fois-ci une contrainte de traction de 100 MPa suivant la direction $[110]$. De cette façon, nous appliquons une contrainte du même ordre de grandeur que la contrainte locale estimée expérimentalement et suivant une direction cristallographique identique à ce qui a été réalisé. Nous simulons une irradiation de 10 minutes comme précédemment. La sélectivité des boucles est observable en irradiation in-situ à 10 min. Il n'est

donc pas nécessaire d’aller plus loin en temps dans nos simulations OKMC.

La figure 5.9b donne quatre exemples de systèmes obtenus au bout de 10 minutes d’irradiation observés dans la direction \mathbf{u}_z , prise de vue similaire aux micrographies MET. Nous pouvons facilement distinguer les deux catégories de boucles en fonction de l’orientation du grand axe de leur ellipse (verticale ou horizontale), ce qui est clarifié par un code couleur.

La distribution des tailles de boucle pour ces simulations sous contrainte est donnée dans la figure 5.10b. En comparant avec les résultats de la figure 5.10a, nous déduisons que la présence de la contrainte a tendance à augmenter légèrement la vitesse de croissance des boucles. Ces simulations confirment la contribution du terme hydrostatique de la contrainte sur les biais [58]. Sur un total de 960 boucles à la fin des simulations, 51,5% sont orientées favorablement contre 48,5% pour la deuxième catégorie. Nous avons une légère augmentation du pourcentage de boucles orientées favorablement mais cette augmentation est négligeable et surtout très éloignée de la sélectivité observée expérimentalement (supérieure à 80% pour les irradiations où la contrainte est appliquée en début d’irradiation). Pour ce qui est des diamètres moyens, nous obtenons 9,89 nm contre 8,45 nm pour les boucles orientées favorablement et défavorablement respectivement. L’écart entre les tailles moyennes est inférieur à 2 nm. Si nous comparons avec le cas hors contrainte où l’écart entre les deux tailles moyennes est inférieur à 1 nm, la légère augmentation de cet écart sous contrainte est révélatrice du mécanisme SIPA. Toutefois ce résultat reste faible d’un point de vue expérimental puisqu’il est du même ordre de grandeur que l’erreur sur la mesure des tailles des boucles (4 nm). C’est la raison pour laquelle si cet effet est bien présent, il ne peut pas être observé dans nos expériences.

Conclusion

Nous pouvons conclure de ces calculs OKMC que le mécanisme SIPA ne permet pas d’obtenir une sélectivité des boucles, telle qu’observée dans les expériences in-situ en MET. Le mécanisme agit bien sur une croissance différentielle des boucles mais son effet est trop faible pour être constaté expérimentalement.

5.3.2 Calcul des forces de puits des boucles dans une lame mince

Nous avons rappelé dans la section 5.1.1 que l’évolution d’une boucle dépend entre autres de son biais (équation 1.11). Pour mieux quantifier les facteurs jouant sur la cinétique de croissance des boucles, nous calculons le biais des boucles pour les configurations finales ($t = 600$ s). Nous rappelons que le biais d’un puits peut être déduit des forces de puits k^2 vis-à-vis des interstitiels et des lacunes. Il est possible de calculer les termes k_i^2 et k_v^2 pour différents puits dans une microstructure donnée. Pour ce faire, nous appliquons une méthode numérique qui repose sur le temps de vie moyen d’un défaut ponctuel dans le système, entre le moment où le défaut est généré dans la boîte et le moment où il est absorbé par un puits (ou recombinaison avec un défaut opposé). Pour ces calculs, la relation entre $k_{i/v}^2$ et $\tau_{i/v}$, le temps de vie moyen d’un défaut ponctuel, s’écrit :

$$k_{i/v}^2 = \frac{x_{i/v}}{\tau_{i/v} D_{0,i/v}}. \quad (5.5)$$

$D_{0,i/v}$ est le coefficient de diffusion sans effet de champ élastique. Le facteur $x_{i/v}$ est le taux de défauts absorbés par le puits en question, c’est-à-dire le nombre de défauts absorbés par le puits sur le nombre total de défauts absorbés dans le système au cours de la simulation.

Pour ces calculs, il est nécessaire que la microstructure soit figée et aucun amas ne doit se former au cours de la simulation, par conséquent la taille des boucles n’évolue pas après capture d’un défaut et deux défauts ponctuels de même nature ne peuvent pas s’agglomérer.

Nous reprenons l'état des systèmes au bout des 10 minutes d'irradiation simulées. Ces nouvelles simulations sont menées dans les mêmes conditions que les simulations de la figure 5.10b, en terme de conditions aux limites, de taux de création et d'application de la contrainte. Nous avons choisi de considérer des systèmes contenant uniquement des boucles. Pour cette raison, nous considérons 67 systèmes sur les 100 pour ces calculs, après avoir éliminé tous ceux qui présentaient au moins une impureté avec une cavité ou moins de deux interstitiels.

L'ensemble des biais calculés sur les 670 boucles considérées sont donnés en fonction de leur rayon dans la figure 5.11. Nous constatons que la tendance générale observable sur le calcul de ces biais est l'effet de la taille de la boucle, en cohérence avec le tableau 5.3. D'après les cartes des valeurs de Z sous contrainte, figure 5.7, la contrainte devrait favoriser la croissance des boucles orientées favorablement. Par conséquent, ces derniers devraient présenter un biais globalement supérieur aux boucles orientées défavorablement. Cependant, nous n'obtenons pas deux groupes distincts sur la figure 5.11. Cela indique que l'effet de la contrainte est bien plus faible que celui de la taille de boucle. Il est donc normal que la croissance différentielle sur les orientations de boucles ne soit pas significative et qu'il n'y ait pas de sélectivité : les valeurs de $(B - \langle B \rangle)$ semblent dominées, au moins en partie, par les effets de taille de boucle, et non par les effets de contrainte.

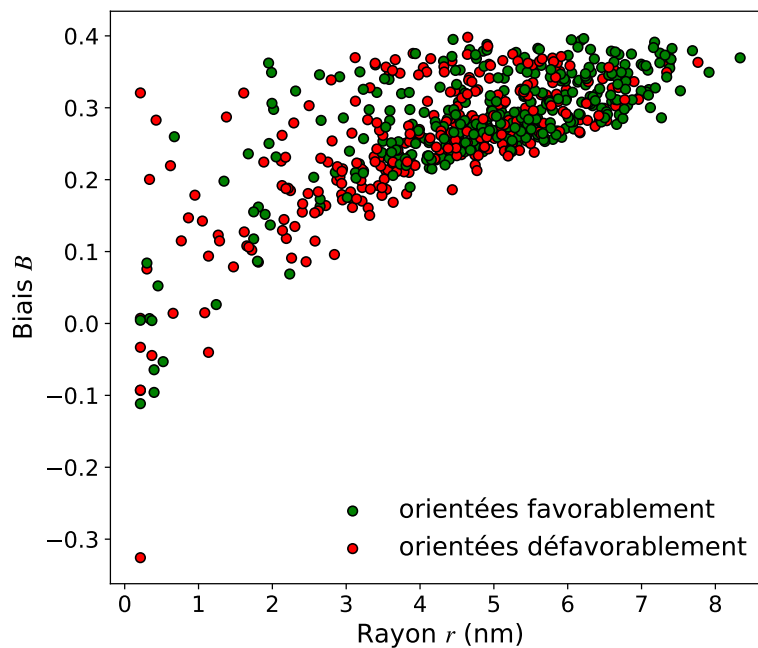


Figure 5.11 – Biais d'absorption des boucles de la distribution de la figure 5.10b en fonction de leur rayon.

Résumé des simulations OKMC dans les conditions expérimentales

Nous avons vérifié dans un premier temps la validité des calculs OKMC dans le cas hors contrainte : la vitesse de croissance calculée à partir des tailles moyennes des boucles est identique à celle de l'expérience de référence ($0,013 \text{ nm.s}^{-1}$). Les calculs OKMC sont donc en excellent accord avec notre expérience. Les simulations sous contrainte ne considèrent que le mécanisme SIPA puisque les quatre variants de boucles de Frank ont la même probabilité de germination. Nos résultats sous contrainte nous permettent de conclure que le mécanisme SIPA, à lui seul, n'est pas la cause de la sélectivité des boucles sous contrainte. De plus, la croissance différentielle

qui est la conséquence directe de la diffusion anisotrope des défauts ponctuels sous contrainte n'est pas significative puisque la différence de taille moyenne entre les deux catégories de boucles est inférieure à 2 nm au bout de 10 min d'irradiation. Nous avons vu à partir du calcul des biais des boucles que la taille de la boucle a un effet plus important que la contrainte. D'autres paramètres, autre que la contrainte, semblent donc avoir un effet sur la cinétique de croissance des boucles. Dans la partie suivante, nous explorons le rôle de chacun de ces paramètres de manière isolée.

5.4 Evaluation de la sensibilité de la croissance des boucles à différents paramètres lors d'une irradiation en lame mince

5.4.1 Méthode et description des systèmes

L'objectif de cette section est d'élucider l'importance relative des facteurs en jeu sur la croissance des boucles lors d'une irradiation en lame mince sous contrainte. Nous nous concentrons sur les effets : de voisinage, de la dispersion en taille de boucles, de la présence des surfaces libres et de l'application de la contrainte. La méthode que nous appliquons afin d'évaluer l'effet d'un paramètre est dans la même lignée que ce que nous avons fait dans les deux sections précédentes, à savoir le calcul des biais des boucles.

Pour cette étude, nous reprenons les systèmes simulés sous contrainte dans la section 5.3.1. Afin d'isoler les différents phénomènes d'intérêt, nous réalisons plusieurs cas d'étude dans lesquels certaines conditions sont modifiées. Au total cinq cas d'étude distincts avec différentes combinaisons de conditions sont réalisées pour le calcul de la dispersion des biais de boucles. Les différentes conditions pour chaque cas de figure sont résumées dans le tableau 5.6. Les différentes conditions modifiées sont la taille des boucles, la présence ou non des surfaces libres et l'application ou non d'une contrainte uniaxiale. Le premier cas d'étude sert à étudier l'effet de voisinage car seul le voisinage diffère d'une boucle à l'autre. Le deuxième et troisième cas correspondent à l'étude du rôle de la contrainte, le quatrième à celle de la dispersion des tailles de boucles et le dernier à celle des surfaces libres. Un récapitulatif des cinq études, sous forme de schéma, est donné dans la figure 5.12.

Tableau 5.6 – Conditions de simulation de calculs des forces de puits des boucles pour chaque cas d'étude.

Conditions	Cas d'étude				
	n°1	n°2	n°3	n°4	n°5
Diamètre 3 nm	×	×	×		
Taille variable				×	×
Sans surface libre	×	×	×	×	
Avec surface libre					×
0 MPa	×			×	×
100 MPa		×			
500 MPa			×		

Afin de limiter les interactions entre les boucles dans ces calculs, nous prenons les configurations obtenues à $t = 80$ s, où la taille moyenne est de 3,12 nm. Comme nous souhaitons évaluer l'effet des paramètres uniquement sur les boucles, nous faisons le choix de ne pas considérer les systèmes qui présentent au moins une cavité ou des impuretés sans boucle formée, à $t = 80$ s. Par conséquent, nous étudions 91 systèmes sur les 100. La distribution de tailles des boucles de

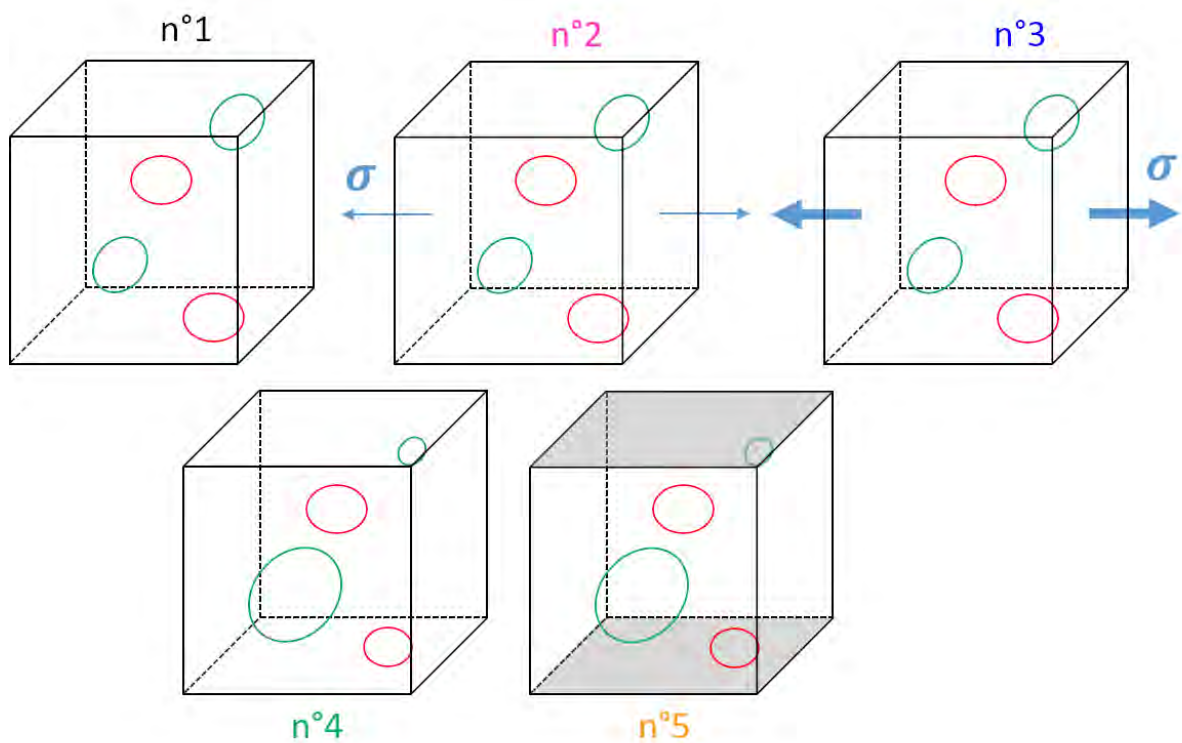


Figure 5.12 – Représentation schématique des cinq cas d'étude répertoriés dans la tableau 5.6.

ces 91 systèmes est donnée dans la figure 5.13. Pour les cas d'étude où nous ne voulons pas que la dispersion de tailles de boucles soit considérée, nous mettons artificiellement tous les diamètres à 3 nm. Les résultats des cas d'étude où les tailles des boucles sont variables pourront ainsi être directement comparés à ceux à tailles identiques.

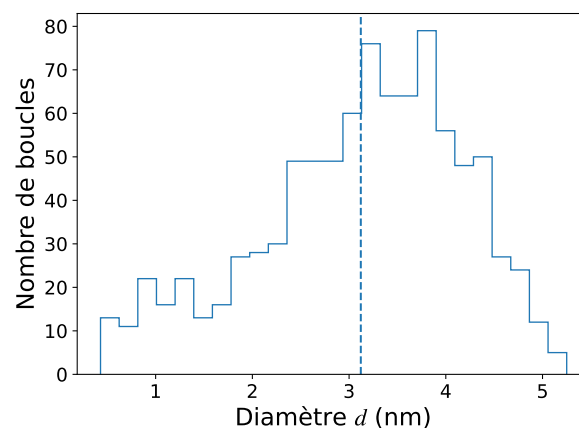


Figure 5.13 – Distribution des tailles des boucles à $t = 80$ s pour les cas d'étude où la taille des boucles varie. La droite verticale est positionnée sur la taille moyenne de la distribution qui est de 3,12 nm.

5.4.2 Distribution des biais des boucles

Effet de voisinage (cas n°1)

Dans l'étude de référence, toutes les boucles font 3 nm de diamètre, il n'y a pas de contrainte appliquée, ni de surface libre (les conditions aux limites périodiques sont appliquées dans toutes

les directions).

Après avoir calculé les forces de puits de chaque boucle, nous déduisons leur biais. La distribution de ces valeurs de biais sur les 910 boucles est présentée en figure 5.14. Le seul paramètre qui différencie les boucles (à part leur orientation) est leur voisinage. La dispersion des biais B calculés est donc la conséquence de l'effet de voisinage entre les boucles. En effet, des calculs avec des boucles à équidistance les unes des autres donneraient une valeur unique.

Nous pouvons noter que la distribution obtenue s'apparente à une distribution gaussienne. Afin d'étudier l'importance relative des conditions de manière quantitative, nous comparons les écarts-types obtenus à partir d'une interpolation gaussienne sur chaque cas d'étude. Ils sont regroupés dans le tableau 5.7 à la fin de cette partie. Dans ce cas d'étude, l'écart-type calculé est de 1.66×10^{-2} .

La distribution est centrée autour d'une valeur $B \sim 0,17$. Cette valeur devrait correspondre au biais d'un réseau régulier de boucles de rayon 1,5 nm. Il se trouve que la valeur pour un réseau cubique de boucles (figure 5.3, $r = 1,5$ nm) est en fait inférieure ($B \sim 0,14$). Comme il a été montré dans la travail de thèse de Carpentier [133], le biais d'une boucle augmente avec la densité volumique des boucles. Or la densité volumique ici est plus élevée que dans la section 5.1.1, ce résultat est donc cohérent.

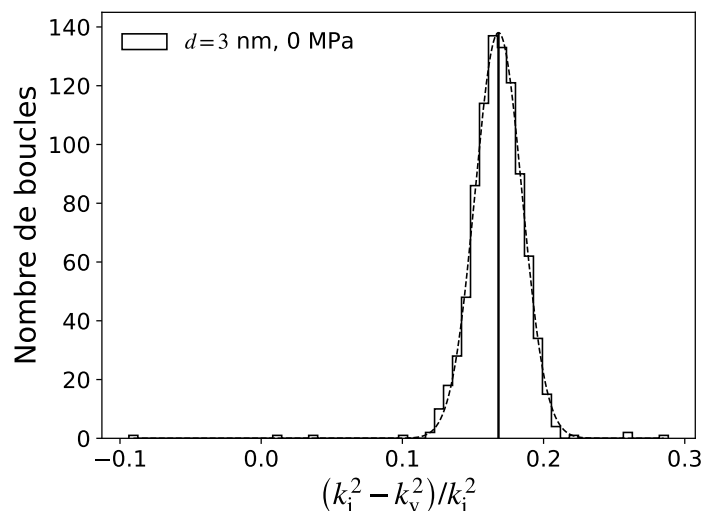


Figure 5.14 – Distribution des biais de l'étude de cas n°1. La dispersion des biais est uniquement due à des effets de voisinage des boucles.

Effet de la contrainte (cas n°2, 3)

Afin d'étudier uniquement l'effet de la contrainte, les tailles de boucles sont identiques et les conditions aux limites sont identiques à celle de l'étude de référence (cas n°1). La figure 5.15a compare la distribution des biais du cas 1 avec les distributions lorsque la contrainte est appliquée : 100 et 500 MPa.

Le premier constat que nous pouvons faire est que les simulations avec une contrainte de 500 MPa donne une distribution bimodale. L'explication la plus plausible sur cette distribution bimodale est l'intensification du mécanisme SIPA. Les biais de la distribution de gauche correspondent aux boucles orientées défavorablement et ceux de droite aux boucles orientées favorablement. Chaque sous-distribution devrait être centrée autour de la valeur moyenne des biais pour l'orientation associée. Les biais qui s'écartent de ces valeurs sont affectés par l'effet de voisinage. Si nous ajustons par deux gaussiennes la distribution bimodale, comme montré dans la figure 5.15a, les écarts-types sont égaux à celui de la distribution de référence sur l'effet de voisinage (tableau 5.7). Nous constatons également que les deux distributions se recouvrent. Nous pouvons en déduire qu'il existe des boucles orientées défavorablement pour lesquelles le biais

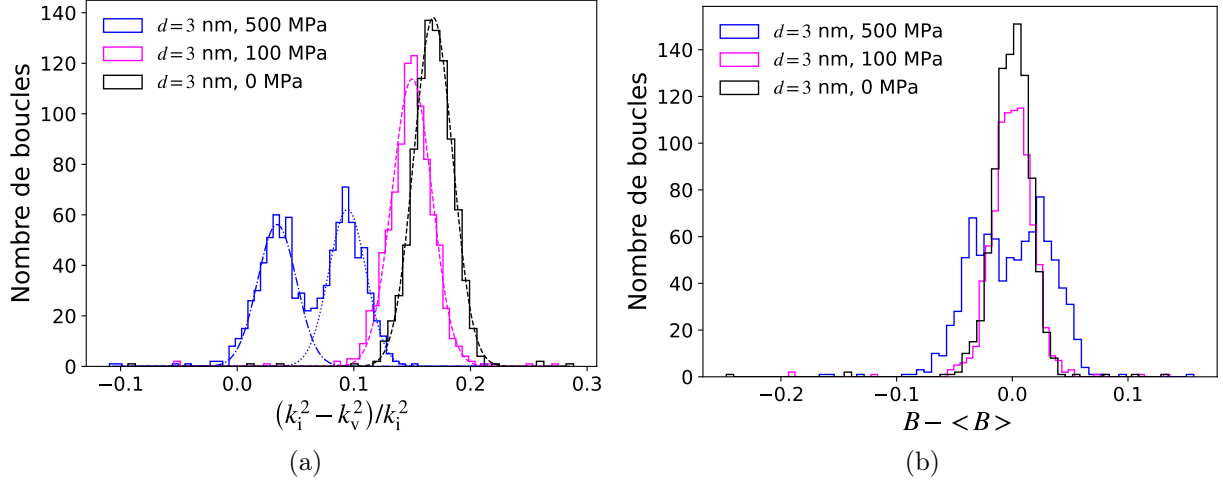


Figure 5.15 – (a) Distribution des biais des études de cas : n°1, effet de voisinage (noir), n°2, effet d'une contrainte faible (rose), et n°3, effet d'une contrainte élevée (bleu). (b) Distribution de la différence des biais des boucles avec le biais moyen du système dans lequel la boucle se trouve pour les trois cas d'étude en (a).

est supérieur à une boucle orientée favorablement et inversement. Donc même à 500 MPa, nous pouvons nous attendre à ce que pour certaines boucles, les effets de voisinage l'emportent sur l'effet de la contrainte (croissance de quelques boucles orientées défavorablement et décroissance de boucles orientées favorablement).

A partir de ce résultat, nous pouvons avancer qu'avec une contrainte plus élevée, l'écart entre les valeurs moyennes du biais entre les deux orientations serait suffisamment important pour que les deux distributions ne se recouvrent pas, ce qui indiquerait une tendance à décroître pour toutes les boucles orientées défavorablement et l'opposé pour les autres. Mais une telle contrainte n'est pas réaliste d'un point de vue expérimental.

Contrairement à la simulation à 500 MPa, celle à 100 MPa présente une distribution unimodale, dont l'écart-type est légèrement supérieur à celui hors contrainte (tableau 5.7). Il est donc indéniable que la dispersion des biais des boucles est amplifiée avec la contrainte de 500 MPa par rapport à une contrainte de 100 MPa ou au cas hors contrainte.

Nous avons vu avec la simulation d'une boucle isolée de 1 nm de rayon, tableau 5.3, que l'écart entre les biais pour les deux orientations de contrainte est faible, d'où le fait que nous n'obtenions pas de double distribution. Ce résultat confirme le faible impact de la contrainte sur la croissance différentielle des boucles en fonction de leur orientation dans nos précédentes simulations OKMC.

Une façon encore plus claire de constater l'impact de la contrainte sur la croissance différentielle des boucles est de calculer pour chacune des boucles le terme $(B - \langle B \rangle)$ pour les trois cas d'étude. Les distributions sont données dans la figure 5.15b. Comme attendu, les trois distributions sont centrées autour de zéro puisque les boucles sont les seuls puits. Le terme $\langle B \rangle$ est calculé sur chaque système. Les valeurs négatives indiquent que les boucles auront tendance à décroître et les valeurs positives, à augmenter en taille. La distribution pour le cas avec la contrainte élevée est toujours plus large. Pour ce qui est du cas 1 et 2, elles se superposent, signe que le comportement cinétique des boucles est peu affectée par la contrainte de 100 MPa qui se rapproche de la réalité expérimentale. Dans l'ensemble, à 500 MPa, $B > \langle B \rangle$ pour les boucles orientées favorablement et $B < \langle B \rangle$ pour les autres. Nous pouvons donc nous attendre à observer une sélectivité dans le cas de simulations à 500 MPa, ou du moins une croissance différentielle bien visible.

En plus d'affecter la dispersion des biais des boucles, l'autre observation que nous pouvons

faire sur la figure 5.15a est que la contrainte affecte la valeur moyenne de ces biais. En effet, les distributions se décalent vers les valeurs négatives au fur et à mesure que la contrainte augmente. Il s'agit de l'effet de la composante hydrostatique de la contrainte sur le biais. La diminution du biais moyen est due au fait que la diffusion des lacunes est plus sensible à la contrainte hydrostatique que celle des interstitiels. L'augmentation de la contrainte diminue par conséquent l'écart entre les efficacités d'absorption Z_i et Z_v . Le biais moyen diminue alors.

Effet de la dispersion des tailles de boucles (cas n°4)

Les biais calculés lorsque la taille moyenne des boucles est de 3 nm et lorsque toutes les boucles présentent une unique taille de 3 nm (avec ou sans contrainte) sont réunis dans la figure 5.16a. Dans le cas de la dispersion des tailles de boucles, la distribution n'est plus gaussienne. Elle est corrélée à la distribution de tailles de boucles donnée dans la figure 5.13, qui ne présente pas de distribution gaussienne. D'après les figures 5.16a et 5.16b, il est indéniable que la dispersion des tailles a un plus fort impact sur la croissance différentielle qu'une contrainte de 100 MPa. L'écart-type est deux fois plus élevé que celui hors contrainte (tableau 5.7). Il n'est donc pas surprenant que la distribution des termes $(B - \langle B \rangle)$ soit également plus large sur la figure 5.16b.

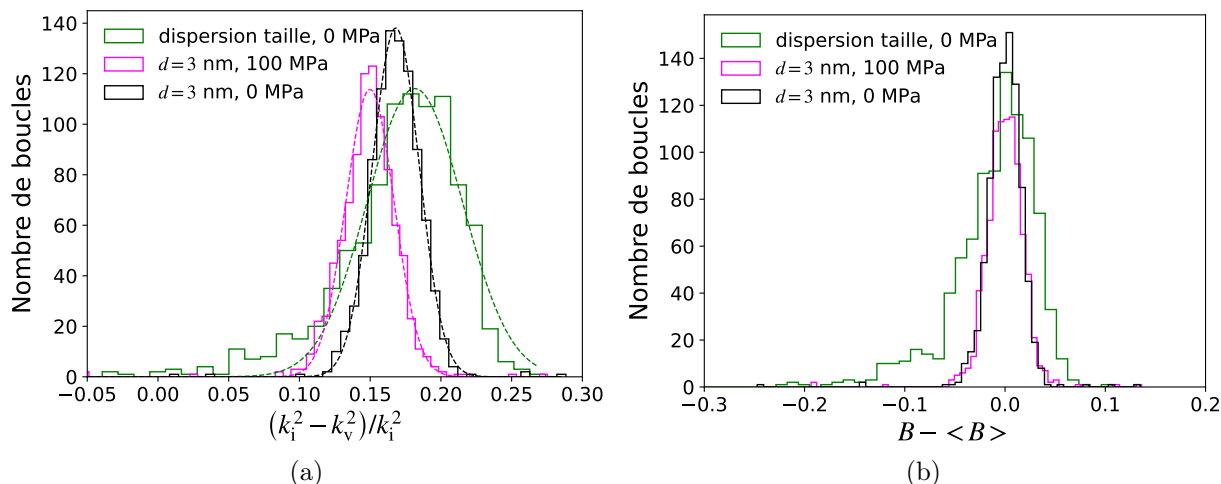


Figure 5.16 – (a) Distribution des biais des études de cas : n°1, effet de voisinage (noir), n°2, effet d'une contrainte faible (rose), et n°4, effet de la dispersion des tailles de boucles (vert). (b) Distribution de la différence des biais des boucles avec le biais moyen du système dans lequel la boucle se trouve pour les trois cas d'étude en (a).

Effet des surfaces libres (cas n°5)

Un des facteurs qui n'est pas des moindres lorsque l'irradiation se produit en lame mince est la présence des surfaces libres. Leur impact sur la distribution des amas au sein d'une lame a déjà été démontré dans la littérature [97]. Son influence sur les vitesses de croissance reste un sujet de discussion [115]. Les surfaces libres sont des puits importants de défauts ponctuels. D'après nos calculs, le biais des surfaces est, dans la grande majorité des systèmes simulés, inférieur à celui des boucles, ce qui est cohérent avec le fait que dans nos simulations les surfaces ne génèrent pas de champ de déformation.

Comme dans les autres cas de figure, la figure 5.17a considère uniquement le biais des boucles. Il n'est pas évident de conclure sur l'impact de la surface sur les biais à première vue, mais les valeurs d'écart-types indiquent qu'en présence de surfaces, la distribution des biais est moins dispersée. Cela devrait induire une diminution de l'effet de la taille des boucles sur la dispersion de vitesse de croissance des boucles. De plus, la valeur moyenne des biais des boucles diminue en

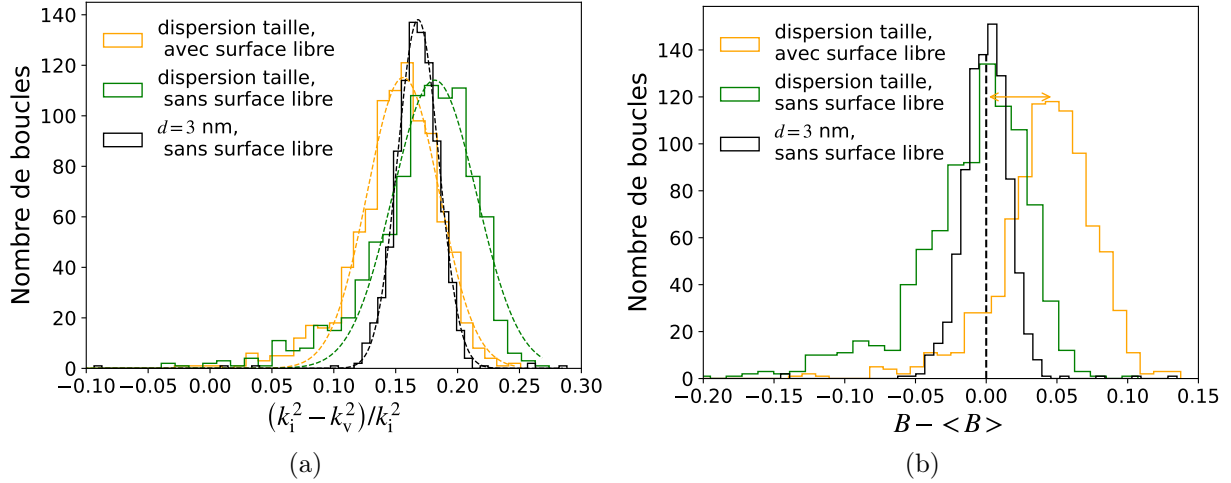


Figure 5.17 – (a) Distribution des biais des études de cas : n°1, effet de voisinage (noir), n°4, effet de la dispersion des tailles de boucles (vert) et n°5, effet de la présence de surfaces libres (orange). (b) Distribution de la différence des biais des boucles avec le biais moyen du système dans lequel la boucle se trouve pour les trois cas d'étude en (a).

présence de surfaces libres.

La conséquence la plus frappante sur la cinétique des boucles est visible sur la figure 5.17b. Elle montre que la distribution du terme $(B - \langle B \rangle)$ n'est plus centrée en zéro mais décalée vers les valeurs positives, ce qui signifie que la plupart des boucles auront tendance à croître. Ce constat s'explique par le faible biais d'absorption associé aux surfaces libres qui diminue donc le biais moyen du système.

Il reste peu évident à partir des figures 5.17a et 5.17b d'expliquer la diminution de la dispersion des biais des boucles et de la valeur moyenne de ces biais en présence de surfaces libres (tableau 5.7). Afin d'expliquer comment la surface agit sur les boucles individuellement, nous traçons les valeurs de forces de puits k_i^2 et k_v^2 , et les biais B en fonction de leur distance à la surface en distinguant le cas avec (orange) et sans surface libre (vert). Ces résultats sont en figures 5.18a, figure 5.18b et figure 5.18c.

L'augmentation progressive des forces de puits à mesure que les boucles s'éloignent de la surface dans les figures 5.18a et 5.18b est exclusivement due à un effet de la taille des boucles. Comme le montre la figure 5.19, nous retrouvons la même tendance sur les tailles des boucles. En effet, les tailles variables sont reprises des simulations de microstructures de boucles dans les conditions expérimentales. Les boucles très proches de la surface sont plus petites parce qu'elles ne peuvent pas dépasser une certaine taille car elles sont éliminées lorsqu'elles atteignent la surface, mais surtout, les petites tailles sont dues à l'appauvrissement en défauts ponctuels près des surfaces ce qui entraîne une croissance moindre de ces boucles.

Les figures 5.18a et 5.18b révèlent, quel que soit le type de défaut, que les forces de puits ont tendance à augmenter loin des surfaces libres lorsque la présence des surfaces est considérée. A contrario, près de la surface (lorsque la distance à la surface est inférieure à 20 nm), les forces de puits diminuent par rapport au cas sans surface libre. De plus, ces effets sont visiblement plus forts sur les lacunes. Comme l'effet sur l'augmentation des forces de puits est plus fort sur les lacunes que sur les interstitiels, la différence relative entre k_i^2 et k_v^2 diminue, d'où une diminution des valeurs de biais. Comme cela concerne les boucles situées entre 20 et 100 nm de la surface, donc la majorité de la population de boucles, la valeur moyenne des biais dans le cas 5 diminue

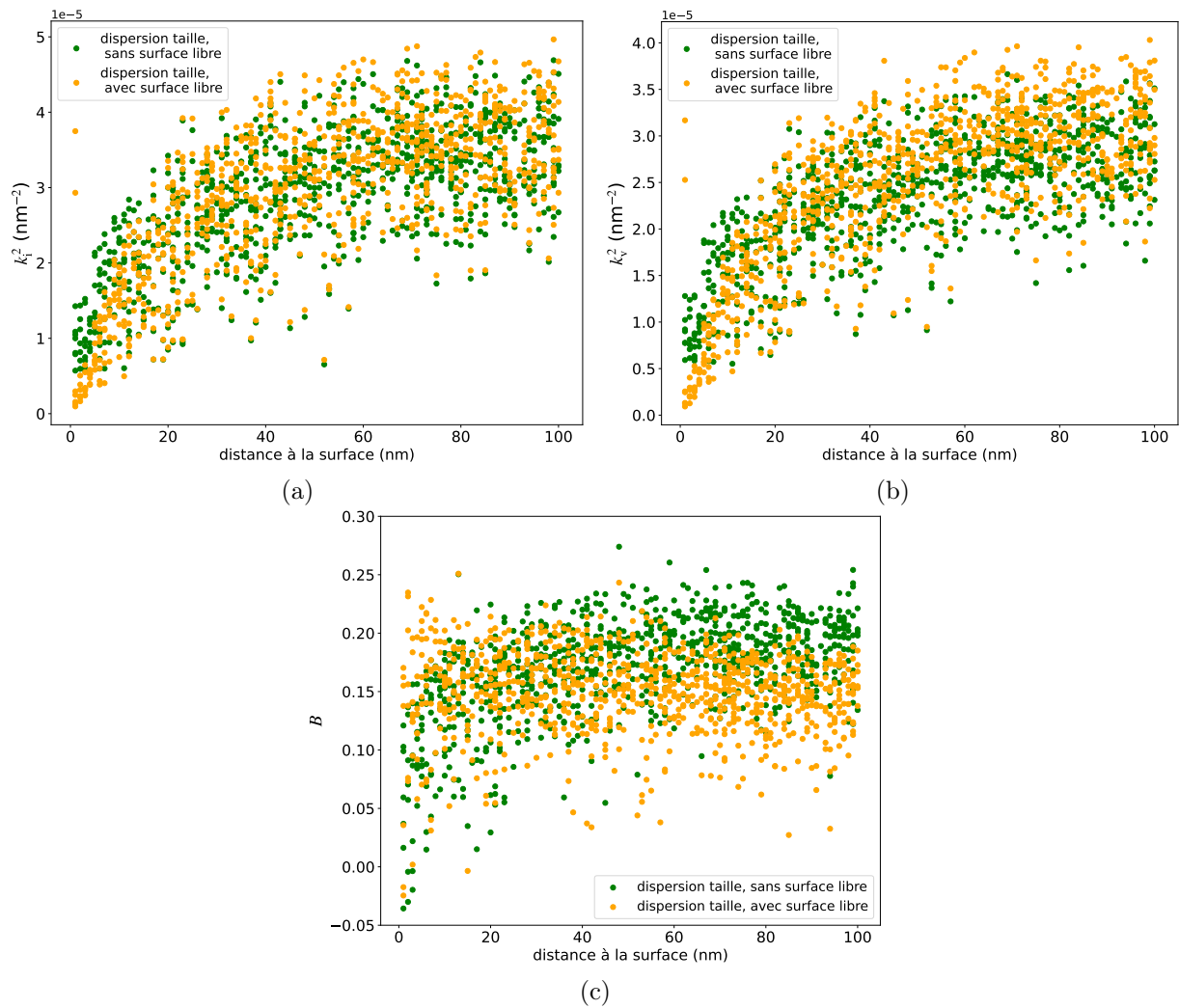


Figure 5.18 – Forces de puits des boucles de l'étude n°4 (vert) et n°5 (orange) pour (a) les interstitiels et (b) les lacunes, en fonction de la distance entre les boucles et les surfaces libres. Biais des boucles en fonction de leur distance à la surface.

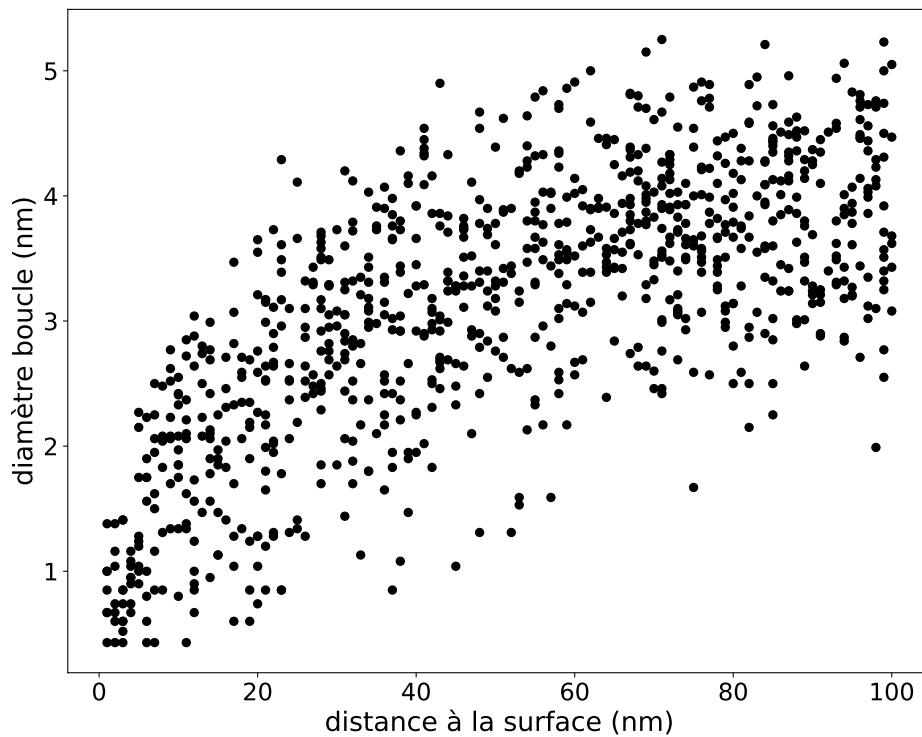


Figure 5.19 – Diamètres des boucles de la distribution de la figure 5.10 en fonction de leur distance par rapport à la surface.

par rapport au cas 4, sans surface libre.

L'explication de l'augmentation de forces de puits en coeur de lame, en présence de surfaces libres, est la diminution du temps de vie moyen des défauts ponctuels à cause de leur absorption par les surfaces. Comme la force de puits calculée k^2 est proportionnelle à $1/\tau$ (équation 5.5), la force de puits a tendance à augmenter en coeur de lame.

La diminution des forces de puits à proximité des surfaces est due à la répartition de l'absorption des défauts ponctuels entre la surface et les boucles. Comme localement les boucles ne sont plus les uniques puits, leur force de puits diminue. De nouveau, l'effet de la surface est plus important sur les lacunes, ce qui induit une diminution également plus importante de k_v^2 par rapport à k_i^2 . D'où le constat que les biais augmentent dans le cas 5 par rapport au 4 dans la figure 5.18c.

Comme les valeurs de biais augmentent pour les boucles localisées au-delà de 20 nm et diminuent près des surfaces, elles sont plus homogènes dans tout le volume ce qui induit une diminution de la dispersion de ces valeurs.

Résumé sur l'étude des effets en lame mince

Dans cette partie nous avons repris l'état des microstructures simulées dans les conditions expérimentales avec la méthode OKMC.

Nous avons calculé les forces de puits de toutes les boucles dans différents cas d'études répertoriés dans le tableau 5.6, afin d'évaluer séparément l'importance des différents paramètres sur la distribution des forces de puits.

Nous avons montré dans la simulation de référence que le biais des boucles dépend du voisinage de celles-ci.

Les simulations incluant une dispersion de la taille des boucles sont en accord avec les résultats de la section 5.1.1. L'influence de la taille sur le biais d'une boucle est très importante, elle est même supérieure à celle d'une contrainte de 100 MPa (ordre de grandeur calculé expérimentale-

Tableau 5.7 – Ecart-types provenant des interpolations des distributions des valeurs de biais pour chaque étude de cas.

effet étudié	écart-type
n°1, voisinage	1.66×10^{-2}
n°2, contrainte (100 MPa)	1.71×10^{-2}
n°3, contrainte (500 MPa)	$1.66 \times 10^{-2}/1.60 \times 10^{-2}$
n°4, dispersion taille	3.38×10^{-2}
n°5, surface libre	2.90×10^{-2}

ment).

Nous avons étudié l'effet de la contrainte dans un cas idéal, c'est-à-dire où toutes les boucles présentent la même taille, ce qui est irréalisable dans la réalité. Pourtant, l'effet du mécanisme SIPA sur la distribution des biais reste quasi inexistant dans ces conditions, par rapport à l'effet de voisinage. Il est à noter qu'au départ d'une expérience d'irradiation, le système est en régime transitoire. Toutes les boucles qui se forment lors de cette phase sont en croissance car les lacunes, plus lentes que les interstitiels, n'interviennent pas encore dans l'évolution des boucles. Il y a une compétition dans la croissance des boucles qui s'installe lorsque le système atteint le régime stationnaire. A ce stade les boucles présentent déjà des tailles variables, par conséquent, au vu de nos résultats, ce sont les effets de taille et de voisinage qui l'emportent sur la cinétique de croissance des boucles. Nous avons vu qu'il faudrait appliquer une contrainte bien supérieure à la réalité expérimentale pour avoir un effet sur la distribution des biais des boucles équivalent à celui dû à la dispersion des tailles de boucles. Cependant il est irréaliste d'atteindre une telle contrainte puisque la limite d'élasticité pour l'aluminium pur se situe entre les dizaines à la centaine de MPa [168].

Enfin, comme la présence des surfaces libres favorise la croissance de globalement toutes les boucles dans le système, il est peu probable d'observer une sélectivité des boucles avec le mécanisme SIPA, mais seulement une croissance différentielle si la contrainte est suffisamment élevée.

Ces résultats viennent conforter la conclusion issue des expériences d'irradiation décomposées en deux étapes et des simulations OKMC dans les conditions expérimentales : le mécanisme SIPA, bien qu'existant, est un mécanisme de faible ampleur. C'est pour cette raison que nous n'observons pas, dans nos expériences, de comportement général particulièrement anisotrope dans l'évolution des boucles lorsque la contrainte est appliquée après la formation des boucles. Au stade où nous appliquons la contrainte, ce sont les différences des tailles de boucles, les effets de voisinage et la présence des surfaces libres qui pilotent les différences d'efficacité d'absorption. Un autre mécanisme est donc à l'origine de la sélectivité des boucles sous contrainte. C'est l'objet de la partie suivante.

5.5 Etude de l'effet de la contrainte sur la formation des boucles dans des plans préférentiels

Nous avons vu expérimentalement que les microstructures anisotropes obtenues sous contrainte sont une conséquence de l'application de la contrainte aux premiers stades d'irradiation. Pour autant les microstructures ne sont pas dues à la diffusion anisotrope des défauts ponctuels comme conclu précédemment. A ce stade de l'étude, il est donc nécessaire d'étudier l'effet de la contrainte aux premiers stades d'évolution en excluant les mécanismes de diffusion.

Pour cela, nous réalisons des simulations qui ne requièrent pas d'hypothèse sur la formation des boucles sous contrainte, contrairement à la méthode OKMC. Dans cette partie nous présentons

les résultats de calculs réalisés par dynamique moléculaire (MD pour *molecular dynamics*), propice pour ce type de simulations. Afin d'écartier sans ambiguïté les mécanismes de diffusion, nous utilisons la méthode d'accumulation de paires de Frenkel (FPA pour *Frenkel Pair Accumulation*). Cette partie est le résultat d'une collaboration avec J.-P. Crocombette (CEA/SRMP) et A. Chartier (CEA/LM2T).

5.5.1 Méthode et description du système

La méthode d'accumulation de paires de Frenkel a été exposée pour la première fois par Limoge *et al.* [169] dans l'objectif de simuler l'amorphisation sous irradiation. Cette méthode consiste, au cours d'une simulation MD, à effectuer des déplacements d'atomes de manière périodique pour créer des paires de Frenkel. Cela permet d'atteindre des doses d'irradiation importantes sur un temps de simulation très court. Bien entendu, les temps de simulations typiques en MD étant de quelques nanosecondes, les taux de dommages sont bien plus importants que les valeurs expérimentales et la diffusion des défauts est quasi-inexistante.

L'utilité de la FPA a été démontrée, notamment pour simuler les effets de cascades [170, 171, 172, 173, 174]. La méthode est donc principalement utilisée afin de réduire le coût numérique en ne décrivant pas le détail de la cascade afin d'atteindre des doses significatives en simulations MD comme schématisé sur la figure 5.20, mais elle peut bien sûr être également utilisée afin d'imiter des irradiations aux électrons dans lesquelles seulement des paires de Frenkel sont générées [175]. Etant donné la densité de paires de Frenkel, des phénomènes de recombinaison mais aussi d'agglomération, essentiellement d'interstitiels dans les métaux, du fait d'instabilités mécaniques, voire de diffusion à très courte distance, sont observés.

Notons qu'il existe une méthode similaire appelée CRA (pour *Creation-Relaxation Algorithm*) récemment présentée par Derlet et Dudarev [176]. La différence avec la FPA est que la CRA consiste en une succession de minimisations d'énergie du système, après chaque insertion d'une paire de Frenkel.

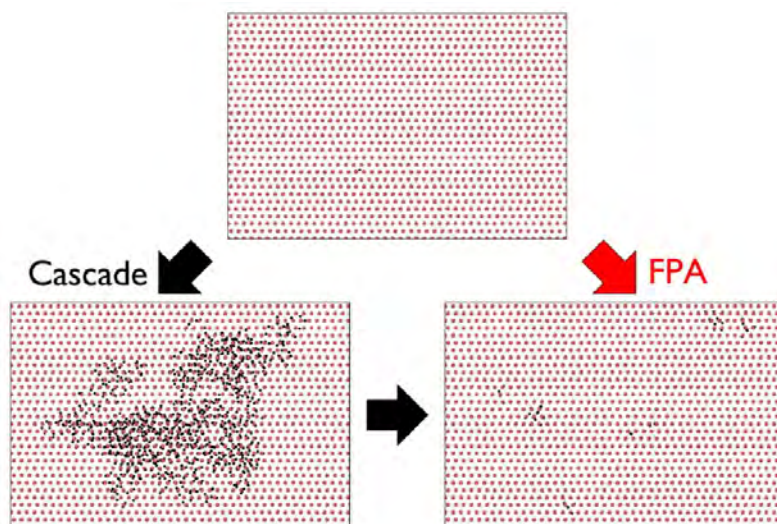


Figure 5.20 – Schéma du principe de la méthode d'accumulation de paires de Frenkel [173] se reposant sur la description par Chartier *et al.* [177].

La procédure que nous appliquons dans notre étude s'inspire du travail de Chartier et Marinica [175] dans lequel ils s'intéressent à l'évolution des défauts dans le fer sous irradiation aux électrons. L'intérêt d'utiliser cette méthode est d'étudier la formation des amas en ne présupposant pas le type d'amas, leur forme, etc. comme c'est le cas en OKMC.

Nous réalisons les simulations avec un code de dynamique moléculaire utilisant des potentiels interatomiques, NDM [178], développé au sein de la SRMP par Crocombette. Nous simulons une boîte dont les trois axes sont orientés suivant les directions $[1\ 1\ 0]$, $[\bar{1}\ 1\ 0]$ et $[001]$. Ses dimensions sont $25 \times 25 \times 24\text{ nm}^3$ et le système contient 887520 atomes d'aluminium. Les directions et dimensions sont indiquées dans la figure 5.21. Les interactions entre les atomes d'aluminium sont décrites par le potentiel EAM de Liu *et al.* [179]. Des conditions aux limites périodiques sont appliquées suivant les trois directions. Les simulations sont réalisées à température et à contrainte constantes en utilisant le thermostat de Berendsen et le barostat de Parrinello-Rahman. De plus, les angles sont fixés afin que la boîte reste tétragonale durant la simulation. Nous réalisons et comparons les résultats de deux simulations : dans la première la contrainte est maintenue nulle suivant les trois directions, dans la seconde nous imposons une contrainte de traction de 100 MPa suivant la direction $[1\ 1\ 0]$ et nulle suivant les autres directions. Le premier cas sert de référence et le second a pour objectif d'imiter les conditions expérimentales de chargement mécanique.

Avant de procéder à la simulation sous irradiation, nous préparons le système de façon à ce

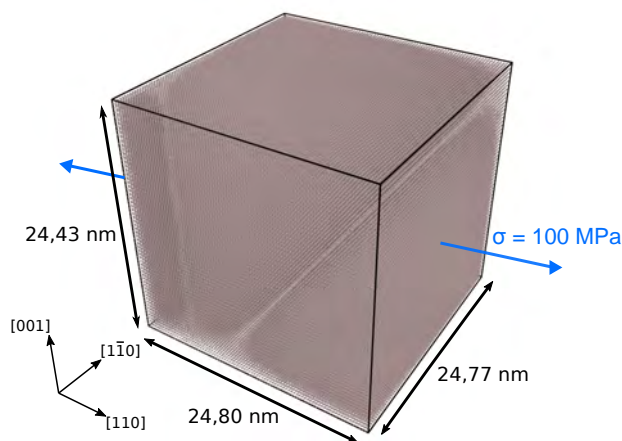


Figure 5.21 – Caractéristiques de la supercellule simulée par MD-FPA. Le système contient 887520 atomes d'aluminium. Les dimensions correspondent à celles obtenues à l'issue de la préparation de la boîte sous contrainte uniaxiale (figure 5.22a).

que la contrainte soit stabilisée. La figure 5.22a donne le suivi de la contrainte de notre système lors de l'étape de préparation. Il s'agit du système dans lequel une contrainte de 100 MPa est imposée pour une des trois directions.

Au cours de la simulation, nous générons 200 paires de Frenkel à un intervalle régulier de 2 ps, ce qui correspond à un taux de dommage de $1,13 \times 10^8\text{ dpa}\cdot\text{s}^{-1}$. Le système est relaxé après chaque insertion de 200 paires. L'insertion d'un grand nombre de paires de Frenkel permet d'augmenter l'efficacité du calcul. La période de relaxation choisie est équivalente au temps de la recombinaison locale des paires de Frenkel qui est de quelques picosecondes [180]. Le temps total simulé est 0,5 ns, ainsi la diffusion à longue distance est écartée. Il est vrai que le taux de dommage est éloigné de la réalité expérimentale, cependant cela ne représente pas un frein à notre étude puisque nous utilisons la méthode FPA pour étudier les mécanismes en jeu lors de la formation des défauts en négligeant la diffusion et par conséquent le mécanisme SIPA. En effet, le taux de création est tellement élevé que la réorganisation et la recombinaison à courte distance sont les phénomènes essentiellement en jeu. Il faut donc considérer la FPA simplement comme une méthode permettant d'explorer les différentes étapes d'évolution des amas de défauts, non pas comme un outil de prédiction quantitative des dommages d'irradiation.

Nous enregistrons l'état de la microstructure toutes les 2 ps, juste avant l'insertion des défauts ponctuels. Nous avons conscience que l'insertion de nombreux défauts génère des contraintes

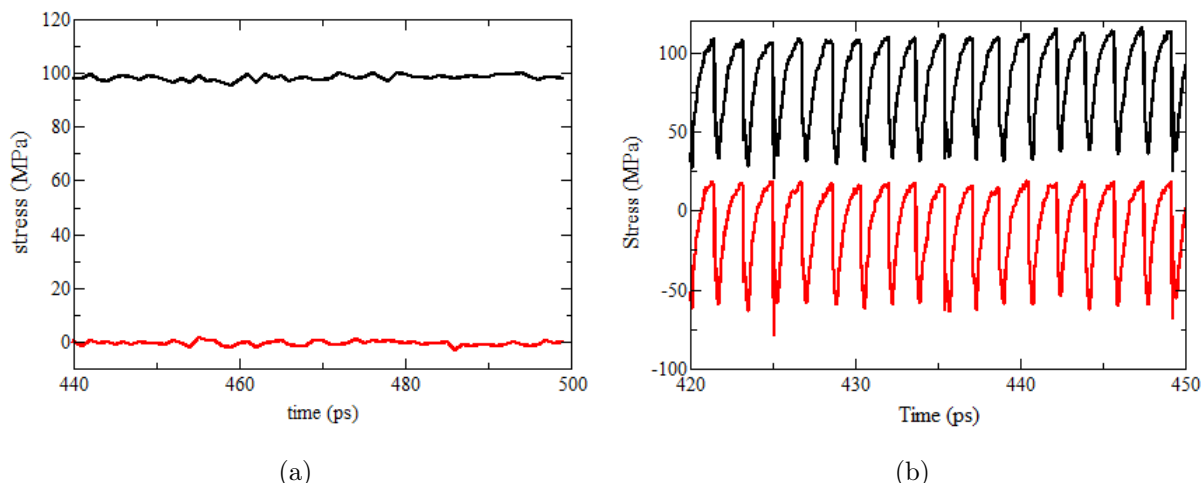


Figure 5.22 – Suivi de la contrainte dans le système suivant la direction $[110]$ en noir et la direction $[1\bar{1}0]$ en rouge : (a) durant la préparation du système, (b) durant la simulation avec l'accumulation de paires de Frenkel.

internes non négligeables mais comme le montre le suivi de la contrainte dans le système sous irradiation dans la figure 5.22b, le système revient à la contrainte cible avant chaque insertion des paires de Frenkel.

La cellule est visualisée à l'aide du logiciel OVITO [181] et les dislocations sont identifiées avec l'algorithme DXA [182].

5.5.2 Résultats

Nous précisons que dans nos résultats de simulations par FPA, seules les dislocations fermées constituées de segments de mêmes vecteurs de Burgers $1/3\langle 111 \rangle$ sont comptabilisées dans le nombre total de boucles de Frank.

Les figures 5.23a et 5.23b donnent le suivi du nombre de boucles avec la dose, en distinguant les boucles orientées favorablement et défavorablement par rapport à la contrainte. Dans le cas hors contrainte, figure 5.23a, le nombre de boucles sature vers 0,025 dpa et l'évolution du nombre de boucles entre les deux catégories sont équivalentes.

Dans le cas sous contrainte, figure 5.23b, le nombre de boucles atteint son maximum plutôt vers 0,03 dpa et à la différence du cas précédent, les boucles orientées favorablement sont rapidement majoritaires. La diminution du nombre total de boucles dans la figure 5.23b est le signe de la formation d'un réseau de dislocations, suite à l'interaction des boucles entre elles.

Comme cette étude porte sur les mécanismes en jeu lors des premiers stades de la formation des boucles, nous comparons les microstructures obtenues à 0,03 dpa dans la suite des résultats. La visualisation de l'état des microstructures est donnée dans les figures 5.24a et 5.24b. Qualitativement, nous obtenons bien une augmentation de la proportion des boucles orientées favorablement avec une contrainte de traction imposée suivant la direction $[110]$. Notons que toutes les dislocations ne présentent pas un vecteur de Burgers $1/3\langle 111 \rangle$: la proportion de ces dislocations est de 72,1% pour le cas sans contrainte et 75,8% sous contrainte.

Les distributions des deux types de populations de boucles de Frank sont données en figures 5.25a et 5.25b, calculées à partir des microstructures en figures 5.24a et 5.24b. Dans la simulation de référence hors contrainte, figure 5.25a, les boucles orientées favorablement et défavorablement ont une proportion de 48,6% et 51,4%, respectivement. Les proportions des quatre variants sont 24%, 27%, 28% et 21%. La méthode FPA reproduit donc bien la germination équi-

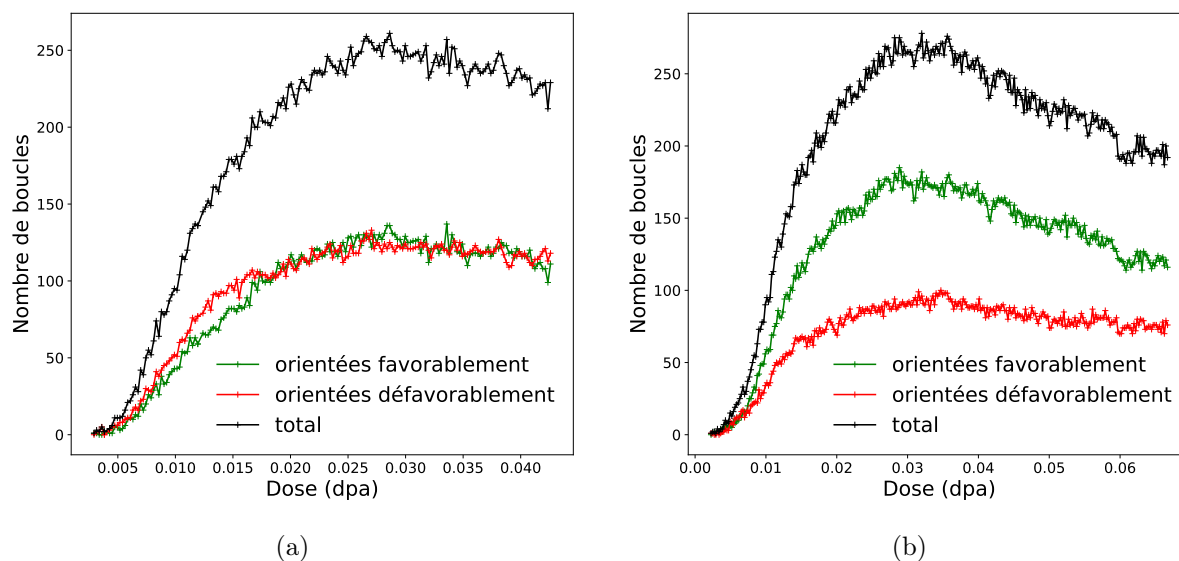


Figure 5.23 – Evolution du nombre de boucles de Frank dans (a) le système libre de contrainte et (b) le système sous une contrainte uniaxiale de 100 MPa, en fonction de la dose.

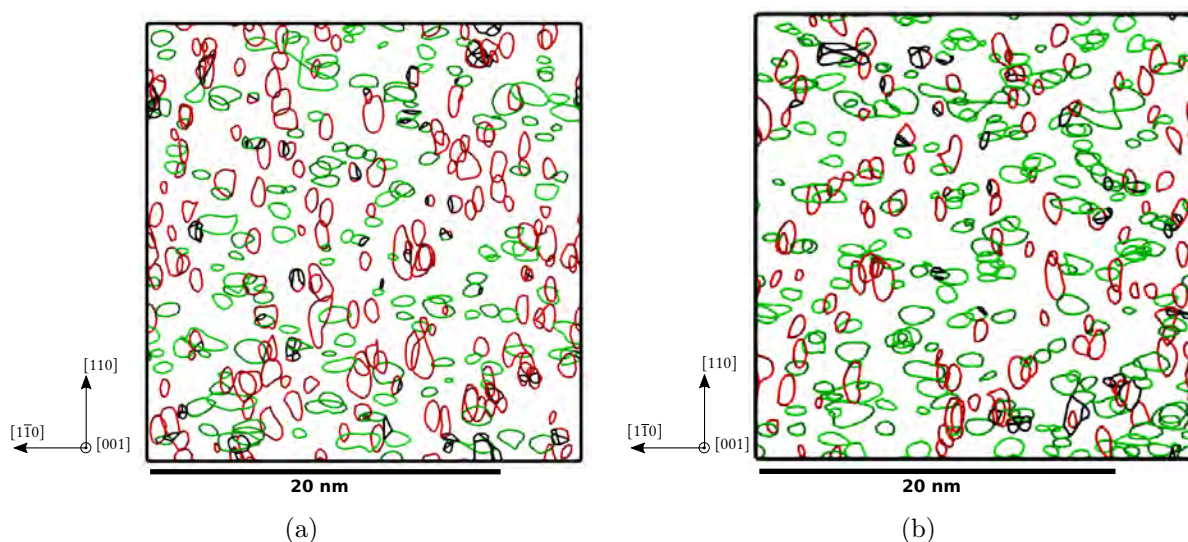


Figure 5.24 – Visualisation du système (a) libre de contrainte et (b) sous contrainte uniaxiale à 0,03 dpa. Les segments de dislocations qui ne présentent pas un vecteur de Burgers de type $1/3\langle 111 \rangle$ sont représentés en noir. Parmi les dislocations de Frank, celles orientées favorablement par rapport à la contrainte sont représentées en vert et les autres en rouge.

probable des boucles. Dans la simulation où nous imposons une contrainte de 100 MPa dans la direction $[110]$, les boucles orientées favorablement représentent 65,7% des boucles de Frank. Certes ce niveau de sélectivité est inférieur à ce que nous avons observé dans nos expériences sous contrainte dans le chapitre 3 (qui allait de 87% à 96%) mais ce résultat témoigne tout de même d'une orientation préférentielle des boucles sous contrainte. De plus, ce résultat est significatif sachant que la contrainte imposée est relativement faible pour ce type de simulation au vu de la variation de la contrainte lors de l'insertion des paires de Frenkel donnée dans la figure 5.22b. Par ailleurs, il est possible que des simulations avec d'autres potentiels donnent des proportions différentes.

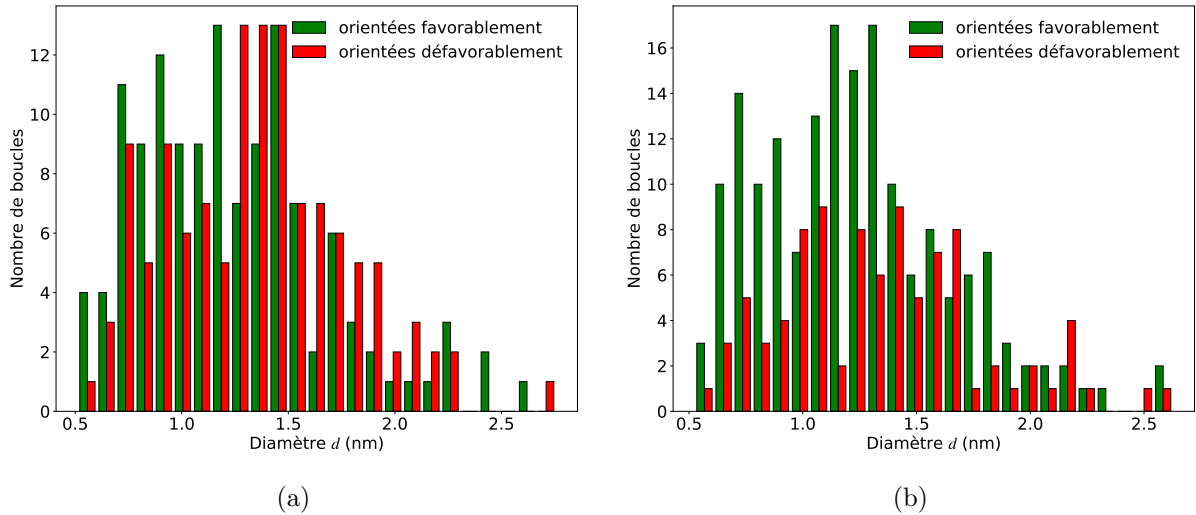


Figure 5.25 – Distributions des tailles des boucles associées aux systèmes (a) de la figure 5.24a et (b) de la figure 5.24b.

Nous avons lancé des simulations additionnelles dans lesquelles nous avons modifié le niveau de contrainte suivant la direction $[110]$: 10 MPa, 50 MPa et 200 MPa. La proportion de boucles orientées favorablement en fonction du niveau de contrainte est donnée dans la figure 5.26. Elle augmente avec l'intensité de la contrainte appliquée. De plus, nous notons qu'elle évolue de manière quasi-linéaire dans cet intervalle de contrainte. Nous avons également testé une valeur de contrainte bien supérieure à la réalité physique : 1 GPa. Dans ce cas de figure, l'intégralité des boucles de Frank sont orientées favorablement, comme nous pouvions nous y attendre.

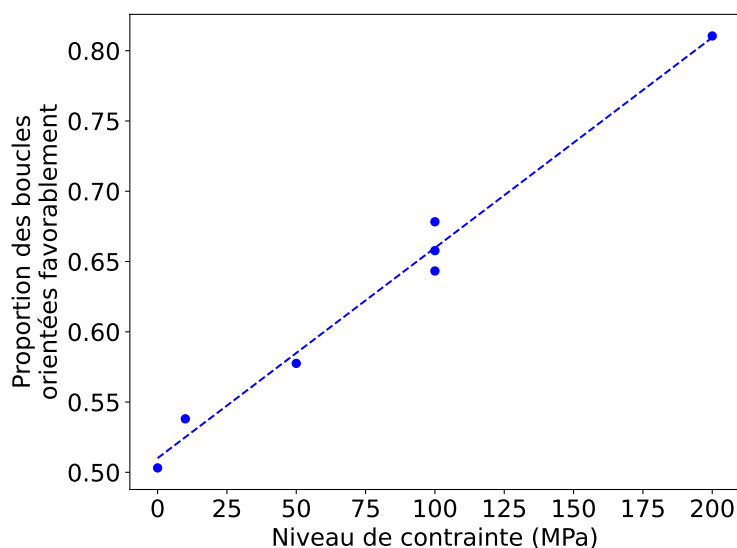


Figure 5.26 – Proportions des boucles de Frank orientées favorablement dans les simulations MD-FPA, en fonction du niveau de contrainte appliquée dans la direction $[1\ 1\ 0]$. Les proportions sont calculées à partir d’une seule simulation, sauf pour le cas à 100 MPa avec trois simulations indépendantes. La droite en pointillé est issue d’une régression linéaire.

Résumé des simulations avec la méthode MD-FPA

Grâce à nos observations in-situ et nos simulations OKMC, nous pouvons déjà affirmer que la sélectivité des boucles sous contrainte n’est pas une conséquence du mécanisme SIPA. Les simulations MD avec la méthode FPA nous ont permis de simuler l’effet de la contrainte sur la formation des boucles sans considérer la diffusion à longue distance et donc par extension le mécanisme SIPA.

Nos résultats de simulations par FPA ont montré sans équivoque qu’une formation préférentielle des boucles dans certains plans se produit sous l’effet d’une contrainte uniaxiale. Nous avons constaté également que la proportion des boucles bien orientées est proportionnelle au niveau de contrainte appliquée.

Discussion

Le couplage des expériences in-situ et des simulations a montré que le mécanisme SIPA n’intervient pas dans la sélectivité des boucles de dislocation sous contrainte. D’autre part, il a été établi que le mécanisme classique SIPN n’est pas viable. De plus, un tel mécanisme n’aurait pas pu être observé dans nos simulations FPA, les temps simulés étant trop faibles pour considérer la dissociation thermique et la diffusion à longue distance. D’autres mécanismes peuvent expliquer les résultats FPA et par extension, les résultats expérimentaux.

D’autres alternatives au SIPN classique sont possibles pour expliquer les différences de proportions entre les variants de boucles sous contrainte.

La première hypothèse qui peut être avancée est la réorientation des boucles. Cependant ce phénomène est peu probable puisque nous n’avons pas constaté de tel phénomène dans nos simulations MD.

Dans ce cas, au lieu d’une réorientation des boucles, nous pouvons conjecturer qu’il y a une réorientation de petits amas sous l’effet de la contrainte. Un tel phénomène pourrait se produire en FPA. La réorientation de germes de boucles constitués de trois interstitiels, avant la formation des boucles interstitielles, a été vérifiée expérimentalement dans l’aluminium [35]. Wolfer [32]

propose un mécanisme de réorientation de ces précurseurs de boucles. A partir des données de l'étude expérimentale de Robrock [35], Wolfer prédit que ce mécanisme n'est pas suffisant pour retrouver la sélectivité observée dans l'expérience d'Okamoto [60]. La différence d'énergie entre deux configurations stables de tri-interstitiel est trop faible.

La dernière hypothèse que nous pouvons faire est la transformation de petits amas 3D en boucles. Goryaeva *et al.* [13] ont récemment démontré que les interstitiels ne s'agglomèrent pas directement en boucles 2D mais que les phases A15 compactes précèdent la formation des boucles dans les métaux CFC. Ces structures A15 sont des amas de dumbbells $\langle 100 \rangle$, elles sont facilement constituées de plus de trois interstitiels. Il n'est pas impossible que la transformation de ces précurseurs en boucles soient sensibles à la contrainte. Cela reste à vérifier avec une étude numérique à part entière.

Enfin, rappelons que les simulations MD-FPA ne reproduisent pas le même niveau de sélectivité qu'expérimentalement. Comme le flux est très important et le temps simulé entre les insertions de paires de Frenkel est court, nous pouvons conjecturer que des phénomènes thermiquement activés, qui ne sont sûrement pas considérés dans ces simulations, pourraient également contribuer à la sélectivité des boucles sous contrainte.

5.6 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre nous avons étudié séparément le rôle du mécanisme SIPA et de la formation préférentielle des boucles sous contrainte grâce à des simulations OKMC et MD, respectivement.

Les calculs OKMC sont paramétrés dans les conditions expérimentales. Nous avons vérifié dans un premier temps que nos calculs OKMC pouvaient reproduire la cinétique de croissance des boucles hors contrainte. Les résultats des simulations ont montré que le mécanisme SIPA ne pouvait pas à lui seul être à l'origine de la sélectivité des boucles observées expérimentalement. Sous contrainte, les populations des deux catégories de boucles sont pratiquement équiréparties.

Nous avons ensuite confirmé par une étude détaillée des différents paramètres en jeu lors d'une irradiation en lame mince que le mécanisme SIPA a peu d'impact sur l'évolution des boucles. En effet, les cinétiques de croissance des boucles sont bien plus affectées par d'autres facteurs tels que la taille des boucles et leur voisinage. Nous avons montré que le mécanisme SIPA produit des effets significatifs à des contraintes (> 500 MPa) très largement au-dessus de la limite d'élasticité. Il est par conséquent inopérant dans les conditions de fluage d'irradiation.

Au vu de ces résultats, nous avons réalisé des simulations d'accumulation de paires de Frenkel en MD afin d'étudier l'effet de la contrainte sur la formation des boucles sans prendre en compte la diffusion à longue distance. La sélectivité des boucles orientées favorablement par rapport à la contrainte, bien qu'inférieure à celle observée expérimentalement, est reproduite. Ces résultats suggèrent une réorganisation des petits amas en boucles préférentiellement orientées sous contrainte uniaxiale. Enfin nous montrons que l'anisotropie de la microstructure de boucles augmente avec le niveau de contrainte. Nous pouvons conclure, grâce à la combinaison des résultats obtenus en OKMC et MD, que la sélectivité des boucles en MET est la conséquence de la formation des boucles dans des plans préférentiels, due à une réorientation de petits amas ou une transformation préférentielle de petits amas 3D en boucles.

Conclusion et perspectives

L'objectif de ce travail de thèse était d'évaluer les mécanismes affectant l'évolution des boucles sous contrainte et sous irradiation. Le couplage d'une étude expérimentale in-situ et d'une étude numérique aux mêmes échelles d'espace et de temps nous a permis de conclure sur la pertinence de certains mécanismes. Nos résultats permettent de jeter un regard nouveau sur les modèles développés principalement dans les années 70 et 80 et viennent éclaircir certaines conclusions issues de travaux expérimentaux.

Synthèse des résultats

La première partie de cette thèse présente les expériences d'irradiation aux électrons in-situ menées dans un microscope électronique en transmission. La caractérisation des amas de défauts obtenus en début d'irradiation montre que ce sont très majoritairement des boucles de Frank de nature interstitielle qui ont été créées. Les quatre variants de boucles sont présents en quantités presque équivalentes dans les expériences de référence (lorsque nous n'appliquons pas de contrainte). Dans la majorité des cas, la taille des boucles présente une croissance linéaire avec le temps d'irradiation pour des doses de l'ordre du dixième de dpa. Leur vitesse de croissance varie d'une boucle à l'autre. A partir d'expériences réalisées dans des zones de différentes épaisseurs, nous avons vérifié que la densité volumique des boucles est peu affectée par l'épaisseur de la lame dans la gamme d'épaisseur de nos expériences (60 - 240 nm). Pour des épaisseurs inférieures, la croissance des boucles est fortement ralentie jusqu'à ce que la formation des boucles ne soit plus possible. De plus, d'après une expérience d'irradiation à un taux de dommage plus élevé, nous constatons que la vitesse de croissance des boucles est globalement proportionnelle au taux de création de défauts ponctuels. Cette observation et l'évolution de la vitesse de croissance des boucles aux températures plus élevées indiquent que nos expériences se situent entre le régime de recombinaison et le régime d'élimination des défauts vers les puits.

Les expériences sont ensuite menées sous contrainte en appliquant un déplacement de façon à mettre l'échantillon sous tension suivant la direction cristallographique $\langle 110 \rangle$. Parmi les quatre variants de boucles de Frank, deux sont considérés comme orientés défavorablement (direction de la contrainte contenue dans leur plan d'habitat) et les deux restants comme orientés favorablement (direction de la contrainte inclinée à $\sim 35^\circ$ par rapport au vecteur de Burgers). Les expériences dans lesquelles la contrainte est appliquée avant l'irradiation montrent un fort effet de la contrainte sur la sélectivité des boucles, c'est-à-dire lors de la germination des boucles. Les différents essais montrent que le pourcentage de boucles orientées favorablement est supérieur à 85% dans nos conditions. En revanche, aucun effet de la contrainte sur la croissance des boucles n'est observé, les tailles moyennes entre les deux catégories de boucles étant similaires. Afin de démontrer que la contrainte agit effectivement aux premiers stades de la formation des boucles, des expériences en deux étapes sont menées : une première phase d'irradiation sans appliquer de contrainte et une deuxième phase sous contrainte. Le suivi des évolutions des boucles lors de la deuxième phase d'irradiation confirment que l'application d'une contrainte n'induit pas de croissance différentielle entre les boucles en fonction de leur orientation. C'est pourtant un

effet de la contrainte sur la croissance que prédit le mécanisme SIPA. Ce résultat suggère donc que le mécanisme SIPA est trop faible, au moins pour les grandes tailles de boucles, pour avoir un effet observable. Nous concluons alors que la contrainte agit principalement sur les premiers stades d'évolution des boucles, lors de leur formation.

La deuxième partie de ce travail de thèse présente l'étude numérique des mécanismes de type SIPA, dans la cas d'un dipôle de dislocations. L'étude approfondie des mécanismes SIPA-AD, lié à l'effet du terme du dipôle élastique, et SIPA-I, lié à l'effet du terme de polarisabilité, confirme la prédominance du premier sur le deuxième. Nous concluons, à partir du calcul de l'efficacité d'absorption d'un dipôle de dislocations sous contrainte, que l'amplitude du SIPA-AD est environ cinq fois supérieure à celle du SIPA-I. Alors que ces deux mécanismes ont historiquement été traités séparément, nos résultats soulignent qu'il est important de les considérer simultanément afin d'obtenir le comportement exact de l'efficacité d'absorption dans le plan orthogonal à la ligne de dislocation. Nous obtenons bien une absorption préférentielle des interstitiels par une dislocation droite si la contrainte de traction est appliquée suivant le vecteur de Burgers. La capture des lacunes par la dislocation est, quant à elle, maximale si la contrainte de traction est suivant la direction $\langle 100 \rangle$ ayant la plus grande projection sur la ligne de dislocation.

Suite à l'étude du mécanisme SIPA, nous calculons les efficacités d'absorption d'un réseau régulier de boucles de Frank hors contrainte. Lorsque la boucle est sous une contrainte de traction appliquée suivant la direction $\langle 110 \rangle$, comme dans nos expériences, nous obtenons un biais d'absorption plus élevé pour les boucles orientées favorablement que pour celles orientées défavorablement. De plus, nous montrons que l'effet du SIPA devrait augmenter avec la taille de la boucle. L'hypothèse d'un effet SIPA aux premiers stades de la formation des boucles induisant la disparition de petites boucles orientées défavorablement est donc invalidée. Des microstructures de boucles hors et sous contrainte sont simulées dans les conditions expérimentales sur un temps physique suffisamment long, en considérant le mécanisme SIPA dans la cinétique de croissance des boucles. La comparaison des résultats numériques hors contrainte avec l'expérience de référence montre que la méthode utilisée reproduit de façon exacte l'évolution des boucles expérimentales sans ajustement de paramètres. Nous n'obtenons pas de sélectivité des boucles dans les simulations sous contrainte, telle qu'observée expérimentalement. Nous confirmons donc que le mécanisme SIPA ne peut pas être à l'origine de la sélectivité des boucles sous contrainte.

Des calculs des forces de puits dans les microstructures des simulations précédentes prouvent que l'effet de voisinage, de taille de boucle et de la surface libre prévalent sur le mécanisme SIPA dans l'évolution des boucles. L'influence de ce dernier sur les biais élastiques est en effet trop faible, ce qui explique pourquoi aucune croissance différentielle généralisée des boucles ne peut être observée expérimentalement.

Des simulations par dynamique moléculaire avec la méthode d'accumulation de paires de Frenkel sont menées dans des conditions extrêmes afin d'écarter l'influence des mécanismes reposant sur la diffusion à longue distance des défauts. L'application d'un chargement mécanique similaire à nos expériences entraîne bien une formation préférentielle des boucles orientées favorablement par rapport à la contrainte.

Nous pouvons ainsi conclure que le comportement anisotrope des boucles sous contrainte est le résultat d'un mécanisme de type SIPN, agissant aux premiers stades de l'évolution des boucles, lors de leur nucléation. Le point le plus important à retenir de ce travail est que le mécanisme SIPA ne joue pas un rôle dans le fluage d'irradiation, contrairement à ce qui a été souvent avancé dans la littérature. Si nous transposons ce résultat aux dislocations, cela signifie également que le mécanisme SIPA sur la montée différentielle des dislocations devrait avoir peu d'influence sur le fluage d'irradiation. Ce dernier est donc sûrement dû à d'autres mécanismes qu'il serait intéressant d'étudier par la suite.

Perspectives

Maintenant que nous savons que la contrainte agit principalement au stade de la formation des boucles par un mécanisme de type SIPN, et non pas lors de leur croissance, il reste à étudier et comprendre en détail ce mécanisme. La première étape serait de trouver des précurseurs possibles des boucles de Frank dans l'aluminium qui pourraient s'orienter préférentiellement sous contrainte, donnant lieu après croissance à une orientation préférentielle des boucles. Une autre piste à explorer est la transformation sous contrainte des petits amas de structure A15 récemment mis en évidence dans l'aluminium. Ces amas pourraient être considérés dans des simulations OKMC dans les conditions expérimentales, comme celles que nous avons réalisées dans l'étude du mécanisme SIPA. Si les calculs vont dans le sens des résultats expérimentaux, c'est-à-dire qu'une sélectivité des boucles est observée, nous pourrions ensuite vérifier l'influence de la croissance induite sur le fluage d'irradiation.

L'aluminium n'est pas le matériau de choix pour les réacteurs. Réaliser le même type d'expériences que ce qui a été présenté dans cette thèse sur des matériaux qui se rapprochent de ceux utilisés dans l'industrie, tels que les alliages base nickel ou les aciers austénitiques, serait particulièrement intéressant. Pour cela, il faudrait réaliser les observations dans un microscope électronique à très haute tension, l'énergie seuil de déplacement de ces matériaux étant trop élevée pour créer du dommage dans un MET de 200 kV.

Un autre type d'expérience, également dans l'optique de se rapprocher de la réalité expérimentale, serait de réaliser des irradiations in-situ en traction sous un faisceau d'ions afin de considérer le phénomène de cascades de déplacements dans l'évolution des boucles sous contrainte. En effet, la présence d'une cascade induit des contraintes localement qui peuvent affecter les mécanismes que nous avons étudiés précédemment.

Cette thèse avait principalement pour objectif d'évaluer l'importance relative des mécanismes impliqués dans l'évolution anisotrope de boucles sous contrainte. Calculer la déformation macroscopique induite par une microstructure de boucles générée sous contrainte permettrait de quantifier leur contribution dans le fluage d'irradiation.

Si l'estimation de la déformation induite par les boucles indique qu'elle n'est pas suffisante pour expliquer l'amplitude du fluage, d'autres mécanismes devraient être étudiés, comme par exemple le glissement assisté par la montée. Il pourrait être étudié par le couplage d'expériences in-situ et de simulations de dynamique des dislocations (DD).

L'ensemble de ces études permettrait enfin de parvenir à une compréhension plus claire des mécanismes de déformation en réacteur des matériaux métalliques. Ceci permettra alors, grâce à cette meilleure compréhension des phénomènes, d'améliorer la prédictivité des modèles et d'augmenter la sûreté et la performance des réacteurs nucléaires.

Bibliographie

- [1] Bilan électrique 2019. Rapport technique, 2019.
- [2] COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE ET AUX ÉNERGIES ALTERNATIVES : Les matériaux du nucléaire : Modélisation et simulation des matériaux de structure. 2016.
- [3] B. TANGUY, F. SEFTA et P. JOLY : Le vieillissement des internes de cuve - programme de recherche en support à la durée de fonctionnement des réacteurs REP. Revue Generale Nucleaire, 3:56–63, 2015.
- [4] D. MOSEDALE, D. R. HARRIES, J. A. HUDSON, G. W. LEWTHWAITE et R. J. MCELROY : Irradiation creep in fast reactor core component materials. In M. L. BLEIBERG et J. W. BENNETT, éditeurs : Radiation effects in Breeder Reactor Structural Materials, page 209, 1977.
- [5] E. R. GILBERT, D. C. KAULITZ, J. J. HOLMES et T. T. CLAUDSEN : Fast reactor induced creep in 20steel. In Proc. Conf. on Irradiation Embrittlement and Creep in Fuel Cladding and Core Components, pages 239–251, 1973.
- [6] C. LEMAIGNAN : Science des matériaux pour le nucléaire. 2004.
- [7] K. EHRLICH : Irradiation creep and interrelation with swelling in austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 100:149–166, 1981.
- [8] F. ONIMUS, T. JOURDAN, C. XU, A. A. CAMPBELL et M. GRIFFITHS : 1.10 - irradiation creep in materials. In Comprehensive Nuclear Materials, page 310. Elsevier, 2020.
- [9] M. L. GROSSBECK, K. EHRLICH et C. WASSILEW : An assessment of tensile, irradiation creep, creep rupture, and fatigue behavior in austenitic stainless steels with emphasis on spectral effects. Journal of Nuclear Materials, 1990.
- [10] G. L. WIRE et J. L. STRAALSUND : Irradiation induced stress-relaxation of previously irradiated 304 stainless steel in a fast flux environment. Journal of Nuclear Materials, 64:254–264, 1977.
- [11] J. GARNIER, Y. BRÉCHET, M. DELNONDEDIEU, C. POKOR, P. DUBUISSON, A. RENAULT, X. AVERTY et J.-P. MASSOUD : Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels : Mechanical behaviour and microstructural aspects. Part I : Experimental results. Journal of Nuclear Materials, 413:63–69, 2011.
- [12] A. RENAULT-LABORNE, J. GARNIER, J. MALAPLATE, P. GAVOILLE, F. SEFTA et B. TANGUY : Evolution of microstructure after irradiation creep in several austenitic steels irradiated up to 120 dpa at 320°C. Journal of Nuclear Materials, 475:209–226, 2016.
- [13] A. M. GORYAEVA, C. DOMAIN, A. CHARTIER, A. DÉZAPHIE, T. D. SWINBURNE, K. MA, M. LOYER-PROST, J. CREUZE et M.-C. MARINICA : Compact A15 Frank-Kasper nano-phase at the origin of dislocation loops in face-centred cubic metals. Nature Communications, 14:3003, 2023.
- [14] J. R. MATTHEWS et M. W. FINNIS : Irradiation creep models – An overview. Journal of Nuclear Materials, 159:257, 1988.

- [15] F. A. GARNER, E. R. GILBERT et V. S. NEUSTROEV : Recent insights on the parametric dependence of irradiation creep of austenitic stainless steels. In Proc. of the 15th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, 2011.
- [16] R. V. HESKETH : A possible mechanism of irradiation creep and its reference to uranium. Philosophical Magazine, 7:1417, 1962.
- [17] W. G. WOLFER, J. P. FOSTER et F. A. GARNER : The interrelationship between swelling and irradiation creep. Nuclear Technology, 16:55, 1972.
- [18] A. D. BRAILSFORD et R. BULLOUGH : Irradiation creep due to growth of interstitial loops. Philosophical Magazine, 27:49, 1973.
- [19] P. T. HEALD et M. V. SPEIGHT : Steady-state irradiation creep. Philosophical Magazine, 29:1075, 1974.
- [20] W. G. WOLFER et M. ASHKIN : Stress-induced diffusion of point defects to spherical sinks. Journal of Applied Physics, 46:547, 1975.
- [21] C. H. WOO et E. J. SAVINO : Stress-induced preferred absorption due to saddle-point anisotropy : the case of an infinitesimal dislocation loop. Journal of Nuclear Materials, 116:17, 1983.
- [22] B. C. SKINNER et C. H. WOO : Shape effect in the drift diffusion of point defects into straight dislocations. Physical Review B, 30:3084, 1984.
- [23] J. H. GITTUS : Theory of dislocation-creep due to the frenkel defects or interstitialcies produced by bombardment with energetic particles. Philosophical Magazine, 25(2):345–354, 1972.
- [24] L. K. MANSUR : Irradiation creep by climb-enabled glide of dislocations resulting from preferred absorption of point defects. Philosophical Magazine A, 39:497, 1979.
- [25] C. LEMAIGNAN : Handbook of Nuclear Engineering, chapitre Nuclear Materials and Irradiation Effects, pages 543–642. Springer, 2010.
- [26] S. JITSUKAWA, Y. KATANO, K. SHIRAIISHI et F. A. GARNER : The Behavior of Irradiation-Produced Dislocation Loops under External Stress during Electron Irradiation. In R. E. STOLLER, A. S. KUMAR et D. S. GELLES, éditeurs : Effects of Radiation on Materials : 15th International Symposium, page 1034, 1992.
- [27] H. R. BRAGER, F. A. GARNER et G. L. GUTHRIE : The effect of stress on the microstructure of neutron irradiated type 316 stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 66:301–321, 1977.
- [28] W. G. WOLFER, L. K. MANSUR et J. A. SPRAGUE : Theory of swelling and irradiation creep. In M. L. BLEIBERG et J. W. BENNETT, éditeurs : Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, page 479, 1977.
- [29] J. LETEURTRE, J. L. POUCHOU et L. ZUPPIROLI : Méthode expérimentale d'étude du germe de boucle de dislocation : détermination de sa taille. Philosophical Magazine, 27(6):1323–1334, 1973.
- [30] G. W. LEWTHWAITE : Irradiation-creep during void production. Journal of Nuclear Materials, 46:324–328, 1973.
- [31] K. HERSCHBACH et W. SCHNEIDER : Interconnection between irradiation creep and interstitial loop formation in FCC metals. Journal of Nuclear Materials, 51:215–220, 1974.
- [32] W. G. WOLFER : Correlation of radiation creep theory with experimental evidence. Journal of Nuclear Materials, 90:175, 1980.
- [33] F. A. GARNER, W. G. WOLFER et H. R. BRAGER : A reassessment of the role of stress in development of radiation-induced microstructure. In J. A. SPRAGUE et D. KRAMER, éditeurs : Effects of radiation on structural materials, ASTM STP 683, page 160, 1979.

-
- [34] R. A. JOHNSON : Calculations of small vacancy and interstitial clusters for an fcc lattice. Physical Review, 152(2):629–634, 1966.
- [35] K.-H. ROBROCK, L. E. REHN, V. SPIRIC et W. SCHILLING : Anelastic relaxation due to clustered self-interstitial atoms in Al. Physical Review B, 15(2):680–688, 1977.
- [36] E. J. SAVINO et C. N. TOMÉ : Irradiation creep by stress-induced preferential attraction due to anisotropic diffusion (SIPA-AD). Journal of Nuclear Materials, 108-109:405, 1982.
- [37] C. N. TOMÉ, H. A. CECATTO et E. J. SAVINO : Point-defect diffusion in a strained crystal. Physical Review B, 25:7428, 1982.
- [38] C. H. WOO : Irradiation creep due to elastodiffusion. Journal of Nuclear Materials, 120:55, 1984.
- [39] V. A. BORODIN et A. I. RYAZANOV : The effect of diffusion anisotropy on dislocation bias and irradiation creep in cubic lattice materials. Journal of Nuclear Materials, 210:258, 1994.
- [40] H. R. SCHOBER : Single and multiple interstitials in FCC metals. Journal of Physics F : Metal Physics, 7:1127, 1977.
- [41] E. J. SAVINO : Point defect-dislocation interaction in a crystal under tension. Philosophical Magazine, 36:323, 1977.
- [42] P. H. DEDERICHS et K. SCHROEDER : Anisotropic diffusion in stress fields. Physical Review B, 17:2524, 1978.
- [43] P. T. HEALD et M. V. SPEIGHT : Point defect behaviour in irradiated materials. Acta Metallurgica, 23:1389, 1975.
- [44] R. BULLOUGH et J. R. WILLIS : The stress-induced point defect-dislocation interaction and its relevance to irradiation creep. Philosophical Magazine, 31:855, 1975.
- [45] C. XU et G. S. WAS : Anisotropic dislocation loop distribution in alloy T91 during irradiation creep. Journal of Nuclear Materials, 454:255, 2014.
- [46] W. SCHILLING : Self-interstitial atoms in metals. Journal of Nuclear Materials, 69 & 70:465, 1978.
- [47] C. VARVENNE et E. CLOUET : Elastic dipoles of point defects from atomistic simulations. Physical Review B, 96:224103, 2017.
- [48] R. SIEMS : Mechanical interactions of point defects. Physica Status Solidi, 30:645, 1968.
- [49] E. CLOUET, C. VARVENNE et T. JOURDAN : Elastic modeling of point-defects and their interactions. Computational Materials Science, 147:49, 2018.
- [50] H. R. SCHOBER : Polarizabilities of point defects in metals. Journal of Nuclear Materials, 126:220, 1984.
- [51] A. D. BRAILSFORD et R. BULLOUGH : The rate theory of swelling due to void growth in irradiated metals. Journal of Nuclear Materials, 44:121, 1972.
- [52] W. G. WOLFER et M. ASHKIN : Diffusion of vacancies and interstitials to edge dislocations. Journal of Applied Physics, 47:791, 1976.
- [53] C. H. WOO : Effects of an anisotropic dislocation structure on irradiation creep due to stress induced preferred absorption of point defects. Journal of Nuclear Materials, 80:132, 1979.
- [54] P. EHRHART, P. JUNG, H. SCHULTZ et H. ULLMAIER : Landolt–Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. Atomic Defects In Metals. Springer, 1991.
- [55] D. CARPENTIER, T. JOURDAN, Y. LE BOUAR et M.-C. MARINICA : Effect of saddle point anisotropy of point defects on their absorption by dislocations and cavities. Acta Materialia, 136:323, 2017.
-

- [56] I.-W. CHEN : Anisotropic diffusion of point defects to edge dislocations. Journal of Nuclear Materials, 125:52, 1984.
- [57] G. F. BOUOBDA MOLADJE, L. THUINET, C. DOMAIN, C. S. BECQUART et A. LEGRIS : Phase-field calculations of sink strength in Al, Ni, and Fe : A detailed study of elastic effects. Computational Materials Science, 183:109905, 2020.
- [58] V. A. BORODIN : The effect of swelling on SIPA irradiation creep. Journal of Nuclear Materials, 225:15, 1995.
- [59] A. VATTRÉ, T. JOURDAN, H. DING, M.-C. MARINICA et M. J. DEMKOWICZ : Non-random walk diffusion enhances the sink strength of semicoherent interfaces. Nature Communications, 7:10424, 2016.
- [60] P. R. OKAMOTO et S. D. HARKNESS : Stress-biased loop nucleation in irradiated type 316 stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 48:204, 1973.
- [61] H. R. BRAGER, E. R. GILBERT et J. L. STRAALSUND : The effect of stress on the microstructure of neutron irradiated cold worked type 316 stainless steel. Radiation Effects, 21:37, 1974.
- [62] D. S. GELLES, F. A. GARNER et H. R. BRAGER : Frank loop formation in irradiated metals in response to applied and internal stresses. In H. R. BRAGER et J. S. PERRIN, éditeurs : Effects of Radiation on Materials : Tenth Conference, ASTM STP 725, page 735, 1981.
- [63] J. A. A. KHAN et J. LETEURTRE : An experimental investigation of the stress oriented dislocation loop nucleation in whiskers. Physica Status Solidi (a), 50:K 161, 1978.
- [64] J. Y. BOUNAUD et J. LETEURTRE : An experimental study of dislocation loop nucleation. In Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, page 790, 1975.
- [65] J. DURAL et Y. QUÉRÉ : Déformation sous contrainte de LiF irradié à 20 K. Le Journal de Physique Lettres, 40:369–371, 1979.
- [66] D. CAILLARD, J. L. MARTIN et B. JOUFFREY : Creep under irradiation of 316 steel in the high voltage electron microscope. Acta Metallurgica, 28:1059, 1980.
- [67] A. SATO, C. IKEDA, S. NAKAMURA, M. SUZUKI et T. MORI : Stress effect on formation of interstitial loops in an electron irradiated Fe-18Cr-14Ni alloy. Scripta Metallurgica, 20:1119, 1986.
- [68] H. SAKA, K. KAWAMURA et M. HASHIMOTO : High-voltage electron microscopy observation of stress-induced preferential absorption of interstitials. Philosophical Magazine A, 59(3): 687, 1989.
- [69] H. SAKA, K. KAWAMURA, Y. MOROZUMI et H. TESHIMA : Effect of external tensile stress on the growth of interstitial loops. Journal of Nuclear Materials, 179-181:966, 1991.
- [70] H. SAKA et H. TESHIMA : HVEM in situ observation of effects of an external compressive stress on the climb rate of interstitial loops. Philosophical Magazine Letters, 63(3):133–139, 1991.
- [71] F. A. GARNER et D. S. GELLES : Irradiation creep mechanisms : an experimental perspective. Journal of Nuclear Materials, 159:286, 1988.
- [72] M. SUZUKI et A. SATO : Stress-assisted nucleation of interstitial loops in an electron-irradiated Fe-18Cr-14Ni alloy. Journal of Nuclear Materials, 172:97, 1990.
- [73] N. GHARBI, F. ONIMUS, D. GILBON, J.-P. MARDON et X. FEAUGAS : Impact of an applied stress on c-component loops under Zr ion irradiation in recrystallized Zircaloy-4 and M5. Journal of Nuclear Materials, 467:785–801, 2015.
- [74] T. ATKINS et R. J. MCELROY : The effects of applied stress on the irradiation induced microstructures of dilute nickel alloys. In American Society for TESTING et MATERIALS, éditeurs : Radiation-Induced Changes in Microstructure : 13th International Symposium (Part I), ASTM STP 955, page 447, 1987.

-
- [75] H. TANIGAWA, Y. KATOH et A. KOHYAMA : Numerical analysis of stress effects on frank loop evolution during irradiation in austenitic Fe-Cr-Ni alloy. Nuclear Instruments and Methods B, 102:151, 1995.
- [76] S. KONDO, T. KOYANAGI et T. HINOKI : Irradiation creep of 3C-SiC and microstructural understanding. Journal of Nuclear Materials, 448:487–496, 2014.
- [77] D. S. GELLES, A. KIMURA et T. SHIBAYAMA : Analysis of stress-induced Burgers vector anisotropy in pressurized tube specimens of irradiated ferritic martensitic steels : JFMS and JLF-1. In M. L. HAMILTON, A. S. KUMAR, S. T. ROSINSKI et M. L. GROSSBECK, éditeurs : Effects of Radiation on Materials : 19th International Symposium, ASTM STP 1366, page 535, 2000.
- [78] J. CHEN, P. JUNG et W. HOFFELNER : Irradiation creep of candidate materials for advanced nuclear plants. Journal of Nuclear Materials, 441:688–694, 2013.
- [79] A. AYACHE, L. BEAUNIER, J. BOUMENDIL, G. EHRET et D. LAUB : Guide de Préparation des échantillons pour la Microscopie électronique en transmission - Tome 2, Techniques. 2007.
- [80] H. TAKAHASHI, Y. HIDAKA et S. OHNUKI : Observation of point defect production and clustering by high voltage electron microscopy : Interaction of point defect with solutes. Micron, 27(3-4):239–246, 1996.
- [81] O. S. OEN : Cross sections for atomic displacements in solids by fast electrons. techreport, 1965.
- [82] O. S. OEN : Cross sections for atomic displacements in solids by fast electrons. Rapport technique ORNL-4897, 1973.
- [83] G. W. ISELER, H. I. DAWSON, A. S. MEHNER et J. W. KAUFFMAN : Production rates of electrical resistivity in copper and aluminum induced by electron irradiation. Physical Review, 146:468–471, 1966.
- [84] H. H. NEELY et Walter BAUER : Electron-irradiation damage-rate measurements in aluminum. Physical Review, 149:535–539, 1966.
- [85] H. M. SIMPSON et R. L. CHAPLIN : Damage and recovery of aluminum for low-energy electron irradiations. Physical Review, 185(3):958–961, 1969.
- [86] P. JUNG : Average atomic-displacement energies of cubic metals. Physical Review B, 23:664–670, 1981.
- [87] K. TANAKA et Y. SHIMOMURA : Dependence of growth rate of interstitial loops on irradiated crystallographic directions in electron irradiated pure aluminum. Japanese Journal of Applied Physics, 20(8):1393–1399, 1981.
- [88] A. WOLFENDEN : Near threshold electron damage in aluminium : Purity effects. Radiation Effects : Incorporating Plasma Science and Plasma Technology, 21:197–199, 1974.
- [89] A. WOLFENDEN : Damage in aluminum by 200 kV electrons. Journal of Nuclear Materials, 38:114–115, 1971.
- [90] A. WOLFENDEN : Electron radiation damage near the threshold energy in aluminum. Radiation Effects : Incorporating Plasma Science and Plasma Technology, 14:225–229, 1972.
- [91] L.W. HOBBS : Introduction to Analytical Electron Microscopy, chapitre 17 Radiation Effects in Analysis of Inorganic Specimens by TEM, pages 437–480. 1979.
- [92] D. B. WILLIAMS et C. B. CARTER : Transmission Electron Microscopy : A Textbook for Materials Science. Springer, second édition, 2009.
- [93] M. KIRITANI, N. YOSHIDA et H. TAKATA : Interstitial clusters in electron irradiated aluminum. Journal of the Physical Society of Japan, 36(3):720–729, 1974.
-

- [94] M. KIRITANI : Electron radiation damage of metals and nature of point defects by high voltage electron microscopy. In Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, page 695, 1975.
- [95] M. KIRITANI, H. TAKATA, N. YOSHIDA et Y. MAEHARA : Long-range interaction between radiation-induced point defects and dislocations. In Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, page 889, 1975.
- [96] M. KIRITANI, N. YOSHIDA et H. TAKATA : Growth of interstitial type dislocation loops and vacancy mobility in electron irradiated metals. Journal of the Physical Society of Japan, 38(6):1677–1686, 1975.
- [97] H. FISCHER, C. GOMEZ, M. RÜHLE et J. DIEHL : In-situ electron irradiation of aluminium in a 200 kV electron microscope. In Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, page 715, 1975.
- [98] W. J. YANG, R. A. DODD et G. L. KULCINSKI : Electron irradiation damage in high purity aluminum. Journal of Nuclear Materials, 64:157–166, 1977.
- [99] T. YOSHIE, Y. SATOH, H. TAOKA, S. KOJIMA et M. KIRITANI : Detection and analysis of microscopically invisible cascade defects in 14 MeV neutron irradiated aluminum and iron. Journal of Nuclear Materials, 155-157:1098–113, 1988.
- [100] K. FURUYA, M. PIAO, N. ISHIKAWA et T. SAITO : High transmission electron microscopy of defect clusters in aluminum during electron and ion irradiation at room temperature. MRS Online Proceedings Library, 439:331–336, 1996.
- [101] D. HULL et D. J. BACON : Introduction to dislocations, volume 37. Pergamon, 1984.
- [102] C. FLAMENT : Etude des évolutions microstructurales sous irradiation de l’alliage d’aluminium 6061-T6. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.
- [103] C. JACQUELIN : Nanodéfauts formés sous irradiation aux électrons dans l’aluminium. Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2018.
- [104] H. FÖLL et M. WILKENS : A simple method for the analysis of dislocation loops by means of the inside-outside contrast on transmission electron micrographs. Physica Status Solidi (a), 31(2):519–524, 1975.
- [105] M. H. LORETTO et R. E. SMALLMAN : Defect analysis in electron microscopy. 1975.
- [106] J. DOUIN, P. VEYSSIÈRE et P. BEAUCHAMP : Dislocation line stability in Ni₃Al. Philosophical Magazine A, 54(3):375–393, 1986.
- [107] S. JITSUKAWA et K. HOJOU : Effect of temperature and flux change on the behavior of radiation induced dislocation loops in pure aluminum. Journal of Nuclear Materials, 212-215:221–225, 1994.
- [108] A. DUONG-HARDOUIN-DUPARC : Etude de la formation sous irradiation des amas de défauts ponctuels dans les alliages ferritiques faiblement alliés. Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, 1997.
- [109] A. HARDOUIN-DUPARC, C. MOINGEON, N. SMETNIANSKY-DE-GRANDE et A. BARBU : Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations. Journal of Nuclear Materials, 302:143, 2002.
- [110] M. KIRITANI : History, present status and future of the contribution of high-voltage electron microscopy to the study of radiation damage and defects in solids. Ultramicroscopy, 39:135–159, 1991.
- [111] L. YANG, X. T. ZU et F. GAO : Ab initio study of formation, migration and binding properties of helium-vacancy clusters in aluminum. Physica B, 403:2719–2724, 2008.
- [112] H. WANG, D. RODNEY, D. XU, R. YANG et P. VEYSSIÈRE : Pentavacancy as the key nucleus for vacancy clustering in aluminum. Physical Review B, 84:220103, 2011.

-
- [113] V. LEVY, J. M. LANORE et J. HILLAIRET : Interaction entre lacunes dans l'aluminium trempé à 4°K. Philosophical Magazine, 28(2):373–387, 1973.
- [114] M. H. YOO et J. O. STIEGLER : Growth kinetics and 'preference factor' of frank loops in nickel during electron irradiation. Philosophical Magazine, 36(6):1305–1315, 1977.
- [115] K. MA, B. DÉCAMPS, A. FRACZKIEWICZ, T. JOURDAN, F. PRIMA et M. LOYER-PROST : Free surface impact on radiation damage in pure nickel by in-situ self-irradiation : can it be avoided? Acta Materialia, 212:116874, 2021.
- [116] F. MOMPIOU et R.-X. XIE : pycotem : An open source toolbox for online crystal defect characterization from TEM imaging and diffraction. Journal of Microscopy, 282(1):84–97, 2021.
- [117] P. M. KELLY, A. JOSTSONS, R. G. BLAKE et J. G. NAPIER : The determination of foil thickness by scanning transmission electron microscopy. Physica Status Solidi (a), 31:771–780, 1975.
- [118] S. M. ALLEN : Foil thickness measurements from convergent-beam diffraction patterns. Philosophical Magazine A, 43(2):325–335, 1981.
- [119] S. M. ALLEN et E. L. HALL : Foil thickness measurements from convergent-beam diffraction patterns : An experimental assessment of errors. Philosophical Magazine A, 46(2):243–253, 1982.
- [120] L. REIMER et H. KOHL : Transmission Electron Microscopy : Physics of Image Formation. Springer, 2008.
- [121] D. DELILLE, R. PANTEL et E. Van CAPPELLEN : Crystal thickness and extinction distance determination using energy filtered CBED pattern intensity measurement and dynamical diffraction theory fitting. Ultramicroscopy, 87:5–18, 2001.
- [122] K. MA : Irradiation behavior of Ni-based model materials : towards a better understanding of solute effects on fcc structure under ion irradiation. Thèse de doctorat, Université PSL, 2020.
- [123] N. KHIARA : Experimental and numerical study of irradiation creep in metallic materials. phdthesis, Université Grenoble Alpes, 2021.
- [124] N. KHIARA, F. ONIMUS, S. JUBLOT-LECLERC, T. JOURDAN, T. PARDOEN, J.-P. RASKIN et Y. BRÉCHET : In-situ TEM irradiation creep experiment revealing radiation induced dislocation glide in pure copper. Acta Materialia, 216:117096, 2021.
- [125] M. GAUME : Etude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation. phdthesis, Université Toulouse 3 Paul Sabatier, 2017.
- [126] M. GAUMÉ, P. BALDO, F. MOMPIOU et F. ONIMUS : In-situ observation of an irradiation creep deformation mechanism in zirconium alloys. Scripta Materialia, 154:87–91, 2018.
- [127] A. COURET, J. CRESTOU, S. FARENC, G. MOLENAT, N. CLEMENT, A. COUJOU et D. CAILLARD : In situ deformation in T.E.M. : recent developments. Microscopy Microanalysis Microstructures, 4:153–170, 1993.
- [128] B. PY-RENAUDIE : In-situ strain tests of Fe-N-C alloys : study of dislocation glide mechanisms. Rapport technique NT-SRMP-2019-016, 2019.
- [129] A. COUJOU, P. LOURS, N. A. ROY, D. CAILLARD et N. CLEMENT : Determination of the local tensile axis direction in a tem in situ strained γ' single crystal - finite element approach. Acta Metallurgica, 38(5):825–837, 1990.
- [130] J. VALLIN, M. MONGY, K. SALAMA et O. BECKMAN : Elastic constants of aluminum. Journal of Applied Physics, 35(6):1825–1826, 1964.
- [131] K. HE, G. GKIOXARI, P. DOLLÁR et R. GIRSHICK : Mask r-cnn, 2018.
-

- [132] D. DA FONSECA, F. ONIMUS, F. MOMPIOU, M.-C. MARINICA, E. DE SONIS, E. CLOUET et T. JOURDAN : Numerical investigation of dislocation climb under stress and irradiation. Acta Materialia, 242:118431, 2023.
- [133] D. CARPENTIER : Simulation de la cinétique d'absorption des défauts ponctuels par les dislocations et amas de défauts. Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2018.
- [134] C. BECQUART, N. MOUSSEAU et C. DOMAIN : Kinetic Monte Carlo Simulations of Irradiation Effects. In Comprehensive Nuclear Materials 2nd edition, Volume 1, pages 754–778. Elsevier, 2020.
- [135] C. DOMAIN et C. S. BECQUART : Object Kinetic Monte Carlo (OKMC) : A Coarse-Grained Approach to Radiation Damage, pages 1–26. Springer International Publishing, 2019.
- [136] T. JOURDAN : Object kinetic Monte Carlo modelling of irradiation microstructures with elastic interactions. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 30(8): 085013, nov 2022.
- [137] D. CARPENTIER, T. JOURDAN, P. TERRIER, M. ATHÈNES et Y. LE BOUAR : Effect of sink strength dispersion on cluster size distributions simulated by cluster dynamics. Journal of Nuclear Materials, 533:152068, 2020.
- [138] M. J. CATURLA, N. SONEDA, E. ALONSO, B. D. WIRTH, T. Diaz de la RUBIA et J. M. PERLADO : Comparative study of radiation damage accumulation in Cu and Fe. Journal of Nuclear Materials, 276:13, 2000.
- [139] D. T. GILLESPIE : A general method for numerically simulating the stochastic time evolution of coupled chemical reactions. Journal of Computational Physics, 22:403, 1976.
- [140] A. B. BORTZ, M. H. KALOS et J. L. LEBOWITZ : A New Algorithm for Monte-Carlo Simulation of Ising Spin Systems. Journal of Computational Physics, 17:10, 1975.
- [141] T. JOURDAN : Enforcing local equilibrium of point defects near sinks in object kinetic Monte Carlo simulations. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 29:035007, 2021.
- [142] N. M. GHONIEM, S. H. TONG, J. HUANG, B. N. SINGH et M. WEN : Mechanisms of dislocation-defect interactions in irradiated metals investigated by computer simulations. Journal of Nuclear Materials, 307-311:843, 2002.
- [143] A. B. SIVAK, V. M. CHERNOV, V. A. ROMANOV et P. A. SIVAK : Kinetic Monte-Carlo simulation of self-point defect diffusion in dislocation elastic fields in bcc iron and vanadium. Journal of Nuclear Materials, 417:1067, 2011.
- [144] G. SUBRAMANIAN, D. PEREZ, B. P. UBERUAGA, C. N. TOMÉ et A. F. VOTER : Method to account for arbitrary strains in kinetic Monte Carlo simulations. Physical Review B, 87:144107, 2013.
- [145] T. JOURDAN et A. VATTRÉ : A continuous model including elastodiffusion for sink strength calculation of interfaces. Computational Materials Science, 153:473, 2018.
- [146] D. R. MASON, X. YI, M. A. KIRK et S. L. DUDAREV : Elastic trapping of dislocation loops in cascades in ion-irradiated tungsten foils. Journal of Physics : Condensed Matter, 26:375701, 2014.
- [147] G. H. VINEYARD : Frequency factors and isotope effects in solid state rate process. Journal of Physical Chemistry, 3:121–127, 1957.
- [148] L. GREENGARD et V. ROKHLIN : Rapid evaluation of potential fields in three dimensions. In C. ANDERSON et C. GREENGARD, éditeurs : Vortex Methods, volume 1360 de Lectures Notes in Mathematics, page 121. Springer-Verlag, Berlin, 1988.
- [149] H. CHENG, L. GREENGARD et V. ROKHLIN : A fast adaptive multipole algorithm in three dimensions. Journal of Computational Physics, 155:468, 1999.

-
- [150] M. S. ALNÆS, J. BLECHTA, J. HAKE, A. JOHANSSON, B. KEHLET, A. LOGG, C. RICHARDSON, J. RING, M. E. ROGNES et G. N. WELLS : The FEniCS Project Version 1.5. Archive of Numerical Software, 3(100):9–23, 2015.
- [151] W. P. KUYKENDALL et W. CAI : Conditional convergence in two-dimensional dislocation dynamics. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 21:055003, 2013.
- [152] T. JOURDAN : Influence of dislocation and dislocation loop biases on microstructures simulated by rate equation cluster dynamics. Journal of Nuclear Materials, 467:286, 2015.
- [153] B. ZHANG, C. WHEATLEY, P. CHEN, X. QIAN et M. J. DEMKOWICZ : Shear strain alters the structure and migration of self-interstitial atoms in copper. Physical Review Materials, 6:053605, 2022.
- [154] H. FLYVBJERG et H. G. PETERSEN : Error estimates on averages of correlated data. The Journal of Chemical Physics, 91:461, 1989.
- [155] C. H. WOO : Intrinsic bias differential between vacancy loops and interstitial loops. Journal of Nuclear Materials, 107:20, 1982.
- [156] R. BULLOUGH et M. R. HAYNS : Irradiation-creep due to point defect absorption. Journal of Nuclear Materials, 57:348, 1975.
- [157] P. T. HEALD : Radiation-induced creep and swelling. In M. L. BLEIBERG et J. W. BENNETT, éditeurs : Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, page 781, 1977.
- [158] C. XU et G. S. WAS : Proton irradiation creep of FM steel T91. Journal of Nuclear Materials, 459:183, 2015.
- [159] T. A. KHRAISHI, J. P. HIRTH, H. M. ZBIB et M. A. KHALEEL : The displacement and strain–stress fields of a general circular and Volterra dislocation loop. International Journal of Engineering Science, 38:251, 2000.
- [160] A. SEEGER et U. GÖSELE : Steady-state diffusion of point defects to dislocation loops. Physics Letters A, 61(6):423–425, 1977.
- [161] R. CADE : A Perturbation Method for Solving Torus Problems in Electrostatics. IMA Journal of Applied Mathematics, 21:265, 1978.
- [162] W. A. COGHLAN et M. H. YOO : Radius dependence of the sink strength of a dislocation loop. In M. F. ASHBY, R. BULLOUGH, C. S. HARTLEY et J. P. HIRTH, éditeurs : Dislocation Modelling of Physical Systems, pages 152–157. Pergamon, 1981.
- [163] V. I. DUBINKO, A. S. ABYZOV et A. A. TURKIN : Numerical evaluation of the dislocation loop bias. Journal of Nuclear Materials, 336:11, 2005.
- [164] M. KIRITANI et H. TAKATA : Dynamic studies of defect mobility using high voltage electron microscopy. Journal of Nuclear Materials, 69-70:277–309, 1978.
- [165] W. G. WOLFER et A. SI-AHMED : On the coefficient for bulk recombination of vacancies and interstitials. Journal of Nuclear Materials, 99:117, 1981.
- [166] D. CONNÉTABLE et M. DAVID : Study of vacancy-(H,B,C,N,O) cluster in Al using DFT and statistical approaches : Consequences on solubility of solutes. Journal of Alloys and Compounds, 748:12–25, 2018.
- [167] C. C. FU, F. WILLAIME et P. ORDEJÓN : Stability and mobility of mono- and di-interstitials in α -Fe. Physical Review Letters, 92:175503, 2004.
- [168] R. GADEAU : L'aluminium. 1957.
- [169] Y. LIMOGE, A. RAHMAN, Horngming HSIEH et Sidney YIP : Computer simulation studies of radiation induced amorphization. Journal of Non-Crystalline Solids, 99(1):75–88, 1988.
-

- [170] J.-P. CROCOMBETTE, A. CHARTIER et W. J. WEBER : Atomistic simulation of amorphization thermokinetics in lanthanum pyrozoirconate. Applied Physics Letters, 88(5):051912, 2006.
- [171] A. CHARTIER, G. CATILLON et J.-P. CROCOMBETTE : Key role of the cation interstitial structure in the radiation resistance of pyrochlores. Physical Review Letters, 102:155503, 2009.
- [172] H. BALBOA, L. Van BRUTZEL, A. CHARTIER et Y. Le BOUAR : Damage characterization of (u,pu)o₂ under irradiation by molecular dynamics simulations. Journal of Nuclear Materials, 512(15):440–449, 2018.
- [173] E. Y. CHEN, C. DEO et R. DINGREVILLE : Irradiation resistance of nanostructured interfaces in Zr–Nb metallic multilayers. Journal of Materials Research, 34:2239, 2019.
- [174] C. MAXWELL, J. PENCER et E. TORRES : Atomistic simulation study of clustering and evolution of irradiation-induced defects in zirconium. Journal of Nuclear Materials, 531:151979, 2020.
- [175] A. CHARTIER et M.-C. MARINICA : Rearrangement of interstitial defects in alpha-Fe under extreme condition. Acta Materialia, 180:141–148, 2019.
- [176] P. M. DERLET et S. L. DUDAREV : Microscopic structure of heavily irradiated material. Physical Review Materials, 4:023605, 2020.
- [177] A. CHARTIER, C. ONOFRI, L. Van BRUTZEL, C. SABATHIER, O. DOROSH et J. JAGIELSKI : Early stages of irradiation induced dislocations in urania. Applied Physics Letters, 109:181902, 2016.
- [178] J.-P. CROCOMBETTE et D. GHALEB : Molecular dynamics modeling of irradiation damage in pure and uranium-doped zircon. Journal of Nuclear Materials, 295:167–178, 2001.
- [179] X.-Y. LIU, F. ERCOLESSI et J. B. ADAMS : Aluminium interatomic potential from density functional theory calculations with improved stacking fault energy. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 12(4):665, 2004.
- [180] P. OLSSON, C. S. BECQUART et C. DOMAIN : Ab initio threshold displacement energies in iron. Materials Research Letters, 4(4):219–225, 2016.
- [181] A. STUKOWSKI : Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 18(1):015012, 2009.
- [182] A. STUKOWSKI, V. V. BULATOV et A. ARSENLIS : Automated identification and indexing of dislocations in crystal interfaces. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 20(8):085007, oct 2012.

Titre : Simulation et observation de l'influence d'une contrainte sur l'évolution des défauts cristallins à l'échelle nanométrique et en temps réel

Mots clés : fluage d'irradiation, microscopie électronique en transmission, Monte Carlo cinétique sur objets, boucles de dislocation, montée des dislocations

Résumé : Dans les réacteurs à eau pressurisée, les aciers austénitiques inoxydables sont utilisés comme matériaux des structures internes de cœur pour leur bonne résistance à la corrosion. En fonctionnement, ces matériaux subissent la combinaison du flux neutronique et d'un chargement mécanique donnant lieu à une déformation permanente, le fluage d'irradiation. Cette déformation peut être problématique, c'est pourquoi il est important d'étudier ce phénomène pour bien le comprendre, le maîtriser et le prédire. Des lois pour décrire le comportement macroscopique en fluage d'irradiation existent et sont utilisées par les ingénieurs. D'autre part, de nombreux mécanismes microscopiques ont été proposés dans la littérature pour expliquer ce phénomène, mais leur pertinence reste en grande partie une question ouverte. Ce travail de thèse propose d'approfondir la compréhension des mécanismes reposant sur la germination et la croissance des boucles de dislocation générées sous irradiation suite à l'agglomération de défauts ponctuels. Dans le cas des boucles de dislocation, la déformation macroscopique résulte de l'évolution anisotrope de leur proportion ou de leur taille, sous l'effet d'une contrainte extérieure. Deux principaux mécanismes sont proposés dans la littérature pour expliquer le rôle de la contrainte sur la microstructure. Le premier est le mécanisme SIPA. Celui-ci prédit l'absorption préférentielle de défauts ponctuels par les boucles de dislocation, résultant de la diffusion anisotrope de ces défauts. Le second est le mécanisme SIPN qui est un mécanisme de germination des boucles de dislocation dans des plans préférentiels. À ce jour, les expériences in-situ sont peu nombreuses et se contredisent. Du fait de ce manque de données, il est difficile de conclure sur les mécanismes en jeu. L'objectif de cette thèse est d'apporter une réponse à cette question grâce à une démarche couplant étude expérimentale et étude numérique. Des expériences d'irradiation in-situ, sans et avec application d'une contrainte, sont réalisées dans un microscope électronique en transmission (MET) à l'aide d'un porte-objet de traction. Le faisceau d'électrons sert à la fois à créer des défauts ponctuels et à observer les boucles de dislocations. Le matériau modèle utilisé est l'aluminium pur. Nous observons en MET la formation et la croissance de boucles de Frank de nature interstitielle. Les irradiations sous contrainte montrent que l'application d'une contrainte affecte la densité des boucles et cela lorsque la contrainte est appliquée en début d'irradiation. Afin d'étudier les mécanismes à l'origine de ce phénomène, nous réalisons en parallèle des simulations avec la méthode Monte Carlo cinétique sur objets. L'évolution des microstructures de boucles dans nos conditions expérimentales est simulée aux mêmes échelles d'espace et de temps en incluant uniquement le mécanisme SIPA. Ces calculs montrent que le SIPA ne permet pas de reproduire l'anisotropie de boucles observée expérimentalement. Par la suite, l'influence de la contrainte sur la formation préférentielle des boucles est mise en évidence par des simulations de dynamique moléculaire avec la méthode d'accumulation de paires de Frenkel. Nous concluons que la contrainte a majoritairement un rôle sur la formation préférentielle des boucles et que cette formation préférentielle n'est pas due à un mécanisme SIPA, mais par exemple à la réorientation de petits amas d'interstitiels.

Title: Real-time simulation and observation of the effect of stress on the evolution of crystalline defects at nanometric scale

Key words: irradiation creep, transmission electron microscopy, object kinetic Monte Carlo, dislocation loop, dislocation climb

Abstract: In pressurized water reactors, austenitic stainless steels are used as materials for internal core structures for their good corrosion resistance. During operation, these materials are subjected to a combination of neutron flux and mechanical loading, resulting in permanent deformation known as irradiation creep. This deformation can be problematic, which is why it is important to study this phenomenon in order to understand, control and predict it. Laws to describe the macroscopic behavior of irradiation creep exist and are used by engineers. On the other hand, numerous microscopic mechanisms have been proposed in the literature, but their relevance remains largely an open question. The aim of this thesis is to gain a deeper understanding of the mechanisms underlying the nucleation and growth of dislocation loops generated under irradiation as a result of the agglomeration of point defects. In the case of dislocation loops, macroscopic deformation results from the anisotropic evolution of their proportion or size, under the effect of external stress. Two main mechanisms are proposed in the literature to explain the role of stress on the microstructure. The first is the SIPA mechanism, which predicts the preferential absorption of point defects by dislocation loops, resulting from the anisotropic diffusion of these defects under applied stress. The second is the SIPN mechanism, which is a nucleation mechanism for dislocation loops in preferential planes with respect to the applied stress. To this day, there are few in-situ experiments and their results are not consistent. This lack of data makes it difficult to draw conclusions concerning the relevant mechanisms involved. The aim of this thesis is to provide an answer to this question by combining experimental and numerical studies. In-situ irradiation experiments, both with and without applied stress, are carried out in a transmission electron microscope (TEM) using a straining sample holder. The electron beam is used both to create point defects and to observe dislocation loops. Pure aluminum is chosen as model material. We observe the formation and growth of interstitial Frank loops. Irradiations under stress show that the application of an external stress affects the loop density when the stress is applied at the beginning of irradiation. To investigate the mechanisms behind this result, we run simulations using the object kinetic Monte Carlo method at the same time. The evolution of loop microstructures under our experimental conditions is simulated at the same space and time scales as experiments, including only the SIPA mechanism. These calculations show that SIPA does not reproduce the loop anisotropy observed experimentally. Then, the influence of stress on loop preferential nucleation is demonstrated by molecular dynamics simulations using the Frenkel pair accumulation method. We conclude that stress plays a major role in preferential nucleation of loop and this preferential nucleation is not due to SIPA mechanism, but to the reorientation of small interstitial clusters, for example.