

Etude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation

Marine Gaume

▶ **To cite this version:**

Marine Gaume. Etude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation. Matériaux. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2017. Français. NNT : 2017TOU30220 . tel-01918989

HAL Id: tel-01918989
https://theses.hal.science/tel-01918989

Submitted on 12 Nov 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Fédérale
Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

Présentée et soutenue par :
Marine GAUME

le lundi 6 novembre 2017

Titre :

Étude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation

---

École doctorale et discipline ou spécialité :
ED SDM : Physique de la matière - CO090

Unité de recherche :
Centre d'Élaboration de Matériaux et d'Études Structurales (CEMES)

Directeur/trice(s) de Thèse :

Frédéric MOMPIOU - Chargé de recherche, Université Toulouse III - Paul Sabatier

Jury :

Brigitte DECAMPS - Directeur de Recherche, CNRS/IN2P3 - Rapporteur
Philippe CASTANY - Maître de Conférences, INSA Rennes - Rapporteur
Benoît DEVINCRE - Directeur de Recherche, CNRS/Onera - Examinateur
Daniel CAILLARD - Directeur de Recherche, CEMES-CNRS - Examinateur
Eric ANDRIEU - Professeur, CIRIMAT-ENSIACET - Examinateur
Fabien ONIMUS – Ingénieur Chercheur, CEA – Encadrant CEA
Laurent DUPUY – Ingénieur Chercheur, CEA – Co-encadrant CEA
Martin RAUTENBERG – Ingénieur, EDF - Invité
Nermine CHAARI – Ingénieur, Areva NP - Invité

Etude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation

***Mots* clés :** Alliages de zirconium; Irradiation aux particules chargées; Microscopie Electronique en Transmission; Boucles de dislocation <a>; Glissement des dislocations ; Montée des dislocations
Résumé : Au sein des Réacteurs à Eau Pressurisée, le flux de neutrons entraîne une modification des propriétés mécaniques des gaines à combustible en alliage de zirconium. Bien que leur comportement macroscopique soit bien connu, les mécanismes microscopiques de la déformation des alliages de zirconium restent à caractériser. Afin de simuler l'irradiation aux neutrons, des irradiations aux particules chargées (ions et électrons) ont été réalisées à 400 et 450°C sur un alliage de zirconium: le Zircaloy-4 RXA. L'analyse expérimentale de la microstructure obtenue après irradiation, effectuée au Microscope Electronique en Transmission (MET), a montré la présence de défauts cristallins: les boucles de dislocation de vecteur de Burgers <a>. Leur évolution au cours de l'irradiation (taille et densité), ainsi que leurs caractéristiques (nature et plan d'habitat) ont été déterminées et discutées sur la base de la diffusion des défauts ponctuels. Les résultats obtenus suggèrent une diffusion des auto-interstitiels très faiblement anisotrope. Des expériences de traction *in-situ* ont été réalisées au MET, après irradiation aux ions, afin d'activer le glissement des dislocations et d'observer leurs interactions avec ces boucles <a>. Certains cas d'interactions observés expérimentalement ont été modélisés par Dynamique des Dislocations pour une meilleure compréhension des mécanismes. L'effet simultané de la contrainte et de l'irradiation sur les mécanismes de déformation a ensuite été étudié. Des irradiations *in-situ* aux électrons et aux ions ont été effectuées, sans et avec application d'une contrainte. Des mécanismes de déformation impliquant la montée des dislocations ont ainsi été mis en évidence. Grâce à l'ensemble de cette étude, des modèles basés sur les mécanismes identifiés pourront être, à terme, proposés afin de prédire le comportement des alliages de zirconium en réacteur.

Study of the deformation mechanisms of zirconium alloys after and under irradiation.

***Keywords*:** Zirconium alloys; Charged particles irradiation; Transmission electron microscopy; <a> dislocation loops; Dislocation glide; Dislocation climb
Summary: In Pressurized Water Reactors, the neutron flux leads to a change in the mechanical properties of the fuel cladding tubes made of zirconium alloys. Although their macroscopic behavior is well known, the microscopic deformation mechanisms of zirconium alloys still need to be characterized. In order to simulate the neutron irradiation, charged particles irradiations (ion and electron) were carried out at 400°C and 450°C on a zirconium alloy: RXA Zircaloy-4. The experimental analysis of the irradiated microstructure, performed by using a Transmission Electron Microscope (TEM), have shown some crystalline defects: dislocation loops with a <a> Burgers vector. Their evolution (size and density) and their characteristics (nature and habit plane) have been determined and discussed based on the point defects diffusion. The results suggest a weak anisotropy in the self-interstitial diffusion. *In-situ* tensile tests were performed using a TEM, after ion irradiation, in order to activate the dislocation glide and to observe their interaction with the <a> loops. Some of the experimental cases of interaction have been simulate using Dislocation Dynamics for a better understanding of the mechanisms. The simultaneous effect of the stress and of the irradiation on the deformation mechanisms have been then studied. *In-situ* electron and ion irradiations were conducted, with and without an applied stress. Deformation mechanisms involving dislocation climb have thus been demonstrated. Through this study, models based on the identified mechanisms may be suggested, in order to predict the behavior of zirconium alloys in the reactor.

Remerciements

Pour commencer, je souhaite remercier Brigitte Décamps et Philippe Castany pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce manuscrit et pour leurs commentaires très constructifs. Je tiens également à remercier Benoît Devincre et Daniel Caillard d'avoir participé à ce jury en tant qu'examinateurs, ainsi que Martin Rautenberg et Nermine Chaari. Enfin je voudrais remercier Éric Andrieu qui a accepté de présider ce jury.

Je tiens aussi à remercier tout particulièrement Frédéric Mompiou, directeur de cette thèse, qui a toujours été présent malgré l'éloignement entre Saclay et Toulouse, et qui m'a toujours aidée avec beaucoup de gentillesse. Merci pour toutes ces journées passées à faire des essais de traction au MET. J'en retiendrai qu'une dislocation n'interagit jamais avec la boucle que l'on fixe (parfois pendant plusieurs minutes !), mais qu'il faut souvent regarder juste au-dessus.

Un grand merci également à Laurent Dupuy pour avoir co-encadré cette thèse et m'avoir initiée à la simulation par Dynamique des Dislocations, domaine qui m'était initialement tout à fait inconnu. Merci pour ta grande patience !

Je souhaite également remercier du fond du cœur Fabien Onimus pour avoir encadré cette thèse avec beaucoup de dévouement. Merci dans un premier temps de m'avoir fait confiance et donné ma chance pour la réalisation de ce projet. Malgré quelques « embûches » expérimentales rencontrées au cours de ces trois années, tu as toujours été un soutien constant. Merci pour t'être rendu aussi disponible, j'ai beaucoup appris à tes côtés. J'ai grâce à toi gagné beaucoup de confiance en moi autant au niveau professionnel que personnel.

J'aimerais ensuite remercier toutes les personnes avec qui j'ai eu la chance d'interagir durant cette thèse. Je commencerai tout d'abord par toute l'équipe du CSNSM d'Orsay et notamment Cyril Bachelet, Sandrine Picard, Jérôme Bourçois et Aurélie Gentils, ainsi que Cédric Baumier et Stéphanie Jublot-Leclerc, avec qui j'ai passé de très bons moments.
Je remercie aussi Estelle Meslin et Thomas Jourdan du SRMP au CEA, qui ont chacun participé à la bonne réalisation de ces travaux, pour le temps qu'ils ont su me consacrer.
Je tiens à remercier tous les membres du laboratoire de l'IVEM à Chicago pour leur sympathie et pour nous avoir permis de réaliser ces superbes dernières expériences.
Je souhaite également remercier tous mes anciens collègues du LC2M du CEA et notamment Jean-Phillipe, Jean-Luc et Louis d'avoir toujours été là, et Jérôme pour m'avoir encouragée à réaliser cette thèse.

Je souhaite aussi remercier tous mes collègues du LA2M de Saclay avec qui j'ai passé trois très belles années. Tout d'abord, je remercie nos chefs de laboratoire Jean-Luc Béchade et Jean Henry qui ont participé au bon déroulé de cette thèse. Je voudrais également remercier Liliane, Cathy et Karine qui ont toujours été disponibles pour nous aider.
Merci ensuite au groupe « côté microscopie » pour m'avoir aidée dans la réalisation de mon travail. Je me dois bien sûr dans un premier temps de penser tout particulièrement à Thierry et Olivier qui ont tout fait pour que je puisse réussir mes irradiations au THT et qui ont toujours su m'encourager et me redonner espoir. J'espère, pour vous, avoir vraiment été le chat noir, mais attention j'ai peut-être encore un effet à distance ! Merci également à Joël Ribis pour le temps qu'il m'a accordé au MET et ses très bons conseils. Je n'oublie bien sûr pas Alexandra, Sylvie, Benoît, Amélie, Marie-Pierre et Joël Malaplate.
Je remercie également le groupe « côté métallo » soit Élodie, Yann, Didier, Thomas, France, Jean-Christophe, Caroline, Véronique, Stéphane, Françoise, Dominique, Denis, Raphaëlle et Julie pour m'avoir adoptée pour le café du matin. Merci à vous tous pour votre très bonne humeur.

Enfin je ne peux pas continuer ces remerciements sans citer le groupe des thésards et maintenant amis, sans qui ces trois années auraient été bien différentes et beaucoup moins drôles. Je vais citer chacun par ordre d'ancienneté au labo. Je souhaite donc remercier tout d'abord les thésards du millésime 2015 : Sylvain pour ses bons plans à Bruxelles et pour être celui qui n'a jamais imité ma voix (je crois) ; Gilles dit aussi « le Morbier » pour m'avoir permis de reprendre le ski (je crois que jamais personne n'oubliera), merci pour ton écoute ; je n'oublie pas non plus Isabelle, Nesrine et Camille pour leur gentillesse.
Merci également au groupe de ceux qui ont soutenu en 2016 : à Émilie qui prend toujours le temps de nous demander de nos nouvelles ; Olivier pour avoir réussi à me faire aimer le chocolat blanc (oui oui ! je me suis même resservie !) ; Baptiste qui a toujours le mot pour rire ; Pierre qui a eu le courage d'assister à toutes les soutenances et que je n'ai pas remercié personnellement, j'espère que tu m'excuseras un jour… ; et enfin le dernier de ce groupe mais pas des moindres, Bertrand, co-bureau d'exception toujours au courant du dernier tube de l'année, qui m'a écoutée me plaindre avec beaucoup de sérieux, sans jamais (oh grand jamais !) tomber dans la moquerie.
Je souhaite maintenant beaucoup de courage à ceux qui continuent ou commencent leur thèse au labo à savoir : Adrien, Amal, Gabriel et Aymerick.
Je souhaite également remercier Paul, mon acolyte de projet. Enfin je vais terminer par remercier le trio avec qui j'ai passé ces trois années : Benjamin pour son répertoire inépuisable en blagues ; Vianney parce que t'es le plus fort et pour ta gentillesse et grande sincérité ; et Alexia, récemment mon mentor en tricot, parce que c'était super d'avoir quelqu'un comme toi avec qui parler pendant ces trois ans.

Enfin je voudrais remercier très sincèrement ma famille et mes amis qui m'ont soutenue durant ces trois ans. Merci notamment à mes frères, Corentin et Christophe, qui ont été moteurs de ma motivation ; et Eric et Sophie pour m'avoir laissée me réfugier chez vous durant ma rédaction.
Merci surtout à mes parents pour leur soutien inébranlable malgré la distance, les mots me manquent pour leur dire toute ma reconnaissance.
Je finirai en remerciant Florian, avec qui je suis fière d'avoir vécu ces trois années. Merci d'avoir toujours été là et de m'avoir autant aidée.

Table des Matières

Introduction 1

Chapitre I. Etude bibliographique 5

I. Généralités sur les alliages de zirconium non irradiés 6

I.1. Propriétés cristallographiques du zirconium 6

I.2. Les alliages de zirconium 7

I.2.1. Composition chimique des alliages de zirconium 7

I.2.2. Etats métallurgiques et textures des produits 7

I.3. Les mécanismes de la déformation plastique 10

I.3.1. Déformation par glissement des dislocations dans les alliages de zirconium 10

I.3.2. Le mécanisme de montée des dislocations 15

II. Les effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium 18

II.1. L'irradiation neutronique 18

II.2. Anisotropie de diffusion des défauts ponctuels 19

II.3. Microstructure des alliages de zirconium irradiés 20

II.3.1. Précipitation induite par l'irradiation 20

II.3.2. Amas de défauts ponctuels 20

II.4. Les boucles de dislocation <a> 21

II.4.1. Observations expérimentales et caractérisation des boucles de dislocation <a> 21

II.4.2. Effets des conditions d'irradiation sur les boucles de dislocation <a> 24

III. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium après irradiation 27

III.1. Evolution des propriétés macroscopiques après irradiation 27

III.2. Mécanismes microscopiques de la déformation plastique des alliages de zirconium après irradiation 28

III.2.1. Les mécanismes du durcissement d'irradiation 28

III.2.2. Mécanisme de canalisation du glissement 29

III.2.3. Interactions dislocations - boucles 30

IV. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium sous irradiation 41

IV.1. Les mécanismes de la croissance sous irradiation 41

IV.1.1. Comportement macroscopique des alliages de zirconium en croissance sous irradiation 41

IV.1.2. Les modèles théoriques de la croissance sous irradiation 43

IV.2. Fluage sous irradiation 44

IV.2.1. Comportement macroscopique en fluage sous irradiation 44

IV.2.2. Les mécanismes théoriques du fluage d'irradiation 46

Synthèse du chapitre 52
Références bibliographiques 54

Chapitre II. Evolution de la microstructure du Zy-4 sous irradiation aux particules chargées 61
I. Matériau de l'étude et techniques expérimentales 62
I.1. Matériau de l'étude 62
I.1.1. Caractéristiques morphologiques et microstructurales du Zy-4 recristallisé 62
I.1.2. Préparation des échantillons sous forme de lames minces 62
I.2. Irradiations aux particules chargées 63
I.2.1. Irradiations *in-situ* aux électrons 64
I.2.2. Irradiations conventionnelles aux ions lourds 66
I.3. Microscopie Electronique en Transmission 70
I.3.1. Imagerie conventionnelle des boucles de dislocation <a> 70
I.3.2. Analyse quantitative des boucles de dislocation <a> 70
II. Cinétique de nucléation et de croissance des boucles <a> 71
II.1. Irradiation *in-situ* aux électrons 71
II.2. Irradiation aux ions lourds 73
II.3. Discussion sur la cinétique de croissance des boucles de dislocation <a> 74
II.3.1. Cinétique d'évolution sous irradiation aux ions de 1 MeV 74
II.3.2. Comparaison avec les irradiations aux ions 76
III. Caractérisation post-mortem des boucles de dislocation 78
III.1. Analyse du vecteur de Burgers des boucles 78
III.2. Analyse du plan d'habitat des boucles 79
III.3. Nature des boucles de dislocation 81
III.3.1. Méthode d'analyse au MET 81
III.3.2. Nature des boucles de dislocation après irradiation aux ions 83
III.3.3. Nature des boucles de dislocation après irradiation aux électrons 84
III.3.4. Discussion sur la nature des boucles de dislocation 86
Synthèse du chapitre 89
Références bibliographiques 90

Chapitre III. Mécanismes de la déformation plastique après irradiation 93
I. Protocole expérimental 94
I.1. Essais de traction *in-situ* au MET 94
I.1.1. Réalisation des essais de traction *in-situ* en MET 94
I.1.2. Caractéristiques des éprouvettes de traction 94

I.2. Optimisation des défauts créés par l'irradiation aux ions des éprouvettes 96
II. Analyse des systèmes de glissement 97
II.1. Méthode de détermination des systèmes de glissement des dislocations 97
II.1.1. Détermination du plan de glissement 97
II.1.2. Détermination du vecteur de Burgers de la dislocation 99
II.2. Systèmes de glissement observés lors des essais de traction *in-situ* 100
II.2.1. Glissement <a> dans les plans prismatiques 100
II.2.2. Glissement <a> dans le plan pyramidal de première espèce 106
II.2.3. Glissement <a> dans le plan de base 109
II.2.4. Discussion sur l'activation des différents systèmes de glissement 111
III. Observation des cas d'interactions dislocations-boucles 112
III.1. Ancrage des dislocations sur les boucles de dislocation 113
III.1.1. Cas d'une dislocation glissant dans un plan prismatique 113
III.1.2. Cas d'ancrage pour des dislocations glissant dans les plans pyramidaux 116
III.1.3. Ancrages dans le plan de base 118
III.1.4. Discussion sur les interactions de type ancrage 119
III.2. Absorption des boucles par les dislocations 122
III.2.1. Cas de dislocations glissant dans un plan prismatique 122
III.2.2. Cas de dislocations glissant dans un plan pyramidal 123
III.2.3. Discussion sur les interactions de type absorption des boucles 127
IV. Occurrence des interactions dislocation-boucle 128
Synthèse du chapitre 131
Références bibliographiques 132

Chapitre IV. Etude des interactions dislocation-boucle par Dynamique des Dislocations 133
I. Principe de la simulation par Dynamique des Dislocations 134
I.1. Modélisations 3D en Dynamique des Dislocations 134
I.2. Le code Numodis 135
I.3. Définition des paramètres de simulation 136
II. Simulations de cas observés expérimentalement 136
II.1. Ancrage d'une dislocation glissant dans un système pyramidal <a> 136
II.1.1. Description du cas observé expérimentalement 136
II.1.2. Définition des paramètres d'entrée 137
II.1.3. Définition des paramètres ajustables 140
II.1.4. Comparaison des résultats de la simulation avec le cas d'ancrage expérimental 140
II.2. Absorption de boucles par une dislocation glissant dans un système pyramidal <a> 147
II.2.1. Description du cas expérimental 147

II.2.2. Caractéristiques des boucles de dislocation 147
II.2.3. Comparaison des modélisations en DD avec le cas expérimental 150
II.3. Ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base 151
II.3.1. Rappel du cas expérimental 151
II.3.2. Caractéristiques des boucles de dislocation 151
II.3.3. Comparaison des modélisations en DD avec le cas expérimental 152
Synthèse du chapitre 156
Références bibliographiques 157

Chapitre V. Etude expérimentale des mécanismes du fluage d'irradiation 159
I. Contexte et démarche de l'étude 160
II. Protocole expérimental 161
II.1. Essai sans contrainte appliquée 161
II.1.1. Etape de pré-écrouissage du matériau 161
II.1.2. Essais d'irradiation *in-situ* 163
II.2. Essais avec contrainte appliquée 164
III. Etude de la montée des dislocations sans contrainte appliquée 167
III.1. Montée des dislocations sous irradiation aux électrons 167
III.1.1. Montée hélicoïdale des dislocations 167
III.1.2. Discussion sur la montée hélicoïdale des dislocations sous irradiation aux électrons 168
III.2. Montée des dislocations sous irradiation aux ions 170
III.2.1. Montée des dislocations <a> 170
III.2.2. Montée des dislocations <c+a> 171
III.3. Conclusion sur les essais d'irradiation sans contrainte appliquée 171
IV. Mécanismes du fluage d'irradiation 172
IV.1. Etapes de réalisation des essais *in-situ* en température et en contrainte 172
IV.2. Mouvement des dislocations sous irradiation aux ions et sous contrainte 172
IV.2.1. Essais à haute température (400-450°C) 172
IV.2.2. Essais à température ambiante 176
IV.3. Discussion 179
IV.3.1. Echauffement induit par le faisceau d'ions 179
IV.3.2. Mécanismes de déformation sous fluage d'irradiation 181
Synthèse du Chapitre 184
Références bibliographiques 185

Conclusion et Perspectives 187

Table des figures 191

Table des tableaux..... 196

Annexes..... 197

Introduction

Contexte industriel

En France, 78% de la production électrique est issue de l'industrie nucléaire. Le parc nucléaire français est composé de 58 réacteurs, répartis sur 19 centrales. La totalité de ces réacteurs sont des « Réacteurs à Eau Pressurisée » (REP), dits de deuxième génération. Les Réacteurs à Eau Pressurisée sont composés de trois circuits distincts : le circuit primaire, le circuit secondaire et le circuit tertiaire (Figure Introduction. 1). L'eau sous pression du circuit primaire transmet l'énergie dégagée par la réaction de fission à l'eau du circuit secondaire par l'intermédiaire de générateurs de vapeur. La vapeur dégagée entraîne la rotation de la turbine, liée à l'alternateur, permettant la production d'électricité.

La réaction nucléaire a lieu dans le cœur du réacteur, au sein du circuit primaire. Le cœur du REP est constitué d'environ 150 assemblages combustibles, composés chacun de 24 tubes guides et de 264 crayons à combustibles soutenus par des grilles de maintien primaire (Figure Introduction. 2). Les tubes guides renferment les barres de contrôle qui permettent le contrôle de la réaction de fission en chaîne et donc de la puissance du réacteur. Les gaines des crayons à combustible sont les contenants des pastilles de combustibles de dioxyde d'uranium (UO_2) ou de MOX, nécessaires à la réaction de fission. Chaque gaine peut contenir jusqu'à 300 pastilles. Elles sont d'une hauteur d'environ 4 mètres et d'un diamètre extérieur de 9,5 mm pour une épaisseur de 0,56 mm. Ces gaines sont plongées dans l'eau pressurisée de la cuve et sont donc soumises à un environnement particulièrement agressif composé d'un fort flux de neutrons, d'une eau du circuit primaire à environ 155 bars et d'une température d'environ 330°C à 350°C.

Les gaines, première barrière de confinement des produits radioactifs, doivent d'une part assurer leur rôle de contenant des combustibles, mais également conserver leur intégrité tout au long de leur utilisation en réacteur. Des critères précis doivent donc être respectés dans le choix du matériau de gainage, et, grâce à leurs propriétés spécifiques, les alliages de zirconium ont été choisis comme matériau de gainage et de structure de l'assemblage combustible :

- ils ont une très faible section efficace de capture des neutrons thermiques ($0{,}185.10^{-28}$ m^2), ce qui favorise la réaction en chaîne au sein du cœur du REP,
- ils présentent une bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température et dans les conditions de fonctionnement (330 – 350°C),
- ils présentent de bonnes propriétés mécaniques à haute température et sous irradiation.

La durée d'utilisation des assemblages combustibles au sein du cœur des réacteurs est en moyenne de 3 à 4 ans. Dans un souci de sécurité et d'augmentation de la durée d'utilisation en réacteur des assemblages (burn-up), il est nécessaire, en se basant sur les retours d'expériences, de prédire et de comprendre le comportement mécanique des gaines en conditions nominales. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail de thèse.

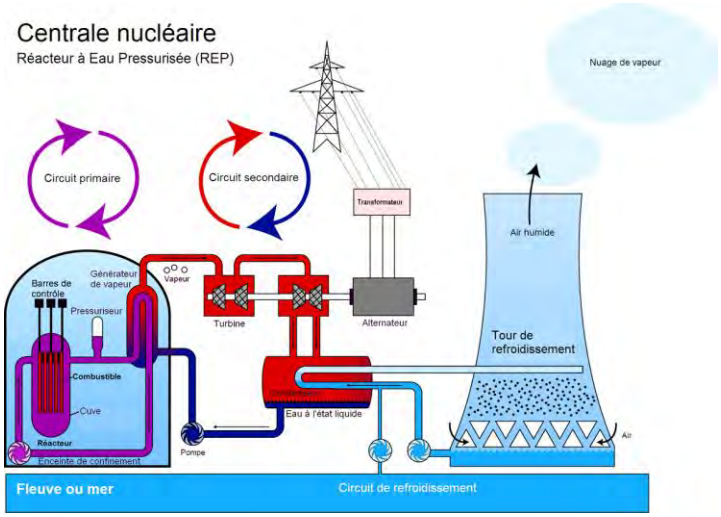
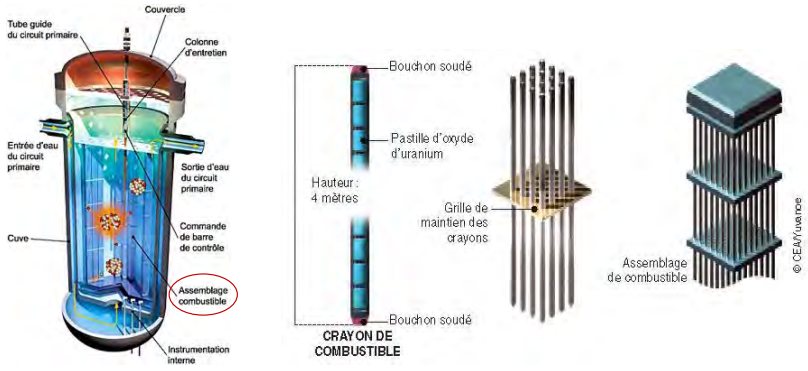


Figure Introduction. 1. Fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée



a) b)

Figure Introduction. 2. a) Cuve d'un REP contenant les assemblages combustibles b) composition d'un assemblage combustible d'un REP

Problématique et démarche de l'étude

En conditions nominales, l'environnement agressif auquel sont soumises les gaines à combustible (irradiation neutronique, sollicitations thermomécaniques, température) entraîne leur déformation viscoplastique. Au niveau macroscopique, la déformation des alliages de zirconium a été précisément étudiée, et deux régimes peuvent être différenciés : la déformation après irradiation et la déformation sous irradiation.

La déformation après irradiation ou post irradiation

La déformation dite post-irradiation correspond aux cas où les sollicitations mécaniques appliquées à la gaine sont si importantes que l'effet instantané du flux de neutrons peut être considéré comme négligeable. Au sein du réacteur, ce cas se retrouve notamment lors des transitoires de puissance, en situation d'Interaction Pastille-Gaine (IPG). Sous l'effet de la dilatation thermique, les pastilles de

combustible gonflent (sous la forme de « diabolo »). De fortes sollicitations sont alors appliquées à la gaine, et leur comportement mécanique dépend de la fluence intégrée et non plus du flux instantané de neutrons. Ces types de transitoires sont des incidents dont l'occurrence reste inférieure à 10^{-2} par réacteur et par an, et aucune rupture de gaine par IPG n'a été détectée lors de ceux qui se sont produits en France. Il reste cependant nécessaire d'étudier le comportement des gaines dans le cadre de ces sollicitations. A la suite de leur utilisation en réacteur, les assemblages combustibles usés sont retirés du réacteur et transportés afin d'être entreposés ou de subir une étape de retraitement. Lors du transport et de l'entreposage, les gaines, contenant toujours des matières radioactives, sont soumises à de nouvelles sollicitations thermomécaniques (gradient thermique, manipulation, gaz de fission…) qui peuvent également mener à leur déformation et donc à un risque de rupture.

Les études expérimentales du comportement mécanique des alliages de zirconium après irradiation montrent d'une part une augmentation du durcissement des alliages et une diminution de leur ductilité [1]–[3]. Ces évolutions du comportement mécanique macroscopique des alliages sont directement liées au glissement des dislocations et à leurs interactions avec les défauts cristallins, dont l'apparition est due à l'irradiation neutronique.

La déformation sous irradiation

La déformation dite sous irradiation considère les cas où les sollicitations thermomécaniques et le flux instantané de neutrons sont simultanément impliqués dans la déformation des gaines. Sous irradiation, les alliages de zirconium se déforment selon deux phénomènes : la croissance induite par l'irradiation et le fluage sous irradiation. La croissance libre sous irradiation correspond à une déformation directement liée au flux neutronique et en l'absence de toute contrainte. Le fluage sous irradiation, quant à lui, est lié à la combinaison du flux neutronique et de sollicitations thermomécaniques. Il est composé du fluage thermique (déformation sous contrainte activée par la température) et du fluage d'irradiation (réponse du matériau quand il est soumis au flux de neutrons et à une contrainte, phénomène faiblement affecté par la température). De nombreuses études ont permis de caractériser le comportement des alliages de zirconium lorsqu'ils sont soumis au fluage d'irradiation, et de nombreux modèles théoriques ont été proposés quant aux mécanismes microscopiques [4], [5]. Ces modèles reposent majoritairement sur un mécanisme de montée des dislocations. Cependant aucune preuve expérimentale n'a permis à ce jour de valider l'un des modèles postulés.

L'objectif de cette thèse porte sur un travail de compréhension des mécanismes microscopiques de la déformation post et sous irradiation des alliages de zirconium, mêlant une étude du mouvement des dislocations et une caractérisation approfondie des défauts cristallins induits par l'irradiation, et notamment des boucles de dislocation. Pour cela, trois axes d'études ont été suivis :



1. Une étude de l'effet seul de l'irradiation sur l'évolution de la microstructure d'un alliage, le Zy-4, a été réalisée. L'irradiation neutronique entraîne la formation de boucles de dislocation qui sont impliquées dans les mécanismes de la déformation plastique des gaines. Il est donc important de

caractériser leur évolution et leur nature. Pour cela, et afin de simuler l'irradiation neutronique, des campagnes d'irradiations aux particules chargées (aux ions lourds et aux électrons) ont été réalisées au CEA de Saclay au sein du Service de Recherche de Métallurgie Appliquée MET- Très Haute Tension (MET-THT) et à JANNus-Orsay au Centre de Sciences Nucléaires et de Science de la Matière (CSNSM). Les défauts ont été ensuite caractérisés au Microscope Electronique en Transmission (MET).

2. Afin d'étudier les mécanismes de la déformation post-irradiation, des essais de traction *in-situ* ont été effectués au MET au Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales (CEMES) du CNRS de Toulouse ainsi qu'au Service de Recherche en Métallurgie Physique (SRMP) au CEA de Saclay. Ces essais permettent d'étudier les mécanismes impliqués dans la déformation lors de l'application d'une contrainte sur un matériau préalablement irradié aux ions. L'activation du glissement des dislocations et leurs interactions avec les défauts de la microstructure ont ainsi pu être analysées. En complément, des simulations par Dynamique des Dislocations ont permis de reproduire certains cas expérimentaux observés et d'obtenir ainsi une meilleure compréhension des mécanismes.

3. L'étude des mécanismes de déformation plastique sous irradiation a été effectuée à l'aide de campagnes d'irradiation *in-situ* aux électrons au MET-THT du SRMA. Ces essais ont permis d'étudier l'évolution des dislocations tout au long de l'irradiation, dans un premier temps sans contrainte appliquée. Dans un second temps, des irradiations *in-situ* aux ions lourds ont été réalisées à l'Intermediate Voltage Electron Microscope (IVEM) d'Argonne. Dans ce cas, les effets combinés du flux d'ions et d'une contrainte appliquée ont pu être étudiés.

Le mémoire de thèse s'articule autour de cinq chapitres permettant de présenter ces différentes phases de l'étude. Le premier chapitre présente une synthèse bibliographique résumant les effets de l'irradiation sur les alliages de zirconium, ainsi que les mécanismes de la déformation plastique après et sous irradiation. Le second chapitre présente une caractérisation fine de la microstructure des alliages de zirconium obtenue après irradiation aux particules chargées. Les mécanismes de la déformation post-irradiation sont présentés et discutés dans le troisième chapitre à travers des travaux expérimentaux, et dans le quatrième chapitre par la comparaison de résultats expérimentaux avec une modélisation par Dynamique des Dislocations. Le dernier chapitre est consacré à l'étude des mécanismes de la déformation sous irradiation et notamment du fluage d'irradiation.

Références bibliographiques

[1] H. R. Higgy and F. H. Hammad, "Effect of neutron irradiation on the tensile properties of zircaloy-2 and zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 44, no. 2, pp. 215–227, Aug. 1972.
[2] L. M. Howe and W. R. Thomas, "The effect of neutron irradiation on the tensile properties of zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 2, no. 3, pp. 248–260, Sep. 1960.
[3] F. Onimus, "Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés," 2003.
[4] V. Fidleris, "The irradiation creep and growth phenomena," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 22–42, Oct. 1988.
[5] J. R. Matthews and M. W. Finnis, "Irradiation creep models — an overview," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, Oct. 1988.

Chapitre I. Etude bibliographique

Sommaire

I. Généralités sur les alliages de zirconium non irradiés 6
I.1. Propriétés cristallographiques du zirconium 6
I.2. Les alliages de zirconium 7
I.3. Les mécanismes de la déformation plastique 10
II. Les effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium 18
II.1. L'irradiation neutronique 18
II.2. Anisotropie de diffusion des défauts ponctuels 19
II.3. Microstructure des alliages de zirconium irradiés 20
II.4. Les boucles de dislocation <a> 21
III. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium après irradiation 27
III.1. Evolution des propriétés macroscopiques après irradiation 27
III.2. Mécanismes microscopiques de la déformation plastique des alliages de zirconium après irradiation 28
IV. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium sous irradiation 41
IV.1. Les mécanismes de la croissance sous irradiation 41
IV.2. Fluage sous irradiation 44
Synthèse du chapitre 52
Références bibliographiques 54

I. Généralités sur les alliages de zirconium non irradiés

I.1. Propriétés cristallographiques du zirconium

Le zirconium pur existe sous deux phases allotropiques dépendantes de la température. Pour des températures inférieures à 865°C, le zirconium présente une phase α stable, et la structure cristallographique correspondante est hexagonale compacte (HCP). Au-dessus de 865°C, le zirconium pur subit une transformation de phase, et est présent en phase β, cubique centrée, stable jusqu'à la température de fusion de 1850°C. Dans le cadre de ce travail de thèse, les températures d'étude sont proches des températures connues par les gaines au sein des réacteurs, et inférieures à la température de transformation de phase. Ainsi, seule la phase stable α sera ici considérée.

L'empilement hexagonal compact est défini par un empilement de type ABAB…, dont les coordonnées des deux atomes de la maille élémentaire, A et B, sont respectivement (0,0,0) et $(^1/_3, ^2/_3, ^1/_2)$. La maille hexagonale est définie par deux paramètres : a (taille des arrêtes de la base hexagonale) et c (hauteur du prisme). Pour l'empilement compact idéal, le rapport de ces paramètres de maille est de $\frac{c}{a} = \sqrt{8/3} = 1{,}633$. Dans le cas du zirconium en phase α à température ambiante, ce rapport est inférieur au cas idéal, $c/a = 1.59$ ($a = 3.23$ Å et $c = 5.15$ Å), ce qui correspond à une légère expansion de la maille suivant la direction <a>. Les paramètres de maille varient en fonction de la température. En effet, une expansion plus importante dans la direction <c> que suivant la direction <a> est observée avec l'augmentation de la température. Cette anisotropie de dilatation thermique a des conséquences directes sur les propriétés macroscopiques du matériau.

La notation de Miller-Bravais à quatre indices ({h,k,i=-(h+k),l}) est généralement adoptée dans le cas des matériaux hexagonaux afin de définir les plans et les directions cristallographiques. Cette notation permet en particulier de conserver la symétrie de rotation de 60° autour de l'axe <c> de la structure hexagonale compacte. Le plan de base de la maille hexagonale est défini par trois directions <a> ($\vec{a}_1$, $\vec{a}_2$, $\vec{a}_3$) séparées d'un angle de 120°. Les principaux plans et directions de la maille hexagonale sont présentés en Figure I-1.

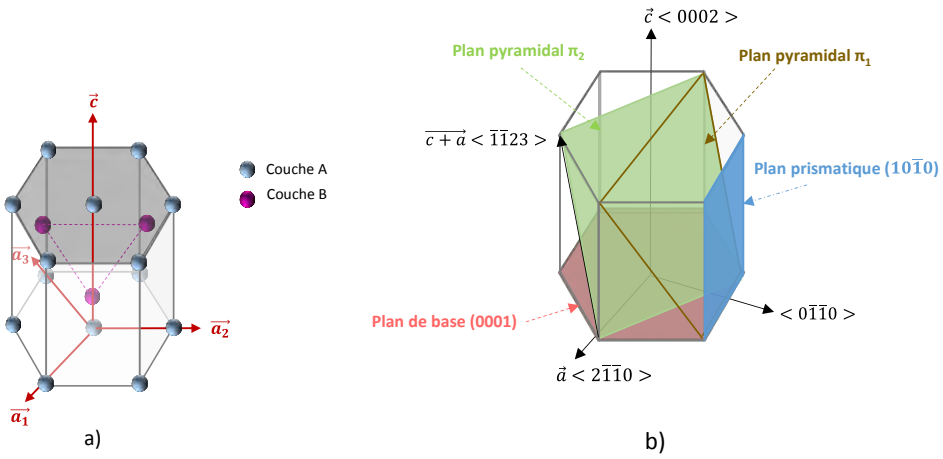


Figure I-1. Structure hexagonale compacte (HCP) a) Maille élémentaire de la structure hexagonale compacte b) Plans et directions cristallographiques suivant la notation de Miller-Bravais.

I.2. Les alliages de zirconium

I.2.1. Composition chimique des alliages de zirconium

Les alliages de zirconium, matériau de gainage des pastilles combustibles, présentent les propriétés recherchées dans le cadre d'une utilisation nucléaire, soit une bonne tenue à l'irradiation neutronique et une bonne résistance à la corrosion à haute température. Afin d'optimiser ces propriétés, plusieurs alliages ont été développés. Deux classes majeures sont distinguées: les «Zircaloys» et les alliages contenant du niobium. Le Tableau I-1 donne la composition chimique des principaux alliages de zirconium utilisés en industrie : le Zircaloy-4 (Zy-4), qui fera l'objet de cette étude, le Zircaloy-2 (Zy-2), et l'alliage contenant du niobium, le M5.

Tableau I-1. Composition chimique du Zircaloy-4, Zircaloy-2 et M5 (% massique)

	Zr	Sn	Fe	Cr	Nb	O	S
Zircaloy-4	Matrice	1,32	0,215	0,108	-	0,125	-
Zircaloy-2	Matrice	1,2 – 1,7	0,07-0,2	0,05-0,15	-	0,12	-
M5	Matrice	<0,003	0,037	0,0049	0,99	0,135	0,0018

Les différentes familles d'alliages sont distinguées en fonction des éléments d'alliages ajoutés à la matrice de zirconium, qui sont présents au sein de la matrice soit en solution solide, en position interstitielle ou substitutionnelle, soit sous forme de précipités. Dans le cas des « Zircaloys », les principaux éléments d'alliages sont l'étain et le fer, ainsi que le chrome et l'oxygène en petite quantité.

L'étain, est un élément alphagène entièrement soluble dans la matrice de zirconium α à ces teneurs, et se retrouve en position substitutionnelle. Il contribue à une amélioration des propriétés mécaniques, qui se traduit notamment par un durcissement de l'alliage, mais entraîne une dégradation de la résistance à la corrosion. La teneur en étain doit donc être contrôlée. Dans cette optique, des alliages à base de niobium tel que le M5 sont développés. L'oxygène est de même entièrement soluble dans la matrice α et se retrouve en position interstitielle. Il permet une augmentation de la dureté de l'alliage ainsi qu'une amélioration de sa résistance au fluage d'irradiation. Le fer et le chrome sont des éléments bétagènes et ont une très faible solubilité dans la matrice α. Ils sont présents sous la forme de précipités intermétalliques répartis de façon aléatoire, appelés phases de Laves, de composition $Zr(Fe,Cr)_2$ pour le Zircaloy-4. La présence de ces précipités permet également une amélioration à la tenue à la corrosion de l'alliage.

I.2.2. Etats métallurgiques et textures des produits

Les alliages sont obtenus à partir d'un minerai, le zircon ($ZrSiO_4(HfSi0_4)$), qui subit différentes étapes chimiques (attaque de chloration, distillation extractive, procédé de Kroll) menant à l'obtention de l'éponge de zirconium. Ces étapes sont importantes dans le cadre d'une utilisation nucléaire, afin de séparer le zirconium de l'hafnium dont la section efficace de capture des neutrons thermiques est très élevée (environ 1000 fois plus importante que celle du zirconium). L'éponge de zirconium est ensuite

compressée et fusionnée avec les éléments d'addition pour obtenir des lingots d'alliages de zirconium. Ces lingots subissent des étapes de forgeage et d'extrusion à chaud ainsi que plusieurs passes de laminage à froid, suivies de traitements thermiques de recristallisation intermédiaires, qui vont permettre de restaurer totalement ou partiellement les contraintes internes induites par l'élaboration des produits. Deux types de produits peuvent être ainsi obtenus : la tôle qui a subi une réduction de section de 40 à 60% par passe, et les tubes dont la réduction de section est d'environ 80% par passe grâce au procédé de laminage à pas de pèlerin. Le traitement thermique final est déterminant pour l'obtention de l'état métallurgique souhaité.

I.2.2.1. Etats métallurgiques

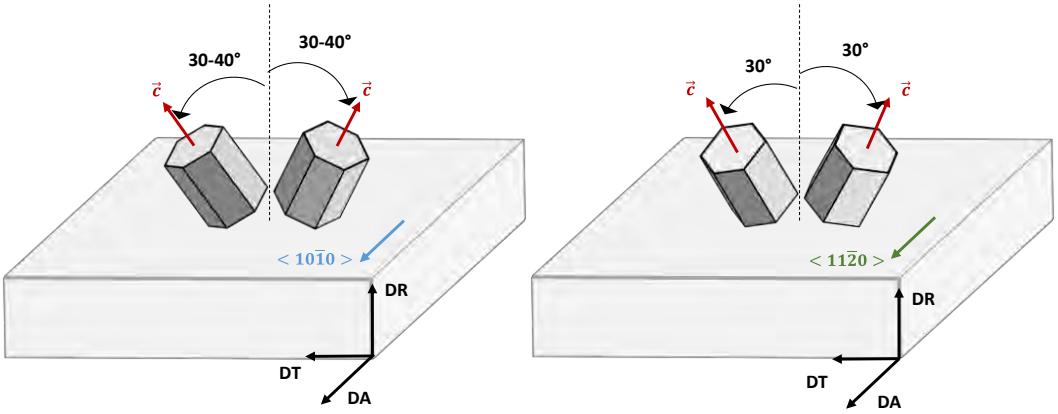
Les alliages de zirconium peuvent être obtenus sous deux état métallurgiques : l'état détendu (ou Stress Relieved Annealed), et l'état recristallisé (ou Recristallized Annealed) [1].

Actuellement, le Zircaloy-4 est utilisé sous sa forme détendue pour la réalisation des gaines à combustibles. L'état détendu est obtenu suite à un recuit final de plusieurs heures à une température comprise entre 450 et 500°C (généralement 475 °C pendant 2 heures). Ce traitement thermique ne restaure que partiellement les contraintes internes induites par l'élaboration. La microstructure se caractérise par des grains fins allongés dans la direction de laminage, de longueur moyenne comprise entre 20 et 50 µm et de largeur moyenne comprise entre 5 et 10 µm. La densité en dislocations au sein de ces grains est élevée.

L'état recristallisé (ou Recristallized Annealed) est particulièrement utilisé pour la réalisation des tubes guides et des grilles, ainsi que des gaines en alliage M5. L'état recristallisé est obtenu suite à un traitement thermique à des températures plus élevées, entre 550 et 650°C (généralement 580°C pendant 2 heures). Ce traitement final va permettre une recristallisation totale du matériau et donc une restauration complète des contraintes internes. La microstructure finale est donc caractérisée par des grains équi-axes de taille moyenne comprise entre 5 et 10 µm et la densité initiale en dislocations est faible.

I.2.2.2. Texture cristallographique des produits recristallisés

La texture cristallographique des produits finis sous forme de tubes ou de feuillard est similaire pour l'état détendu et l'état recristallisé. L'état détendu présente des axes <c> préférentiellement inclinés de 30 à 40° par rapport à la direction radiale DR des tubes (soit la direction normale DN pour la tôle) et sont étalés dans le plan radial-transverse (DR-DT) (soit le plan normal-transverse (DN-DT) pour la tôle). Les normales aux plans prismatiques <$10\bar{1}0$> sont orientées parallèlement à la direction axiale du tube DA (soit la direction de laminage DL pour la tôle). Le traitement thermique de recristallisation entraîne une rotation du plan de base de 30° autour de son pôle par rapport à l'état détendu. Les axes <c> sont donc également étalés dans le plan DR-DT et sont inclinés d'un angle d'environ 30° par rapport à DR (Figure I-2). La direction <$11\bar{2}0$> est celle qui est alors préférentiellement alignée avec la direction axiale du tube.



a) b)

Figure I-2. Texture cristallographique des alliages de zirconium a) sous leur forme détendue b) sous leur forme recristallisée [2].

Les procédés de mise en forme des alliages de zirconium permettent d'obtenir deux produits sous leur forme recristallisée: le tube TREX (Tube Reduced Extrusion) et la tôle recristallisée. Ces deux produits présentent une texture cristallographique marquée, induite par le processus de mise en forme, qui engendre un comportement macroscopique du matériau particulièrement anisotrope [2].

Le TREX est un produit intermédiaire du procédé de mise en forme des tubes. Sa texture cristallographique est constituée d'axes <c> majoritairement orientés selon la direction transverse DT et étalés dans le plan DR-DT. Les directions $<11\bar{2}0>$ sont préférentiellement orientées parallèlement à DA [3], [4].

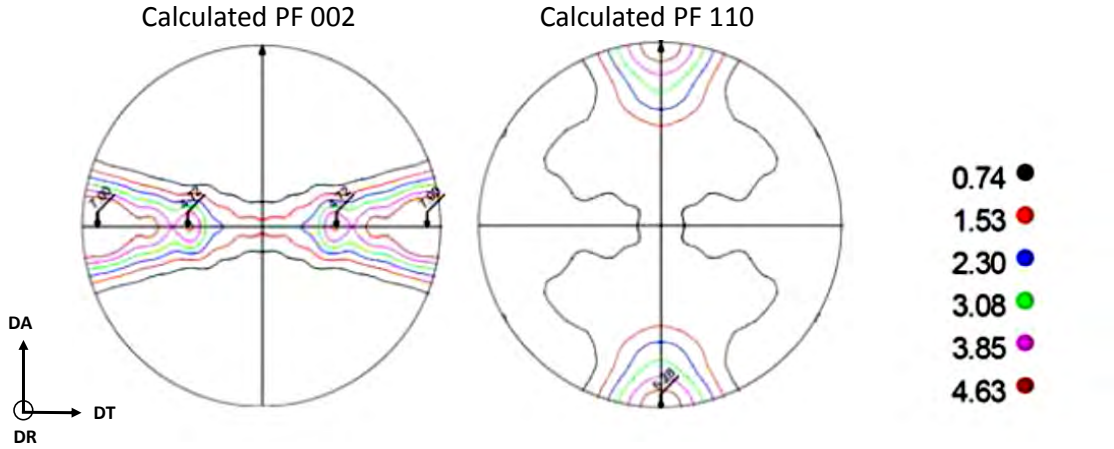


Figure I-3. Figures de pôles du Zy-4 sous la forme de tubes TREX [4].

La tôle recristallisée présente une texture cristallographique caractéristique du traitement de recristallisation. En effet, une forte densité des axes <c> est inclinée de 25 à 30° par rapport à DN et est étalée dans le plan (DN-DT). Les directions $<11\bar{2}0>$ sont de plus majoritairement parallèles à la direction de laminage DL.

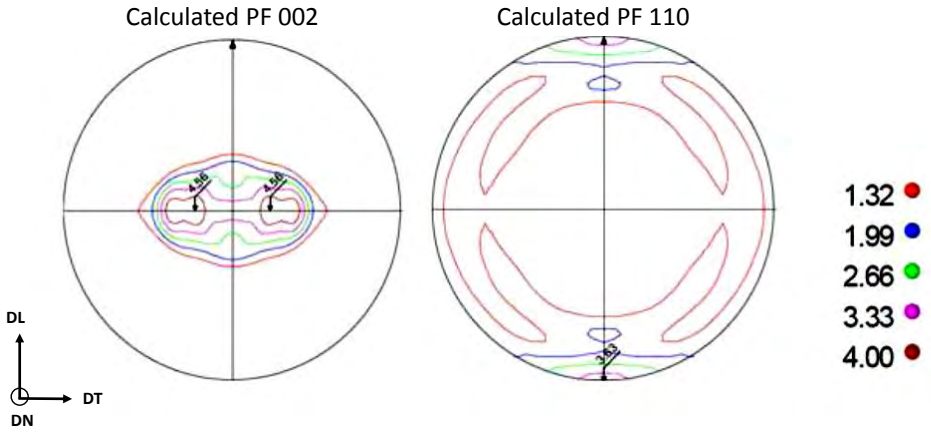


Figure I-4. Figures de pôles du Zy-4 sous la forme de tôle recristallisée [4].

I.3. Les mécanismes de la déformation plastique

La déformation plastique des matériaux cristallins est principalement engendrée par le mouvement des dislocations. Il existe deux modes de déplacement des dislocations au sein de la matrice : le glissement qui est un mouvement conservatif et la montée des dislocations, mouvement non conservatif, qui implique la diffusion d'atomes. La montée des dislocations est un mécanisme principalement actif à haute température et la température de transition entre ces deux modes de déplacement est proche d'une température égale à 0,5 fois la température de fusion (T_f = 1850°C pour le zirconium).

Les alliages de zirconium peuvent se déformer plastiquement suivant deux modes, dépendant de la sollicitation appliquée : le glissement des dislocations et le maclage. Le mécanisme de maclage n'est actif que dans des conditions de déformation particulières, notamment pour des déformations importantes et pour des températures assez faibles [2], [5]. Tenckhoff [2] démontre de plus que le maclage est principalement observé dans le cas d'essais de traction-compression suivant l'axe $\vec{c}$. La déformation par glissement des dislocations étant dominante à plus haute température, seul ce mécanisme de déformation sera évoqué lors de cette étude.

I.3.1. Déformation par glissement des dislocations dans les alliages de zirconium

I.3.1.1. Mécanisme de glissement des dislocations

Le glissement d'une dislocation correspond à un mouvement conservatif, c'est-à-dire que le mouvement de la dislocation n'implique pas de déplacement d'atomes à longue distance. La dislocation se déplace dans le plan contenant son vecteur de Burgers et sa ligne de dislocation. L'ensemble {plan de glissement ; vecteur de Burgers} définit le système de glissement de la dislocation. Les dislocations coins et mixtes ne peuvent ainsi glisser que dans un plan unique. Au contraire, les dislocations vis peuvent glisser dans plusieurs plans d'orientations différentes.

La vitesse de la déformation plastique est directement liée à la densité de dislocations mobiles présentes au sein du matériau, mais aussi à la vitesse de glissement de ces dislocations [6].

$$\dot{\varepsilon} = \rho_m b \bar{v} \qquad \textbf{Eq. I-1}$$

avec ρ_m la densité de dislocations mobiles, b le vecteur de Burgers et $\bar{v}$ leur vitesse de glissement.

Le glissement des dislocations est activé thermiquement et leur vitesse de glissement augmente avec la température. Dans le cadre de la théorie de l'activation thermique de la déformation plastique, les facteurs de résistance au glissement (obstacles, glissement dévié…) peuvent être modélisés par des barrières d'énergie [7]. La probabilité de franchissement de ces barrières dépend du facteur de Boltzmann : exp ($\Delta G/kT$), avec ΔG la barrière d'énergie considérée, T la température et k la constante de Boltzmann. La contrainte appliquée aide de plus au franchissement des obstacles par la dislocation. Cet effet de la contrainte est pris en compte dans la détermination de la barrière énergétique :

$$\Delta G = \Delta G_0 - \tau V \qquad \textbf{Eq. I-2}$$

avec ΔG_0 la barrière énergétique sans contrainte appliquée, τ la contrainte connue par la dislocation et V le volume d'activation.

Dans le cas de barrières énergétiques importantes à franchir en comparaison à la température (cas des métaux de structure HCP), deux mécanismes de franchissement prenant en compte la structure de cœur des dislocations sont principalement connus : le mécanisme de Peierls et le mécanisme de « locking/unlocking » [8]. De manière générale, le mécanisme de Peierls est actif notamment à haute température et permet un glissement régulier des dislocations. Il prend en compte l'effet intrinsèque de friction du réseau sur la dislocation. Dans le cas de ce mécanisme, la dislocation se déplace entre deux vallées de Peierls par double décrochements, c'est-à-dire par la création de deux segments coins, permettant un glissement facile de la dislocation. Ces vallées de Peierls sont le résultat d'un étalement non planaire du cœur de la dislocation vis.

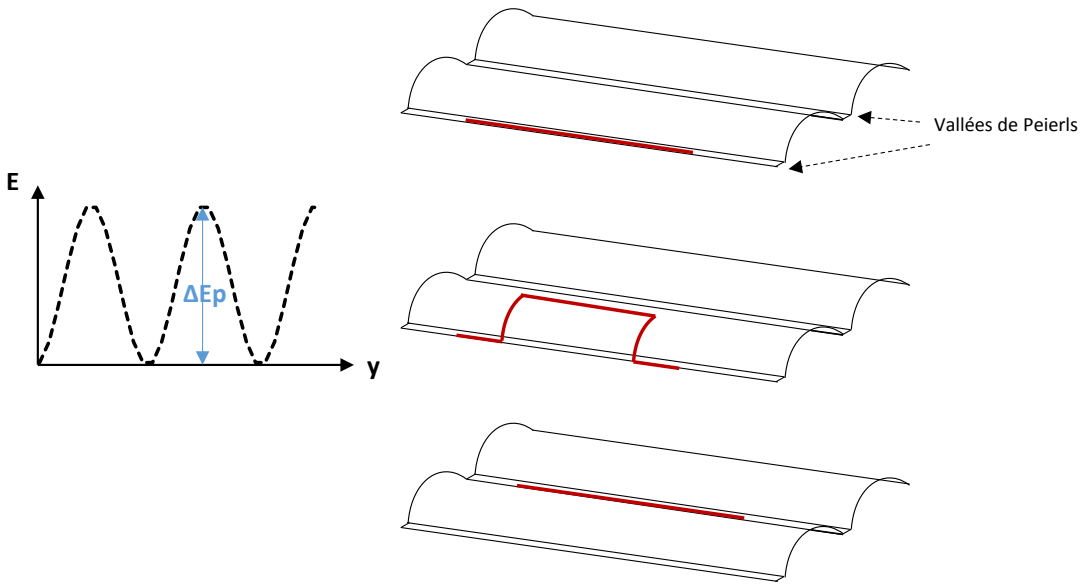


Figure I-5. Mécanisme de Peierls : glissement de la dislocation d'une vallée de Peierls vers une vallée voisine par la création de doubles décrochements.

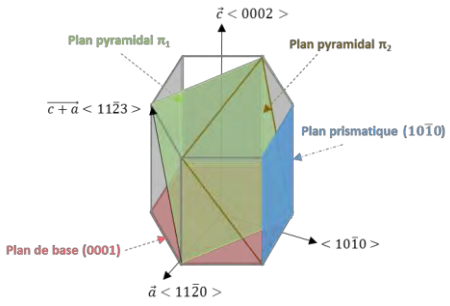
Une dislocation peut avoir différentes configurations de structure de cœur présentant des mobilités et des énergies différentes. Le changement de structure de cœur peut se faire soit par une transformation glissile-sessile appelée « locking », soit par une transformation inverse, sessile-glissile, appelée « unlocking ». Dans certains cas, une alternance de ces deux transitions est possible conduisant au mécanisme « locking/unlocking », généralement favorable à basse température. Dans ce cas, le déplacement de la dislocation ne se fait plus par la formation de doubles décrochements, mais par l'adoption d'une configuration métastable glissile de plus haute énergie qui permet à la dislocation un glissement rapide vers une autre vallée de Peierls avant de retrouver sa configuration de cœur initiale. La transition de structure de cœur peut aussi se faire par glissement dévié (ou cross-slip), correspondant à une transformation glissile-glissile. Ce mécanisme est thermiquement activé et permet aux dislocations vis de glisser d'un plan à un autre par déviation. Plusieurs mécanismes ont été proposés pour décrire ce phénomène de déviation, tels que les mécanismes de Friedel-Escaig et le mécanisme de Fleischer [8].

I.3.1.2. Systèmes de glissement des alliages de zirconium

Le critère de Peierls-Nabarro [9] avance que le glissement des dislocations est facile dans les plans et directions les plus denses. Pour les métaux de structure HCP, deux directions de glissement sont suffisamment denses pour permettre le glissement: la direction <a> = $\frac{1}{3} < 11\bar{2}0 >$ et la direction <c+a> = $\frac{1}{3} < 11\bar{2}3 >$. De plus, 4 plans de glissement principaux sont connus : Basal, Prismatique, Pyramidal π_1, Pyramidal π_2, permettant 5 systèmes de glissements possibles (Tableau I-2).

Tableau I-2. Systèmes de glissement principaux des métaux à structure hexagonale compacte [2].

Plan de glissement	Normale au plan	Direction de glissement	Nombre de systèmes
Basal B	{0001}	<a> = $\frac{1}{3}$ <$11\bar{2}0$ >	3
Prismatique P	$\{1\bar{1}00\}$	<a> = $\frac{1}{3}$ <$11\bar{2}0$ >	3
Pyramidal π_1	$\{1\bar{1}01\}$	<a> = $\frac{1}{3}$ <$11\bar{2}0$ >	6
Pyramidal π_1<c+a>	$\{1\bar{1}01\}$	<c+a> = $\frac{1}{3}$ <$11\bar{2}3$ >	12
Pyramidal π_2	$\{11\bar{2}2\}$	<c+a> = $\frac{1}{3}$ <$11\bar{2}3$ >	6



Dans le cas des matériaux de structure hexagonale ayant un rapport c/a idéal, le plan basal est le plan le plus dense, et donc le système de glissement facile. Dans le cas des métaux de structure HCP, le critère de Legrand [10] permet de déterminer le plan de glissement facile des matériaux hexagonaux en s'appuyant sur les énergies de fautes d'empilement des plans prismatiques et basal :

$$R = (\gamma_B C_{66}/\gamma_P C_{44}) \qquad \textbf{Eq. I-3}$$

avec γ_B et γ_P les énergies de faute d'empilement des plans basal et prismatique et C_{66} et C_{44} : les coefficients d'élasticité anisotrope.

Si R est inférieur à 1 alors le plan de glissement facile correspond au plan de base. Dans le cas des alliages de zirconium, le critère de Legrand est supérieur à 1, et dans ce cas, le plan de glissement facile est le plan prismatique.

Un classement de la facilité de glissement dans les différents systèmes est réalisable par comparaison de leur cissions critiques respectives. La contrainte appliquée σ_a est liée, par la loi de Schmid, à la contrainte de cisaillement τ par la relation :

$$\tau = \sigma_a.\cos\alpha.\cos\phi \qquad \textbf{Eq. I-4}$$

avec α l'angle entre la direction d'application de la contrainte et la normale au plan de glissement, φ l'angle entre la direction d'application de la contrainte et la direction de glissement et le produit $\cos(\alpha).\cos(\phi)$ qui représente le facteur de Schmid.

Les systèmes de glissement préférentiellement activés sont donc ceux qui présentent le facteur de Schmid le plus élevé [6]. Un classement des systèmes de glissement préférentiels a été proposé dans la littérature, néanmoins ce classement reste qualitatif en raison des difficultés expérimentales relatives à la détermination des cissions critiques [11] :

$$\tau_{P<a>} < \tau_{\pi_1<a>} < \tau_{B<a>} < \tau_{\pi_1<c+a>} \ll \tau_{\pi_2<c+a>} \qquad \textbf{Eq. I-5}$$

Le glissement dans la direction <a> semble donc être le plus facile à activer. Le glissement des dislocations dans la direction <c+a> est possible dans les plans pyramidaux de première espèce π_1 et de seconde espèce π_2. Ce dernier système de glissement, qui permet d'accommoder la déformation suivant l'axe <c>, n'a été que très rarement observé expérimentalement [2], [12].
Dans le cadre de cette étude où les déformations plastiques appliquées sont faibles, nous nous concentrerons sur le glissement des dislocations qui présentent un vecteur de Burgers <a>.

I.3.1.2.1. Le glissement prismatique <a>

Plusieurs observations expérimentales en Microscopie Electronique en Transmission (MET) confirment que le système principal de glissement des alliages de zirconium est le système prismatique <a> [13]–[15], et ce notamment à « basse » température (<200°C). Geyer [12] observe le glissement prismatique à 20°C mais également à 350°C dans le Zy-4 et note la présence de dislocations rectilignes à caractère vis. La présence exclusive de dislocations vis atteste d'une différence de mobilité entre les dislocations vis et coins. Cette différence de mobilité serait expliquée par la structure de cœur des dislocations vis qui serait étalée dans un autre plan que le plan prismatique (généralement supposé être le plan de base ou un plan pyramidal de première espèce), ce qui entraînerait une configuration sessile de la dislocation vis. En s'appuyant sur l'étude du glissement des dislocations dans les métaux à structure cubique centré, Naka et al. [16] suggèrent que le mouvement de ces dislocations peut être thermiquement activé via le mécanisme de doubles décrochements permettant le franchissement des vallées de Peierls. Clouet et al. [15] montrent en effet que, dans le cas du zirconium, la barrière d'énergie à dépasser pour l'activation du glissement des dislocations dans le plan prismatique est très faible, et que l'activation d'un mécanisme de glissement de type « locking/unlocking » n'est pas

nécessaire pour ce système. Cependant, il avance également un effet négligeable de la friction du réseau dans les plans prismatiques pour de faibles températures (de -180°C à la température ambiante). Derep [17] a estimé un volume d'activation du glissement prismatique compris entre 200 et 400 b^3 à 350°C pour les alliages de Zy-4 recristallisés.

Une forte sensibilité de la cission critique du système prismatique à la température a été démontrée, et en particulier pour de basses températures (<250°C) [12], [13]. En effet, l'augmentation de la température entraîne une diminution de la contrainte critique, ce qui prouve l'existence d'une activation thermique du mouvement des dislocations. Une augmentation de la cission critique avec la teneur en oxygène est également observée (Figure I-6).

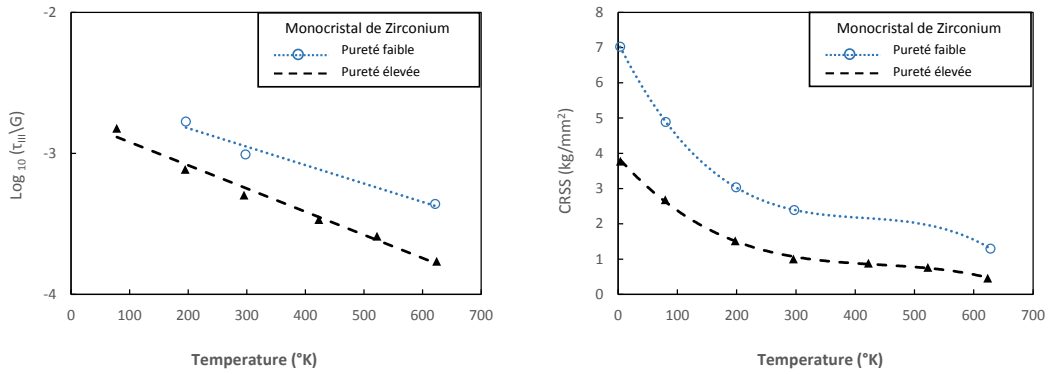


Figure I-6. Evolution de la cission critique en fonction de la température et de la pureté du matériau dans le cas d'un monocristal de zirconium : concentration en oxygène de 120 ppm pour la pureté la plus élevée et concentration en oxygène de 200 ppm pour le matériau le moins pur [13].

Un plateau athermique est de plus observé pour une plage de températures comprise entre 300 et 400°C, dépendante de la vitesse de sollicitation [12], [17]–[19]. Ce plateau athermique est généralement associé au phénomène de vieillissement dynamique, correspondant à des interactions dynamiques entre les dislocations vis et les atomes mobiles d'oxygène [20]. Chaari et al. [21] ont caractérisé par calcul ab-initio l'interaction des atomes d'oxygène avec les dislocations. Des interactions entraînant un ralentissement du glissement des dislocations par interactions répulsives ou piégeage sont observées et conduisent à un durcissement du matériau. Caillard et al. [22] observent également des preuves expérimentales du vieillissement dynamique lors d'essais au microscope électronique en transmission sur un alliage de zirconium. En effet, pour des températures correspondant aux températures d'observation du plateau athermique, le mouvement des dislocations, initialement homogène, est très irrégulier laissant penser à un mécanisme de traînage des solutés. Ce mécanisme de traînage de solutés est thermiquement activé.

I.3.1.2.2. Le glissement <a> dans les plans pyramidaux de première espèce

Le glissement <a> dans les plans pyramidaux de première espèce π_1 est défini comme un glissement secondaire. Le glissement pyramidal simple a été observé dans de rares cas, notamment pour des températures inférieures à 200°C [12], [23]. Cependant, à haute température (>200°C) le glissement pyramidal est observé sous la forme de glissement dévié du glissement prismatique des dislocations vis <a>. Ce glissement dévié a notamment été observé par Geyer [12] à 20°C mais à plus forte fréquence à 350°C. Chaari et al. [24] ont étudié, par simulations ab-initio et par calcul en potentiels

empiriques, le glissement dévié des dislocations vis dans les plans pyramidaux et démontrent une configuration du cœur de la dislocation temporairement métastable dans le plan pyramidal. De plus, l'activation thermique est nécessaire pour permettre le glissement pyramidal <a>. En effet, pour une activation thermique importante, une seconde configuration métastable a été déterminée, avec une dislocation totalement étalée dans le plan pyramidal [25].
De façon générale, le glissement <a> dans les plans pyramidaux de première espèce semble donc plus difficile à activer que le glissement prismatique. De plus la sensibilité de la cission critique aux impuretés semble moins importante que dans le cas du glissement prismatique [26].

I.3.1.2.3. Le glissement <a> dans le plan de base

Le glissement <a> dans le plan de base n'est activé que dans certains cas spécifiques. Akhtar [27] observe le glissement basal pour des monocristaux de zirconium dans des cas où l'orientation cristallographique est défavorable au glissement prismatique, et pour des températures élevées, supérieures à 570°C. Le mécanisme proposé pour expliquer le glissement basal repose alors sur la recombinaison de dislocations dissociées appartenant aux plans prismatiques et de glissement dévié. Chaari et al. [24] démontre que le mécanisme de glissement des dislocations dans le plan de base est similaire à celui du glissement pyramidal décrit précédemment. Geyer [12] observe le glissement basal dans le Zy-4, malgré des glissements prismatiques et pyramidaux plus fréquents. Le glissement des dislocations dans le plan de base est observé à 20°C pour de forts taux d'écrouissage dans la direction axiale (>4%) et à 350°C, pour des déformations supérieures à 1% suivant la direction circonférentielle. De récentes observations [28] démontrent également l'observation du glissement de dislocations rectilignes dans le plan basal, preuves de la forte friction du réseau dans ce plan. Le cœur des dislocations serait étalé hors du plan de glissement, et leur mouvement serait possible par un mécanisme de Peierls avec la formation de doubles décrochements coins.

I.3.2. Le mécanisme de montée des dislocations

A basse température, la déformation plastique est induite par le glissement des dislocations. A plus haute température, (supérieures à 0,5 T_f), le mouvement des dislocations par montée est activé. Dans le cas du zirconium, T_f est égale à 1850°C, et pour une température de 0,5 T_f, le zirconium se trouve sous sa phase stable β. Il est donc probable que la température de transition entre le mode de glissement des dislocations et la montée soit plus faible. Le mécanisme de montée des dislocations est notamment proposé pour expliquer la déformation par fluage thermique des alliages de zirconium. La montée d'une dislocation traduit le mouvement de cette dernière dans un plan ne comprenant pas son vecteur de Burgers $\vec{b}$. C'est un mécanisme impliquant la diffusion d'atomes, ce qui va permettre la « dissolution » ou « l'extension » d'un demi-plan supplémentaire d'une dislocation et entraîner la montée de cette dernière hors de son plan de glissement. Dans le cas d'une déformation plastique en température, hors irradiation et n'impliquant pas de sursaturation de défauts ponctuels, le transport de matière se fait grâce à la diffusion de lacunes thermiques. A l'équilibre thermique, la concentration atomique en lacunes est donnée par la relation [81]:

$$c_0 = e^{-E_f/kT} \qquad \textbf{Eq. I-6}$$

avec E_f l'énergie de formation d'une lacune et k la constante de Boltzman.

Dans le cas où un gradient de concentration de lacunes existe, un flux de lacunes dans le cristal, opposé au flux de matière, est créé et est lié au coefficient de diffusion des lacunes D_l définit par :

$$D_l = \nu . a^2 . e^{-E_m/kT} \quad \textbf{Eq. I-7}$$

avec E_m l'énergie de migration des lacunes et v la fréquence de vibration des lacunes et a le paramètre de maille du cristal.

La montée d'une dislocation s'effectue grâce à la formation de crans qui agissent comme sources ou puits de défauts ponctuels et qui se déplacent sur la dislocation grâce à l'émission ou l'absorption des lacunes. Seules les dislocations purement vis ne sont pas sujettes à la montée.

Dans le cas de la plasticité, la principale force motrice correspond à la contrainte appliquée et favorise ou non l'émission des lacunes au niveau des crans. La vitesse de montée est donc dépendante la concentration de crans le long de la ligne de dislocation. Les crans sont de plus soumis à des forces mécaniques, et notamment à la force induite par la contrainte appliquée, à la tension de ligne, et à la force chimique résultante de la concentration en défauts ponctuels au voisinage de la dislocation [9].

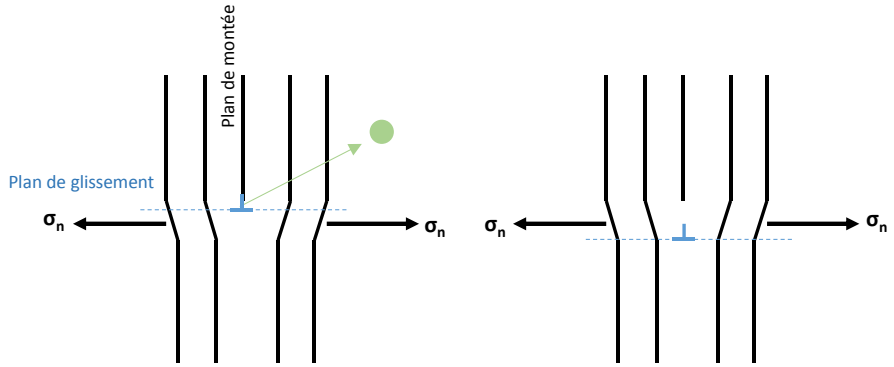


Figure I-7. Montée d'une dislocation coin par émission d'une lacune thermique.

Un modèle simple décrivant le fluage par montée est le modèle de fluage par montée pure (Figure I-8). Deux types de dislocations sont définis : les dislocations de type 1 dont le vecteur de Burgers est perpendiculaire à la contrainte et les dislocations de type 2 qui ont un vecteur de Burgers parallèle à la contrainte. La vitesse de montée moyenne des dislocations s'exprime alors :

$$\bar{v}_m = \frac{D_l}{b}(c_l^2 - c_l^1) = 2.\frac{D_l}{b}.c_0.\sinh(\sigma\Omega/kT) \quad \textbf{Eq. I-8}$$

En considérant le terme $(\sigma\Omega/kT)$ inférieur à 1, la vitesse moyenne de montée s'exprime :

$$\bar{v}_m = \frac{2D_l}{b}.c_0.(\sigma\Omega/kT) \quad \textbf{Eq. I-9}$$

En injectant $\bar{v}_m$ l'équation Eq. I-1 dans le cadre de la montée, la vitesse de déformation est donnée par : $\dot{\varepsilon} = \rho_m . 2D_l . c_0 . (\sigma\Omega/kT)$. Il est généralement considéré que σ est proportionnelle à la racine carrée de ρ_m. La vitesse de fluage est donc proportionnelle à la contrainte élevée au cube :

$$\dot{\varepsilon} \propto \sigma^3 D_l c_0 \qquad \textbf{Eq. I-10}$$

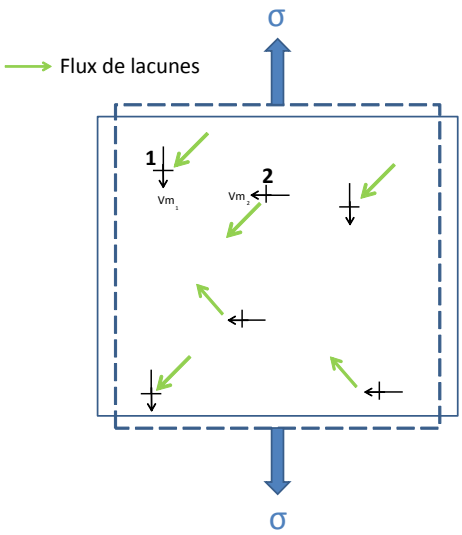


Figure I-8. Modèle de fluage par montée pure.

Cette première partie de l'étude bibliographique permet d'apporter des premières informations sur la structure cristallographique des alliages de zirconium, ainsi que sur leurs différentes caractéristiques (états métallurgiques, texture des produits…). Les modes de déformation par glissement et montée des dislocations dans les alliages non irradiés ont également été présentés.

Au sein des réacteurs à eau pressurisée, les alliages de zirconium subissent une irradiation aux neutrons rapides. L'objectif de la partie suivante sera d'étudier l'impact de cette irradiation sur les caractéristiques de leur microstructure.

II. Les effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium

En fonctionnement nominale au sein des REP, les gaines à combustibles et les tubes en alliage de zirconium sont soumis à un flux de neutrons rapides, résultant d'une réaction de fission entre le combustible et les neutrons thermiques. Cette irradiation neutronique des alliages entraîne une modification de leur comportement mécanique intrinsèquement liée à une évolution de leur microstructure.

II.1. L'irradiation neutronique

La réaction de fission ayant lieu au sein du cœur des REP va entraîner l'émission de neutrons rapides, dont l'énergie (supérieure à 1 MeV) est beaucoup plus importante que l'énergie seuil de déplacement des atomes dans les alliages de zirconium (40 eV) [29]. Des interactions s'opèrent donc entre les neutrons thermiques et les atomes du cristal par le biais de réactions nucléaires (inélastiques) et de collisions élastiques, les collisions inélastiques pouvant être négligées dans le cas des alliages de zirconium.

Lors de la collision élastique entre un neutron et un atome du réseau cristallin, une partie de l'énergie cinétique du neutron est transmise à l'atome et, dans le cas où cette énergie transmise est supérieure à l'énergie seuil de déplacement des atomes, ce dernier peut être éjecté de son site cristallin. Le déplacement de ce premier atome (Primary Knocked Atom ou PKA) entraîne la création une paire de Frenkel composée d'une lacune et d'un auto-interstitiel appelé Self-Interstitial Atom (SIA). Si l'énergie du PKA est suffisante, l'atome continue son mouvement à travers le cristal, et interagit avec de nouveaux atomes entraînant la formation de cascades de déplacements, composées d'une zone riche en lacunes (en particulier au cœur des cascades) et de zones riches en auto-interstitiels en périphérie.

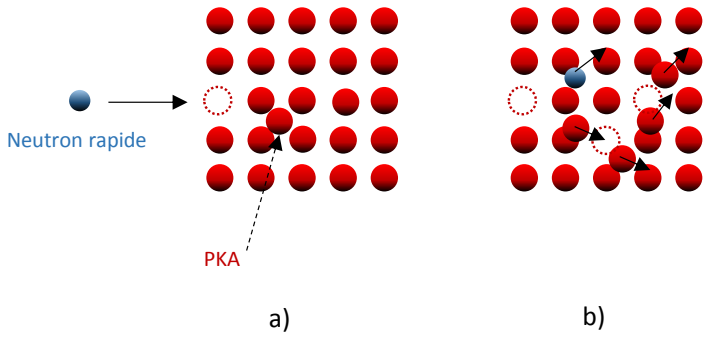


Figure I-9. Collision élastique d'un neutron rapide avec un atome du réseau cristallin a) création d'une paire de Frenkel b) formation d'une cascade de déplacements.

Lors de l'irradiation aux neutrons des alliages de zirconium, plusieurs centaines d'atomes peuvent être déplacés dans chaque cascade mais une grande majorité des lacunes et des interstitiels créés se recombinent au bout de quelques dizaines de picosecondes, entraînant une phase d'effondrement de la cascade. Seuls quelques amas de type bi ou tri lacunes (ou interstitiels) et quelques défauts ponctuels résiduels subsistent à cette recombinaison instantanée et sont libres de diffuser. Pour des échelles de temps plus longues (environ 10^{-6} seconde pour la diffusion des SIAs et 1 seconde pour la

diffusion des lacunes), les défauts ponctuels résiduels peuvent s'éliminer vers les puits de la microstructure (dislocations, joints de grains, précipités…) où s'agglomérer sous formes d'amas bidimensionnels (boucles de dislocation), ou tridimensionnels (cavités).

L'endommagement d'un matériau est mesuré en nombre de déplacements par atome (dpa). Le calcul du nombre de déplacements par atome dépend du flux de neutrons et de la section efficace d'interaction des neutrons avec les atomes du cristal. La section efficace d'absorption des neutrons rapides avec le zirconium étant très faible, ils traversent l'ensemble de l'épaisseur de la gaine et entraînent la création de dommages dans toute la gaine.

II.2. Anisotropie de diffusion des défauts ponctuels

La maille cristalline du zirconium possède une « structure ouverte » qui favorise la diffusion des interstitiels à travers des chemins préférentiels. Cette structure, associée à l'anisotropie cristallographique de la maille, conduit vraisemblablement à une anisotropie de diffusion des défauts ponctuels. Bien que la détermination expérimentale des coefficients de diffusion soit très difficile, plusieurs études numériques ont permis d'émettre de premières hypothèses quant à la mobilité des SIAs et des lacunes.

La diffusion des auto-interstitiels est rapide et serait anisotrope. Différents travaux, basés sur l'utilisation de potentiels empiriques, ont démontré l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels dans le zirconium, qui migrent plus facilement dans le plan de base, que suivant l'axe <c> [30]–[34]. Cette anisotropie semble diminuer avec l'augmentation de la température [32]. Cependant, bien que l'anisotropie de diffusion des SIAs soit généralement admise, plusieurs auteurs avancent, à l'aide de calculs ab-initio, qu'elle est en réalité plus faible que celle déterminée par les calculs en potentiels empiriques [35], [36].

Les énergies d'activation de la diffusion des lacunes ont été déterminées de façon expérimentale [37] et par calculs en potentiels empiriques [30], [31], [34] dans le cas du zirconium pur. Ces énergies d'activation sont plus élevées que celle des SIAs, démontrant une activation plus difficile et plus lente que pour les auto-interstitiels. De plus, une diffusion quasi-isotrope des lacunes est observée [30], [34], [37]. La diffusion des lacunes peut être facilitée par la présence d'atomes d'espèces chimiques en solution dans la matrice, qui se retrouvent en position interstitielle. Ces atomes sont des diffuseurs « ultra-rapides » (tels que le fer ou le chrome) et vont s'associer aux lacunes, formant un couple interstitiels/lacunes qui diffuse rapidement dans la matrice.

Les différentes études numériques et expérimentales ont donc démontré une Différence d'Anisotropie de Diffusion (DAD) entre les auto-interstitiels et les lacunes. En effet, les auto-interstitiels diffusent préférentiellement vers le plan de base, alors que la diffusion des lacunes est considérée comme quasi-isotrope. Cependant, le modèle DAD est remis en question par les résultats obtenus en ab-initio qui démontrent une diffusion des auto-interstitiels très peu anisotrope et une anisotropie de migration des lacunes, préférentielle vers le plan de base, qui diminuerait avec la température [35], [36], [38]. La prise en compte de la diffusion rapide de petits amas interstitiels dans le plan de base pourrait alors expliquer les contradictions observées entre ces calculs ab-initio et les déformations de croissance mesurées [36].

II.3. Microstructure des alliages de zirconium irradiés

II.3.1. Précipitation induite par l'irradiation

L'irradiation neutronique entraîne une altération de la stabilité des différentes phases au sein des alliages de zirconium, qui peut entraîner une accélération de la précipitation. C'est le cas notamment des alliages composés de niobium qui présentent, après irradiation, des nano-précipités au sein de leur matrice. Une dissolution ou une amorphisation totale ou partielle des précipités est, de plus, possible sous irradiation. La réaction d'amorphisation consiste en une transformation de leur structure cristalline en une structure amorphe, et dépend de la température d'irradiation et du flux appliqué. Dans le Zy-4, pour une dose de $0{,}5.10^{25}$ $n.m^{-2}$ et des températures inférieures à 80°C, les précipités intermétalliques subissent tous une transformation d'amorphisation rapide [39]. Entre 250°C et 350°C, les phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ présentent une structure duplexe, obtenue par une amorphisation progressive, de la périphérie du précipité vers le cœur. La transformation des phases de Laves, s'accompagne d'une diminution de leur concentration en fer, qui est remis en solution dans la matrice [39]. Pour des températures plus importantes, les phases de Laves conservent leur structure cristalline. Il est à noter que la précipitation de phases secondaires a été observée dans du Zy-4 aux joints de grains et coïnciderait avec une dissolution des précipités initialement présents dans la matrice [40].

II.3.2. Amas de défauts ponctuels

Les défauts ponctuels induits par l'irradiation peuvent s'éliminer aux puits de la microstructure ou s'agglomérer sous forme de défauts planaires : les boucles de dislocation, ou de défauts tridimensionnels : les cavités. La formation de cavités dans le zirconium n'a été observée que dans des conditions très spécifiques sous irradiation aux neutrons et aux ions lourds, et notamment lors d'essais réalisés avec la présence de gaz solubles [41]. De plus, la présence d'impuretés et des fluences élevées semblent favoriser la formation de cavités [40]. De Carlan [42] et Tournadre [3] démontrent la présence de cavités lors d'irradiations aux électrons de Zy-4 pour des doses importantes. De Carlan [42] démontre de plus un effet non négligeable des impuretés et notamment du fer sur la stabilité des cavités au sein de la matrice.

La formation de cavités n'étant observée que dans de rares conditions (pour des raisons de stabilité énergétique [38]), les défauts ponctuels vont, dans la majeure partie des cas, s'agglomérer sous la forme de boucles de dislocation. Ces boucles peuvent être de nature lacunaire (amas de lacunes) ou interstitielle (amas d'interstitiels). Dans les alliages de zirconium, les boucles se forment principalement dans les plans prismatiques et basaux. Les boucles prismatiques <a> ont un vecteur de Burgers qui n'est pas contenu dans le plan de la boucle.

Contrairement aux boucles <a> qui apparaissent dès les premiers stades de l'irradiation, les boucles <c> apparaissent à fortes fluences dans les plans de base et sont uniquement de nature lacunaire. Ces boucles sont à la base des mécanismes microscopiques à l'origine de l'accélération de croissance observée sous irradiation. Les fluences étudiées lors de cette thèse restent trop faibles pour engendrer la formation et la croissance de boucles à composante <c>. Seules les caractéristiques des boucles prismatiques <a> seront donc présentées dans la suite de ce chapitre.

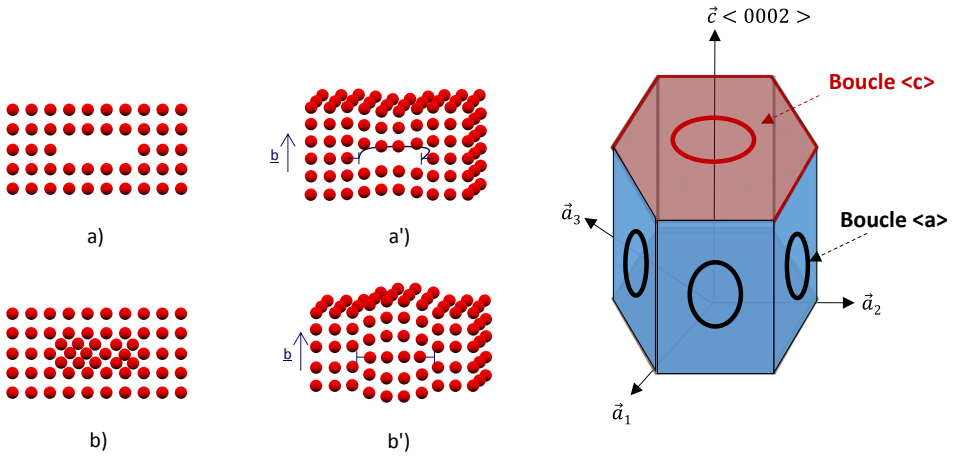


Figure I-10. Formation de boucles de dislocation a) amas plan lacunaire a') boucle de dislocation lacunaire b) amas plan interstitiel b') boucle de dislocation interstitielle.

II.4. Les boucles de dislocation <a>

II.4.1. Observations expérimentales et caractérisation des boucles de dislocation <a>

La caractérisation des boucles de dislocation induites par l'irradiation dans les alliages de zirconium a longtemps été la source de désaccords au sein de la communauté scientifique. En 1979, une étude collaborative, ou « Round-Robin », rassemblant plusieurs laboratoires de pays différents, est organisée afin de lever l'incertitude concernant la caractérisation des défauts d'irradiation [43].

II.4.1.1. Caractérisation des boucles de dislocation <a> sous irradiation aux neutrons

Les études réalisées lors de ce « Round Robin » ont été menées sur des échantillons de zirconium pur et d'un alliage, le Zircaloy-2 (Zy-2), pour des températures allant de 250 à 400°C et pour une fluence maximale de 1.10^{25} n.m^{-2}. Les résultats obtenus ont démontré que les défauts induits par l'irradiation aux neutrons sous de telles conditions étaient exclusivement des boucles de dislocation <a> parfaites. Aucune boucle à composante <c> n'a été observée. Les boucles <a> sont observables pour de faibles fluences dès 2.10^{23} n.m^{-2} sous la forme de « black dots », et ont un vecteur de Burgers de type <a>, $\vec{b} = 1/3 < 11\bar{2}0 >$. Northwood et al. [44] démontrent que des boucles présentant les trois types de vecteurs de Burgers <a> cohabitent au sein de la microstructure en proportions égales. Dans le cas où le vecteur de Burgers est strictement perpendiculaire au plan d'habitat de la boucle, celle-ci est considérée comme purement coin. Jostsons et al. [45] démontrent que les boucles <a> ne sont pas strictement contenues dans les plans prismatiques $\{10\bar{1}0\}$, mais sont réparties entre les plans prismatiques de première espèce $\{10\bar{1}0\}$ et les plans de type $\{11\bar{2}0\}$. Le plan d'habitat des boucles est de plus généralement incliné vers les plans pyramidaux de première espèce π_1 avec une majorité des boucles contenues dans des plans proches de plans $\{10\bar{1}0\}$ [45], [46].

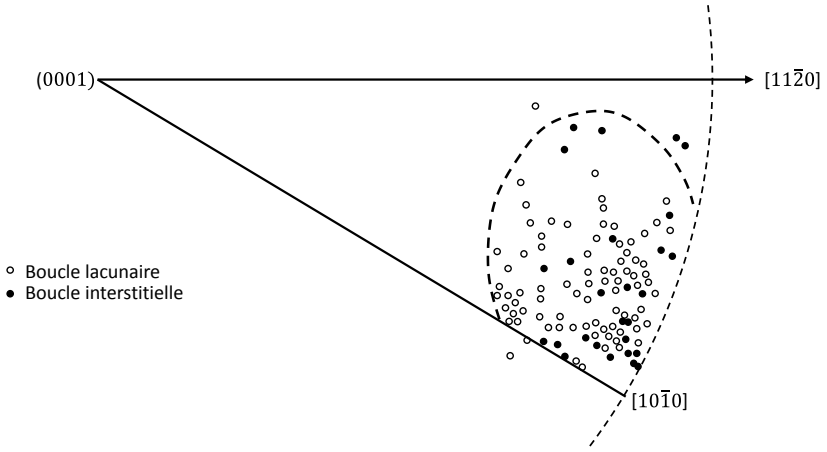


Figure I-11. Distribution des normales aux plans d'habitats des boucles de dislocation <a> relevées dans du zirconium pur irradié à une fluence de 1,4.10^{20} n.cm^{-2} et recuit 1h à 490°C [45].

Les normales aux plans d'habitat des boucles sont de plus inclinées d'un angle de 15 à 35° par rapport à la direction <10$\bar{1}$0> [43]. Les vecteurs de burgers <a> ne sont donc pas strictement perpendiculaires aux plans d'habitat des boucles et ces dernières ne sont donc pas purement coins. Kelly et Blake [46] proposent une cartographie de la distribution en « ailes de papillon » des normales aux plans d'habitats des boucles. Cette cartographie permet, en connaissant le plan d'habitat des boucles, d'identifier leur vecteur de Burgers.

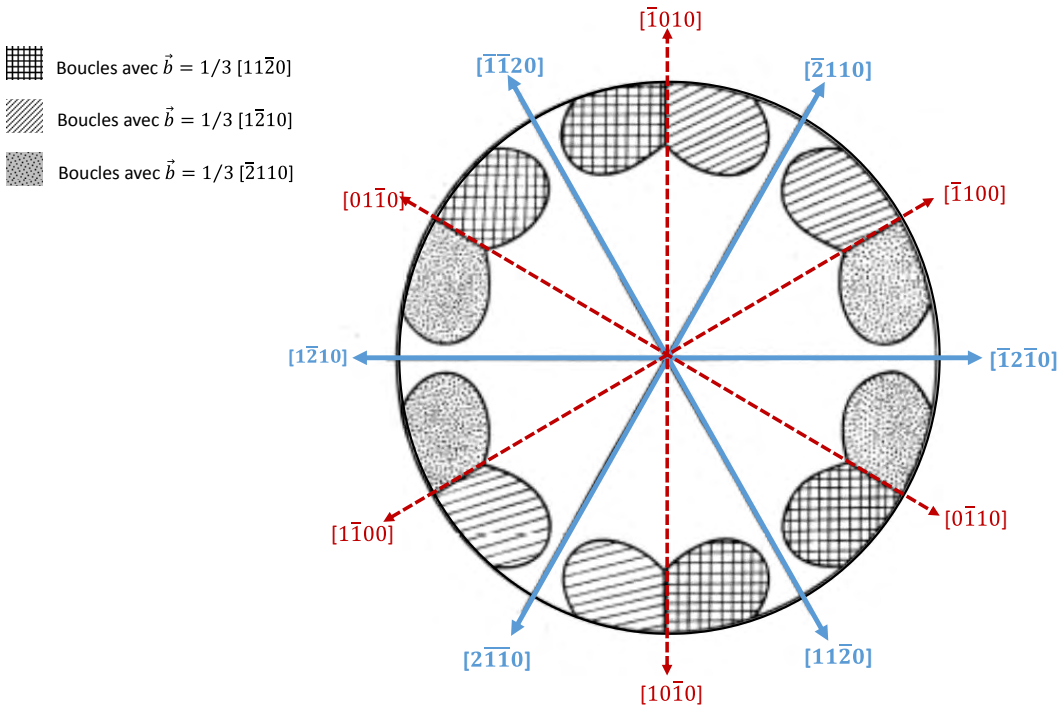


Figure I-12. Distribution en « ailes de papillon » des normales aux plans d'habitat des boucles de dislocation <a> [46].

Le caractère interstitiel ou lacunaire des boucles de dislocation a été étudié sous irradiation aux neutrons. Il existe de façon générale une différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les dislocations [47]. Compte tenu de leur volume de relaxation plus élevé, les interstitiels interagissent plus avec les dislocations que les lacunes. Cela induit un flux net d'interstitiels plus élevé que celui des lacunes vers les boucles. Ainsi, les boucles lacunaires, qui absorbent plus d'interstitiels que de lacunes, ne peuvent pas croître et disparaissent. Seules les boucles interstitielles seraient donc susceptibles de grandir au sein de la microstructure. Cependant, plusieurs auteurs montrent une cohabitation de boucles interstitielles et de boucles lacunaires dans la microstructure irradiée aux neutrons de 200°C à 400°C [44]–[46]. Jostsons et al. [45] observent un effet de la température sur la proportion des boucles, se traduisant par une diminution du nombre de boucles interstitielles et une augmentation de la proportion en boucles lacunaires quand la température augmente. La nucléation et la croissance de boucles lacunaires sous irradiation aux neutrons pourrait s'expliquer par la DAD (cf §II.2), qui introduit la notion d'anisotropie de diffusion. Les puits de la microstructure ne sont plus nécessairement biaisés en faveur des interstitiels, mais l'interaction préférentielle des défauts ponctuels, lacunes ou SIAs, avec les puits de la microstructure dépend de l'orientation cristallographique et de l'environnement de ces derniers [48], [49]. Ce modèle permet de bien expliquer la croissance des boucles de dislocation <c>, mais ne permet pas d'expliquer la croissance des boucles <a> de nature lacunaire. De nombreuses hypothèses ont été proposées, notamment par Griffiths et al. [50], pour expliquer ce phénomène. Une synthèse de ces hypothèses est proposée par Onimus et Béchade [29].

Jostsons et al. [45] se sont également intéressés à la forme des boucles, qui dépend de leur nature interstitielle ou lacunaire. En étudiant l'évolution du rapport *b/a* de la longueur des axes des boucles (avec *a* le grand axe et *b* le petit axe) dans du zirconium pur irradié à 395°C, ils démontrent que, si les boucles interstitielles présentent une géométrie circulaire, les boucles lacunaires sont elliptiques. Le rapport d'ellipticité *b/a* diminue avec la taille des boucles d'une valeur d'environ 0,8 pour des boucles de diamètre égal à 20 nm à 0,6 pour des boucles supérieures à 100 nm. Les petites boucles lacunaires peuvent donc être considérées comme quasi-circulaires.

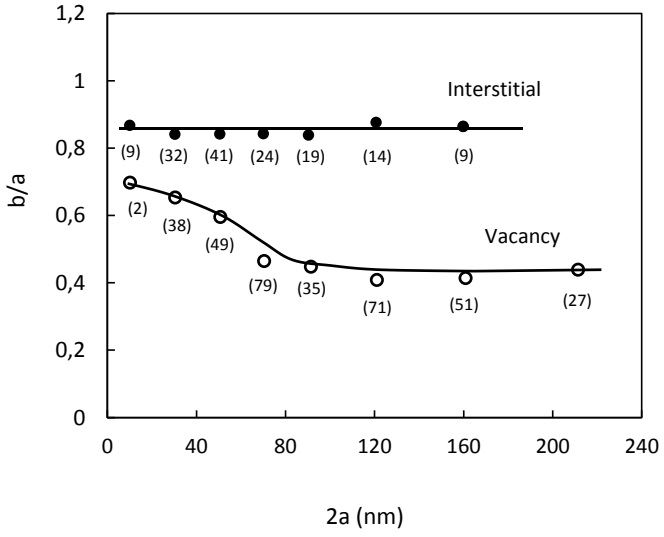


Figure I-13. Evolution des ellipses des boucles de dislocation <a> en fonction du diamètre des boucles et de leur nature [45].

II.4.1.2. Caractérisation des boucles de dislocation <a> sous irradiation aux particules chargées

Les irradiations aux particules chargées (électrons et ions) étant souvent utilisées pour simuler l'irradiation neutronique, il est nécessaire de s'assurer que les défauts engendrés par ces irradiations sont représentatifs d'une microstructure irradiée aux neutrons.

Plusieurs analyses des boucles de dislocation <a> ont été réalisées après irradiation aux électrons [50]–[56] dans le cas d'échantillons de zirconium pur et d'alliages de zirconium. Les irradiations aux électrons, entraînant uniquement la création de paires de Frenkel isolées, permettent de s'affranchir de l'effet des cascades de déplacements sur la formation des défauts d'irradiation. Le caractère interstitiel ou lacunaire des boucles de dislocation formées par irradiation aux électrons a fait l'objet de nombreuses controverses. En effet, Carpenter et Watters [52] ont démontré qu'après l'irradiation aux électrons de zirconium pur à 450°C, les boucles de dislocation <a> analysées étaient toutes de nature interstitielle. Cependant, Griffiths et al. [50] ont observé pour des irradiations, sur zirconium pur allant de 400 à 450°C, une microstructure plus proche de celle observée après irradiation aux neutrons, composée de boucles interstitielles et de boucles lacunaires. Seules quelques études ont été menées dans le cas des alliages de zirconium. Hellio et al. [55] rapportent que pour un alliage de Zr-1760 ppm O, et pour des températures d'irradiation supérieures à 500°C, les boucles de dislocation sont toutes de nature interstitielle. Le même constat est effectué par Nakamichi et al. [56] pour des alliages de types Zircaloys et pour une température proche de 500°C.

Aucune analyse de la nature des boucles de dislocation après irradiation aux ions lourds n'a actuellement été reportée [55], [57], [58]. La création des défauts lors des irradiations aux ions étant engendrée par des cascades de déplacements, il est généralement attendu une microstructure similaire à celle observée après irradiation aux neutrons.

II.4.2. Effets des conditions d'irradiation sur les boucles de dislocation <a>

II.4.2.1. Effet de la fluence et du flux des particules incidentes

Pour une température donnée, la fluence a un impact sur la densité et la taille des boucles <a>. De façon générale, plusieurs auteurs ont noté qu'une augmentation de la fluence entraînait une augmentation de la densité et de la taille des boucles. Northwood et Gilbert [59] ont démontré lors d'irradiation aux neutrons l'existence d'une fluence seuil en dessous de laquelle les boucles de dislocation sont de trop petite taille pour être visibles lors des observations (les défauts de taille inférieures à 4 nm ne sont pas observables au MET). Cette fluence est de l'ordre de $2{,}3.10^{23}$ $n.m^{-2}$ dans le Zy-2 à 300°C. Au-delà de cette fluence seuil, la densité des boucles augmente rapidement jusqu'à atteindre une valeur de saturation à partir de laquelle elle diminue légèrement [44], [47]. La taille des boucles continue d'augmenter avec la fluence des neutrons incidents. Les valeurs de la fluence seuil de visibilité des défauts et de la saturation de la densité des boucles de dislocation sont dépendantes de la température d'irradiation ainsi que de la composition chimique et de l'état métallurgique du matériau irradié.

Des observations similaires ont été réalisées après irradiation aux électrons d'échantillons de zirconium pur et d'alliages de zirconium [55], [56]. Nakamichi et al. [56] présentent une étude détaillée de l'effet du flux sur les boucles <a> sous irradiation aux électrons de 1 MeV dans le cas du Zy-2 et du Zy-4 pour des températures allant de 50°C à 700°C. Ils montrent ainsi, qu'à température constante, une augmentation du flux entraîne une augmentation de la densité volumique. Une augmentation du flux favorise la nucléation de boucles de dislocation, au détriment de leur croissance. La densité des boucles augmente donc avec l'augmentation du flux, tandis que leur diamètre diminue.

II.4.2.2. Effets de la température d'irradiation et du recuit

L'influence de la température d'irradiation a été largement étudiée lors du « Round Robin » sous irradiation aux neutrons. Les observations effectuées sur du zirconium pur et des alliages de zirconium montrent une diminution de la densité et une augmentation du diamètre moyen des boucles <a> avec l'augmentation de la température [43]. A titre d'exemple, Gilbert et al. [60] montrent cet effet de la température après l'observation d'échantillons de Zy-2 irradiés sous un flux de neutrons de 10^{25} $n.m^{-2}$ et pour des températures de 300 et 400°C. A 300°C, la microstructure est constituée de petites boucles de diamètre moyen de 6,5 nm, présentes à une densité volumique moyenne de 2.10^{22} m^{-3}. A 400°C, le diamètre des boucles augmente jusqu'à une valeur moyenne de 60 nm et la densité moyenne est de 3.10^{20} m^{-3}. De plus, pour une température d'irradiation de 700°C, les auteurs notent une microstructure ne présentant plus de boucle de dislocation. Lors d'irradiations aux électrons 1 MeV, plusieurs auteurs ont noté le même effet de la température sur les boucles de dislocation <a> [55], [56]. Hellio et al. [55] observent bien, lors de l'irradiation d'échantillons de zirconium pur et d'alliages de zirconium entre 400 et 700°C, une diminution de la nucléation des boucles <a> et une augmentation de leur croissance avec la température. Cet effet important de la température sur l'évolution des boucles <a> peut s'expliquer par la diminution de la sursaturation en défauts ponctuels lorsque la température augmente qui entraîne une diminution de la germination des boucles. Pour des températures très élevées, la sursaturation en défauts ponctuels est donc fortement diminuée et aucune nucléation de boucle n'est observée [60]. De plus la mobilité des défauts étant thermiquement activée, l'augmentation de la température entraîne une augmentation de la mobilité. Les défauts ponctuels, au lieu de se regrouper sous forme d'amas, vont donc migrer préférentiellement vers les boucles de dislocation déjà formées et entraîner leur croissance.

La microstructure évolue également lors des recuits après irradiation. Il a été démontré qu'un recuit entraînait, tout comme l'augmentation de la température d'irradiation, une augmentation du diamètre moyen des boucles <a> et une diminution de leur densité. Lorsque le recuit est réalisé à des températures supérieures à la température d'irradiation, une restauration de la microstructure a lieu et les boucles peuvent être amenées à disparaître. Un effet du recuit sur la nature des boucles a également été observé par Ribis [61]. Une augmentation de la proportion de boucles lacunaires est observée lors des différents recuits, permettant de conclure que le recuit des boucles interstitielles est plus rapide que celui des boucles lacunaires.

II.4.2.3. Effets des éléments d'alliage

Les éléments d'alliages, et notamment l'oxygène, l'étain et le niobium ont également un impact sur la cinétique d'évolution des boucles <a>. En effet, les résultats du « Round-Robin » [43] montrent des différences lors de la caractérisation de la microstructure de zirconium pur et du Zy-2 irradié dans les mêmes conditions, à 400°C et pour une fluence de 10^{25} $n.m^{-2}$. Le zirconium pur présente des boucles larges, de diamètre moyen de 56 nm, et en faible densité soit 8.10^{20} m^{-3}. Le Zy-2 est, quant à lui, composé de boucles d'un diamètre presque trois fois plus petit (22 nm) et en une densité beaucoup plus élevée de $5{,}15.10^{21}$ m^{-3}. Ce résultat démontre donc bien un effet important des éléments d'addition sur l'évolution du diamètre et de la densité des boucles.

Hellio et al. [55] montrent après irradiation aux électrons de 1 MeV, un effet des éléments d'alliages sur la cinétique d'évolution des boucles <a>, et mettent en particulier en avant l'effet de l'oxygène. Une nuance de zirconium enrichie en oxygène à une teneur de 1760 ppm et du zirconium pur sont irradiés à différentes températures (de 400 à 600°C) pour un flux de $4{,}6.10^{22}$ $e^{-}.m^{-2}.s^{-1}$. Les résultats montrent pour une même température d'irradiation, une densité de boucles plus importante pour la nuance enrichie en oxygène, ainsi qu'une diminution du diamètre moyen. Hellio et al. [62] expliquent cet effet par l'énergie de migration de la lacune qui serait augmentée en présence d'atomes d'oxygène. Cependant, de récentes études *ab-initio* montrent peu d'attraction entre l'atome d'oxygène et la lacune [63].

L'ajout d'étain et niobium aurait également un impact sur les défauts d'irradiation, entraînant une diminution du diamètre des boucles <a> et une augmentation de leur densité [59], [62]. Ces deux éléments d'alliages sont considérés comme des sites préférentiels d'agglomérations de SIAs [63] et entraînent donc une diminution de leur diffusion. La germination de boucles interstitielles <a> est donc favorisée au détriment de leur croissance.

L'irradiation aux neutrons rapides des alliages de zirconium entraîne la formation de cascades de déplacements des atomes, et la création de défauts ponctuels interstitiels et lacunaires au sein du cristal, qui vont s'agglomérer sous la forme de défauts microstructuraux tridimensionnels (cavités) et bidimensionnels (boucles de dislocation). Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons particulièrement à l'étude des boucles de dislocation de type <a> qui apparaissent dès les premiers stades de l'irradiation.

Dans la suite de cette étude bibliographique, l'effet de la présence de ces boucles de dislocation sur les mécanismes de déformation après irradiation sera étudié.

III. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium après irradiation

III.1. Evolution des propriétés macroscopiques après irradiation

Les défauts créés lors de l'irradiation neutronique entraînent une modification des propriétés macroscopiques des alliages de zirconium se traduisant notamment par un durcissement des matériaux et une diminution de leur ductilité, caractérisée par une baisse de l'allongement réparti (Figure I-14 et Figure I-15). Plusieurs études ont été menées sur le comportement macroscopique des alliages de zirconium après irradiation [29], [64]–[68] et montrent une augmentation rapide du durcissement au début de l'irradiation puis une saturation qui survient pour des doses assez faibles. Cette évolution du durcissement d'irradiation serait corrélée à la cinétique de nucléation des boucles. Morize et al. [66] démontrent l'existence de la saturation des propriétés mécaniques des alliages de zirconium à une dose de 5.10^{24} n.m^{-2} et à une température d'irradiation de 315°C. De même, Higgy et Hammad [65] réalisent des essais de traction à température ambiante sur du Zircaloy-2 et du Zircaloy-4 irradiés à basse température (<100°C) et à haute température (entre 320 et 360°C). Ils montrent une augmentation importante de la limite d'élasticité pour les deux températures d'irradiation, ainsi qu'une saturation du durcissement des alliages Zircaloy-2 et Zircaloy-4 dès des fluences d'environ 4 à 5.10^{24} n.m^{-2} pour des températures d'irradiation inférieures à 100°C. Aucune saturation claire pour des températures plus importantes n'est cependant observée. Un effet de la température d'irradiation existe donc, entraînant une augmentation du durcissement pour des températures comprises entre 100 et 350°C. Au-delà de ces températures, une diminution du durcissement est observée, et cette diminution est d'autant plus importante pour des températures supérieures à 500°C. Un phénomène équivalent est observé lors de l'augmentation de la température d'essais et lors de traitements thermiques [64], [67], et est associé à la restauration du dommage d'irradiation.

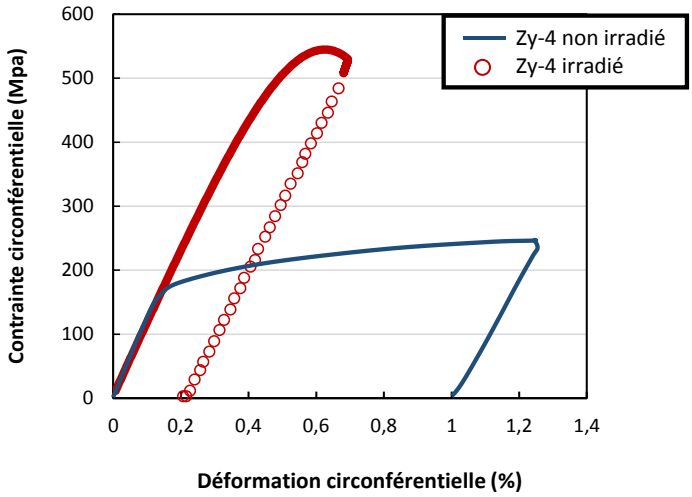


Figure I-14. Essais d'écrouissage interrompus en pression interne à 350°C sur du Zy-4 recristallisé [67].

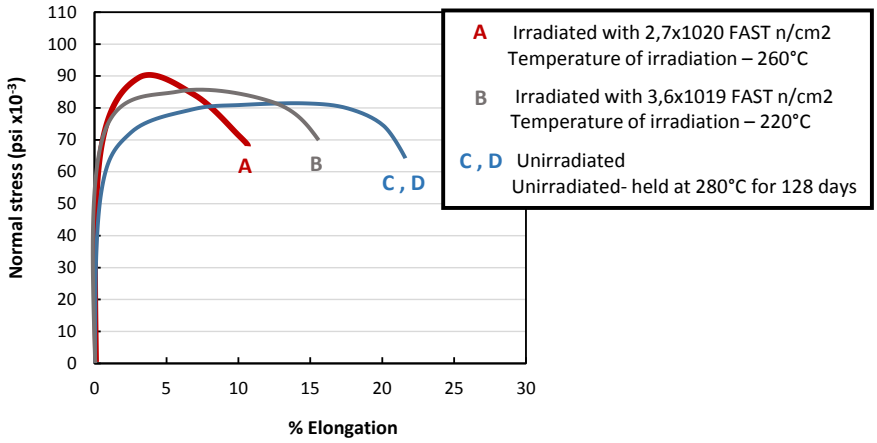


Figure I-15. Effet de l'irradiation aux neutrons sur le comportement en traction du Zy-2 recuit [64].

La perte de ductilité observée macroscopiquement est un effet direct du durcissement d'irradiation. Plusieurs auteurs montrent en effet une diminution très rapide de l'allongement réparti avec la dose d'irradiation [65], [66], [68]. Ce phénomène est lié à une localisation de la déformation dans des bandes de cisaillement. Le comportement à la rupture des alliages de zirconium reste donc ductile, mais la localisation précoce de la déformation entraîne une diminution de l'allongement réparti.

III.2. Mécanismes microscopiques de la déformation plastique des alliages de zirconium après irradiation

L'évolution du durcissement post-irradiation est corrélée aux changements microstructuraux engendrés lors de l'irradiation neutronique, et donc à la cinétique d'évolution des boucles de dislocation [68]. En effet, l'augmentation puis la saturation du durcissement avec la dose sont liés à l'augmentation et la saturation de la densité des boucles <a>. De même, l'effet de la température sur le durcissement des alliages de zirconium est corrélé au recuit des boucles, qui engendre une diminution de leur densité et une augmentation de leur taille (§ II.4.2.2).

Il est généralement admis que les boucles de dislocation agissent comme obstacles au glissement des dislocations. Cependant, plusieurs auteurs [69]–[72] ont montré, lors de l'observation post-mortem d'échantillons pré-irradiés aux neutrons puis écrouis, la présence de « bandes claires », sans boucle de dislocation, synonymes d'un mécanisme de canalisation du glissement des dislocations. Dans la suite de ce chapitre, les mécanismes de durcissement d'irradiation seront dans un premier temps décrit, puis le mécanisme de canalisation des dislocations sera ensuite présenté.

III.2.1. Les mécanismes du durcissement d'irradiation

Les principaux mécanismes de durcissement proposés sont basés sur l'ancrage des dislocations par les boucles induites par l'irradiation. Les modèles basés sur de telles interactions seront décrits dans la suite de cette partie. Il est cependant important de noter qu'il existe également des mécanismes de durcissement structural basé sur l'interaction entre les dislocations et les précipités induits par l'irradiation.

Le principal modèle du durcissement engendré par l'irradiation est le modèle de durcissement par barrières dispersées ou Dispersed Barrier Hardening (DBH). Ce modèle considère les défauts d'irradiation comme des obstacles rigides, non mobiles, qui agissent comme point d'ancrage au glissement des dislocations. La dislocation ne pourra alors franchir une boucle que pour un angle de courbure critique, lié à la force d'obstacle, de façon similaire au modèle de la forêt. Foreman [73] montre, en se basant sur l'approximation de tension de ligne dans un matériau de structure cubique faces centrées (CFC), que les boucles de dislocation peuvent durcir le matériau par réaction à courte distance avec les dislocations. Lors de ces réactions, des jonctions attractives peuvent être créées entre les dislocations et les boucles, et ces jonctions agissent alors comme points d'ancrage au glissement des dislocations. La valeur de la cission critique nécessaire pour le franchissement d'un obstacle de force α peut être exprimée par la formule :

$$\sigma_c = \alpha.\mu.b.\frac{1}{l} \qquad \textbf{Eq. I-11}$$

Avec α la force des obstacles, μ le module de cisaillement, b la norme du vecteur de Burgers et l la distance moyenne entre obstacles.

Dans le cas d'un mécanisme de type dislocations de la fôret, la cission critique peut être approximée par une relation dépendant de la densité N des boucles et de leur diamètre D :

$$\sigma_c = \alpha.\mu.b.\sqrt{N.D} \qquad \textbf{Eq. I-12}$$

Un second modèle de durcissement d'irradiation est proposé par Singh et al. [74]. Ce modèle de Cascade Induced Source Hardening (CISH) considère que les défauts créés au sein des cascades, ne sont pas sessiles, mais peuvent glisser sur de longues distances. Ces défauts vont être emprisonnés par le champ de contrainte des dislocations, créant ainsi un « nuage » de défauts qui ancrent ces dernières. Les dislocations sont donc piégées jusqu'à une certaine contrainte appliquée. Ce mécanisme a cependant été mis en doute par certaines observations expérimentales réalisées par Onimus [67] qui confirme un modèle de durcissement lié à un champ d'obstacles. En effet, l'observation des dislocations glissant dans les plans prismatiques et pyramidaux montre que ces dernières s'ancrent de façon successive sur les boucles jusqu'à les franchir où les balayer.

III.2.2. Mécanisme de canalisation du glissement

Plusieurs études expérimentales [67], [70]–[72] vont à l'encontre du mécanisme de durcissement proposé par le modèle DBH qui considère les boucles de dislocation comme des objets à caractère sessile qui contrent le glissement des dislocations. Ces études montrent lors d'observations d'échantillons massifs pré-irradiés puis déformés plastiquement, la présence de bandes claires synonyme d'un balayage des boucles de dislocation (Figure I-16). Ainsi, les boucles n'agissent pas seulement comme obstacles au glissement des dislocations, mais, pour une contrainte appliquée suffisante, peuvent être annihilées ou traînées par les dislocations. Ces bandes claires dépourvues de défaut sont une zone de glissement préférentielle des dislocations. Le glissement des dislocations est alors canalisé, ce qui entraîne une localisation de la déformation plastique au sein des canaux. Les travaux d'Onimus [67] confirment bien l'importance de la canalisation comme principal vecteur de la déformation plastique des alliages de zirconium lors d'essais de traction et de pression interne de Zy-4 recristallisé irradié aux neutrons. Onimus et al. [75] mettent également en avant une canalisation

préférentielle dans les plans de base comme observée lors de précédentes études [72]. Ce résultat démontre un effet de l'irradiation neutronique sur les systèmes de glissement faciles dans les alliages de zirconium. Avant irradiation, l'estimation de la cission critique montre que le système de glissement facile correspond au système prismatique. Après irradiation cependant, l'activation du glissement dans le plan de base est favorisée. Le phénomène de canalisation dans les plans prismatiques et pyramidaux n'est observé que dans le cas où le sens de prélèvement de l'échantillon défavorise le glissement dans le plan de base. Ce phénomène sera interprété par la suite en termes d'interactions entre les dislocations et les boucles (§III.2.3.2). Un élargissement de ces bandes claires est observé et est expliqué soit par un mécanisme de glissement dévié des dislocations, soit par une augmentation progressive de la longueur de la ligne de dislocations grâce aux crans créés lors de l'absorption des boucles de dislocation [67], [72].

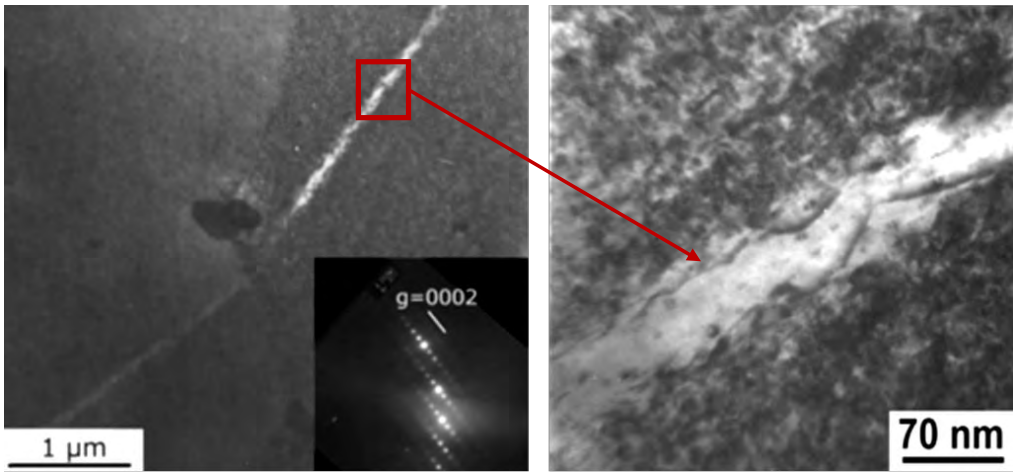


Figure I-16. Mécanisme de canalisation observé dans le plan de base sur des échantillons de Zy-4 pré-irradiés aux neutrons à 280°C et 0,6.10^{25} n.m^{-2}, puis sollicités en traction à 350°C dans le sens transverse [67].

III.2.3. Interactions dislocations - boucles

Le changement de hiérarchie des cissions critiques a été interprété en termes d'interactions dislocations-boucles par différents auteurs [72], [75]. Les mécanismes d'interactions dislocations boucles sont donc essentiels pour la compréhension du mécanisme de canalisation du glissement des dislocations, mais également pour l'étude des mécanismes du durcissement induit par l'irradiation.

III.2.3.1. Classification des réactions lors d'interactions dislocations-boucles

Le type d'interactions entre les dislocations et les défauts dépend des caractéristiques de la dislocation (système de glissement et caractère) et des caractéristiques du défaut (nature, plan d'habitat…). Bacon et al. [76] proposent une classification des différentes interactions en fonction de la nature du défaut. Les défauts sont divisés en deux catégories : les défauts de type inclusion tels que les bulles, les cavités ou les précipités, et les défauts présentant un caractère de dislocation tels que les tétraèdres de fautes d'empilement (SFTs) et les boucles de dislocation. Nous présenterons ici de manière synthétique les différentes réactions possibles avant de s'intéresser plus particulièrement au cas du zirconium et de ses alliages.

III.2.3.1.1. Interactions des dislocations avec les défauts de type inclusions

Dans le cadre des interactions avec les défauts de type inclusion, seuls les précipités seront ici pris en compte, les alliages de zirconium ne présentant pas de bulle ou de cavité après irradiation aux particules chargées. Les précipités sont impliqués dans le durcissement structural du matériau. Les interactions entre les dislocations et les précipités sont des interactions à courte distance, et les précipités peuvent être soit contournés, soit cisaillés par les dislocations. Dans le cas où le précipité est incohérent avec la matrice, et donc impénétrable, la dislocation contourne le précipité par le mécanisme d'Orowan, en formant autour du précipité une ou plusieurs boucles de dislocation (Figure I-17). Dans le cas contraire, et pour une contrainte appliquée suffisante, la dislocation cisaille le précipité, entraînant la formation d'une marche de glissement entre la matrice et le précipité, dont la norme correspond à celle du vecteur de Burgers de la dislocation.

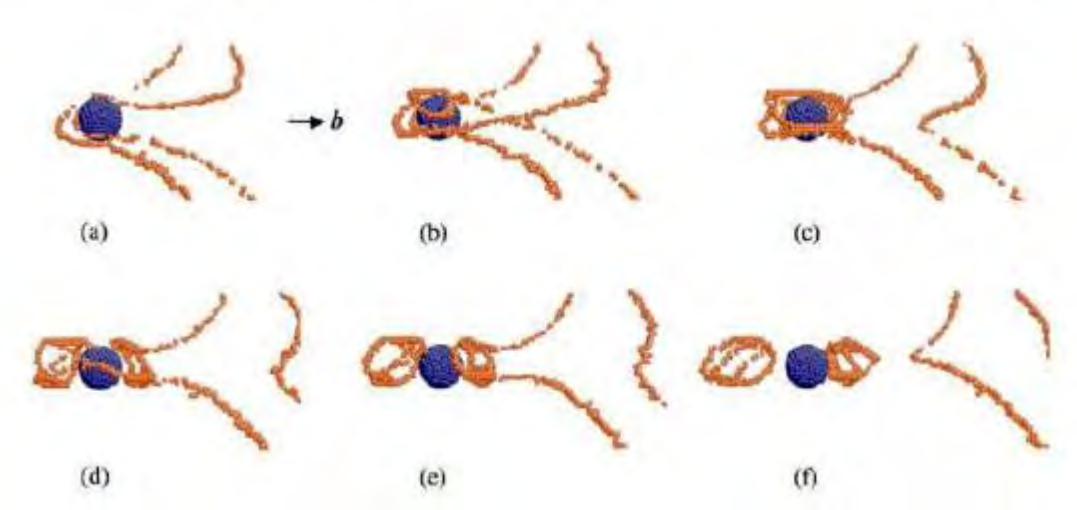


Figure I-17. Contournement du précipité par le mécanisme d'Orowan dans du Cu à température ambiante (300 K) par une dislocation coin, interaction simulée par Dynamique Moléculaire [77].

III.2.3.1.2. Interactions entre les dislocations et les défauts présentant un caractère de dislocation

Les défauts induits par l'irradiation ayant un caractère de dislocation peuvent varier en fonction des matériaux et de l'énergie de faute. Ils peuvent être divisés en deux grandes catégories : les boucles de dislocation parfaites ou fautées, qui peuvent être de nature interstitielle ou lacunaire, et les tétraèdres de fautes d'empilement ou SFTs, de nature lacunaire. Bacon et al. [76] et Osetsky et al. [78] proposent une classification des interactions possibles entre ces défauts d'irradiation et les dislocations. Cinq réactions principales (notées de *R1* à *R5*) ressortent de cette classification basée sur le caractère de la dislocation (vis ou coin) et sur le devenir de l'obstacle suite à l'interaction (inchangé, modifié ou absorbé par la dislocation). Deux réactions complémentaires (*R6* et *R7*) ont également été proposées, mais ne concernent que les boucles fautées. Les boucles présentes dans les alliages de zirconium étant des boucles parfaites, ces deux réactions ne seront pas présentées ici.

- La réaction *R1* : l'obstacle et la dislocation restent inchangés après interaction

Cette réaction considère le cas où le défaut est entièrement reconstruit après avoir été cisaillé par la dislocation (Figure I-18). Elle est favorisée dans le cas de glissement à basse température et pour une vitesse de déformation importante. Comme dans le cas du cisaillement d'un précipité, une marche de

glissement peut être créée à la surface du défaut, mais disparaît rapidement. Cette interaction a été observée dans le cas de dislocations vis et coins, lors de la simulation par dynamique moléculaire d'interactions avec des SFTs et des boucles de Frank dans des matériaux de structure CFC [78], [79]. Robach et al. [80] et Robertson et al. [81] ont observé cette interaction expérimentalement dans des échantillons de cuivre. Les dislocations sont épinglées dans un premier temps par des boucles de Frank lacunaires, puis se libèrent pour un certain angle critique. La contrainte critique de franchissement des obstacles peut être estimée, et les auteurs trouvent des valeurs qui varient de 10 à 175 MPa dans le cadre de leurs relevés d'angles respectifs. Ces valeurs, très dispersées, dépendent d'une part du plan de glissement et du caractère de la dislocation, mais aussi des caractéristiques du défaut.

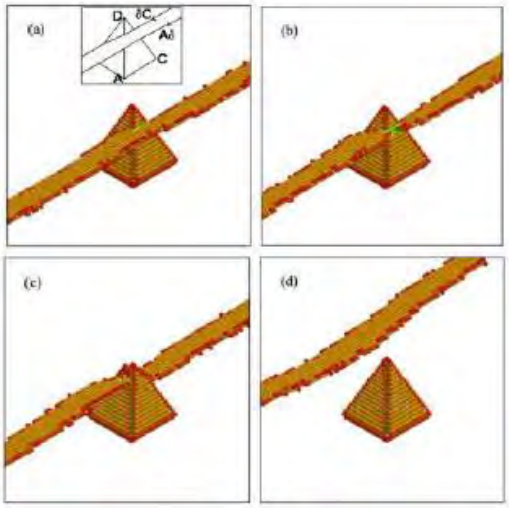


Figure I-18. Cisaillement d'un SFTs par une dislocation vis puis restauration complète du défaut simulé par dynamique moléculaire [78].

- La réaction *R2* : l'obstacle est modifié suite à l'interaction et la dislocation reste inchangée

Selon Bacon et al. [76], cette réaction peut survenir dans deux cas particuliers. Le premier cas est similaire à la réaction *R1* où une marche de glissement est créée, mais ici, cette marche est stable et persiste après le passage de la dislocation. Dans ce cas, le défaut peut être soit scindé en deux défauts distincts suite à son cisaillement par plusieurs dislocations, soit être restauré dans sa position initiale après le passage d'une deuxième dislocation. Plusieurs auteurs observent en effet le scindage d'un défaut de type boucles de Frank ou SFT, engendré par le passage de plusieurs dislocations lors de modélisations par dynamique moléculaire dans un CFC [78], [79]. Cette interaction a également été observée de façon expérimentale par Robach et al. [80] lors d'expériences de traction *in-situ* au MET dans de l'or trempé.
Le second cas dans lequel la réaction *R2* peut intervenir concerne l'interaction entre une boucle et une dislocation coin dans un métal de structure cubique centré (CC). Cette interaction entraîne la transformation de la boucle en une boucle à caractère mixte.

- La réaction *R3* : le défaut est partiellement ou complètement absorbé par la dislocation

La réaction *R3* est observée lors de simulations par dynamique moléculaire lors d'interactions de dislocations coins et de SFTs (Figure I-19). Cette interaction mène à la formation d'un double super-cran glissile le long de la ligne de dislocation, et la formation de petits amas lacunaires est observée après le passage de la dislocation [78]. La réaction *R3* a également été observée expérimentalement

par Zinkle et Matsukawa [82] dans le cas d'interactions avec des SFTs dans de l'or trempé (Figure I-20). Cette interaction a été également modélisée dans le cas d'interactions avec des boucles de dislocation [79]. Selon Bacon et al. [76], les boucles de dislocation sont susceptibles de réagir avec les dislocations quel que soit leur vecteur de Burgers. En effet, le vecteur de Burgers de boucles de petites tailles devrait changer lors de l'interaction pour devenir le même que celui de la dislocation. Dans le cas de grandes boucles, un segment glissile sera formé lors de la jonction entre la dislocation et la boucle, et le vecteur de Burgers de ce segment se transformera progressivement jusqu'à être le même que celui de la dislocation.

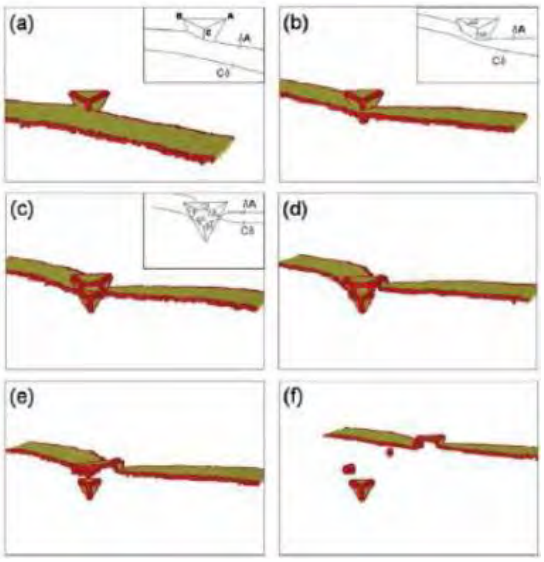


Figure I-19. Absorption partielle d'un SFT par une dislocation coin et création d'un double super-cran [78].

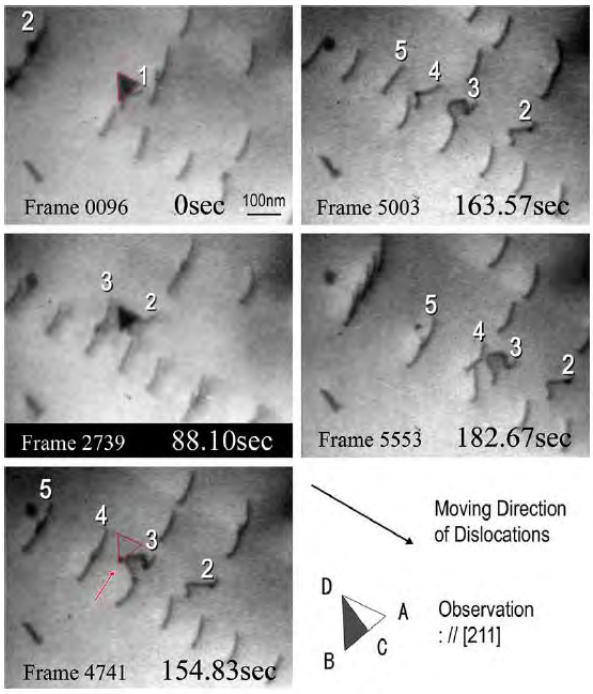


Figure I-20. Annihilation d'un SFT entraînant la formation de super-crans sur les dislocations dans de l'or trempé, les dislocations indiquées par des chiffres sont impliquées dans l'annihilation du SFT [82].

- La réaction *R4* : Absorption temporaire de l'obstacle sous la forme d'un tour d'hélice

La réaction R4 décrit le cas où le défaut est temporairement absorbé par une dislocation vis, entraînant la formation d'un tour d'hélice le long de la ligne de dislocation (Figure I-21). Le tour d'hélice est créé par une succession de cross-slip et sa formation est favorisée pour une température élevée et pour une vitesse de déformation faible. La formation de tours d'hélices a été observée dans le cas d'interactions avec des SFTs par modélisation [78] et par expérience *in-situ* au microscope électronique en transmission [83]. Cette réaction est également proposée dans le cas d'interactions de dislocations vis et des boucles fautées ou parfaites [84], avec un vecteur de Burgers similaire ou différent de celui de la dislocation. Dans ce dernier cas, une jonction est créée lors de l'interaction et le vecteur de Burgers de la jonction s'accommode progressivement pour devenir similaire à celui de la dislocation. La formation d'un tour d'hélice le long de la ligne de dislocation est un phénomène fortement ancrant car les segments de la jonction ne se trouvant pas dans des plans parallèles au plan de glissement de la dislocation contraignent fortement cette dernière. Le tour d'hélice ne peut alors glisser que sur son cylindre et s'oppose donc au glissement de la dislocation. Un mécanisme de décrochage est donc nécessaire pour que la dislocation puisse continuer de glisser dans son plan. Rodney et al. [85] montre par exemple que le désépinglage d'une dislocation vis par recombinaison du tour d'hélice et formation d'une boucle de dislocation glissile de même vecteur de Burgers que la dislocation.

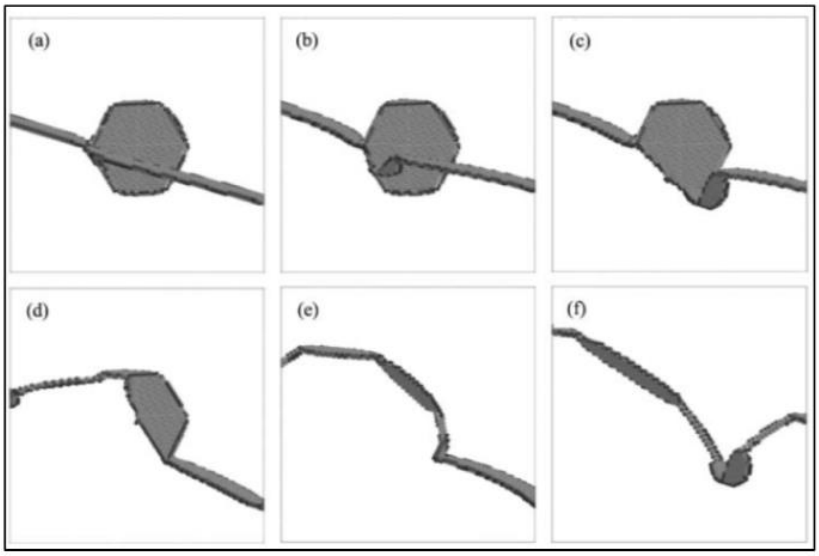


Figure I-21. Formation d'un tour d'hélice le long de la ligne d'une dislocation vis après interaction avec une boucle de Frank dans du nickel [84].

- La réaction *R5* : Les défauts sont entraînés par la dislocation

La réaction *R5*, variante de la réaction *R3*, décrit le cas où les défauts glissiles qui ne sont pas compris dans le plan de glissement de la dislocation coin, sont entraînés par interaction à distance. Cette réaction a été observée en dynamique moléculaire pour des boucles glissiles interstitielles dans des métaux de structure CC et CFC. Les boucles de dislocation dont le vecteur de Burgers est parallèle au plan de glissement de la dislocation peuvent être « poussées » sous l'effet du champ élastique de cette dernière.

- La réaction *R8* : interaction à distance ayant une influence sur la dislocation, les défauts restent inchangés

Drouet [4] propose d'ajouter à ces cinq interactions principales une nouvelle réaction où l'interaction à distance va influer sur la dislocation et non sur les défauts impliqués. Cette réaction a été observée expérimentalement entre une dislocation mixte et une boucle prismatique par Matsukawa et Liu [86] lors d'essais de traction *in-situ* dans du cuivre. La boucle de dislocation est attirée par la dislocation, mais aucune interaction de contact n'est observée. La boucle reste inchangée, mais la dislocation a changé de caractère et de plan de glissement par glissement dévié.

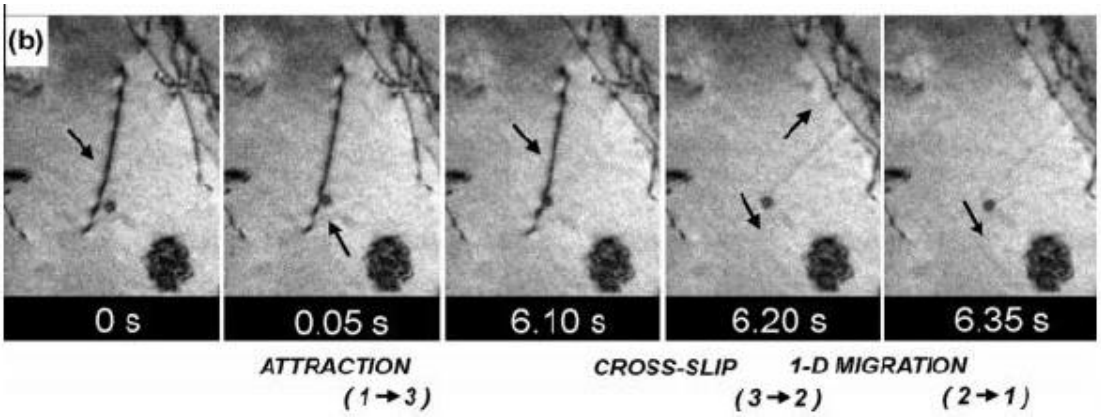


Figure I-22. Interaction entre une dislocation initialement mixte et une boucle de dislocation prismatique à 300 K dans un échantillon de cuivre [86].

III.2.3.2. Application au cas du zirconium

III.2.3.2.1. Les mécanismes théoriques des interactions dislocations-boucles appliqués au zirconium

Les observations d'échantillons massifs de zirconium et d'alliages de zirconium irradiés puis écrouis ont permis de montrer que l'irradiation entraînait un changement de hiérarchie des cissions critiques, avec un mécanisme de canalisation facilité dans le plan de base. Ce changement de hiérarchie des cissions critiques a été interprété en termes d'interactions entre les dislocations et les boucles. Régnard et al. [72] et Frégonèse et al. [87] proposent une explication basée sur le fait que les trois vecteurs de Burgers de type <a> cohabitent dans le plan de base. Les boucles de dislocation <a> étant glissiles sur leur cylindre, l'interaction dans le plan de base entre une dislocation de vecteur de Burgers <a> et une boucle <a> formera, dans tous les cas, des jonctions ayant également un vecteur de Burgers <a> compris dans le plan, et qui seront donc glissiles. Au contraire, dans le cas d'un glissement dans le plan prismatique (ou pyramidal), seul un des trois vecteurs $\vec{a}$ de la maille hexagonale compacte est compris dans le plan. Les jonctions ne seront glissiles que pour une interaction avec une boucle <a> et une dislocation de même vecteur de Burgers. Ainsi, 2/3 des interactions seront sessiles.

Onimus [67] illustre de façon théorique les interactions possibles entre des dislocations à caractère vis et les boucles de dislocation dans les plans de base et les plans prismatiques. L'ensemble des interactions possibles sont illustrées en Figure I-23 pour les interactions dans le plan de base et en Figure I-24 pour le cas du glissement prismatique.

- Cas du glissement dans le plan de base

Dans le cas où une dislocation vis glissant dans le plan de base interagit avec une boucle <a> de même vecteur de Burgers, la boucle est possiblement incorporée le long de la ligne de dislocation sous la forme d'un cran hélicoïdal qui peut glisser sur son cylindre (Figure I-23 A). Cette réaction est équivalente à la réaction *R4*. Dans le cas où la boucle n'a pas le même vecteur de Burgers que la dislocation, une jonction glissile est créée et la boucle est alors annihilée (Figure I-23 B). Dans tous les cas l'interaction entre une dislocation vis et une boucle dans le plan de base semble conduire au balayage de la boucle.

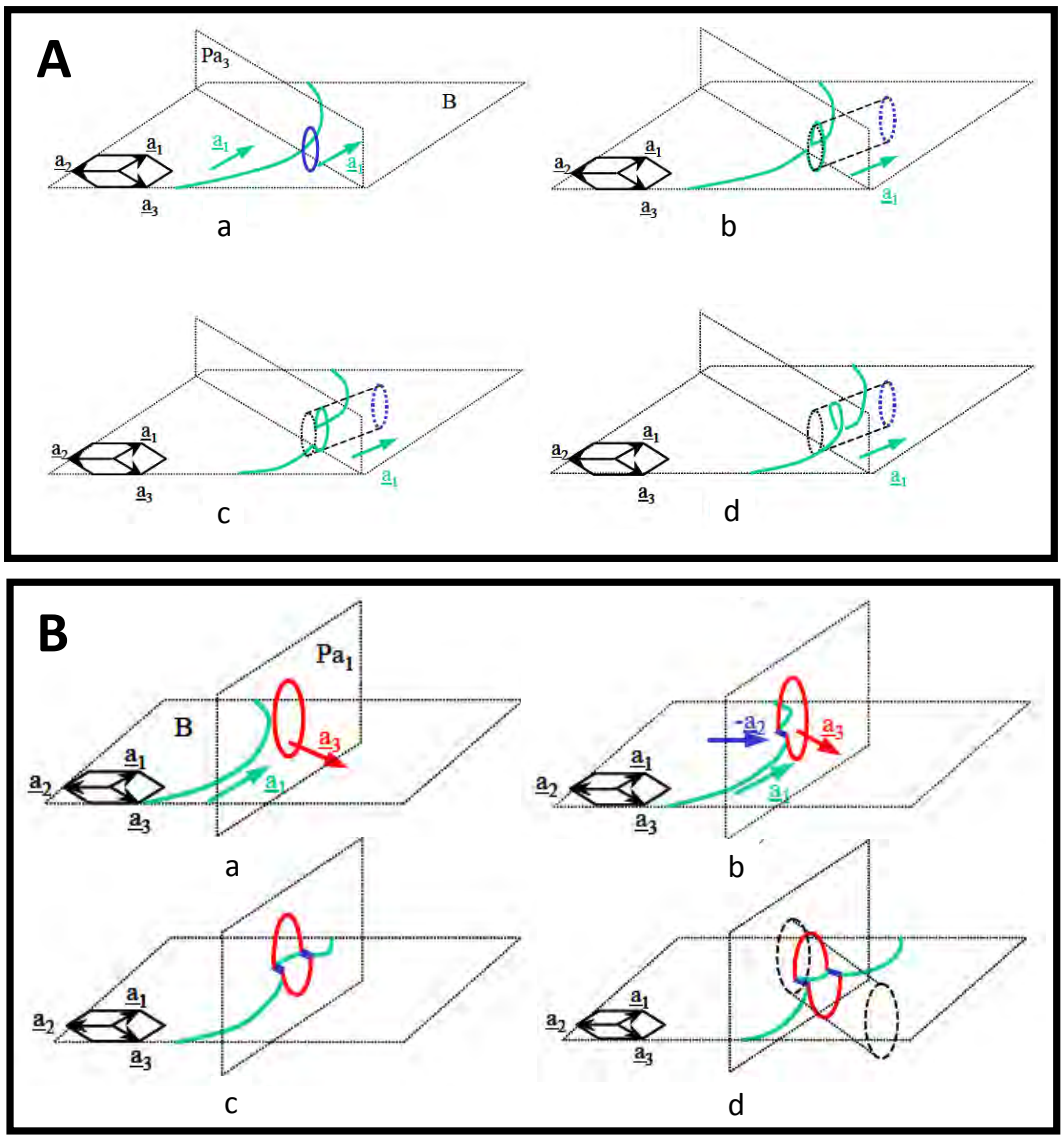


Figure I-23. Interaction d'une dislocation avec une boucle dans le plan de base A) de même vecteur de Burgers B) de vecteur de Burgers différents [67].

- Cas du glissement dans le plan prismatique

Dans le cas où la boucle et la dislocation glissant dans un plan prismatique ont des vecteurs de Burgers similaires, un cran hélicoïdal peut également être formé (réaction *R4*) et conduire à l'annihilation de la boucle (Figure I-24 C). Si la boucle présente un vecteur de Burgers $\vec{a}_3$ différent de celui de la dislocation $\vec{a}_1$, une jonction ponctuelle peut être formée. Le vecteur de Burgers de cette jonction est le troisième vecteur $\vec{a}_2$ de la maille hexagonale qui n'appartient pas au plan, et la jonction créée est donc sessile (Figure I-24 D). La dislocation se trouve donc ancrée par la boucle. Cet ancrage peut être théoriquement franchi pour une contrainte suffisante suivant un mécanisme d'Orowan.

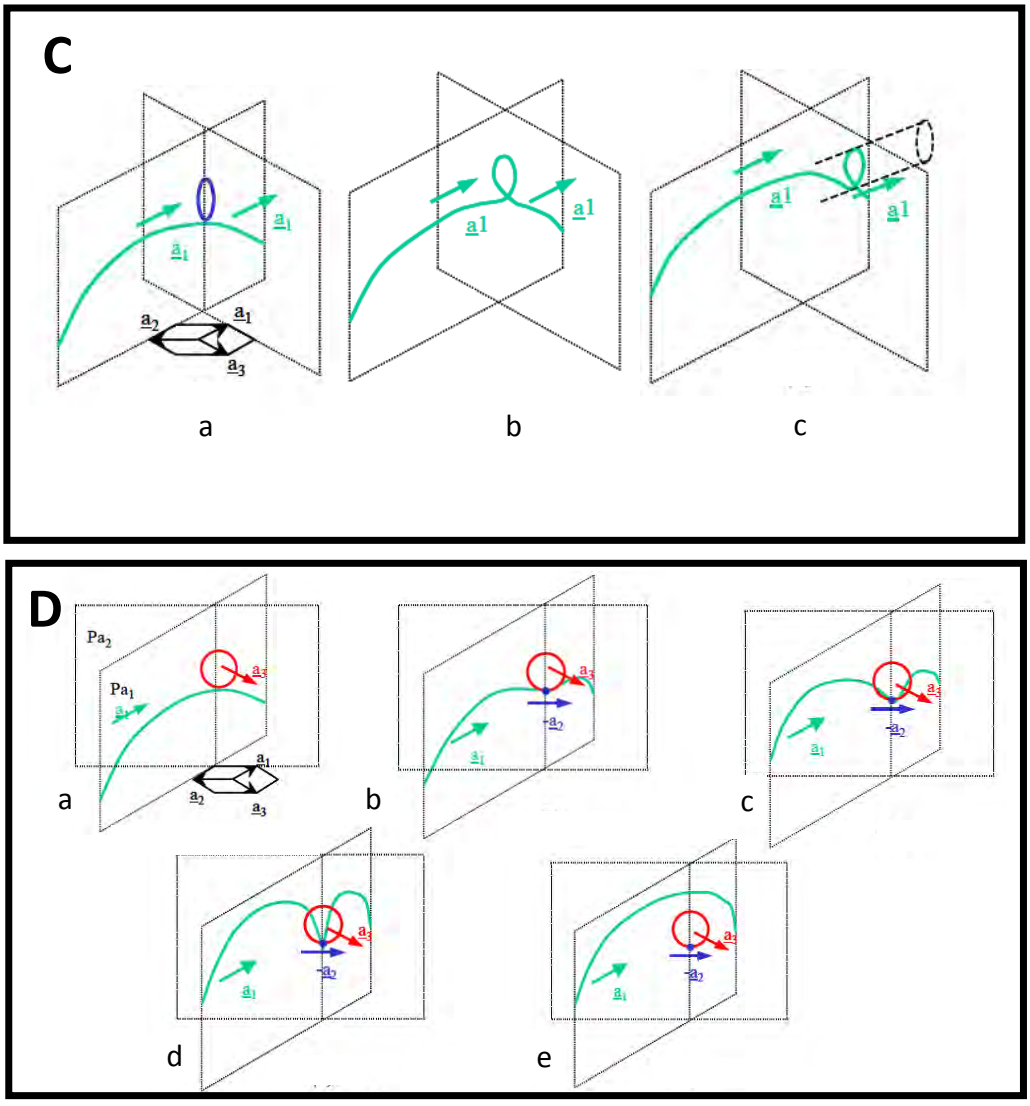


Figure I-24. Interaction d'une dislocation et d'une boucle dans un plan prismatique C) de même vecteurs de Burgers D) de vecteurs de Burgers différents [67].

Drouet [4] réalise des simulations par dynamique des dislocations du glissement de dislocations vis et coin dans le plan basal et dans les plans prismatiques dans le cas du zirconium. Les résultats sont résumés dans le Tableau I-3.

Tableau I-3. Bilan des interactions dislocation-boucle observées lors de simulation en dynamique des dislocations en fonction du plan de glissement de la dislocation, de son caractère et du vecteur de Burgers de la boucle et de la dislocation [4].

Dislocation incidente		Vecteur de Burgers de la boucle identique (1/3)	Vecteur de Burgers de la boucle différent (2/3)
Glissement dans un plan prismatique	Coin	*R3-R5*	*R3*
	Vis	*R4*	*R4*
Glissement dans un plan basal	Coin	*R3-R5*	*R5*
	Vis	*R4*	*R5*

Ces résultats confirment que la majorité des réactions observées dans le plan basal entraîne le balayage des défauts par absorption, traînage par interactions à distance, ou par la formation de jonctions lors d'interactions de contact. Dans le cas spécifique où une dislocation vis interagit avec une boucle (interstitielle ou lacunaire) de même vecteur de Burgers dans le plan de base, la formation d'un tour d'hélice est observée. Cependant, la modélisation en dynamique des dislocations montre que, contrairement à ce qui a été avancé par Onimus [67], le cran hélicoïdal ne glisse pas sur son cylindre, mais est fortement ancrant pour la dislocation. Ainsi, dans le cas d'une interaction dans le plan de base impliquant une dislocation vis, seul 2/3 des réactions va mener au balayage des défauts.

Dans le cas du glissement prismatique, les simulations par dynamique des dislocations mettent en avant une interaction majoritaire par formation de double-crans pour les dislocations à caractère coin. En tous les cas, les interactions impliquant les dislocations coins montrent toutes un entrainement des défauts par répulsion ou absorption, permettant donc à la dislocation de continuer son glissement dans le plan. Au contraire, les dislocations vis vont dans tous les cas être ancrées sur les boucles, quel que soit leur vecteur de Burgers et quelle que soit leur nature, entraînant un ralentissement de leur glissement. Les interactions entraînant le balayage des défauts sont donc moins nombreuses dans le cas du glissement prismatique (3/6) que dans le cas du glissement dans le plan de base (5/6). Ceci explique que la formation de canaux soit plus facile dans le plan de base que dans les plans prismatiques.

III.2.3.2.2. Observations expérimentales

Afin d'observer les interactions entre dislocations et boucles de façon expérimentales, des essais de traction *in-situ* au microscope électronique en transmission ont été réalisés sur des alliages de zirconium. Onimus [67] réalise ces essais sur des échantillons de Zy-4 pré-irradiés aux ions zirconium Zr^+ à deux doses, 0,4 et 1 dpa, puis tractionnés à 350°C. Drouet [4] réalise également des essais de traction *in-situ* sur du Zy-4 pré-irradié à une dose de 0,45 dpa (entre 340°C et 400°C) et pour des températures d'essais allant de la température ambiante à 500°C. Les auteurs observent qu'à température ambiante, le système de glissement préférentiel est le système prismatique alors qu'à

plus haute température, le glissement dans le système pyramidal semble être favorisé. Malgré l'utilisation d'éprouvettes prélevées dans une orientation particulière afin d'activer le glissement dans le plan de base [4], ce dernier n'est jamais observé, alors que la canalisation y était majoritaire lors des analyses après essais de traction sur matériau irradié aux neutrons. Onimus [67] explique ce résultat par la différence de mode de déformation entre les échantillons prélevés dans des échantillons massifs préalablement tractionnés, où a été observé le phénomène de canalisation, et les lames minces de faible épaisseur (environ 150 nm) qui sont utilisées lors de la traction *in-situ*. En effet, le phénomène de canalisation nécessiterait l'activation d'un faible nombre de source de dislocations qui émettent un grand nombre de dislocations. Dans le cas de la traction d'une lame mince, bien que quelques sources de dislocations peuvent être observées, les dislocations qui glissent sont celles qui étaient initialement présentes dans le matériau, ou sont initiées aux joints de grains, et leur glissement n'entraîne donc pas de canalisation (Figure I-25).

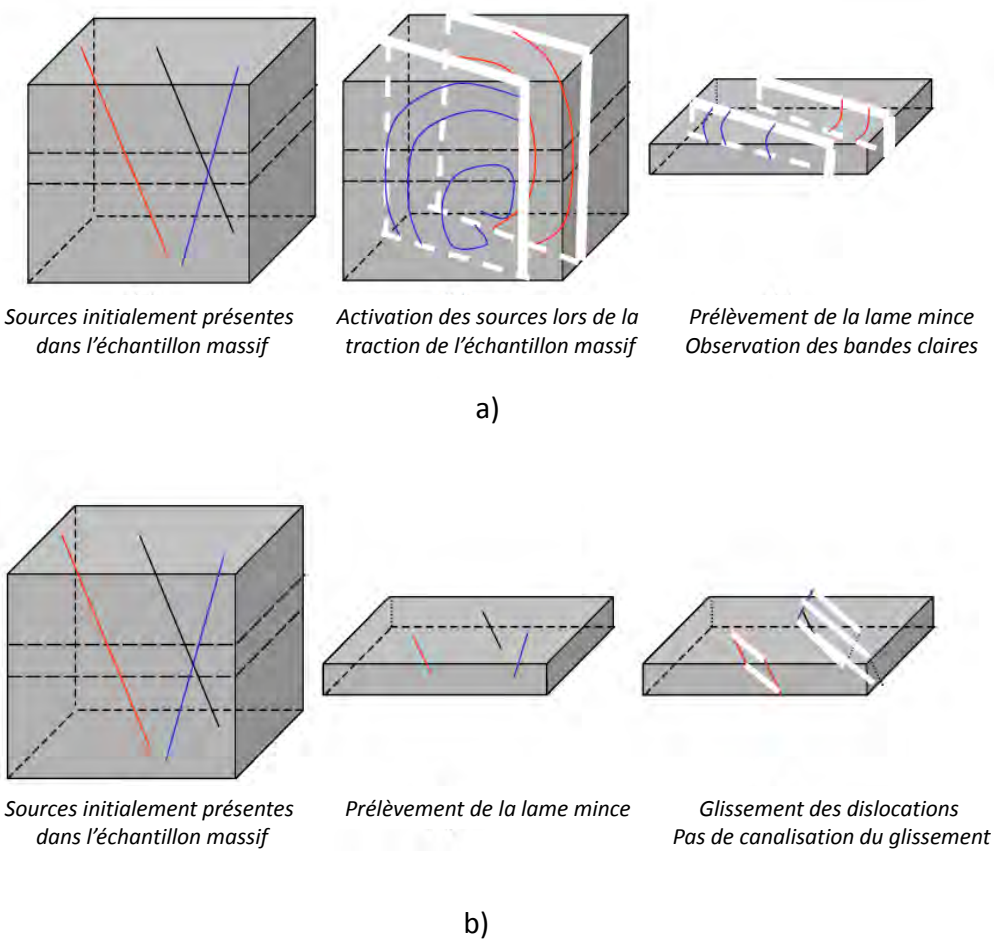


Figure I-25. Différence de modes de déformation entre a) une lame mince prélevée dans une éprouvette massive préalablement tractionnée b) une lame mince prélevée dans un échantillon massif puis tractionnée [67].

Le type d'interaction observé par les auteurs dépend également de la température d'essai. A température ambiante, les réactions sont majoritairement des cas d'ancrage fort des dislocations sur les boucles ce qui entraîne un ralentissement de leur glissement. Des cas d'absorption des dislocations glissant dans un plan prismatique sont également observés. A 350°C, différents cas d'interactions sont référencés. Onimus [67] observent que pour les éprouvettes pré-irradiées à la plus faible dose (0,4 dpa), les dislocations s'ancrent régulièrement sur les boucles avant de les franchir, ou dans certains cas de les annihiler. Pour une dose de 1 dpa, le balayage des défauts est clairement observé par des dislocations glissant dans les plans prismatiques et pyramidaux. De plus les lignes de dislocation sont très sinueuses, ce qui atteste d'interactions antérieures ayant créées des tours d'hélices, ou d'un glissement dévié des dislocations. Drouet [4] observe également de nombreux cas où les dislocations glissant dans les plans pyramidaux s'ancrent sur les boucles avant de les franchir (interactions à distance ou réaction *R1*). Un cas d'absorption d'une boucle par une dislocation glissant dans un plan pyramidal est observé (réaction *R3*). A plus haute température (500°C), le glissement semble plus visqueux, et les dislocations semblent moins ralenties et ancrées par les boucles. Ce résultat semble témoigner d'un mécanisme de franchissement des boucles qui serait thermiquement activé. De plus, à cette température, des réactions de type *R4* entraînant l'absorption de la boucle par formation d'un tour d'hélice sont observées.

Après irradiation neutronique, un durcissement des alliages de zirconium et une diminution de leur ductilité est observé. Ces changements de propriétés macroscopiques sont expliqués par des mécanismes microscopiques liés à la présence des boucles de dislocation de type <a>, qui peuvent agir comme obstacle au glissement ou être annihilées ou traînées par les dislocations.

Cette partie de l'étude bibliographique a permis de mieux comprendre les mécanismes de déformation des alliages de zirconium préalablement irradiés. La suite de ce chapitre s'intéressera maintenant aux mécanismes de déformation sous irradiation. Quels sont les mécanismes de la déformation lorsque les alliages sont directement soumis au flux de neutrons ?

IV. Les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium sous irradiation

Sous irradiation neutronique, la déformation des gaines est divisée en plusieurs composantes dont les plus importantes sont la croissance sous irradiation et le fluage d'irradiation. La croissance traduit la déformation des alliages sous irradiation aux neutrons et en l'absence de contrainte. L'effet combiné du flux de neutrons et des contraintes appliquées sur la gaine entraîne une déformation par fluage d'irradiation. Ces deux phénomènes seront décrits dans la suite de ce chapitre.

IV.1. Les mécanismes de la croissance sous irradiation

IV.1.1. Comportement macroscopique des alliages de zirconium en croissance sous irradiation

Dans le cas des alliages de zirconium, la croissance libre se traduit par une élongation du cristal selon les directions <a> et par une contraction suivant la direction <c>. La cinétique de croissance des alliages de zirconium, tout comme celle des monocristaux de zirconium, peut être divisée en trois régimes distincts, dépendants de la dose d'irradiation. Pour de faibles doses (jusqu'à environ 3.10^{25} $n.m^{-2}$), l'élongation selon l'axe <a> connait une augmentation rapide jusqu'à atteindre un régime stationnaire. Une troisième phase correspondant à une accélération rapide de la croissance est atteinte pour des doses plus élevées. Ce stade correspond au stade de la croissance accélérée et est souvent associé à l'apparition des boucles de dislocation à composante <c> dans le plan de base [88]–[90].

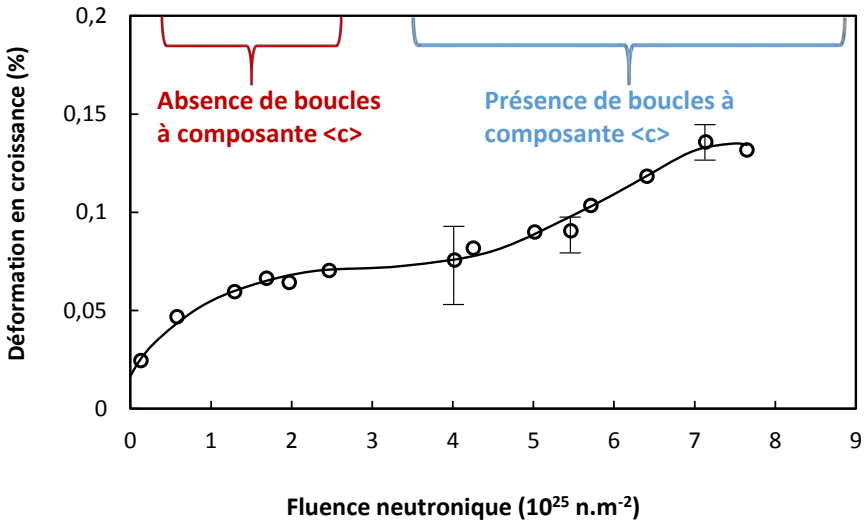


Figure I-26. Stades de la croissance sous irradiation du Zy-2 recristallisé irradiés aux neutrons pour des températures allant de 277°C à 307°C [88].

Un effet de la température sur ces trois stades d'évolution a été remarqué par plusieurs auteurs [91]–[93]. Ces effets peuvent être distingués selon trois plages de températures. Pour des températures inférieures à 277°C, le taux de croissance des alliages augmente rapidement et atteint un stade de saturation dès de très faibles doses. Cependant, cette accélération de la croissance n'est pas observée à de fortes fluences (supérieures à 2.10^{26} $n.m^{-2}$), ce qui implique que les boucles à composante <c> ne se forment que pour des températures plus élevées. Pour des températures comprises entre 277 et 307°C, les deux premiers stades de croissances sont peu dépendants de la température. Cependant le régime de croissance accélérée en dépend fortement. En effet, une augmentation de la température entraîne d'une part une diminution de la dose critique d'apparition du régime de croissance accélérée, mais augmente également la vitesse de déformation des alliages. Enfin, pour des températures très élevées (entre 367 et 437 °C), les alliages de zirconium détendus et recristallisés sont soumis à des déformations par croissance sous irradiation importantes.

En plus des conditions d'irradiation le taux de croissance sous irradiation des alliages dépend également des paramètres matériaux. La déformation des polycristaux de zirconium étant dépendante de la croissance de la totalité des grains, plusieurs auteurs ont pu étudier et résumer les effets de la texture et de la taille des grains sur le comportement en croissance des alliages de zirconium [29], [91], [92]. La texture des polycristaux est définie par le facteur de Kearns f_D qui indique la fraction volumique des cristaux dont l'axe <c> est orienté parallèlement à une direction choisie. Dans le cas où les polycristaux sont faiblement texturés ($f_D \sim 0,33$), la déformation par croissance sous irradiation est faible. Au contraire, si les polycristaux sont fortement texturés, le facteur de Kearns sera élevé pour l'une des directions, ($f_D > 0,4$), mais très faible pour une autre direction ($f_D \sim 0,16$). Le taux de croissance est alors négatif dans la direction au facteur de Kearns élevé, mais est positif pour la direction au facteur de Kearns faible, avec un allongement dans cette direction qui augmente avec la fluence. A titre d'exemple, Onimus et Béchade [29] citent le cas des tubes dans leur état détendu ou recristallisé extrudés à froid, qui présentent une texture importante avec un facteur de Kearns de 0,6 dans la direction radiale du tube, et proche de 0,1 dans la direction axiale. Les tubes se déforment alors selon la direction axiale du tube et subissent une réduction de leur épaisseur dans la direction radiale. L'influence de la taille des grains a également été étudiée [91]–[93]. Le taux de croissance sous irradiation semble augmenter lorsque la taille des grains diminue. Cependant cet effet de taille de grains semble important notamment pour des températures élevées. En effet, Rogerson [91] ne note que peu d'impact de la taille des grains sur la vitesse de déformation des polycristaux pour des irradiations à 80°C pour une taille de grain allant jusqu'à 5 µm , alors qu'une forte influence est observée à une température de 280°C et des tailles de grains allant de 5 à 40 µm. Il a également été démontré une influence du taux d'écrouissage sur la déformation des alliages. Pour les alliages détendus ou écrouis, la déformation évolue de façon linéaire avec la fluence, après un très court régime transitoire. Dans le cas des alliages détendus, ce régime transitoire est même inexistant au vu du fort taux de déformation. Au contraire, dans le cas des alliages recristallisés, la déformation par croissance tend à saturer. Cette dépendance a été directement corrélée à la densité de dislocations induite notamment par le procédé de mise en forme des produits [91], [92].

Le taux de déformation sous croissance d'irradiation dépend également de la composition chimique des alliages. De manière générale, il est observé que la présence d'éléments d'addition influe sur la dose critique du stade d'accélération de croissance, qui apparaît pour des doses plus faibles que dans le cas du zirconium pur [91]–[94].

IV.1.2. Les modèles théoriques de la croissance sous irradiation

Le premier modèle proposé afin d'expliquer le phénomène de croissance sous irradiation a été proposé par Buckley. Selon ce modèle, l'allongement du cristal suivant la direction <a> et la contraction suivant la direction <c> seraient engendrés par une agglomération sous forme de boucles, des interstitiels dans les plans prismatiques, et des lacunes dans le plan de base. Cependant, les résultats du « Round-Robin » [43] invalident cette théorie. En effet, la cohabitation des boucles interstitielles et lacunaires dans les plans prismatiques n'est pas prise en compte dans ce modèle, et les boucles lacunaires n'ont pas, à l'époque, été observées dans les plans de base. D'autres modèles ont par la suite été proposés, tel que le modèle proposé par Carpenter et Northwood [47] basé sur la différence d'interaction élastique (EID) entre les défauts ponctuels et les dislocations. Cependant ces modèles n'expliquent pas la totalité des observations expérimentales.

Le modèle le plus en accord avec les observations expérimentales est le modèle basé sur la DAD (§ II.2). Ce modèle, initialement proposé par Woo et Gösele [49], considère que les auto-interstitiels sont soumis à une diffusion anisotrope qui entraîne leur déplacement plus facile dans le plan de base que suivant la direction cristallographique <c>, alors que la diffusion des lacunes est considérée comme isotrope. En effet, dans ce modèle, les joints de grains n'agissent plus comme des puits neutres, comme avancé par l'EID, mais sont, comme les dislocations, des puits de piégeages des défauts, dont l'efficacité dépend de leur orientation cristallographique. Le mécanisme DAD est applicable aux alliages de zirconium sous leurs différents états métallurgiques. En effet, dans le cas des alliages de zirconium recristallisés, qui contiennent une densité initiale en dislocations très faible, les trois régimes observés lors de l'évolution de la déformation de croissance sous irradiation peuvent être décrits par le modèle :
- Au début de l'irradiation, les joints de grains sont les puits dominants présents au sein de la microstructure. Dans le modèle DAD, les joints de grains parallèles aux plans prismatiques agissent comme puits préférentiels pour les SIAs alors que les lacunes s'éliminent de façon préférentielle sur les joints de grains parallèles au plan de base. Il en résulte un allongement suivant la direction <a> et une contraction suivant la direction <c>, qui correspond au premier stade de la croissance.
- Au cours de l'irradiation, les boucles de dislocation de type <a> nucléent et leur concentration augmente. Elles deviennent les puits majeurs d'élimination des défauts. Contrairement aux dislocations prismatiques de type <a> qui sont biaisées en faveur des SIAs, les boucles <a> constitueraient des puits neutres. Les résultats du « Round-Robin » [43] ayant démontré une coexistence des boucles <a> de nature interstitielle et lacunaire, le modèle DAD en déduit que les SIAs s'éliminent préférentiellement sur les boucles de nature interstitielle et sur les dislocations de type <a>. Les boucles de nature lacunaire agissent comme puits préférentiels pour les lacunes. Il en résulte une déformation très faible du cristal, lié au régime stationnaire observé macroscopiquement.
- Pour des fluences plus importantes, les boucles de dislocation à composante <c> se forment dans le plan de base et constituent un biais supplémentaire. D'après le modèle DAD, ces boucles absorbent préférentiellement des lacunes, ce qui explique que celle-ci soient exclusivement de nature lacunaire. Une reprise de la croissance sous irradiation a alors lieu, conduisant au phénomène d'accélération de la croissance.

Dans le cas des alliages écrouis et détendus, la densité initiale en dislocations est beaucoup plus importante que dans le cas des alliages recristallisés et la vitesse de croissance est beaucoup plus importante que dans le cas des alliages recristallisés. Ce phénomène s'explique par la coexistence de

dislocations de type <a>, qui agissent toujours comme puits préférentiels au SIAs, et de dislocations de type <c+a> qui sont biaisées en faveur des lacunes.

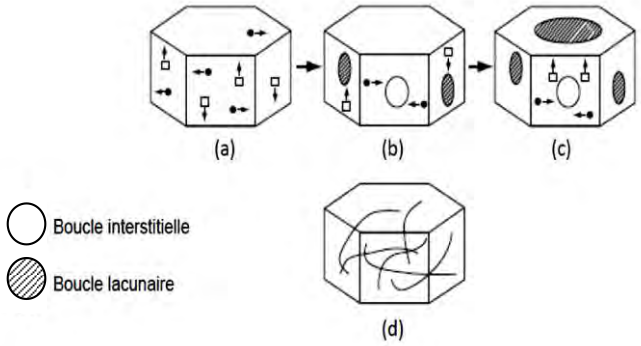


Figure I-27. Les trois stades de la déformation par croissance sous irradiation des alliages de zirconium a-c) recristallisés d) écrouis [29].

IV.2. Fluage sous irradiation

IV.2.1. Comportement macroscopique en fluage sous irradiation

En conditions opérationnelles, une déformation par fluage sous irradiation se produit sous l'effet combiné du flux de neutrons et de la contrainte appliquée aux gaines. Le fluage sous irradiation peut être divisé en deux composantes: le fluage thermique, correspondant à la déformation activée par la température, et le fluage d'irradiation, qui correspond à la réponse du matériau quand il est soumis à une contrainte sous flux. Ces deux composantes du fluage sous irradiation impliquent la coexistence de mécanismes différents mais fortement complémentaires. Les mécanismes du fluage d'irradiation seront décrits à la suite de ce chapitre. Bien que les effets sur le comportement macroscopique du matériau du fluage thermique et du fluage d'irradiation soient difficilement différenciables, il est possible de définir deux domaines dépendants de la contrainte et de la température où l'un deux sera dominant. A haute température et pour des contraintes appliquées importantes, le fluage thermique sera dominant. Au contraire, à plus faible température et pour des niveaux de contraintes moins importants, le fluage d'irradiation sera majoritaire.

IV.2.1.1. Influence des conditions d'irradiation

La déformation par fluage d'irradiation est fortement dépendante de la contrainte et du flux de neutrons. Cette dépendance est traduite par une loi puissance. L'effet de la température étant non négligeable, il peut être décrit par la loi d'Arrhenius. La vitesse de déformation de fluage sous irradiation $\dot{\varepsilon}$ peut s'écrire comme suit :

$$\dot{\varepsilon} = K.\sigma^{n}.\varphi^{p}.\exp(-\frac{T_{act}}{T}) \qquad \textbf{Eq. I-13}$$

avec K un coefficient de proportionnalité, σ la contrainte effective (MPa), φ : le flux de neutrons rapide ($n.m^{-2}.s^{-1}$), T_{act} la température d'activation (K) et T la température (K).

Dans les conditions normales de fonctionnement des réacteurs, l'irradiation aux neutrons a pour effet d'augmenter la vitesse de fluage des alliages de zirconium. D'après plusieurs auteurs, la valeur de la puissance *p* du flux a été trouvée comme comprise entre 0,25 et 1 [92], [95], [96]. Selon Fidleris [92], l'effet de la fluence sur la vitesse de fluage n'est visible que pour des températures supérieures à 327°C dans le cas des alliages écrouis. Deux effets antagonistes sont de plus observés sous irradiation. En effet, bien que la vitesse de fluage augmente avec le flux, une diminution de la composante liée au fluage thermique est tout de même observée à haute température et pour de faibles flux, en raison du durcissement d'irradiation. Cependant, la vitesse de déformation en fluage reste relativement importante en raison de la composante liée au fluage d'irradiation. De plus, l'effet du durcissement d'irradiation sature pour des fluences d'environ 4.10^{24} $n.m^{-2}$. Les effets de flux et de températures sont liés. De façon générale, l'exposant au flux *p* diminue quand la température augmente. Pour des températures supérieures à 800 K, il devient même négligeable ce qui s'explique par un fluage thermique dominant.

L'effet de la température sur la vitesse de déformation de fluage sous irradiation des alliages de zirconium peut être quantifié par la température d'activation du fluage. Pour des températures faibles (< 570 K), l'effet de la température est très faible et la température d'activation varie entre 2000 et 5000 K. Ces valeurs démontrent que le fluage d'irradiation est dominant et que la déformation n'est pas uniquement contrôlée par un mécanisme de diffusion thermique. Pour des températures plus élevées, la dépendance de la vitesse de fluage à la température devient importante, et la température d'activation augmente pour atteindre des valeurs comprises entre 25 000 et 50 000 K. Ces valeurs sont proches de celles obtenues dans le cas du fluage thermique hors irradiation, et permettent de déduire que les mécanismes de la déformation sont presque purement thermiquement activés [92], [97], [98]. La température de transition entre les régimes de faible et de forte température d'activation dépend de l'alliage étudié, de son état métallurgique ainsi que de la contrainte appliquée. Soniak et al. [99] démontrent un effet de la température plus important dans le cas du Zy-4 recristallisé où la température d'activation obtenue est de 7200 K, contre 4200 K pour le Zy-4 détendu, pour des contraintes variant respectivement de 60 à 90 MPa et de 90 à 120 MPa et des températures de 280°C à 380°C.

La vitesse de déformation en fluage d'irradiation augmente également avec la contrainte appliquée. La valeur de l'exposant de contrainte *n* augmente avec la contrainte et la température [92], [97], [99], [100]. Coleman et al. [101] démontrent de plus que la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte est anisotrope en déterminant la valeur du coefficient n pour des éprouvettes prélevées dans les sens longitudinaux et transversaux de tubes de Zr-Nb 2,5 wt%.

IV.2.1.2. Influence des paramètres matériaux

Les alliages de zirconium présentent un comportement anisotrope en fluage. Cette anisotropie devient plus marquée sous irradiation. De nombreux auteurs démontrent que la vitesse de déformation en fluage sous irradiation est supérieure dans le sens de laminage que dans le sens transverse [92], [97], [101], [102]. Cette anisotropie s'explique notamment par la texture des alliages de zirconium, où les directions faibles du réseau (contenues dans le plan basal) coïncident avec la direction de laminage. Afin de prendre en compte l'anisotropie, la loi de puissance peut être réadaptée avec un facteur d'anisotropie C_d et A une constante du matériau :

$$\dot{\varepsilon}_d = AC_d\sigma^n\varphi^p e^{(-\frac{T_{act}}{T})}$$ **Eq. I-14**

Contrairement à la déformation due à la croissance sous irradiation, la taille des grains ne semble pas avoir d'impact notable sur le comportement en fluage sous irradiation des alliages de zirconium [102].

De manière générale, une augmentation du taux d'écrouissage entraîne une augmentation de la vitesse de fluage sous irradiation [102]. L'écrouissage agit donc au détriment de la résistance au fluage avec un effet plus élevé dans le sens longitudinal que dans le sens travers. Coleman et al. [101] observent de plus une saturation de la dépendance à l'écrouissage dans le cas du sens travers.

Un effet des éléments d'addition sur le comportement des alliages de zirconium en fluage sous irradiation a également été démontré. Le zirconium pur présente une résistance au fluage assez faible. L'ajout d'éléments d'alliage permet une augmentation significative de la résistance au fluage thermique et dans certains cas au fluage d'irradiation. Cette résistance au fluage augmente en particulier grâce au durcissement du matériau par solution solide, interstitielle ou substitutionnelle (O, Sn, Nb) et grâce à la présence de précipités.

IV.2.2. Les mécanismes théoriques du fluage d'irradiation

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés afin d'expliquer le fluage d'irradiation. Les premiers mécanismes proposés reposaient sur une augmentation de la concentration en lacunes due à l'irradiation [103]. Cependant il a été démontré qu'en raison des recombinaisons possibles entre lacunes et interstitiels et de l'élimination des défauts ponctuels sur les puits de la microstructure, une augmentation de la concentration des défauts ponctuels sous irradiation ne pouvait pas expliquer l'augmentation de vitesse de fluage par montée pure pilotée par l'émission de lacunes. Ce mécanisme n'est en effet sensible qu'au gradient de concentration entre les différents puits. Les mécanismes microscopiques majoritaires retenus pour expliquer la déformation par fluage sous irradiation peuvent être divisés en deux groupes :

1) Les mécanismes pour lesquels la déformation est contrôlée par la montée des dislocations

2) Les mécanismes pour lesquels la déformation est contrôlée par le glissement des dislocations

IV.2.2.1. Mécanisme de déformation par montée des dislocations

IV.2.2.1.1. Montée pure des dislocations sous irradiation sans application de contrainte

La montée thermique des dislocations, hors irradiation, se produit par l'émission ou l'absorption de lacunes thermiques le long des crans de dislocations. Lors de l'irradiation aux neutrons, des paires de Frenkel sont créées et les défauts ponctuels, interstitiels et lacunaires induits par l'irradiation, sont initialement produits en nombre égal. L'irradiation entraîne donc une augmentation de la concentration des défauts ponctuels et une sursaturation de leur concentration au sein du matériau. Le volume de relaxation des auto-interstitiels étant plus élevé que celui des lacunes, un biais d'interaction des défauts ponctuels avec les dislocations existe sous irradiation (EID). Cependant sans contrainte appliquée, et s'il n'existe pas d'autre puit tels que des joints de grains ou des cavités, la

montée des dislocations ne peut s'effectuer, et il n'existe donc pas de déformation du matériau sous irradiation. Néanmoins pour un matériau polycristallin, la montée des dislocations peut se produire sans application de contrainte. Les auto-interstitiels s'éliminent alors préférentiellement sur les dislocations et les lacunes au niveau des joints de grains. Ce mécanisme de montée des dislocations n'induit pas de déformation car celle-ci est compensée par la déformation due aux lacunes qui arrivent aux joints de grains. La montée, à la même vitesse, de dislocations présentant des vecteurs de Burgers différents conduit également à une déformation nulle. La déformation en fluage d'irradiation par montée des dislocations existe donc uniquement dans le cas où une contrainte est appliquée, où un biais d'absorption des défauts apparaît. Ce cas sera décrit à la suite.

Expérimentalement, le mécanisme de montée des dislocations est observé par une mise en hélice de ces dernières.

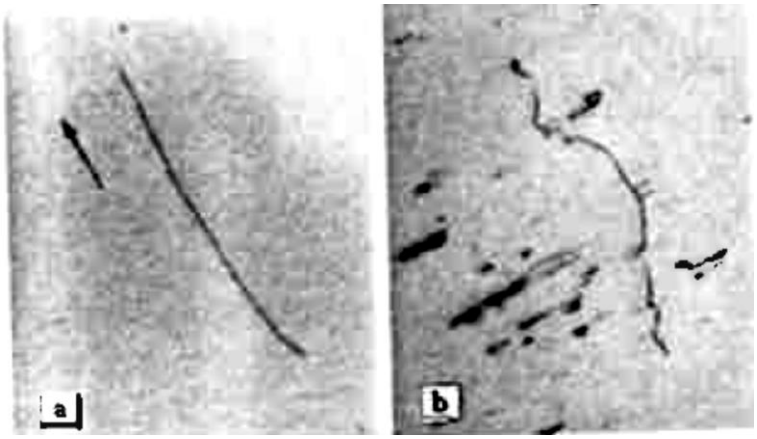


Figure I-28. Mise en hélice d'une dislocation <c+a> dans du zirconium irradié aux électrons [104].

La mise en hélice des dislocations a lieu dans le cas d'une sursaturation locale en défauts ponctuels. Considérons une dislocation mixte de longueur L ancrée en deux points A et B (précipités…). La sursaturation va entraîner la montée des parties coins de la dislocation, qui va prendre une forme d'hélice qui va « s'enrouler » autour d'un cylindre avec un axe parallèle au vecteur de Burgers $\vec{b}$ de la dislocation (Figure I-29).

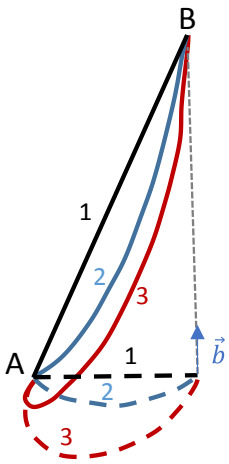


Figure I-29. Nucléation d'une hélice lors de la montée d'une dislocation 1) Dislocation avant mise en hélice 2) Position critique de la dislocation 3) Position instable lors d'une sursaturation en défauts ponctuels [9].

La sursaturation des défauts entraîne une croissance des tours d'hélices par leur taille et par leur nombre. L'augmentation en taille résulte de la force chimique engendrée par la sursaturation en défauts ponctuels autour de la dislocation. La dislocation se déplace dans une direction perpendiculaire à l'axe du cylindre. L'augmentation en nombre des hélices résulte de l'ancrage de la dislocation aux nœuds A et B où le mouvement de la dislocation est plus faible et la courbure de l'hélice est plus petite. La dislocation « s'enroule » alors autour de ces nœuds [9].

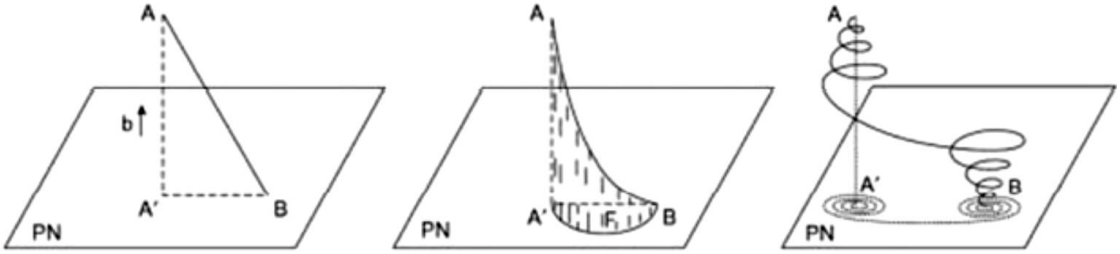


Figure I-30. Etapes de la mise en hélice d'une dislocation par montée [9].

Sous fluage thermique, la déformation par montée des dislocations est engendrée par la différence d'absorption et d'émission des lacunes thermiques. Sous irradiation, la déformation est due à la différence d'absorption entre les SIAs et les lacunes par les dislocations. Les mécanismes de la déformation sous irradiation sont explicités dans la suite de ce chapitre.

IV.2.2.1.2. Le mécanisme SIPA

D'après le modèle de l'EID, il existe une différence d'interaction élastique entre les défauts ponctuels et les dislocations. Le mécanisme d'absorption préférentielle induite par la contrainte ou Stress Induced Preferential Absorption (SIPA), repose sur une modification de ce biais par une contrainte appliquée [105]. Le biais d'une dislocation dépend alors de l'orientation du vecteur de Burgers par rapport à la direction de la contrainte (Figure I-31).

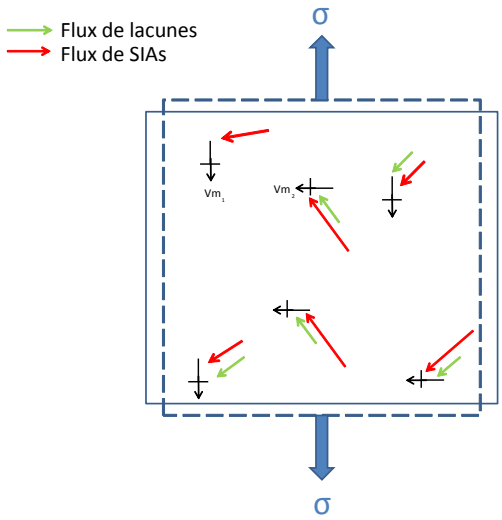


Figure I-31. Montée des dislocations par le mécanisme SIPA: le biais des dislocations est modifié par la contrainte.

Pour une dislocation coin, le facteur de biais modifié par la contrainte est donné par la relation:

$$Z^d(\sigma) = Z^d(0) + \delta Z^d(\sigma_H) + \delta Z^d(\tilde{\sigma}) \qquad \textbf{Eq. I-15}$$

avec : $Z^d(0)$: le facteur de biais induit par l'EID sans contrainte appliquée
$\delta Z^d(\sigma_H)$: le facteur de biais dû à la contrainte hydrostatique
$\delta Z^d(\tilde{\sigma})$: le facteur de biais dû à la composante déviatorique du tenseur de contrainte

La contribution de la contrainte hydrostatique est indépendante de l'orientation de la contrainte appliquée et n'aura pas d'impact sur le fluage d'irradiation. La contribution du facteur $\delta Z^d(\tilde{\sigma})$ est au contraire importante sur le fluage d'irradiation [106].

$$\delta Z^d(\tilde{\sigma}) = -\frac{1}{3} * \frac{\left(\frac{b}{4a}\right)^2}{\ln\left(\frac{d}{a}\right)} * \frac{(1+\nu)\alpha^G \nu}{[2\pi(1-\nu)kT]^2} * \left|2\hat{b}_i\hat{b}_j - (1-4\nu)\hat{l}_i\hat{l}_j\right|\tilde{\sigma}_{ij} \qquad \textbf{Eq. I-16}$$

avec : b : la norme du vecteur de Bugers
a : rayon de cœur de la dislocation
2d : la distance moyenne entre les dislocations
ν : le volume de relaxation du défaut ponctuel
α^G : la polarisabilité en cisaillement du défaut ponctuel
kT : l'énergie thermique
$\hat{b}_i \; et \; \hat{b}_j$: les vecteurs unitaires qui décrivent le vecteur de Burgers de la dislocation
$\hat{l}_i \; et \; \hat{l}_j$: les vecteurs unitaires qui décrivent le vecteur perpendiculaire au vecteur de Burgers
$\tilde{\sigma}_{ij}$: la composante déviatorique du tenseur de contrainte

Si l'on se place dans un repère orthonormé, avec le tenseur de contrainte et le vecteur de ligne de la dislocation parallèle à deux des axes du repère, il est possible de déduire l'effet de la contrainte appliquée sur le biais de la dislocation. Ainsi, les dislocations ayant un vecteur de Burgers parallèle à la direction de la contrainte appliquée agissent comme puits préférentiels pour les auto-interstitiels. En parallèle, les lacunes sont préférentiellement éliminées sur les dislocations présentant un vecteur de Burgers perpendiculaire à la direction de la contrainte appliquée. Ces flux de défauts ponctuels entraînent la montée des dislocations coins orientées de façon préférentielle par rapport à la contrainte appliquée [98], [107]. La déformation macroscopique observée correspondra à un allongement du matériau dans la direction de la contrainte appliquée.

L'effet de modification du biais par la contrainte est très important dans les matériaux pré-écrouis où le réseau de dislocation est dense. Au contraire, dans le cas des matériaux recristallisés, ou la concentration initiale en dislocations est faible, le mécanisme SIPA appliqué aux dislocations ne peut pas expliquer à lui seul la déformation observée lors du fluage sous irradiation. Une théorie basée sur une croissance des boucles biaisée par la contrainte est proposée. Les auto-interstitiels sont préférentiellement absorbés par les boucles présentes dans un plan prismatique perpendiculaire à la direction de la contrainte, alors que les lacunes seront absorbées par les boucles des plans prismatiques parallèles à la contrainte. Les boucles interstitielles grandissent préférentiellement dans les plans prismatiques parallèles à la contrainte (et les boucles lacunaires dans les plans perpendiculaires) [98], [103]. De plus, à haute température, la coalescence de ces boucles engendre la

création d'un réseau de dislocations, favorable au mécanisme SIPA. C'est ce réseau de dislocations qui pourrait monter sous l'effet de ce mécanisme.

Dans le cas des alliages de zirconium, les dislocations les plus fréquentes sont les dislocations de type <a> qui présentent un vecteur de Burgers de type $\frac{1}{3} < 11\bar{2}0 >$ dans les plans prismatiques. La déformation sera donc régie par l'orientation des plans prismatiques par rapport à la contrainte appliquée [107].

D'après Woo [108], le mécanisme SIPA présente tout de même des limites et notamment dans le cas de matériaux présentant un comportement anisotrope. Afin d'évaluer au mieux la déformation engendrée par le mécanisme SIPA sous irradiation, il réalise une étude théorique dans le cas d'un monocristal de zirconium. Il en déduit que la vitesse de fluage due au mécanisme SIPA est très sensible à la direction de la contrainte par rapport à l'axe <c> et est proportionnelle à $\sin^4\theta$ (avec θ l'angle entre l'axe <c> et la direction de la contrainte).

D'autres mécanismes appartenant au modèle SIPA ont de plus été proposés pour prendre en compte l'élasto-diffusion des défauts ponctuels ainsi que la diffusion anisotrope des défauts ponctuels [48], [109], [110].

IV.2.2.1.3. Mécanisme SIPN

Le mécanisme de nucléation préférentielle SIPN repose, comme le mécanisme SIPA, sur un biais du transfert de masse dû aux boucles de dislocation [98]. Dans le mécanisme SIPA, la contrainte agit sur le biais d'interaction entre les dislocations et les défauts ponctuels, mais aussi sur la croissance des boucles. Dans le cas du mécanisme SIPN, ce n'est plus la croissance des boucles qui est biaisée par la contrainte, mais leur nucléation. Les boucles interstitielles germent de façon préférentielle dans les plans perpendiculaires à la contrainte appliquée, alors que la formation de boucles lacunaires est favorisée dans les plans parallèles à cette contrainte. Cette germination préférentielle des boucles engendre au niveau macroscopique un allongement du matériau dans la direction de la contrainte appliquée.

Cependant, d'après ce mécanisme, la contrainte n'aurait un impact que sur la germination des boucles et sur leur croissance. Ce mécanisme n'interviendrait donc que pour les premiers stades de l'irradiation et la déformation serait par la suite contrôlée par le flux. Il existerait donc une déformation en fluage sous flux sans contrainte appliquée. Le mécanisme SIPN présente donc des limites pour expliquer le fluage d'irradiation des alliages de zirconium.

IV.2.2.2. Mécanisme de déformation par glissement des dislocations

Le second type de mécanisme proposé est le mécanisme de glissement contrôlé par la montée des dislocations ou Stress Induced Climb and Glide (SICG). Dans ce cas, les mécanismes de déformation sont similaires à ceux du fluage thermique et sont accélérés par l'irradiation. La déformation par fluage est alors contrôlée par le glissement des dislocations. La montée aide au passage des obstacles présents au sein de la matrice (précipités, boucles de dislocation, …). Les dislocations se libérent des obstacles par montée et glissent par la suite sous l'effet de la contrainte appliquée.

Bien que la déformation soit induite par le glissement, la vitesse de déformation est contrôlée par le mécanisme le plus lent, soit la montée des dislocations [98], [103], [107].

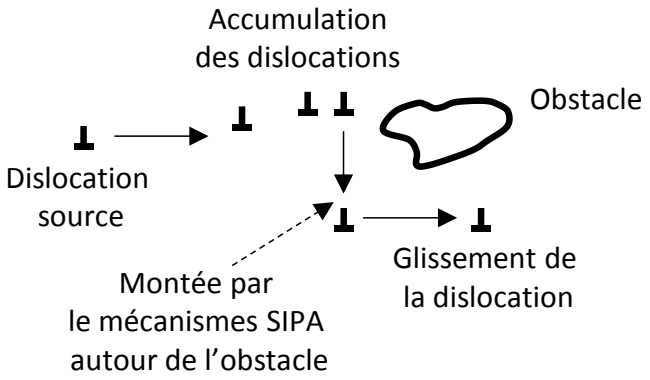


Figure I-32. Schéma du processus de glissement assisté par la montée (Matthews & Finnis, 1988).

Plusieurs modèles de glissement assistés par la montée sont proposés dans la littérature. Les principaux sont présentés ci-dessous :

- le modèle I-creep : dans ce modèle, la montée des dislocations est due au biais d'interaction entre les dislocations et les défauts ponctuels qui conduit à une absorption préférentielle des auto-interstitiels sur les dislocations (effet Cottrell de premier ordre ou EID) [98], [111]. Ce modèle prédit une dépendance linéaire de la déformation avec la contrainte.
- le modèle PAG : ce modèle de déformation par glissement assisté par la montée indique que la montée des dislocations a lieu grâce au mécanisme SIPA [109], [112], [113].

Cette partie bibliographique a permis de présenter les différents modes de déformation des alliages de zirconium sous irradiation, à savoir la croissance et le fluage sous irradiation. La croissance libre est liée en partie à l'apparition des boucles de dislocation à composante <c>. Le fluage sous irradiation est divisé en deux composantes : le fluage thermique et le fluage d'irradiation. Plusieurs mécanismes sont proposés afin d'expliquer le fluage d'irradiation, et reposent soit sur une déformation induite par la montée des dislocations soit par un glissement des dislocations assisté par la montée.

Synthèse du chapitre

Dans la gamme de températures étudiée, le zirconium se trouve sous sa phase α de structure hexagonale compacte (HCP). Le monocristal de zirconium présente une anisotropie élastique dont l'importance dépend de la température. Le procédé de mise en forme des produits en alliages de zirconium entraîne, de plus, une texture cristallographique qui induit une anisotropie importante de leur comportement plastique.

Le principal mode de déformation plastique des alliages est le glissement des dislocations. Compte tenu de leur structure hexagonale compacte, les alliages de zirconium présentent 5 systèmes de glissement {plan de glissement ; vecteur de Burgers} dans les plans prismatiques, de base et pyramidaux de première et de seconde espèce. L'estimation des cissions critiques des différents systèmes démontre que le système de glissement facile est le glissement dans les plans prismatiques dans la direction <a> = $1/3 < 11\bar{2}0 >$. Pour des températures importantes, le mouvement des dislocations par montée thermique est activé. La montée des dislocations est un mouvement non conservatif et implique la diffusion de lacunes thermiques.

L'irradiation neutronique entraîne une modification de la microstructure des alliages de zirconium. Dans le cadre de ce travail de thèse, les principaux défauts d'irradiation étudiés sont les boucles de dislocation prismatiques de vecteur de Burgers <a>. Ces boucles parfaites apparaissent dès les premiers stades de l'irradiation et sont comprises entre les plans prismatiques de première espèce $\{10\bar{1}0\}$ et les plans de type $\{11\bar{2}0\}$. Elles ne sont pas purement coin, et elles peuvent être de nature interstitielle ou lacunaire.

Lors de l'étude des mécanismes de déformation post-irradiation, une première approche indique que les boucles de dislocation agissent comme obstacles au glissement des dislocations. Plusieurs modèles sont proposés afin d'expliquer l'effet d'ancrage des dislocations sur les boucles. Expérimentalement, il a été observé un mécanisme de canalisation, se traduisant par la présence de bandes claires dénuées de défaut au sein des grains. Les boucles de dislocation peuvent donc être annihilées ou traînées par les dislocations. Ce phénomène se traduit par une localisation de la déformation dans les canaux. Il a été observé principalement dans les plans de base, ce qui implique un changement de la hiérarchie des systèmes de glissement faciles par rapport au glissement dans les alliages non irradiés. Les interactions possibles entre les dislocations et les boucles ont été étudiées par des simulations en dynamique moléculaire et en dynamique des dislocations. Les résultats montrent bien des cas, dépendants de la nature du défaut et de son vecteur de Burgers, où la boucle est annihilée (sous forme de crans ou de tour d'hélice) ou traînée par la dislocation. Des essais de traction *in-situ* ont également été réalisés sur des échantillons de Zy-4, et montrent bien des cas d'ancrage et d'annihilation des boucles. Les observations expérimentales sont en particulier effectuées dans les plans prismatiques et pyramidaux. Il est important de noter qu'il existe une difficulté d'observation en raison de la faible occurrence des interactions lors des essais de traction.

Sous irradiation, la croissance libre des alliages de zirconium se traduit notamment par une élongation du cristal selon la direction <a> et une contraction selon la direction <a>. Elle peut être divisée en trois régimes dépendants de la fluence : après un premier régime de croissance rapide, un régime stationnaire est atteint. Ce second régime est ensuite suivi d'un stade de croissance accélérée lié à l'apparition des boucles de dislocation à composante <c>. Le modèle théorique le plus pertinent pour expliquer la croissance sous irradiation est le modèle basé sur la diffusion anisotrope des défauts

ponctuels (DAD). La capacité de ce modèle à expliquer différents résultats expérimentaux appuie sa viabilité. Ce modèle considère les joints de grains et les dislocations comme des puits importants de la microstructure, dont l'efficacité de piégeage dépend de leurs orientations cristallographiques.

Le fluage sous irradiation est divisé en deux composantes dont les effets respectifs sont difficilement dissociables : le fluage thermique, effet direct de la température, et le fluage d'irradiation engendré par l'existence d'une contrainte sous flux. Le fluage thermique est prédominant à haute température et des contraintes élevées, alors que le fluage d'irradiation est majoritaire à faible température et pour des contraintes moins importantes. Plusieurs mécanismes théoriques ont été avancés pour expliquer le fluage d'irradiation. Dans le cas des alliages de zirconium, les modèles de type SIPA, basés sur une déformation contrôlée par la montée des dislocations et les modèles de type glissement assisté par la montée des dislocations sont proposés.

Afin d'enrichir les données de la littérature, différents objectifs ont été définis dans le cadre de ce travail de thèse. A la lecture de l'étude bibliographique, il est constaté qu'un certain nombre de points d'ombre existent concernant l'évolution de la microstructure sous irradiation aux particules chargées. Le chapitre II apportera alors des éléments de réponse concernant l'évolution de la nucléation et de la croissance des boucles <a>. Leur nature a également été analysée.
De plus les mécanismes spécifiques d'interaction dislocation-boucle semblent encore insuffisamment compris et leur observation expérimentale mérite d'être approfondie. En particulier, le chapitre III se concentrera sur l'analyse des interactions de type ancrage, impliquées dans le durcissement d'irradiation, et de type absorption des boucles, à la source du phénomène de canalisation.
Toujours dans l'optique d'une meilleure compréhension des interactions dislocation-boucle, il reste également à poursuivre et améliorer la simulation numérique et la prédiction des mécanismes par Dynamique des Dislocations, ce qui constitue l'objectif principal du chapitre IV.
Enfin, il existe très peu d'études expérimentales concernant les mécanismes du fluage d'irradiation, qui permettraient de conforter les modèles théoriques proposés dans la littérature. Une analyse expérimentale préliminaire des mécanismes microscopiques du fluage d'irradiation est alors présentée dans le chapitre V.

Références bibliographiques

[1] C. Lemaignan, *Science des matériaux pour le nucléaire*. Les Ulis: EDP Sciences, 2004.

[2] E. Tenckhoff, *Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and zircaloy*, ASTM STP 966. 1988.

[3] L. Tournadre, "Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium," 2012.

[4] J. Drouet, "Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation," Université de Toulouse, 2014.

[5] K. Linga Murty and I. Charit, "Texture development and anisotropic deformation of zircaloys," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 48, no. 4, pp. 325–359, May 2006.

[6] B. Viguier, "Plasticité : rappels de base et aspects microscopiques," 2009, pp. 1–21.

[7] J.-L. Martin and J. Wagner, *Dislocations et plasticité des cristaux*. Lausanne: Presses polytechniques et universitaires romandes, 2000.

[8] D. Caillard and J.-L. Martin, *Thermally activated mechanisms in crystal plasticity*. Amsterdam; Boston, Mass.: Pergamon, 2003.

[9] J. Friedel, *Dislocations*. Oxford; New York: Pergamon Press; [U.S.A. ed. distributed by Addison-Wesley Pub. Co., Reading, Mass., 1964.

[10] P. B. Legrand, "Structure du coeur des dislocations vis 1/3⟨11 2 0⟩ dans le titane," *Philos. Mag. A*, vol. 52, no. 1, pp. 83–97, Jul. 1985.

[11] X. Feaugas and E. Conforto, "Influence de l'hydrogène sur les mécanismes de déformation et d'endommagement des alliages de titane et de zirconium," 2009, pp. 161–178.

[12] P. GEYER, "Comportement elasto-viscoplastique de tubes en zircaloy-4 : approche experimentale et modelisation micromecanique," 1999.

[13] A. Akhtar and A. Teghtsoonian, "Plastic deformation of zirconium single crystals," *Acta Metall.*, vol. 19, no. 7, pp. 655–663, Jul. 1971.

[14] H. Conrad, "Effect of interstitial solutes on the strength and ductility of titanium," *Prog. Mater. Sci.*, vol. 26, no. 2–4, pp. 123–403, Jan. 1981.

[15] E. Clouet, D. Caillard, N. Chaari, F. Onimus, and D. Rodney, "Dislocation locking versus easy glide in titanium and zirconium," *Nat. Mater.*, vol. 14, no. 9, pp. 931–936, Jul. 2015.

[16] S. Naka, A. Lasalmonie, P. Costa, and L. P. Kubin, "The low-temperature plastic deformation of α-titanium and the core structure of a-type screw dislocations," *Philos. Mag. A*, vol. 57, no. 5, pp. 717–740, May 1988.

[17] J. L. Derep, S. Ibrahim, R. Rouby, and G. Fantozzi, "Deformation behaviour of zircaloy-4 between 77 and 900 K," *Acta Metall.*, vol. 28, no. 5, pp. 607–619, May 1980.

[18] S. Graff, S. Forest, J.-L. Strudel, C. Prioul, and J.-L. Béchade, "Caractérisation et modélisation des phénomènes de vieillissement dans les alliages de zirconium," presented at the Matériaux 2006, Dijon, 2006.

[19] C. Prioul, "Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium. Conséquences sur les propriétés mécaniques," in *Le Zirconium, Journées d'études "Propriétés-Microstructures,"* Cailletaud G., Lemoine P., les éditions de physique, 1996, pp. 25–34.

[20] C. Prioul, "Influence d'un changement en hydrogène sur les évolutions structurales d'alliages Fe-Ni-C étudiées entre 4,2 et 300k par mesure du frottement intérieur," 1985.

[21] N. Chaari, D. Rodney, and E. Clouet, "Oxygen - Dislocation interaction in zirconium from first principles," *Acta Mater.*, vol. 132, pp. 416–424, Jun. 2017.

[22] D. Caillard, M. Rautenberg, and X. Feaugas, "Dislocation mechanisms in a zirconium alloy in the high-temperature regime: An in situ TEM investigation," *Acta Mater.*, vol. 87, pp. 283–292, Apr. 2015.

[23] F. FERRER, "Etude des mecanismes de deformation du zirconium entre 25\c et 400\c. Influence d'une faible teneur en soufre," 2000.

[24] N. Chaari, E. Clouet, and D. Rodney, "First Order Pyramidal Slip of screw dislocations in zirconium," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 45, no. 13, pp. 5898–5905, Dec. 2014.
[25] N. Chaari, "Modélisation ab initio de la plasticité dans les métaux hexagonaux : zirconium et titane purs et effet de l'oxygène," 2015.
[26] S. Naka, "Etude des mécanismes de déformation plastique à basse température de monocristaux de phase α," Université de Paris Sud (Orsay), 1983.
[27] A. Akhtar, "Basal slip in zirconium," *Acta Metall.*, vol. 21, no. 1, pp. 1–11, Jan. 1973.
[28] D. Caillard, F. Onimus, M. Gaumé, "Glide and cross-slip of a-dislocations in Zr and Ti", *article à paraître*, 2017.
[29] F. Onimus and J. L. Béchade, "Radiation Effects in Zirconium Alloys," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 1–31.
[30] D. J. Bacon, "A review of computer models of point defects in hcp metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 176–189, Oct. 1988.
[31] Y. N. Osetsky, D. J. Bacon, and N. de Diego, "Anisotropy of point defect diffusion in alpha-zirconium," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 33, no. 3, pp. 777–782, Mar. 2002.
[32] F. Christien and A. Barbu, "Effect of self-interstitial diffusion anisotropy in electron-irradiated zirconium: A cluster dynamics modeling," *J. Nucl. Mater.*, vol. 346, no. 2–3, pp. 272–281, Nov. 2005.
[33] C. H. Woo, H. Huang, and W. J. Zhu, "Low-dimension self-interstitial diffusion in α-Zr," *Appl. Phys. Mater. Sci. Process.*, vol. 76, no. 1, pp. 101–106, Jan. 2003.
[34] C. H. Woo and X. Liu, "Atomistic calculation of point-defect diffusion anisotropy and irradiation growth in $\boldsymbol{\alpha}$ -zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 87, no. 16, pp. 2355–2369, Jun. 2007.
[35] C. Varvenne, F. Bruneval, M.-C. Marinica, and E. Clouet, "Point defect modeling in materials: Coupling ab initio and elasticity approaches," *Phys. Rev. B*, vol. 88, no. 13, Oct. 2013.
[36] G. D. Samolyuk, A. V. Barashev, S. I. Golubov, Y. N. Osetsky, and R. E. Stoller, "Analysis of the anisotropy of point defect diffusion in hcp Zr," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 173–180, Oct. 2014.
[37] G. M. Hood, "Point defect diffusion in α-Zr," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 149–175, Oct. 1988.
[38] C. Varvenne, O. Mackain, and E. Clouet, "Vacancy clustering in zirconium: An atomic-scale study," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 65–77, Oct. 2014.
[39] C. Simonot, "Evolutions microstructurales des alliages de zirconium sous irradiation liens avec le phenomene de croissance," 1995.
[40] M. Griffiths, "A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 190–218, Oct. 1988.
[41] A. Jostsons, R. G. Blake, J. G. Napier, P. M. Kelly, and K. Farrell, "Faulted loops in neutron-irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 68, no. 3, pp. 267–276, Nov. 1977.
[42] Y. De Carlan, "Contribution à l'étude des phénomènes d'accélération de la croissance en réacteur des alliages de zirconium. Influence du fer sur la formation des boucles de dislocation de type <c>.," Institut National Polytechnique de Grenoble, 1996.
[43] D. O. Northwood *et al.*, "Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys — an international 'round-robin' experiment," *J. Nucl. Mater.*, vol. 79, no. 2, pp. 379–394, Feb. 1979.
[44] D. O. Northwood, V. Fidleris, R. W. Gilbert, and G. J. C. Carpenter, "Dislocation loop generation and irradiation growth in a zirconium single crystal," *J. Nucl. Mater.*, vol. 61, no. 2, pp. 123–130, Aug. 1976.
[45] A. Jostsons, P. M. Kelly, and R. G. Blake, "The nature of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, no. 3, pp. 236–256, May 1977.
[46] P. M. Kelly and R. G. Blake, "The characterization of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 28, no. 2, pp. 415–426, Aug. 1973.
[47] G. J. C. Carpenter and D. O. Northwood, "The contribution of dislocation loops to radiation growth and creep of Zircaloy - 2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 56, no. 3, pp. 260–266, Jun. 1975.
[48] C. H. Woo, "Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: Effects of anisotropic diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 237–256, Oct. 1988.

[49] C. H. Woo and U. Gösele, “Dislocation bias in an anisotropic diffusive medium and irradiation growth,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 119, no. 2–3, pp. 219–228, Dec. 1983.
[50] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, “Anisotropic distribution of dislocation loops in HVEM-irradiated Zr,” *Philos. Mag. A*, vol. 49, no. 5, pp. 613–624, Nov. 1984.
[51] S. N. Buckley and S. A. Manthorpe, “Dislocation loop nucleation and growth in zirconium-2.5 wt% niobium alloy during 1 MeV electron irradiation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 169–174, May 1980.
[52] G. J. C. Carpenter and J. F. Watters, “A study of electron irradiation damage in Zirconium using a high voltage electron microscope,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 96, no. 3, pp. 213–226, Feb. 1981.
[53] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, “Electron damage in zirconium I,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, no. 2–3, pp. 313–322, Apr. 1983.
[54] M. Griffiths, R. C. Styles, C. H. Woo, F. Phillipp, and W. Frank, “Study of point defect mobilities in zirconium during electron irradiation in a high-voltage electron microscope,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 208, no. 3, pp. 324–334, Feb. 1994.
[55] C. Hellio, C. H. de Novion, and L. Boulanger, “Influence of alloying elements on the dislocation loops created by Zr+ ion or by electron irradiation in α-zirconium,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 368–378, Oct. 1988.
[56] H. Nakamichi, C. Kinoshita, K. Yasuda, and S. Fukada, “Formation and Growth Process of Dislocation Loops in Zircaloys under Electron Irradiation,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 34, no. 11, pp. 1079–1086, Nov. 1997.
[57] D. Lee and E. F. Koch, “Irradiation damage in Zircaloy-2 produced by high-dose ion bombardment,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 50, no. 2, pp. 162–174, Mar. 1974.
[58] R. Adamson, W. Bell, and D. Lee, “Use of Ion Bombardment to Study Irradiation Damage in Zirconium Alloys,” in *Zirconium in Nuclear Applications*, J. Schemel and H. Rosenbaum, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1974, pp. 215–14.
[59] D. O. Northwood and R. W. Gilbert, “Neutron radiation damage in zirconium and its alloys,” *Radiat. Eff.*, vol. 22, no. 2, pp. 139–140, Jan. 1974.
[60] R. W. Gilbert, K. Farrell, and C. E. Coleman, “Damage structure in zirconium alloys neutron irradiated at 573 to 923 k,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 84, no. 1–2, pp. 137–148, Oct. 1979.
[61] J. Ribis *et al.*, “Experimental study and numerical modelling of the irradiation damage recovery in zirconium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 403, no. 1, pp. 135–146, 2010.
[62] C. Hellio, “Étude par microscopie électronique à transmission des défauts induits par irradiation aux ions et aux électrons dans du zirconium pur et quatre de ses alliages,” 1987.
[63] M. Christensen *et al.*, “Effect of alloying elements on the properties of Zr and the Zr–H system,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 445, no. 1–3, pp. 241–250, Feb. 2014.
[64] L. M. Howe and W. R. Thomas, “The effect of neutron irradiation on the tensile properties of zircaloy-2,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 2, no. 3, pp. 248–260, Sep. 1960.
[65] H. R. Higgy and F. H. Hammad, “Effect of neutron irradiation on the tensile properties of zircaloy-2 and zircaloy-4,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 44, no. 2, pp. 215–227, Aug. 1972.
[66] P. Morize, J. Baicry, and J. Mardon, “Effect of Irradiation at 588 K on Mechanical Properties and Deformation Behavior of Zirconium Alloy Strip,” in *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM STP 939., 1987, pp. 101–19.
[67] F. Onimus, “Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés,” 2003.
[68] B. V. Cockeram, R. W. Smith, K. J. Leonard, T. S. Byun, and L. L. Snead, “Development of microstructure and irradiation hardening of Zircaloy during low dose neutron irradiation at nominally 358°C,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 418, no. 1–3, pp. 46–61, Nov. 2011.
[69] F. Onimus, J. L. Béchade, and D. Gilbon, “Experimental Analysis of Slip Systems Activation in Neutron-Irradiated Zirconium Alloys and Comparison with Polycrystalline Model Simulations,” *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 44, no. S1, pp. 45–60, Jan. 2013.

[70] C. E. Coleman, D. Mills, and J. van der Kuur, "Deformation parameters of neutron irradiated Zircaloy-4 at 300°C," *Can. Metall. Q.*, vol. 11, no. 1, pp. 91–100, Jan. 1972.
[71] T. Onchi, H. Kayano, and Y. Higashiguchi, "The inhomogeneous deformation behaviour of neutron irradiated Zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 88, no. 2–3, pp. 226–235, Feb. 1980.
[72] C. Regnard, B. Verhaeghe, F. Lefebvre-Joud, and C. Lemaignan, "Activated Slip Systems and Localized Straining of Irradiated Zr Alloys in Circumferential Loadings," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*, G. Moan and P. Rudling, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 2002, pp. 384-384–16.
[73] A. J. E. Foreman, "Junction reaction hardening by dislocation loops," *Philos. Mag.*, vol. 17, no. 146, pp. 353–364, Feb. 1968.
[74] B. N. Singh, A. J. E. Foreman, and H. Trinkaus, "Radiation hardening revisited: role of intracascade clustering," *J. Nucl. Mater.*, vol. 249, no. 2–3, pp. 103–115, Oct. 1997.
[75] F. Onimus, I. Monnet, J. . Béchade, C. Prioul, and P. Pilvin, "A statistical TEM investigation of dislocation channeling mechanism in neutron irradiated zirconium alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, no. 2–3, pp. 165–179, Jul. 2004.
[76] D. J. Bacon, Y. N. Osetsky, and D. Rodney, "Dislocation–Obstacle Interactions at the Atomic Level," in *Dislocations in Solids*, vol. 15, Elsevier, 2009, pp. 1–90.
[77] T. Hatano, "Dynamics of a dislocation bypassing an impenetrable precipitate: The Hirsch mechanism revisited," *Phys. Rev. B*, vol. 74, no. 2, Jul. 2006.
[78] Y. N. Osetsky, D. Rodney, and D. J. Bacon, "Atomic-scale study of dislocation–stacking fault tetrahedron interactions. Part I: mechanisms," *Philos. Mag.*, vol. 86, no. 16, pp. 2295–2313, Jun. 2006.
[79] T. Nogaret, C. Robertson, and D. Rodney, "Atomic-scale plasticity in the presence of Frank loops," *Philos. Mag.*, vol. 87, no. 6, pp. 945–966, Feb. 2007.
[80] J. Robach, I. Robertson, H. Lee, and B. Wirth, "Dynamic observations and atomistic simulations of dislocation–defect interactions in rapidly quenched copper and gold," *Acta Mater.*, vol. 54, no. 6, pp. 1679–1690, Apr. 2006.
[81] I. M. Robertson *et al.*, "Dislocation–obstacle interactions: Dynamic experiments to continuum modeling," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 400–401, pp. 245–250, Jul. 2005.
[82] S. J. Zinkle and Y. Matsukawa, "Observation and analysis of defect cluster production and interactions with dislocations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 329–333, pp. 88–96, Aug. 2004.
[83] Y. Matsukawa and S. J. Zinkle, "Dynamic observation of the collapse process of a stacking fault tetrahedron by moving dislocations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 329–333, pp. 919–923, Aug. 2004.
[84] D. Rodney, "Atomic-scale modeling of clear band formation in FCC metals," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 228, no. 1–4, pp. 100–110, Jan. 2005.
[85] D. Rodney, "Molecular dynamics simulation of screw dislocations interacting with interstitial frank loops in a model FCC crystal," *Acta Mater.*, vol. 52, no. 3, pp. 607–614, Feb. 2004.
[86] Y. Matsukawa and G. S. Liu, "In situ TEM study on elastic interaction between a prismatic loop and a gliding dislocation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 425, no. 1–3, pp. 54–59, Jun. 2012.
[87] M. Fregonese, C. Régnard, L. Rouillon, T. Magnin, F. Lefebvre, and C. Lemaignan, "Failure Mechanisms of Irradiated Zr Alloys Related to PCI: Activated Slip Systems, Localized Strains, and Iodine-Induced Stress Corrosion Cracking," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, G. Sabol and G. Moan, Eds. ASTM International, 2000, pp. 377-377–22.
[88] V. Fidleris, R. Tucker, and R. Adamson, "An Overview of Microstructural and Experimental Factors That Affect the Irradiation Growth Behavior of Zirconium Alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry*, R. Adamson and L. Van Swam, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1987, pp. 49-49–37.
[89] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "〈c〉 Component dislocations in annealed Zircaloy irradiated at about 570 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 137, no. 3, pp. 185–189, Feb. 1986.
[90] R. A. Holt and R. W. Gilbert, "c-Component dislocations in neutron irradiated zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 116, no. 1, pp. 127–130, May 1983.

[91] A. Rogerson, “Irradiation growth in zirconium and its alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 43–61, Oct. 1988.
[92] V. Fidleris, “The irradiation creep and growth phenomena,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 22–42, Oct. 1988.
[93] M. Griffiths, R. Gilbert, and V. Fidleris, “Accelerated Irradiation Growth of Zirconium Alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium*, C. Eucken and L. Van Swam, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1989, pp. 658-658–20.
[94] R. H. Zee, A. Rogerson, G. J. C. Carpenter, and J. Watters, “Effect of tin on the irradiation growth of polycrystalline zirconium,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 120, no. 2–3, pp. 223–229, Apr. 1984.
[95] P. A. Ross-Ross and C. E. L. Hunt, “The in-reactor creep of cold-worked Zircaloy-2 and Zirconium-2.5 wt % niobium pressure tubes,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 26, no. 1, pp. 2–17, Apr. 1968.
[96] F. Tinti, “Uniaxial in-reactor creep of Zircaloy-2 : stress, flux, and temperature dependence,” *Nucl. Technol.*, vol. 60, pp. 104–113, 1983.
[97] R. A. Holt, “In-reactor deformation of cold-worked Zr–2.5Nb pressure tubes,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 372, no. 2–3, pp. 182–214, Jan. 2008.
[98] D. Franklin, G. Lucas, and A. Bement, Eds., *Creep of Zirconium Alloys in Nuclear Reactors*. ASTM International, 1983.
[99] A. Soniak, N. L’Hullier, J.-P. Mardon, V. Rebeyrolle, P. Bouffioux, and C. Bernaudat, “Irradiation Creep Behavior of Zr-Base Alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*, G. Moan and P. Rudling, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 2002, pp. 837-837–26.
[100] D. Gilbon, A. Soniak, S. Doriot, and J.-P. Mardon, “Irradiation Creep and Growth Behavior, and Microstructural Evolution of Advanced Zr-Base Alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, G. Sabol and G. Moan, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 2000, pp. 51-51–23.
[101] C. E. Coleman, A. R. Causey, and V. Fidleris, “In-reactor creep of zirconium-2.5 wt% niobium at 570 K,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 60, no. 2, pp. 185–194, May 1976.
[102] A. R. Causey, F. J. Butcher, and S. A. Donohue, “Measurement of irradiation creep of zirconium alloys using stress relaxation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 101–113, Oct. 1988.
[103] J. R. Matthews and M. W. Finnis, “Irradiation creep models — an overview,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, Oct. 1988.
[104] R. B. Adamson and M. Griffiths, “Microstructure Evolution in Zr Alloys during Irradiation: Dose, Dose Rate, and Impurity Dependence,” in *Zirconium Production and Technology: The Kroll Medal Papers 1975?2010*, R. B. Adamson, Ed. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 2010, pp. 429-429–10.
[105] P. . Heald and M. . Speight, “Point defect behaviour in irradiated materials,” *Acta Metall.*, vol. 23, no. 11, pp. 1389–1399, Nov. 1975.
[106] W. G. Wolfer, “Correlation of radiation creep theory with experimental evidence,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 175–192, May 1980.
[107] R. A. Holt and E. F. Ibrahim, “Factors affecting the anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloys,” *Acta Metall.*, vol. 27, no. 8, pp. 1319–1328, Aug. 1979.
[108] C. Woo, “Irradiation Creep Due to Stress-Induced Preferred Absorption of Point Defects in Zirconium Single Crystals,” in *Effects of Radiation on Structural Materials*, J. Sprague and D. Kramer, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1979, pp. 640-640–16.
[109] G. S. Was, *Fundamentals of radiation materials science: metals and alloys*, Second edition. New York: Springer, 2017.
[110] E. J. Savino and C. N. Tomé, “Irradiation creep by stress-induced preferential attraction due to anisotropic diffusion (SIPA-AD),” *J. Nucl. Mater.*, vol. 108–109, pp. 405–416, Jul. 1982.
[111] J. Gittus, *Creep, viscoelasticity, and creep fracture in solids*. New York: Wiley, 1975.

[112] C. H. Woo, “Irradiation creep due to climb-induced glide in an anisotropic dislocation structure,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 98, no. 3, pp. 295–305, Jun. 1981.

[113] L. K. Mansur and T. C. Reiley, “Irradiation creep by dislocation glide enabled by preferred absorption of point defects — theory and experiment,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 60–67, May 1980.

Chapitre II. Evolution de la microstructure du Zy-4 sous irradiation aux particules chargées

Objectif :

Afin de comprendre les mécanismes de déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation, il est primordial de caractériser l'évolution de leurs microstructures sous irradiation. En effet, l'étude bibliographique a montré que les boucles <a> jouent un rôle important sur les mécanismes de déformation. Afin de simuler l'irradiation aux neutrons rapides, des irradiations aux particules chargées (aux ions lourds et aux électrons) sont réalisées. Les résultats présentés dans ce chapitre, apporteront des éléments de réponse aux objectifs suivants :

- Quelle est la cinétique de nucléation et de croissance des boucles <a>, et comment évolue-t-elle en fonction des paramètres d'expérimentation ?

- Quelles sont les caractéristiques des boucles <a>, et notamment, qu'en est-il de leur nature sous irradiation aux particules chargées ?

Sommaire

I. Matériau de l'étude et techniques expérimentales 62
I.1. Matériau de l'étude 62
I.2. Irradiations aux particules chargées 63
I.3. Microscopie Electronique en Transmission 70
II. Cinétique de nucléation et de croissance des boucles <a> 71
II.1. Irradiation *in-situ* aux électrons 71
II.2. Irradiation aux ions lourds 73
II.3. Discussion sur la cinétique de croissance des boucles de dislocation <a> 74
III. Caractérisation post-mortem des boucles de dislocation 78
III.1. Analyse du vecteur de Burgers des boucles 78
III.2. Analyse du plan d'habitat des boucles 79
III.3. Nature des boucles de dislocation 81
Synthèse du chapitre 89
Références bibliographiques 90

I. Matériau de l'étude et techniques expérimentales

I.1. Matériau de l'étude

I.1.1. Caractéristiques morphologiques et microstructurales du Zy-4 recristallisé

Dans le cadre de ce travail de thèse, l'étude a porté sur un alliage de zirconium industriel : le Zircaloy-4 sous sa forme recristallisée (Zy-4 RXA). La composition chimique de cet alliage est donnée au Chapitre I Tableau I-1. Deux produits ont été utilisés lors des études expérimentales, dont notamment une tôle de Zy-4 RXA de 0,4 mm d'épaisseur, et un tube TREX de Zy-4 RXA. Ces deux produits présentent des textures cristallographiques différentes (Chapitre I §I.2.2.2.), et les échantillons prélevés dans le tube TREX font l'objet d'une étude spécifique qui sera présentée au chapitre V. Dans le cadre de ce chapitre, les échantillons ont été uniquement prélevés dans la tôle recristallisée, dont la texture est donnée en Figure I-2.

Une étude métallographique de la tôle, réalisée par micrographie optique et microscopie électronique en transmission, d'échantillons prélevés dans la direction (DL-DT) a montré une microstructure homogène constituée de gros grains equi-axes mesurant en moyenne 5 à 10 µm.

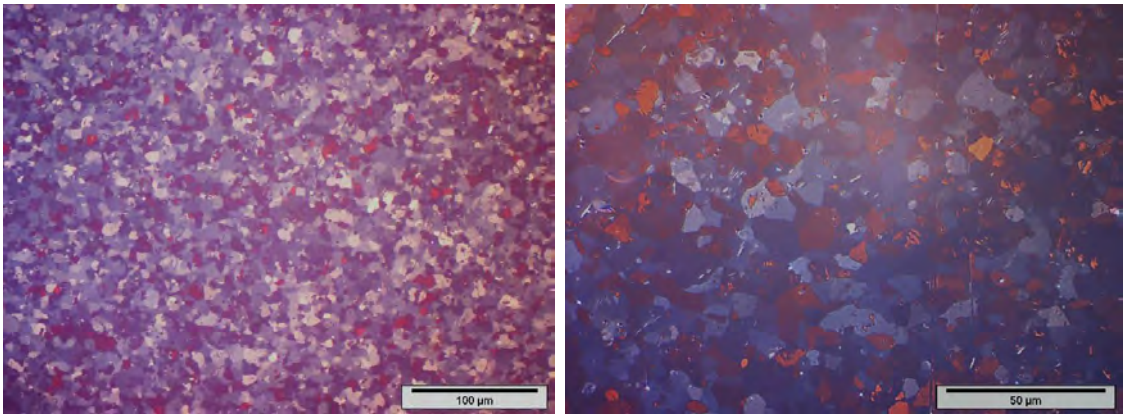


Figure II-1. Morphologie des grains de la tôle de Zy-4 RXA.

La densité en dislocations initiale de la tôle recristallisée est très faible (typiquement 10^{11} m^{-2}) ce qui permet une bonne visualisation des défauts induits par l'irradiation. Il est cependant important de noter que certains des échantillons ont été prélevés dans une tôle initialement pré-écrouie à 1% de déformation plastique pour assurer une densité de dislocations <a> suffisante (typiquement 10^{13} m^{-2}) et pouvoir ainsi étudier leur évolution sous irradiation. L'évolution des dislocations sous irradiation sera également présentée dans le chapitre V de ce manuscrit.

I.1.2. Préparation des échantillons sous forme de lames minces

Afin d'obtenir des échantillons utilisables pour les études en microscopie électronique en transmission, des morceaux de tôle de Zy-4 RXA sont prélevés par découpe à la tronçonneuse, puis amincis par polissage mécanique jusqu'à une épaisseur d'environ 100 µm. Des disques de 3 mm de diamètre sont ensuite poinçonnés, tout en repérant la direction de laminage (et la direction de traction dans le cas où les lames minces sont prélevées dans la tôle pré-écrouie) par des méplats (Figure II-2).

Les disques sont ensuite percés par polissage électrolytique à l'aide d'un Tenupol 4 et d'une solution composée de 90% d'éthanol absolu et de 10% d'acide perchlorique (solution 90-10) refroidie à une température d'environ -10°C. Deux techniques ont été adoptées pour le perçage des lames minces en fonction de l'utilisation de ces dernières.

Dans le cas de lames minces servant pour une caractérisation de la microstructure avant irradiation ou pour des essais d'irradiation *in-situ* au MET, les disques ont été électropolis sur chacune de leurs faces, menant à la formation de deux cuvettes fines et percées en leur centre (Figure II-2). L'épaisseur de l'échantillon aux abords du trou est ainsi très faible (de l'ordre de 100 nm) et permet le passage du faisceau d'électrons, et donc les observations de la microstructure au MET.

Les lames minces dédiées à une étude de la microstructure après irradiation ont subi deux étapes successives de polissage électrolytique. Avant irradiation, une cuvette est créée sur uniquement l'une des faces du disque de Zy-4 jusqu'à environ 50 µm, l'autre face étant protégée du jet électrolytique par un disque de platine. La face polie est ensuite irradiée aux ions lourds. Après irradiation, cette dernière est protégée par une fine couche de vernis, la Lacomite. Le polissage a lieu sur la face arrière du disque, non irradiée, jusqu'au perçage de la lame mince.

Après le polissage électrolytique, les échantillons sont rincés dans trois bains d'éthanol absolu, et deux de «Lacomite Remover » dans le cas des échantillons pré-irradiés.

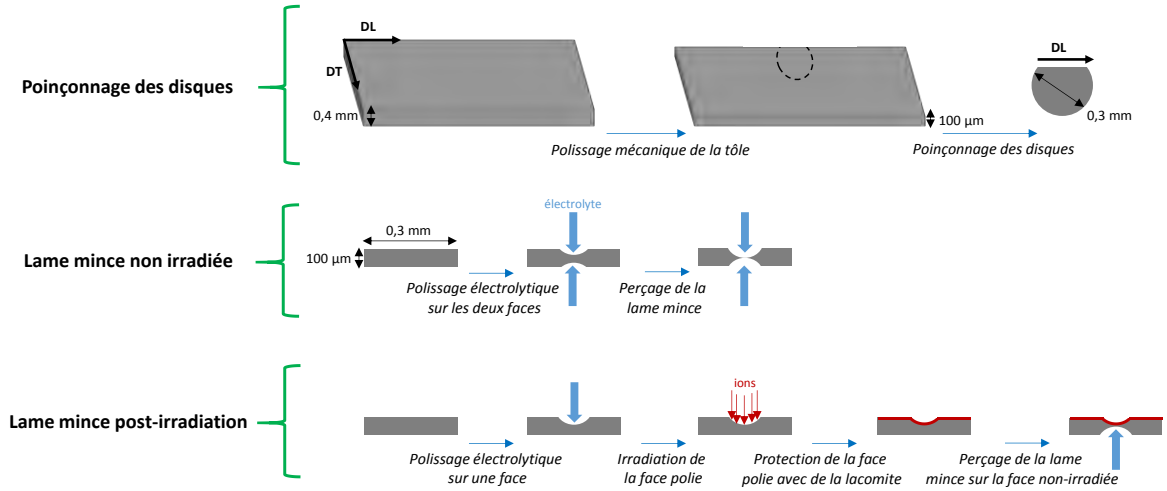


Figure II-2. Protocole de préparation des lames minces pour des analyses avant irradiation ou pour irradiation *in-situ* (lame mince non irradiée), et des analyses post-irradiation (lame mince post-irradiation)

I.2. Irradiations aux particules chargées

Les irradiations aux particules chargées sont souvent utilisées dans le domaine de la recherche sur les matériaux du nucléaire afin de simuler les effets de l'irradiation aux neutrons. Ce type d'irradiation présente en effet de nombreux avantages en termes de coûts et de temps de réalisation. Elles permettent en effet d'atteindre en quelques heures ou jours des niveaux de dommages importants (mesurés en dpa), obtenus après plusieurs années lors des irradiations aux neutrons, tout en contrôlant les conditions d'irradiation (taux de dommages, température). De plus les irradiations aux particules chargées permettent également de ne pas activer les échantillons, qui peuvent donc être manipulés facilement lors des analyses.

Il est cependant nécessaire de prendre en compte les différences induites par une irradiation aux particules chargées en comparaison des irradiations aux neutrons. D'une part, seule une faible épaisseur de l'échantillon est affectée par l'irradiation. Or, les surfaces agissant comme des puits d'attraction pour les défauts ponctuels, l'évolution de la microstructure sous irradiation aux particules chargées en sera affectée. De plus, afin d'obtenir une microstructure représentative de celle créée par l'irradiation aux neutrons en peu de temps, les débits de doses appliqués lors des irradiations aux particules chargées sont plus élevés. Afin de compenser cette augmentation du débit de dose, une augmentation de la température d'irradiation est nécessaire pour augmenter la diffusion des défauts ponctuels. Mansur [1] établit une relation entre la différence de température (T_2-T_1) à appliquer pour compenser l'augmentation du débit de dose de G_1 à G_2 par :

$$(T_2 - T_1) = \frac{\left(k.\frac{T_1^2}{E_m^l + 2E_f^l}\right).\ln(\frac{G_2}{G_1})}{1 - \left(k.\frac{T_1}{E_m^l + 2E_f^l}\right).\ln(\frac{G_2}{G_1})} \qquad \textbf{Eq. II-1}$$

avec T_2 : la température à appliquer lors des essais aux particules chargées

T_1 : la température connue par les gaines au sein d'un REP d'environ 320°C

k : la constante de Boltzmann

E_m^l : l'énergie de migration des lacunes, estimée à 0,65 eV [2]

E_f^l : l'énergie de formation des lacunes estimée à 2,07 eV [3]

G_1 : le taux de dommages en réacteur d'environ $6{,}6.10^{-8}$ dpa.s^{-1}

G_2 : le taux de dommages appliqué lors des irradiations aux particules chargées (entre 10^{-4} et 10^{-5} dpa.s^{-1}).

En considérant les conditions nominales connues par les gaines en réacteur, soit une température de 320°C et un taux de dommage de $6{,}6.10^{-8}$ dpa.s^{-1}, la différence de température (T_2-T_1) est comprise entre 34 et 50°C, ce qui mène à une température T_2 comprise entre 354 et 370°C.

I.2.1. Irradiations *in-situ* aux électrons

Des irradiations dites *in-situ* ont été effectuées au Microscope Electronique Très Haute Tension Kratos (MET-THT) du SRMA du CEA de Saclay (Figure II-3). Les irradiations *in-situ* permettent, contrairement aux irradiations dites conventionnelles, de suivre l'évolution de la microstructure, et donc la nucléation et la croissance des boucles, tout au long de l'irradiation. Les observations sont réalisées à l'aide d'un faisceau d'électrons de 1 MeV. L'énergie cinétique moyenne transmise par les électrons de 1 MeV aux atomes du réseau, E_t, peut être déterminée grâce à une approche relativiste donnée par l'équation :

$$E_t = \frac{E_e(E_e + 2m_e.c^2)}{m_{Zr}.c^2} \qquad \textbf{Eq. II-2}$$

avec E_e l'énergie des électrons incidents de 1 MeV, m_e la masse des électrons, m_{Zr} la masse des atomes de zirconium et c la vitesse de la lumière.

L'énergie cinétique moyenne transmise par les électrons de 1 MeV aux atomes de zirconium est donc de 24 eV. L'interaction des électrons avec les atomes du réseau entraîne donc leur éjection de leur site cristallin, mais l'énergie cinétique transmise par les électrons est trop faible pour former des cascades de déplacements. Seules des paires de Frenkel sont donc créées. Les irradiations aux électrons permettent donc d'étudier l'influence de l'irradiation sur la microstructure en s'affranchissant des effets de cascades de déplacements. L'énergie seuil des atomes de zirconium est estimée à 25 ou 40 eV en fonction des études. Griffiths [4] a mesuré l'énergie de déplacement du zirconium pur à température ambiante au MET-THT. Les valeurs obtenues varient entre 24 eV et 27,5 eV en fonction de l'orientation cristallographique considérée. Afin d'être cohérent avec de précédentes études réalisées sur l'irradiation des alliages de zirconium, une énergie de déplacement des atomes de 25 eV sera considérée [5], [6].



Figure II-3. Microscope électronique en transmission très haute tension (MET-THT) du SRMA au CEA de Saclay.

Les essais d'irradiation *in-situ* aux électrons ont été menés pour deux températures de 400 et 450°C, afin d'une part de se rapprocher des conditions de températures connues par les gaines en réacteur (Eq. II-1), et d'autre part d'obtenir des défauts dont la taille et la densité permettent une analyse fine de leurs caractéristiques au Microscope Electronique en Transmission. Les températures appliquées sont mesurées à l'aide de deux thermocouples attachés au porte objet simple tilt utilisé. Ce porte objet permet une rotation autour de l'axe parallèle à l'axe de la canne.

Afin de déterminer le flux appliqué lors des irradiations, la valeur du courant I_2 recueilli sur l'écran du MET-THT est relevée et est comprise entre $3{,}6.10^{-9}$ et 6.10^{-10} A. Cette valeur de courant est mesurée en utilisant le second diaphragme de sélection d'aire du MET-THT. La valeur du flux φ d'électrons incidents est donnée par la relation suivante :

$$\varphi = \frac{I_2}{e.A_{\varphi_2}} \qquad \textbf{Eq. II-3}$$

avec e la charge électrique élémentaire de l'électron de $1{,}6.10^{-19}$ C et $A_{\varphi 2}$ l'aire du diaphragme de sélection d'aire de $6{,}15.10^{-9}$ cm^2.

Le flux obtenu varie entre 3.10^{21} et 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ pour les flux les plus faibles et $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ pour le flux le plus élevé. Le taux d'endommagement τ peut alors être obtenu à partir de ces flux grace à la relation :

$$\tau = \varphi.\sigma_d \qquad \textbf{Eq. II-4}$$

avec σ_d la section efficace de déplacement d'environ 35 barns pour une énergie de déplacement seuil de 25 eV.

Les taux de dommage obtenus sont donc de 1 à 2.10^{-5} $dpa.s^{-1}$ pour les faibles flux et de 1.10^{-4} $dpa.s^{-1}$ pour le fort flux. Les temps d'irradiation appliqués sont d'une durée de 20 minutes à 1 heure menant respectivement à des doses maximales de 0,064 dpa et de 0,37 dpa. Les différentes campagnes d'irradiation réalisées sont présentées dans le Tableau II-1. Le faisceau d'électrons devant être suffisamment condensé pour obtenir les flux désirés, seuls les grains observés lors des essais subissent l'irradiation.

Tableau II-1. Campagnes d'irradiation *in-situ* aux électrons de 1 MeV.

Température	Flux ($e^-.m^{-2}.s^{-1}$)	Taux de dommages ($dpa.s^{-1}$)	Dose finale (dpa)
400°C	3.10^{21}	1.10^{-5}	0,03
400°C	$3{,}6.10^{21}$	1.10^{-5}	0,04
450°C	6.10^{21}	2.10^{-5}	0,064
450°C	$3{,}6.10^{22}$	1.10^{-4}	0,37

Lors d'une précédent thèse [7], une irradiation aux électrons avait également été réalisée à 580°C et pour un flux important de $8{,}4.10^{23}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. Afin d'obtenir ce flux important, il était de nécessaire de condenser fortement le faisceau d'électrons, ce qui a empêché le suivi *in-situ* de l'évolution de la microstructure. En effet, le suivi *in-situ* n'est possible que dans le cas où le faisceau est suffisamment décondensé afin d'éviter toutes dégradations de la caméra CDD utilisée. Les résultats des analyses obtenus à la suite de cet essai seront tout de même utilisés afin de consolider nos résultats.

I.2.2. Irradiations conventionnelles aux ions lourds

I.2.2.1. Conditions expérimentales d'irradiation aux ions lourds

Des irradiations aux ions lourds, dites « conventionnelles » car non *in-situ*, ont été effectuées en utilisant l'accélérateur Tandem/Van de Graff ARAMIS de la plateforme SCALP au CSNSM/IN2P3 d'Orsay (Figure II-4). Les irradiations aux ions sont également souvent utilisées pour simuler les irradiations aux neutrons. De plus, contrairement aux électrons, les collisions entre les ions et les atomes cibles entraînent la formation de cascades de déplacements, tout comme lors d'irradiations aux neutrons. Lors des irradiations aux ions, la totalité de la surface de la lame est soumise à l'irradiation, et donc de nombreux grains présentent des défauts cristallins.



Figure II-4. Accélérateur ARAMIS du CSNSM d'Orsay.

Les ions utilisés lors des campagnes d'irradiation sont des ions Zr^+ de 600 keV, ce qui permet de s'assurer qu'aucun élément étranger n'est implanté au sein de la lame de Zy-4. Trois conditions d'irradiation ont été appliquées, dépendant de la température et de la fluence : une irradiation à 400°C et pour une fluence de 8.10^{17} ions.m^{-2}; une irradiation à 450°C et également 8.10^{17} ion.m^{-2} ; et une irradiation à 450°C pour une fluence plus élevée de 24.10^{17} ion.m^{-2}. Les températures d'irradiation ont été choisies afin de correspondre aux conditions appliquées lors des irradiations aux électrons et permettre une comparaison des deux types d'irradiation. Les doses finales obtenues sont par contre plus élevées. Ces doses ont en effet été choisies d'une part afin de mener une analyse fine des boucles de dislocation, mais également dans une optique d'optimisation de la microstructure après irradiation pour des essais de traction *in-situ* (Chapitre III). Ainsi, l'application d'une dose minimum était nécessaire pour obtenir des défauts en taille et en densité suffisantes.

Les valeurs de dommages appliquées lors des irradiations aux ions ont été estimées à l'aide du logiciel *SRIM* [8]. Ce logiciel simule le profil d'implantation des ions au sein d'un matériau cible, en se basant sur le formalisme de Kinchin-Pease. Il permet d'obtenir le nombre de lacunes (n_l) créées par un ion par unité de longueur à une profondeur de pénétration (p) de l'ion dans le matériau. Le nombre de déplacements par atome en dpa peut s'exprimer par :

$$G(p) = 10^8 . \frac{\varphi_t . n_l}{N_{at}} \qquad \textbf{Eq. II-5}$$

avec φ_t la fluence en ion.cm^{-2} et N_{at} : le nombre d'atomes par unité de volume en atomes.cm^{-3}, soit $4{,}34.10^{22}$ pour le zirconium.

L'énergie seuil de déplacement des alliages de zirconium utilisée pour les calculs de dommage est généralement de 40 eV [9], [10]. Cependant afin d'être cohérent avec les calculs de dommage effectués lors des irradiations aux électrons, une énergie seuil de déplacement de 25 eV a été considérée. Il est tout de même important de noter que les valeurs de dommage obtenues en considérant une énergie seuil de 25 eV conduisent à des valeurs 1,5 fois plus élevées que dans le cas d'une énergie de 40 eV. De plus, comme conseillé par Stoller et al.[9], les calculs ont été réalisés en utilisant l'option de calcul « Ions Distribution and Quick Calculation of damages ». Les profils de dommages et d'implantation sont donnés en Figure II-5 pour les deux fluences appliquées : 8.10^{17} ions.m^{-2} et 24.10^{17} ion.m^{-2}. Lors des observations au microscope électronique en transmission réalisées après irradiation, les épaisseurs où les analyses sont effectuées sont généralement comprises entre 100 à 150 nm. Pour les deux fluences appliquées, le pic de dommage (en rouge) est atteint pour une profondeur d'environ 100 nm, impliquant donc que les zones observées sont des zones où le maximum de dommage a été créé. De plus, il est important de noter que le pic d'implantation des ions (en bleu) est situé à environ 200 nm de la surface de la lame. Grace à l'utilisation d'ions zirconium Zr^+, un effet

limité de l'implantation des ions est donc attendu. Les calculs de dommages réalisés à l'aide de *SRIM* ont donc permis de remonter aux valeurs de dommages atteintes à la fin de l'irradiation et au taux de dommage appliqué lors des essais, d'environ 1.10^{-4} dpa.s^{-1}.

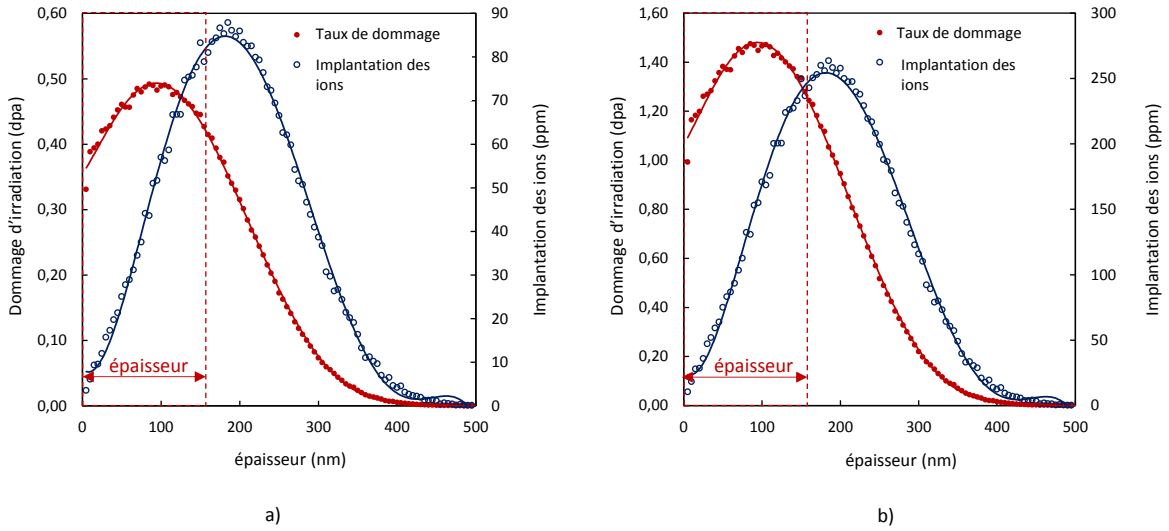


Figure II-5. Simulation par *SRIM* du profil de dommage lors d'une irradiation aux ions Zr^+ 600 keV à une fluence de a) 8.10^{17} ions.m^{-2} et b) 24.10^{17} ions.m^{-2}.

La dose moyenne pour chacune des fluences appliquées est calculée sur l'épaisseur de la lame de 150 nm. Les doses obtenues sont respectivement de 0,5 dpa pour une fluence de 8.10^{17} ions.m^{-2} et de 1,4 pour une fluence de 24.10^{17} ion.m^{-2}.

Il est important de noter que la température d'essai n'est pas renseignée dans le logiciel *SRIM*. La mobilité thermique des défauts ponctuels n'est donc pas prise en compte dans le calcul du taux de dommages. De plus d'autres phénomènes, tels que les propriétés cristallines du matériau irradié (répartition des atomes) et les recombinaisons entre défauts ponctuels, ne sont également pas pris en compte. Ce logiciel ne permet donc pas d'obtenir de façon précise la dose réelle appliquée lors des essais d'irradiation, mais donne uniquement une estimation du dommage dans l'épaisseur de la lame.

Le Tableau II-2 résume les expériences d'irradiations aux ions Zr^+ 600 keV réalisées :

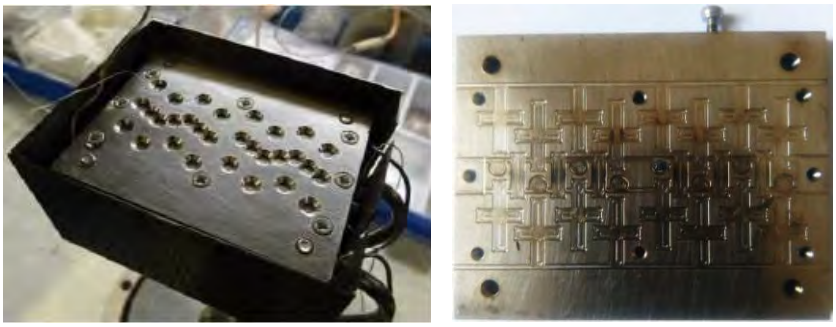
Tableau II-2. Campagnes d'irradiations conventionnelles aux ions Zr^+ 600 keV.

Température	Flux (ions.m^{-2}.s^{-1})	Taux de dommages (dpa.s^{-1})	Dose finale (dpa)
400°C	$2,2.10^{14}$	1.10^{-4}	0,5
450°C	$2,2.10^{14}$	1.10^{-4}	0,5
450°C	$2,2.10^{14}$	2.10^{-4}	1,4

I.2.2.2. Calibration en température du porte-objet utilisé

Le porte objet utilisé lors des campagnes d'irradiation aux ions permet l'installation des lames minces polies sur une face, mais également de deux types d'éprouvettes utilisées pour la traction *in-situ* (chapitre III). Il est installé directement sur la résistance chauffante du montage d'irradiation (Figure II-6), ce qui permet de minimiser le gradient thermique entre cette résistance chauffante et les échantillons. Lors des irradiations sur la ligne ARAMIS, le suivi en température est effectué grâce à deux thermocouples : le premier thermocouple donne la température de consigne liée à la résistance chauffante, et le deuxième thermocouple est directement relié au porte-objet.

Afin de connaître le gradient de température entre la résistance chauffante (valeur de consigne appliquée), le porte-objet et les échantillons, une calibration a préalablement été effectuée en apposant également un troisième thermocouple soudé à une lame mince installée sur le porte-objet. Les températures obtenues pour le porte-objet et la lame mince ont été relevées en faisant varier la température de consigne de 25 à 550°C. La Figure II-7 montre l'évolution des températures relevées en fonction de la température de consigne. Une évolution linéaire est observée et il est noté que la différence entre la température de consigne et la température directement connue par la lame mince augmente avec la température de consigne, mais reste inférieure à 50°C. Lors de la réalisation des campagnes d'irradiation, le gradient thermique sera pris en compte afin d'appliquer la température d'irradiation souhaitée aux lames minces, grâce à cette calibration préalable. Plusieurs études ont de plus démontrées que l'échauffement induit par le faisceau d'ions est négligeable [11], [12].



a) b)

Figure II-6. Porte-objet pour les irradiations aux ions a) porte-objet monté sur le support d'irradiation b) encoches pour installation des lames minces.

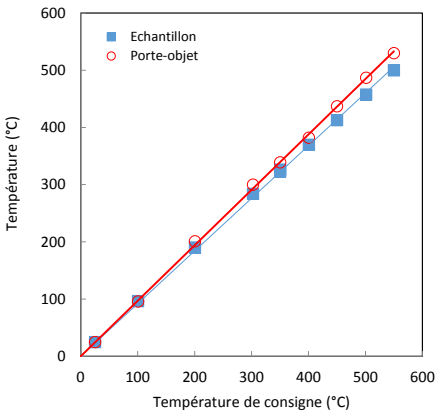


Figure II-7. Calibration de la température de l'échantillon et du montage d'irradiation aux ions en fonction de la température de consigne.

I.3. Microscopie Electronique en Transmission

I.3.1. Imagerie conventionnelle des boucles de dislocation <a>

Les caractérisations microstructurales après irradiation ont été réalisées au Microscope Electronique en Transmission (MET). Le microscope électronique en transmission permet l'analyse des objets à l'échelle du nanomètre. Après irradiation, les lames minces ont été analysées au MET JEOL 2100 du SRMA/LA2M au CEA de Saclay, qui utilise une tension d'accélération des électrons de 200 kV. Un porte objet de type double-tilt, permettant une rotation selon l'axe X (parallèle à l'axe du porte-objet) et selon l'axe Y (perpendiculaire à l'axe du porte-objet) a été utilisé. Des analyses fines des boucles ont été réalisées et les méthodes associées seront décrites par la suite.
L'imagerie des défauts cristallins repose sur un choix de l'orientation du cristal afin d'obtenir des conditions de diffraction optimales où une seule famille de plans induit une diffraction des électrons. Cette condition est appelée condition deux ondes (un faisceau transmis et un faisceau diffracté) et le choix de la famille de plans diffractant reposent sur le choix du vecteur de diffraction $\vec{g}$. Les boucles de dislocation <a> sont réparties en trois familles en fonction de leur vecteur de Burgers. Afin d'observer les trois familles de boucles, les conditions de diffraction généralement choisies lors des analyses consistent à obtenir un axe de zone de type $<11\bar{2}3>$ proche de la direction du faisceau d'électrons et de choisir un vecteur de diffraction de type $\vec{g} =< 1\bar{2}1\bar{2} >$ qui met en contraste les trois familles de boucles <a>.

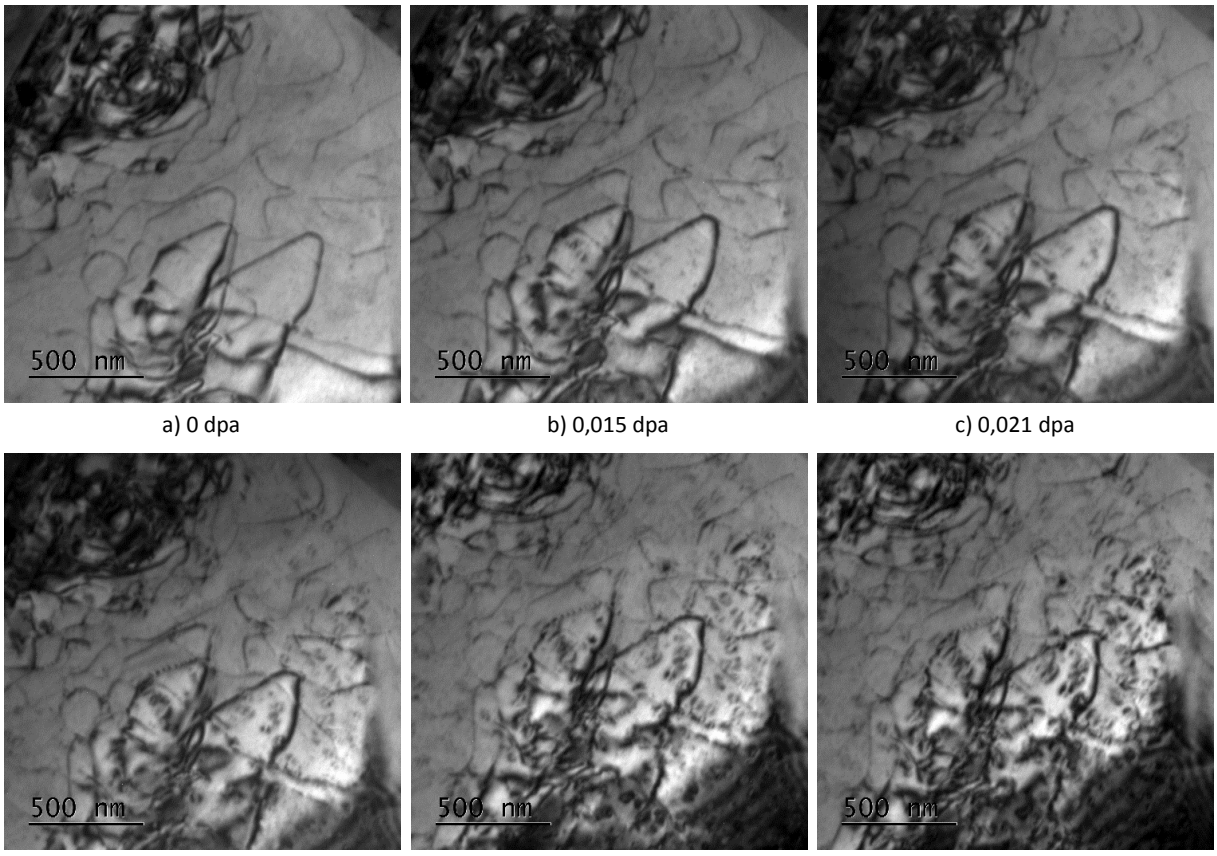
I.3.2. Analyse quantitative des boucles de dislocation <a>

La quantification des boucles de dislocation se fait à l'aide du logiciel de traitement d'images *Visilog*. Le comptage des boucles est réalisé à partir des différents clichés MET obtenus lors des analyses des microstructures après irradiation. Les données obtenues lors de cette analyse numérique sont : la densité linéique des boucles, la densité volumique des boucles et leur diamètre moyen. Afin d'obtenir ces données, plusieurs paramètres doivent être indiqués par l'utilisateur tels que la surface d'étude et l'épaisseur du grain. La surface d'étude est directement définie sur l'image MET lors du comptage des boucles. L'épaisseur des grains est mesurée, si possible, lors des analyses MET par la spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS). Il a été ainsi observé que les analyses menées après irradiation aux ions étaient effectuées sur des épaisseurs moyennes de 100 à 150 nm. Les irradiations aux électrons de 1 MeV permettent d'effectuer les essais pour des épaisseurs plus importantes, en moyenne de 200 à 250 nm. Dans ce cas, l'erreur sur l'estimation est considérée comme égale à ±15% quand la mesure de l'épaisseur du grain est effectuée en EELS, et de ±30% sinon.
Pour éviter toute erreur de comptage, les objets observés ayant un diamètre inférieur à 4 nm ne sont pas comptabilisés lors des relevés. Cette précaution permet de s'assurer que seules les boucles de dislocation sont prises en compte lors de l'analyse quantitative. L'erreur de mesure de la taille des boucles est considérée comme principalement induite par le contraste de ces dernières. En effet, comme décrit dans la suite de ce chapitre (§III.3), en fonction des conditions d'imagerie, les boucles peuvent présenter un contraste interne ou externe. La valeur du diamètre des boucles peut donc être altérée par ces contrastes. A la suite des mesures effectuées sur des boucles en contraste interne et externe, une erreur de 20% sur le diamètre a été déterminée.

II. Cinétique de nucléation et de croissance des boucles <a>.

II.1. Irradiation *in-situ* aux électrons

La réalisation d'essais d'irradiation *in-situ* aux électrons de 1 MeV a permis le suivi de la nucléation et de la croissance des boucles de dislocation <a> au cours du temps. La Figure II-8 illustre un essai d'irradiation effectué à une température de 450°C et pour un flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. Les boucles <a> sont visibles dès de faibles doses, de l'ordre de 0,015 dpa sous la forme de « black dots ». Le diamètre des boucles croît ensuite progressivement. Ces dernières sont de forme elliptique et présentent un contraste en « grain de café », typique aux boucles de dislocation. L'effet de différents paramètres d'irradiation sur l'évolution de la microstructure a pu être étudié lors de ces essais.



a) 0 dpa b) 0,015 dpa c) 0,021 dpa

d) 0,032 dpa e) 0,051 dpa f) 0,064 dpa

Figure II-8. Formation et croissance de boucles de dislocation <a> sous irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C et pour un flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$.

Afin de suivre l'évolution des boucles de dislocation induites par l'irradiation aux électrons, des images de la microstructure ont été relevées toutes les 30 secondes à 1 minute durant l'irradiation. L'évolution de la densité volumique des boucles et du diamètre moyen des boucles a été tracée en fonction du dommage d'irradiation en Figure II-9, pour deux grains irradiés à 400°C et un total de 410 boucles suivies, et un grain irradié à 450°C, et un total de 96 boucles suivies.

Les flux appliqués lors de ces essais sont compris entre 3.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. La densité volumique des boucles, et leur diamètre moyen augmente avec la dose (Figure II-9). Les doses obtenues étant très faibles, aucune saturation de la densité volumique n'est observée, contrairement

à ce qui a été avancé dans la littérature pour de plus fortes doses et de plus forts flux [13], [14]. Cependant la Figure II-10 qui montre l'évolution des boucles pour une irradiation réalisée à 450°C et pour un flux plus important de $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ confirme bien la présence d'un plateau à partir de 0,1 dpa, signe d'une saturation de la nucléation des boucles de dislocation.

Il est possible d'observer un effet de la température, entre 400°C et 450°C, qui entraîne pour une dose donnée d'une part une diminution de la densité volumique, et d'autre part une augmentation, faible pour les cas présentés ici, du diamètre moyen des boucles. Ces observations sont en accord avec différents résultats présentés dans la littérature [15], [16].

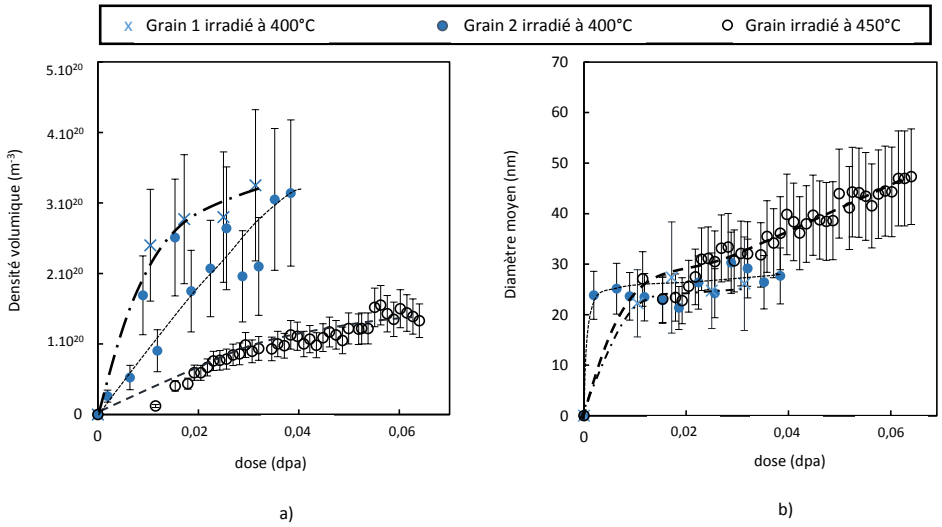


Figure II-9. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 400 et 450°C et pour un flux de 3 à 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$.

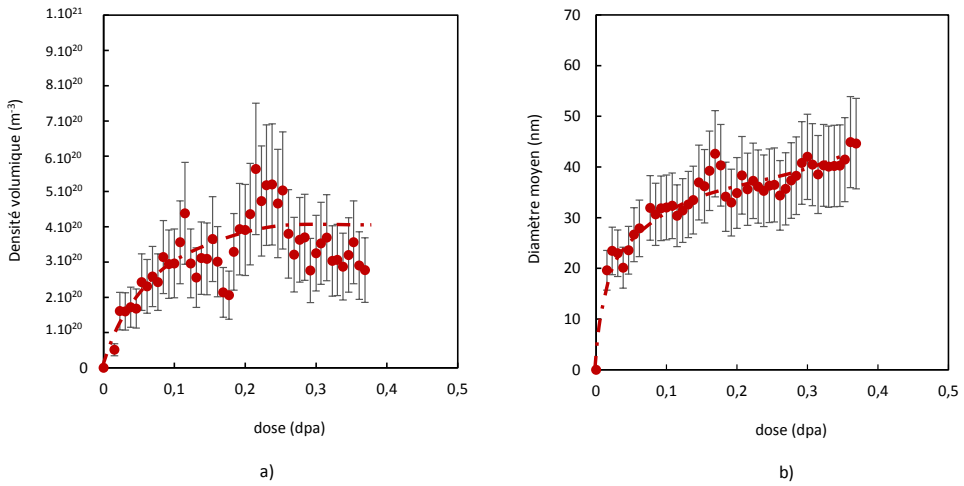


Figure II-10. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 450°C et pour un flux de $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$.

Un effet du flux d'électrons a également été noté lors de deux essais réalisés à 450°C. La Figure II-11 présente les résultats obtenus pour deux flux : 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. Un effet inverse à celui de la température est alors observé. En effet, l'augmentation du flux d'électrons engendre une augmentation de la densité volumique et une diminution du diamètre moyen des boucles de dislocation.

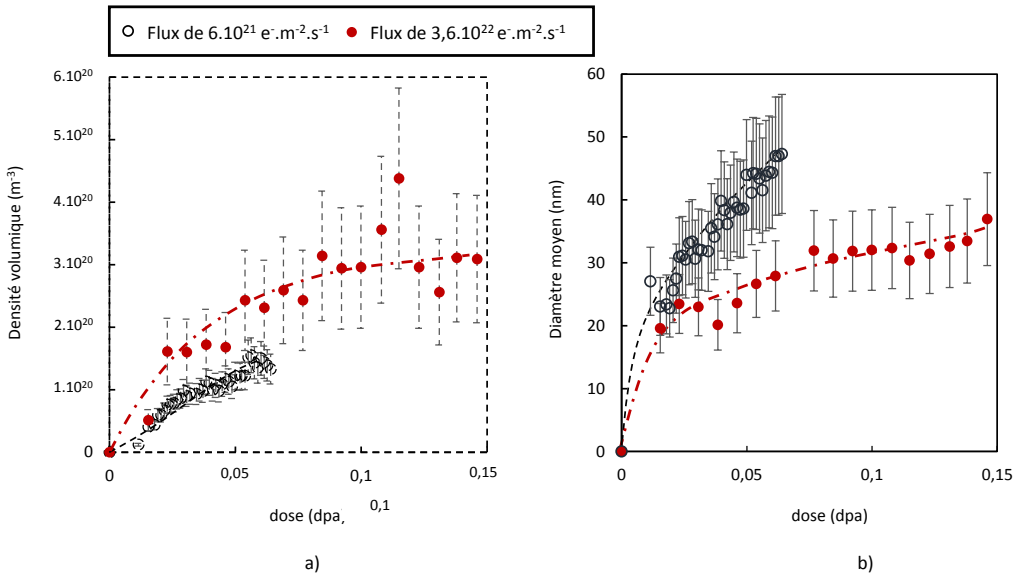


Figure II-11. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 450°C et pour des flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et de $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$.

II.2. Irradiation aux ions lourds

Contrairement aux irradiations aux électrons de 1 MeV, où l'évolution de la microstructure a pu être étudiée au cours du temps, les boucles induites par l'irradiation aux ions n'ont pu être analysées et quantifiées que post-mortem au MET. En effet, bien que plusieurs essais aient été réalisés *in-situ* sous irradiations aux ions à l'aide de l'implanteur IRMA du CSNSM d'Orsay, les microstructures obtenues n'ont pas permis de réaliser une analyse fine des boucles de dislocation. Un résumé de ces irradiations *in-situ* aux ions est tout de même présenté en annexe (Annexe A).

Les trois microstructures obtenues après les trois conditions appliquées lors des irradiations aux ions Zr^+ 600 keV sont illustrées en Figure II-12. Ces trois conditions ont également permis d'étudier l'effet des paramètres d'irradiation sur la microstructure, à savoir la température et la dose finale. Comme lors des irradiations aux électrons, il est observé que pour une même dose (0,5 dpa), une augmentation de la température entraîne une diminution de la densité volumique des boucles de $3{,}2.10^{21}$ m^{-3} à 400°C à $6{,}4.10^{20}$ m^{-3} à 450°C. Une augmentation importante du diamètre moyen des boucles est également observée avec des boucles ayant un diamètre d'environ 13 nm à 400°C et d'environ 32 nm à 450°C.

L'effet de la dose a également été étudié pour une température de 450°C et deux doses de 0,5 dpa et 1,4 dpa. Cependant, pour ces doses faibles, aucun effet important de l'augmentation de la dose n'a pu être mis en avant. En effet, la densité volumique et le diamètre moyen des boucles sont presque similaires, avec une densité de $6{,}4.10^{20}$ m^{-3} à 0,5 dpa et de $5{,}6.10^{20}$ m^{-3} à 1,4 dpa et des diamètres respectivement de 32 nm et 35 nm. La distribution du diamètre des boucles est donnée en Figure II-13 pour les trois conditions d'irradiation. De nombreuses boucles ont été prises en compte pour ces

relevés avec un total de 1553 boucles dans 3 grains pour l'irradiation à 400°C et 0,5 dpa ; 1863 boucles dans 2 grains à 450°C et 0,5 dpa ; 2384 boucles dans 4 grains à 450°C et 1,4 dpa. Pour les irradiations à 450°C, la présence de boucles présentant un diamètre élevé, supérieur à 110 nm, peut être notée.

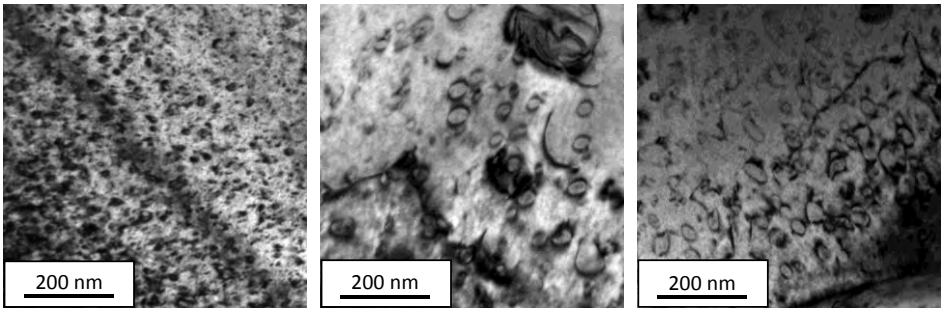


Figure II-12. Microstructure après irradiation aux ions Zr+ 600 keV a) à 400°C et 0,5 dpa b) à 450°C et 0,5 dpa c) à 450°C et 1,4 dpa.

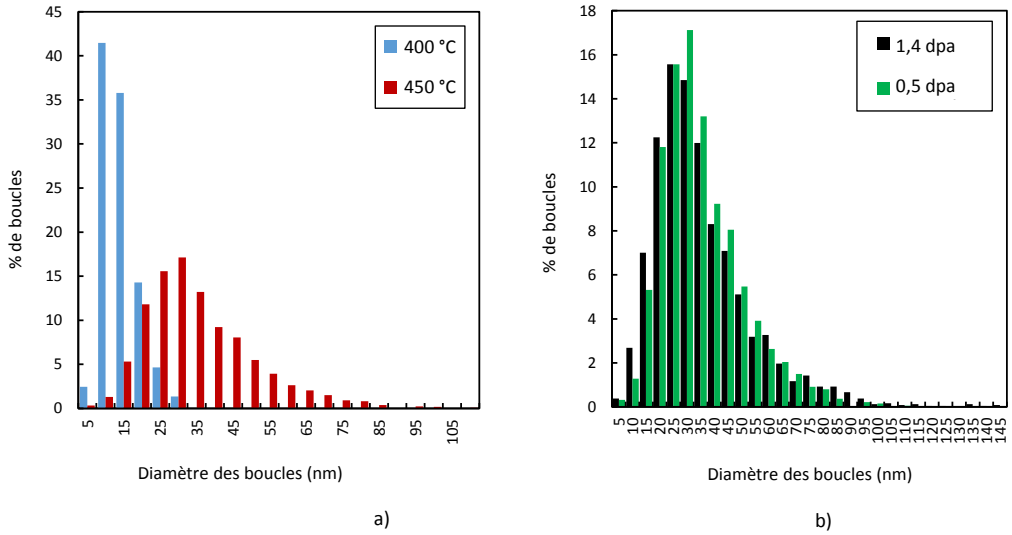


Figure II-13. Distribution du diamètre des boucles après irradiation aux ions Zr+ 600 keV a) effet de la température pour une dose de 0,5 dpa b) effet de la dose pour une température de 450°C.

II.3. Discussion sur la cinétique de croissance des boucles de dislocation <a>

II.3.1. Cinétique d'évolution sous irradiation aux ions de 1 MeV

II.3.1.1. Vitesse de croissance moyenne des boucles

Les différentes campagnes d'irradiation aux électrons ont permis d'estimer l'effet du flux sur l'évolution des boucles de dislocation pour deux flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et $3,6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. Après un temps d'irradiation de 1000 secondes pour le flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$, le diamètre moyen des boucles est de 27 nm à 400°C. Pour des durées similaires et une température de 497°C (770 K), Hellio et al. [13] et Nakamichi et al. [14] obtiennent respectivement des boucles de 22 nm et de 27 nm pour des alliages de Zy-2 et de Zr-1760 ppm O à un flux de $4,6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. En considérant ces différents résultats, il

semblerait que l'effet du flux sur la vitesse de croissance des boucles soit relativement faible. La vitesse de croissance des boucles a été estimée lors des essais en considérant une évolution linéaire après un cours régime transitoire. Les valeurs de vitesses obtenues ont été reportées en Figure II-14 et comparées aux données obtenues par Nakamichi et al. [14] lors de l'irradiation à 297°C (570 K) et 497°C (770 K) d'un alliage de Zy-2 «amélioré» contenant des concentrations en Fe et Ni plus importantes que le Zy-2 conventionnel. Les vitesses de croissance calculées lors des irradiations réalisées à 400°C et 450°C sont proches des données obtenues par Nakamichi et al. [14]. En effet, ces derniers proposent une relation puissance entre la vitesse de croissance des boucles et le flux appliqué ϕ : $dD/dt \propto \phi^p$, avec une valeur du coefficient p d'environ 0,5.

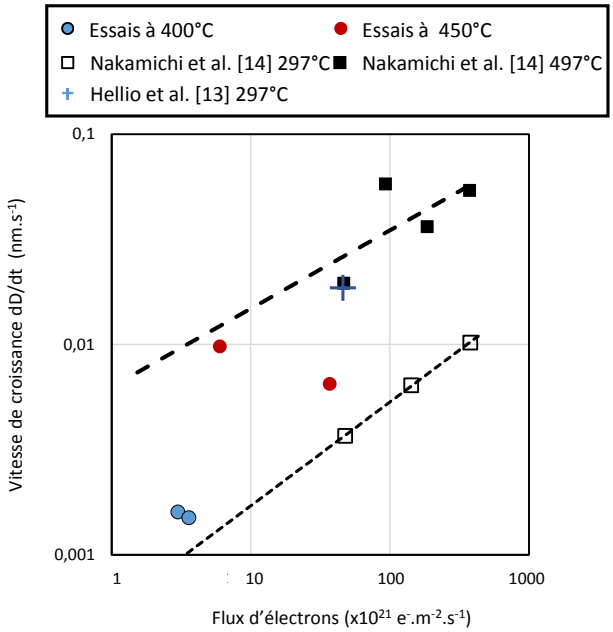


Figure II-14. Vitesse de croissance des boucles en fonction du flux d'électrons dans les alliages de zirconium

Nakmichi et al. [14] ont également estimé une valeur de l'énergie de migration E_m^v des lacunes en considérant, d'après l'équation Eq. II-6 [17], que la vitesse de croissance des boucles évoluait comme une fonction du flux d'électron ϕ et de la mobilité des lacunes :

$$\frac{dD}{dt} = A_0.\phi^{\frac{1}{2}}.\exp(-\frac{E_m^v}{2kT}) \qquad \textbf{Eq. II-6}$$

avec E_m^v l'énergie de migration des lacunes et k la constante de Boltzmann.

D'après les auteurs, l'énergie de migration des lacunes est d'environ 1 eV. Cette valeur a été ré-évaluée en prenant en compte les données obtenues lors des irradiations réalisées durant notre étude. L'énergie de migration obtenue est de 0,71 eV. Le coefficient A_0 est trouvé égal à $2{,}1.10^{20}$ $m^2.s^{-1/2}$.

II.3.1.2. Evolution du diamètre des boucles

L'évolution du diamètre des boucles considérée de manière individuelle a été tracée en fonction du temps d'irradiation en échelle log-log. La Figure II-15 illustre cette évolution pour quatre boucles dont la croissance a été suivie pour des températures d'irradiation de 400°C et 450°C. Nakamichi et al. [14] ont montré que l'évolution du diamètre des boucles suit une loi puissance en fonction du temps d'irradiation : $D \propto t^n$, avec le coefficient *n* qui croit avec la température. Le coefficient *n* a été mesuré grâce au suivi de 76 boucles dans deux grains irradiés à 400°C, et de 15 boucles dans un grain irradié à 450°C. Les valeurs moyennes de *n* respectivement obtenues sont de 0,5±0,3 à 400°C et 1,1±0,5 à 450°C. Une grande dispersion de l'évolution du diamètre en fonction de la température est observée pour différentes boucles d'un même grain comme illustrée en Figure II-15. Cependant, d'après le calcul moyen du coefficient *n* réalisé à 450°C, l'évolution des boucles semble linéaire en fonction du temps d'irradiation. Ces résultats sont cohérents avec la théorie de Kiritani et al. [18], qui démontrent pour plusieurs métaux, que la croissance des boucles est bien proportionnelle à une puissance du temps d'irradiation. A haute température, la croissance des boucles tend à être linéaire, comme observé dans le cas de l'or et du molybdène.

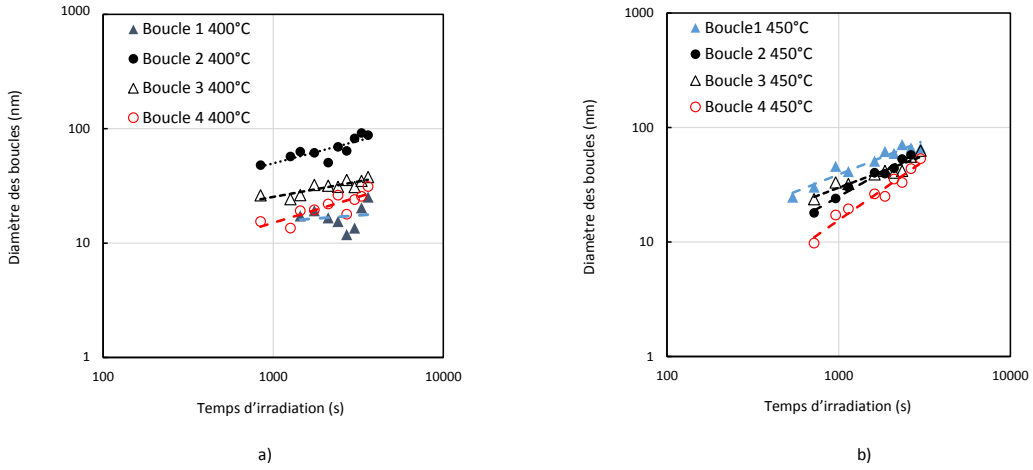


Figure II-15. Evolution du diamètre de boucles spécifiques observées sous irradiation aux électrons de 1 MeV dans deux grains à a) 400°C et b) 450°C.

II.3.2. Comparaison avec les irradiations aux ions

Les valeurs de densité volumique et de diamètre moyen des boucles de dislocation obtenues après irradiation aux ions Zr^+ 600 keV ont été comparées aux résultats obtenus lors des irradiations aux électrons pour des conditions d'irradiation similaires. En effet, l'irradiation aux électrons effectuée à fort flux (6.10^{22} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$) a permis d'atteindre une dose maximale de 0,37 dpa, proche de la dose de 0,5 dpa atteinte lors des irradiations aux ions. Les taux de dommages appliqués lors de ces essais sont de 1.10^{-4} dpa.s^{-1} à une température d'irradiation de 450°C. La Figure II-16 (similaire à la Figure II-10), présente l'évolution du diamètre des boucles sous irradiation aux électrons en fonction de la dose (courbe en rouge). Les valeurs associées à l'étude de la microstructure après irradiation aux ions sont reportées sur ces courbes (points verts).

Pour des valeurs de doses proches, la densité volumique des boucles est supérieure après irradiation aux ions. En effet, elle est $6{,}4.10^{20}$ m^{-3} pour une dose de 0,5 dpa contre seulement de 4.10^{20} m^{-3} à 0,37 dpa lors de l'irradiation aux électrons. Le plateau de saturation étant atteint pour cette dose lors de l'irradiation aux électrons, la densité volumique n'augmentera donc pas pour des doses plus élevées. Le diamètre moyen des boucles est, quant à lui, plus petit après irradiation aux ions que lors des irradiations aux électrons avec des valeurs respectives de 32 nm et de 45 nm.

Ces résultats montrent que sous irradiation aux ions, aux doses observées, la nucléation des boucles est favorisée par rapport à leur croissance, contrairement aux électrons où le plateau de saturation de la densité volumique est déjà atteint. Ces observations peuvent être expliquées par la nature du dommage primaire qui diffère entre les irradiations aux électrons et aux ions. En effet, lors des irradiations aux ions Zr^+ 600 keV, de larges cascades de déplacements sont formées. Les défauts ponctuels se recombinent alors au sein des cascades ou se regroupent sous forme d'amas, créant des germes pour les boucles, et seulement quelques défauts ponctuels restant sont libres de migrer vers les boucles déjà formées [19]. La nucléation des boucles est donc favorisée face à leur croissance. Lors des irradiations aux électrons, l'irradiation entraîne la formation de paires de Frenkel. Il y aura donc peu de recombinaison et la formation d'amas sera moins importante que sous irradiation aux ions. Les défauts ponctuels vont migrer plus facilement vers les boucles déjà existantes.

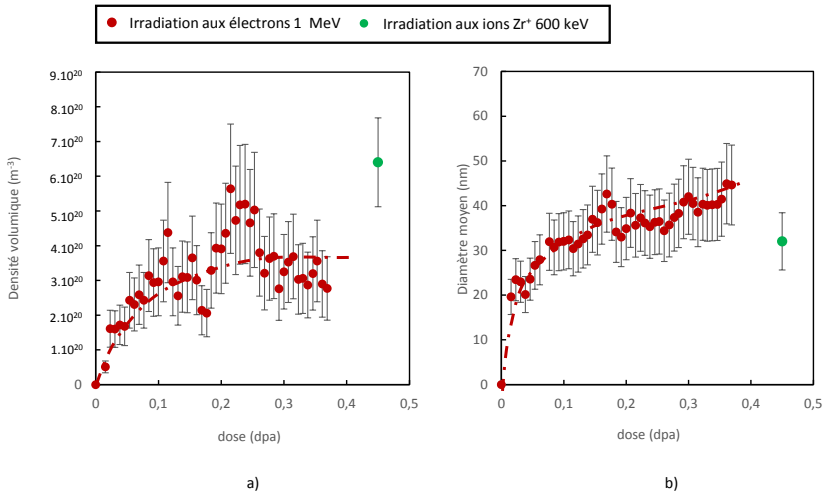


Figure II-16. Comparaison entre a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles obtenues après irradiation aux électrons de 1 MeV et aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C et pour un taux de dommage de 1.10^{-4} dpa.s^{-1}.

III. Caractérisation post-mortem des boucles de dislocation

III.1. Analyse du vecteur de Burgers des boucles

La méthode de détermination du vecteur de Burgers des boucles repose sur le critère d'invisibilité, qui consiste à choisir un vecteur de diffraction $\vec{g}$ tel que $\vec{g}.\vec{b} = 0$. La totalité de la population de boucles est considérée comme uniquement composée de boucles de vecteur de Burgers <a>=$\frac{1}{3} < 1\bar{2}10 >$ pour les doses étudiées. Griffiths et al. [20], [21] notent également la présence de boucles pouvant présenter un vecteur de Burgers de type <c+a>=$\frac{1}{3} < 1\bar{2}13 >$ sous irradiation aux électrons. Ils observent cependant que la population des boucles est tout de même composée à 99% de boucles <a>.

Afin d'identifier le vecteur de Burgers <a> des différentes boucles analysées, trois vecteurs de diffraction, éteignant chacun une famille de boucles, sont choisis [22]. En complément de cette méthode, la détermination du vecteur de Burgers a été dans certains cas vérifiée grâce à la méthode se basant sur une « distribution plan d'habitats en ailes de papillons » proposées par Kelly et Blake [23]. Il est important de noter que dans certains cas, lorsque les boucles sont imagées à l'aide du vecteur de diffraction $\vec{g} =< 1\bar{2}12 >$, certaines d'entre elles montrent des contrastes faibles ressemblant à un cas d'extinction. Ces faibles contrastes peuvent être expliqués par l'orientation des boucles par rapport au vecteur de diffraction [22], [23].

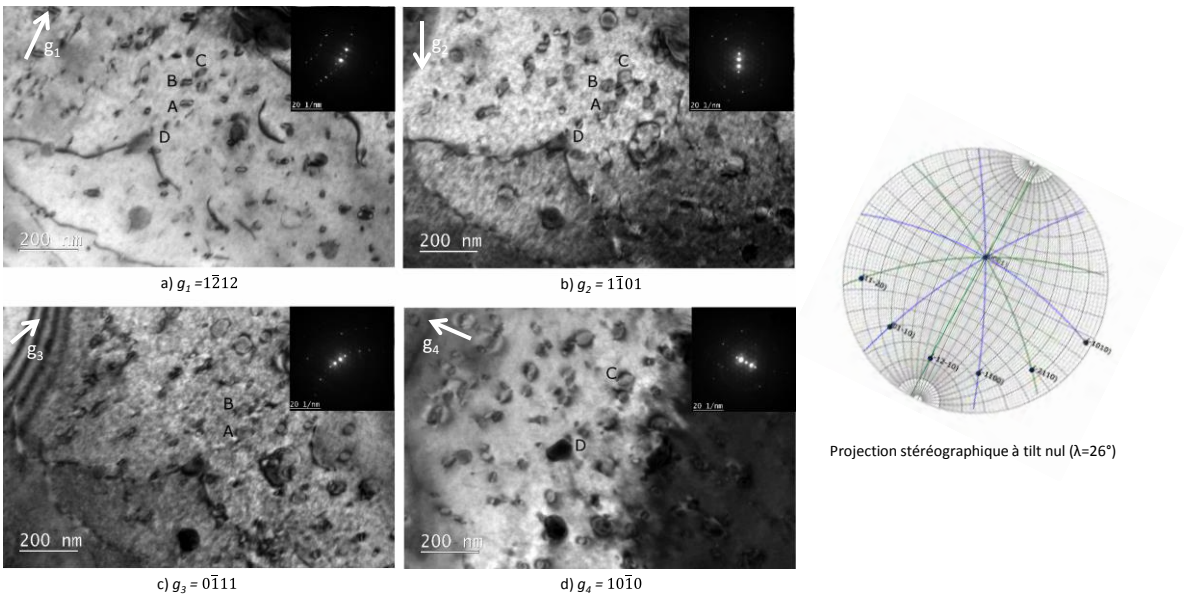
La méthode d'analyse appliquée est illustrée en Figure II-17 pour le cas d'une microstructure obtenue après irradiation aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C et pour une dose de 0,5 dpa. L'analyse a également été menée pour les autres conditions d'irradiations aux ions et les irradiations aux électrons. Dans le cas illustré en Figure II-17, quatre vecteurs de diffraction ont été choisis : $\overrightarrow{g_1}$ = $1\bar{2}12$, $\overrightarrow{g_2}$=$1\bar{1}01$, $\overrightarrow{g_3}$=$0\bar{1}11$ et $\overrightarrow{g_4}$=$10\bar{1}0$. Les conditions d'extinctions sont explicitées dans le Tableau II-3.

Tableau II-3. Conditions d'extinction des vecteurs de Burgers

	$\overrightarrow{b_1} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$	$\overrightarrow{b_2} = \frac{1}{3}[\bar{2}110]$	$\overrightarrow{b_3} = \frac{1}{3}[11\bar{2}0]$
$\overrightarrow{g_1}$ = $1\bar{2}12$	Visible	Visible	Visible
$\overrightarrow{g_2}$=$1\bar{1}01$	Visible	Visible	Eteint
$\overrightarrow{g_3}$=$0\bar{1}11$	Visible	Eteint	Visible
$\overrightarrow{g_4}$=$10\bar{1}0$	Eteint	Visible	Visible

Les boucles A et B sont visibles pour les vecteurs de diffraction $\overrightarrow{g_1}$, $\overrightarrow{g_2}$ et $\overrightarrow{g_3}$ mais sont invisibles pour le vecteur $\overrightarrow{g_4}$. De même, les boucles C et D sont clairement observables pour les vecteurs $\overrightarrow{g_1}$, $\overrightarrow{g_2}$ et $\overrightarrow{g_4}$ mais éteintes pour le vecteur $\overrightarrow{g_3}$. Le vecteur de Burgers des boucles A et B est donc le vecteur $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$ et celui des boucles C et D est le vecteur $\frac{1}{3}[\bar{2}110]$. La projection stéréographique du grain à tilt nul est également donnée en Figure II-17. Selon Griffiths et al. [15] l'orientation du grain peut avoir un impact sur la distribution et la nature des boucles de dislocation. Dans le cadre de nos expériences, cet angle d'inclinaison λ entre l'axe <c> et la direction du faisceau d'électron $\vec{B}$ est majoritairement compris entre 15° et 30°.

Les résultats des différentes analyses du vecteur de Burgers des boucles démontrent dans tous les cas la coexistence des trois vecteurs de Burgers au sein d'un même grain.



a) $g_1 = 1\bar{2}12$ b) $g_2 = 1\bar{1}01$ c) $g_3 = 0\bar{1}11$ d) $g_4 = 10\bar{1}0$

Figure II-17. Détermination du vecteur de Burgers des boucles par la méthode d'extinction après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 450°C et 0,5 dpa.

III.2. Analyse du plan d'habitat des boucles

En se basant sur les résultats de la littérature, les boucles de dislocation <a> peuvent être considérées comme circulaires. En effet, il a été démontré que pour des boucles de diamètre inférieur à 50 nm, le ratio d'ellipticité *b/a* était compris entre 0,8 et 1 [24]. Lors des observations MET, les boucles apparaissent sous forme d'ellipse en raison de leur inclinaison dans la lame. Il est donc possible de déterminer leur plan d'habitat en reportant la trace de leur grand axe sur la projection stéréographique du grain au tilt donné. Les résultats des précédentes études bibliographiques ont montré que les boucles <a> n'étaient pas purement coins et que leur plan d'habitat était souvent compris entre les plans prismatiques de première espèce $\{10\bar{1}0\}$ et les plans de type $\{11\bar{2}0\}$ [24]. A titre d'exemple, la Figure II-18 illustre la méthode pour une boucle <a>. La trace de la boucle (en vert) est reportée sur la projection stéréographique au tilt d'observation. Cette dernière se trouve entre les plans prismatiques $(\bar{1}100)$ et $(\bar{1}2\bar{1}0)$.

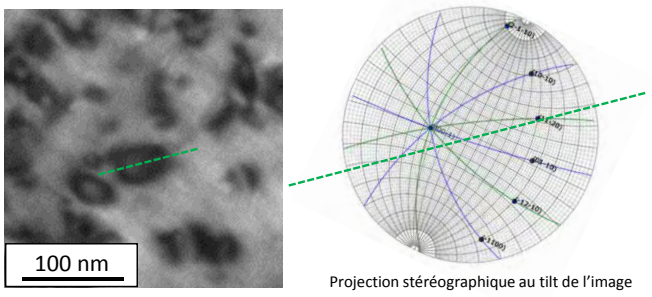


Figure II-18. Méthode de détermination du plan d'habitat d'une boucle de dislocation <a>.

En suivant l'étude réalisée par Carpenter et Watters [25], une analyse approximative de l'inclinaison du plan d'habitat des boucles a été réalisée. En considérant que les normales aux plans d'habitat des boucles sont comprises dans le plan (0001), il est possible de déterminer l'angle θ d'inclinaison des boucles par rapport à une orientation purement coin (angle entre la trace du grand axe de la boucle et la direction <$\bar{1}2\bar{1}0$>). Cette analyse a été réalisée dans le cas d'un grain après irradiation aux ions Zr^+ 600 keV, et la distribution des normales aux plans d'habitat des boucles est représentée dans le triangle standard en Figure II-19. Une même analyse a également été effectuée après irradiation aux électrons. La majorité des boucles tend à appartenir à des plans d'habitat proches du plan prismatique de première espèce ($1\bar{1}00$). En effet les angles entre les normales aux plans d'habitats et la direction <$\bar{1}2\bar{1}0$> sont compris entre 8° et 30°, et sont en majorité supérieurs à 20°. Cette étude confirme que les boucles ne sont pas purement coins mais son bien distribuées entre les plans prismatiques de première espèce $\{10\bar{1}0\}$ et les plans de type $\{11\bar{2}0\}$.

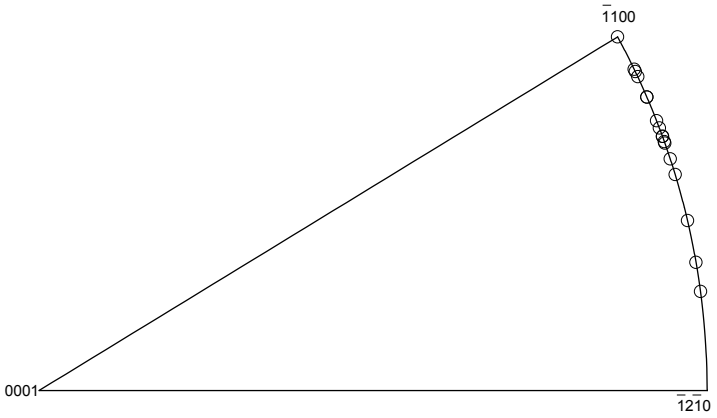


Figure II-19. Distribution de la normale des plans d'habitat des boucles après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 400°C et pour une dose de 0,5 dpa.

Par cette méthode seule, et en raison de l'inclinaison de l'axe <c> par rapport à la normale à la lame, il n'est pas possible de déterminer l'angle entre le plan d'habitat des boucles et la direction <c>. Afin d'étudier l'angle d'inclinaison des boucles par rapport aux plans prismatiques vers l'axe <c>, une analyse a été réalisée en considérant toujours des boucles circulaires. Le ratio d'ellipticité *b/a* des boucles projetées sur le plan de l'écran peut être relié à l'angle d'inclinaison entre la normale au plan d'habitat de la boucle et la direction au faisceau d'électron φ :

$$\frac{b}{a} = \cos\varphi \qquad \textbf{Eq. II-7}$$

Afin de réduire l'erreur induite par la mesure de la largeur de la boucle, une valeur moyenne du diamètre a été considérée en prenant en compte le diamètre obtenu en contraste interne et en contraste externe, comme suggéré par Kelly et Blake [23]. L'étude a également été réalisée pour un grain irradié aux ions Zr^+ 600 keV à 400°C et pour une dose finale de 0,5 dpa, avec un axe de zone de type <$11\bar{2}3$> proche de la direction du faisceau d'électrons $\overrightarrow{B}$. La Figure II-20 présente l'évolution de l'angle φ (calculé à partir du rapport d'ellipticité) en fonction de l'angle entre la direction du faisceau d'électrons et la normale au plan d'habitat (en supposant que cette dernière soit contenue dans le plan (0001)) obtenue à l'aide du report des traces des boucles. Si les boucles appartiennent aux plans prismatiques de première espèce, les points les représentant sur la Figure II-20 devraient appartenir à

la droite 1:1. Comme observé précédemment, les boucles sont légèrement inclinées par rapport aux orientations prismatiques. De façon générale, il est observé que les boucles sont inclinées vers les plans pyramidaux de première espèce pour des angles inférieurs à 30°. Des résultats similaires ont déjà été observés dans la littérature [22], [24], [25].

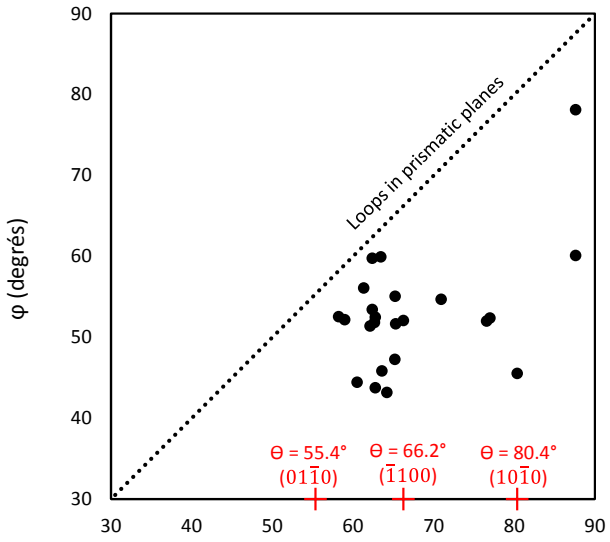


Figure II-20. Distribution des boucles de dislocation vers les plans pyramidaux

III.3. Nature des boucles de dislocation

III.3.1. Méthode d'analyse au MET

La détermination de la nature des boucles de dislocation (interstitielle ou lacunaire) repose sur une étude du contraste de la boucle lorsqu'elle est imagée avec un vecteur de diffraction $\vec{g}$, par la méthode du contraste interne-externe proposée par Maher et Eyre [26] et Föll et Wilkens [27]. Le contraste de la boucle apparait soit en contraste interne à l'intérieur de la position réelle de la boucle, soit en contraste externe, à l'extérieur de la position réelle de la boucle, en fonction des conditions de diffraction. Le contraste apparent d'une boucle dépend de plusieurs critères, à savoir : son plan d'habitat, le « signe » de l'écart de Bragg $\vec{s}$ et le « signe » du vecteur de diffraction $\vec{g}$. L'analyse de la nature de la boucle est facilitée pour des boucles de diamètre important, où l'inversion de contraste est facilement observable. Dans la suite de cette partie, la méthode de détermination générale de la nature des boucles est explicitée (voir aussi Annexe B.)

Afin de comprendre l'effet du « signe » de l'écart de Bragg sur le contraste de la boucle, considérons le cas d'une boucle lacunaire, illustré en Figure II-21. La configuration de départ illustrée ici correspond au cas où le « signe » de l'écart de Bragg aux positions n_1 et n'_1 est positif. Dans ce cas, le plan qui se rapproche des conditions de diffraction, soit pour un écart de Bragg nul (s=0), est le plan XX (en position n_2) alors que le plan YY s'éloigne de ces conditions. Si au contraire, la configuration de départ considérée impliquait un angle de Bragg négatif, alors pour le même vecteur de diffraction considéré, le plan YY se retrouverait cette fois en conditions de diffraction et le plan XX s'en éloignerait. Ainsi, une

inversion de contraste est observée en fonction du signe du vecteur de Bragg : quand s>0, le plan XX diffracte, quand s<0, le plan YY diffracte (Figure II-22). Le signe du vecteur de Bragg peut être déterminé à l'aide de lignes de Kikuchi lors de l'analyse au MET.

Le contraste de la boucle dépend également de son plan d'habitat, et notamment de l'inclinaison de ce dernier par rapport au vecteur de diffraction $\vec{g}$. Le signe du vecteur $\vec{g}$ est considéré positif quand $\vec{g}.\vec{n}$>0 (avec $\vec{n}$ la normal au plan d'habitat tel que $\vec{n}.\vec{B}$>0). Le contraste de la boucle dépend donc plus précisément du signe du produit scalaire : $(\vec{g}.\vec{b}).\vec{s}$.

Dans le cas particulier des alliages de zirconium, les boucles de dislocation ne sont pas purement coins, et l'analyse des boucles par la méthode du contraste interne-externe est alors plus complexe. Maher et Eyre [26] proposent une méthode dite « safe/unsafe » qui repose sur un choix précis des conditions de diffraction. Afin de répondre à ce critère et de pouvoir réaliser les analyses dans des orientations « safe », les conditions de diffraction choisies correspondent à un axe de zone de type <$11\bar{2}3$> proche du faisceau d'électrons et un vecteur de diffraction de type $\vec{g}$=<$1\bar{2}1\bar{2}$>. Etant donné que les boucles sont inclinées en moyenne de 20° à 30° degrés de leur direction coin pure, ces conditions assurent que 2/3 des boucles sont bien orientées pour une analyse de leur nature par la méthode du contraste interne. Les boucles considérées en position « safe » sont celles dont la trace est inclinée à plus de 30° du vecteur de diffraction. Le Tableau II-4 résume la nature des boucles associée aux différents changements de contraste dans nos conditions d'observation.

Tableau II-4. Détermination de la nature de la boucle par la méthode du contraste interne-externe

Signe du vecteur de Bragg	**Signe du vecteur de diffraction**	**Contraste de la boucle**	
s>0	+ $\vec{g}$	Interne	Externe
	- $\vec{g}$	Externe	Interne
s<0	+ $\vec{g}$	Externe	Interne
	- $\vec{g}$	Interne	Externe
Nature de la boucle		**Lacunaire**	**Interstitielle**

Il est également important de noter qu'en fonction du MET utilisé lors de l'analyse de la nature des boucles de dislocation, une rotation de 180° entre l'image et le cliché de diffraction peut exister. Cette rotation impacte donc le sens du vecteur de diffraction et par conséquent sur sa direction par rapport à la normale au plan. Afin de vérifier l'existence de cette rotation, plusieurs méthodes existent et sont décrites par Loretto et Smallman [28]. Des éléments complémentaires sur ce point sont donnés en Annexe B.

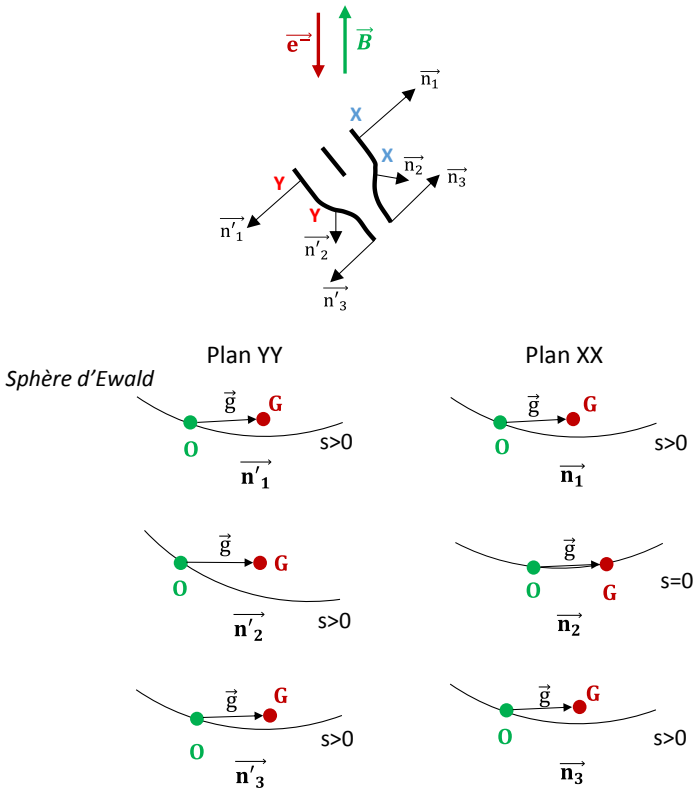


Figure II-21. Effet du signe du vecteur de Bragg sur le contraste des boucles.

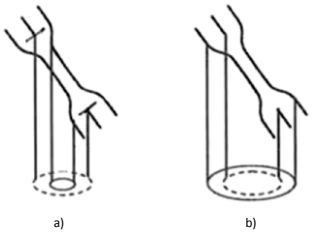
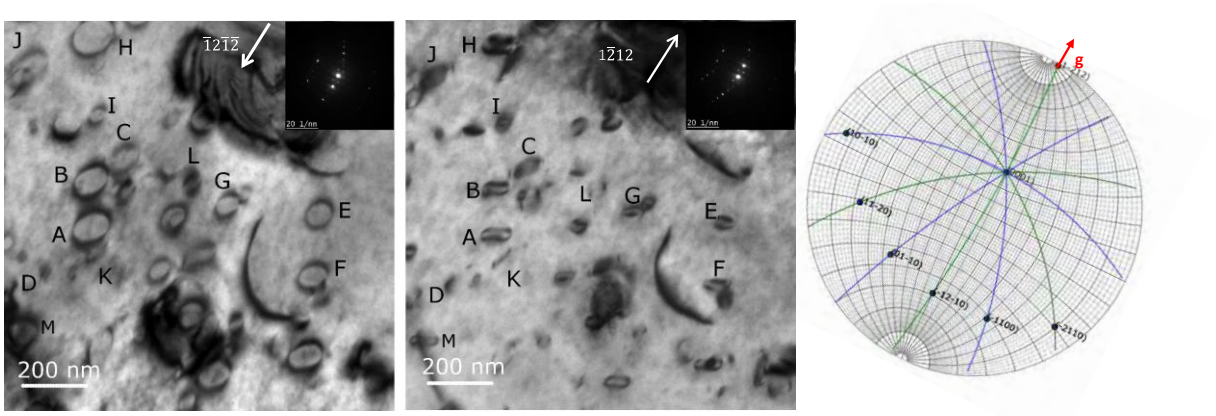


Figure II-22. Boucle lacunaire en a) contraste interne et b) contraste externe

III.3.2. Nature des boucles de dislocation après irradiation aux ions

La détermination de la nature des boucles de dislocation a pu être réalisée après irradiation aux ions à 450°C pour les deux doses obtenues : 0,5 dpa et 1,4 dpa. La Figure II-23 illustre la méthode dans le cas d'un grain irradié à 450°C à une dose de 0,5 dpa. L'écart de Bragg est pris positif dans le cadre de cette analyse. En suivant la méthode indiquée par Jostson et al. [22], les boucles A, B, E, F, G, H, I, M de vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$, dont g.b=±2 sont dans une configuration dite « safe » c'est-à-dire que l'analyse de la nature de ces boucles peut être effectuée de façon sure. Au contraire, les boucles de vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[\bar{2}110]$ et $\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}20]$ donne un produit scalaire g.b=±1. Dans ce cas, les boucles dont la trace est inclinée à plus de 30° par rapport à la direction du vecteur de diffraction sont dans des

directions « safe ». C'est le cas des boucles C, J et L de vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[\bar{2}110]$. Au contraire les boucles D et K de vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}20]$ sont dans une orientation « unsafe ».



a) b) Projection stéréographique au tilt de l'image

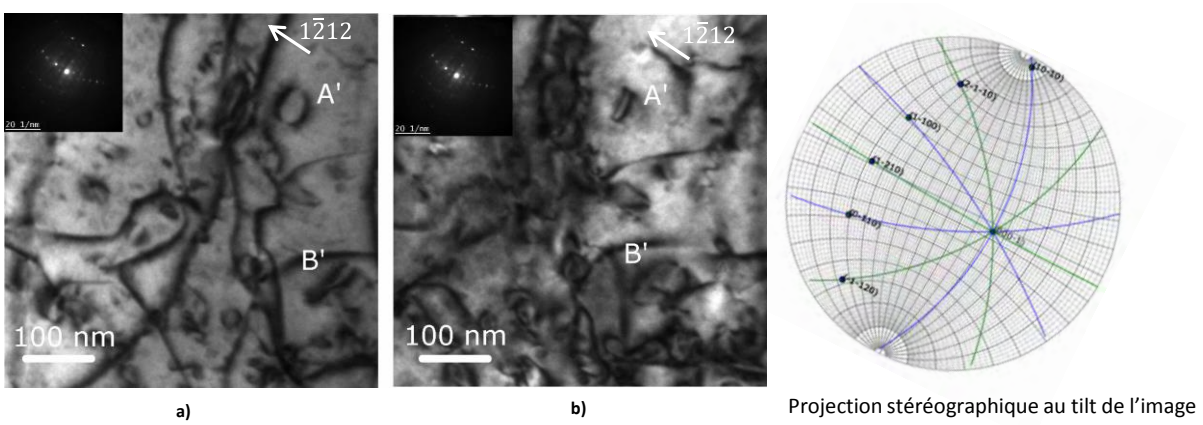
Figure II-23. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux ions Zr^+ 600keV à 400°C et 0,5 dpa a) boucles en contraste externe (+$\vec{g}$) b) boucle en contraste interne (-$\vec{g}$)

La détermination de la nature des boucles a été effectuée pour un total de 73 boucles après irradiation aux ions (28 boucles après irradiation à 450°C et 0,5 dpa et 45 boucles après irradiation à 450°C et 1,4 dpa). Comme observé en Figure II-23, la totalité des boucles analysées montre clairement un contraste externe pour $\vec{g} = \bar{1}2\bar{1}\bar{2}$ (+$\vec{g}$) et un contraste interne pour $\vec{g} = 1\bar{2}12$ (-$\vec{g}$) avec un écart de Bragg s>0. Les boucles sont donc toutes de nature interstitielle après irradiation aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C.

La nature des boucles après irradiation aux ions à 400°C n'a pas pu être déterminée en raison du diamètre des boucles, trop petit, qui ne permettait pas d'observer un net changement de contraste. Cependant, l'analyse réalisée par Drouet [29] pour une irradiation aux ions Zr^+ 600 keV à 400°C montrent la présence des deux types de boucles : lacunaires et interstitielles.

III.3.3. Nature des boucles de dislocation après irradiation aux électrons

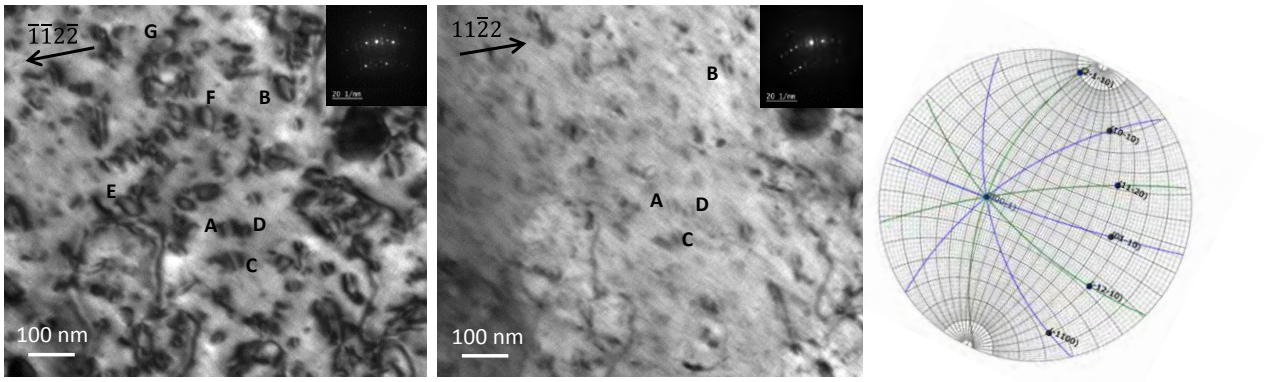
L'analyse de la nature des boucles <a> après irradiation aux électrons de 1 MeV a pu être menée sur les lames irradiées à 400°C et à 450°C. La Figure II-24 illustre la méthode d'analyse pour la microstructure obtenue après une irradiation à 450°C. Ici le signe du vecteur de Bragg $\vec{s}$ varie quand le vecteur de diffraction reste constant : $\vec{g} = 1\bar{2}12$. Pour les mêmes conditions de diffraction, les boucles A' et B' montrent des contrastes opposés, prouvant la présence des deux natures de boucles (les deux boucles sont dans des orientations « safe »). La boucle A' est en contraste externe pour s>0 alors que la boucle B' est en contraste interne, et inversement pour s<0. La boucle A' est donc de nature interstitielle et la boucle B' de nature lacunaire. Cependant, la proportion de boucles interstitielles a été trouvée comme étant beaucoup plus importante. En effet, sur un total de 69 boucles analysées, 65 boucles sont de natures interstitielles après irradiation aux électrons de 450°C, quand seulement 4 ont été analysées comme étant lacunaires.



a) b) Projection stéréographique au tilt de l'image

Figure II-24. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C et 0,03 dpa a) s>0 b) s<0. A tilt nul, λ=14,5°.

L'analyse a également été réalisée après irradiation à 400°C (Figure II-25). L'angle de Bragg est choisi positif. Pour quelques boucles telles que les boucles A, B, C et D, le changement de contraste est clair. Les boucles ont un contraste externe pour $\vec{g} = \bar{1}\bar{1}2\bar{2}$ (-$\vec{g}$) et un contraste interne pour $\vec{g} = 11\bar{2}2$ (+$\vec{g}$), prouvant que les boucles sont de nature lacunaire. Cependant pour certaines boucles (E, F et G par exemple), le contraste apparait de façon très nette pour $\vec{g} = \bar{1}\bar{1}2\bar{2}$, mais s'affaiblit pour $\vec{g} = 11\bar{2}2$. Ce contraste asymétrique a précédemment été observé par Griffiths et al. [20], [30] et est expliqué par un effet de la couche d'oxyde. Il est ainsi difficile de conclure sur la nature de ces boucles. Seules 18 boucles ont pu être analysées avec certitude, et toutes sont de nature lacunaire. Cependant, il n'est pas certain que la microstructure ne soit pas également composée de boucles interstitielles, étant donné que beaucoup d'entre elles n'ont pu être analysées.



a) b) Projection stéréographique au tilt de l'image

Figure II-25. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux électrons de 1 MeV à 400°C et 0,04 dpa a) boucles en contraste externe (-$\vec{g}$) b) boucle en contraste interne (+$\vec{g}$). A tilt nul, λ=30°.

Un essai complémentaire a été réalisé lors de la thèse de Gharbi [7] avec un flux d'électrons plus important ($8{,}4.10^{23}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$) à 600°C, et la nature des boucles a pu être analysée dans le cadre de cette étude. L'analyse de 16 boucles réalisée dans le grain irradié (λ=10°) a montré des boucles toutes de nature interstitielle. Cependant, comme dans le cas précédent, la nature de plusieurs boucles n'a pas pu être déterminée en raison de leur taille ou de l'existence d'un contraste asymétrique.

III.3.4. Discussion sur la nature des boucles de dislocation

L'analyse de la nature des boucles de dislocation a montré des résultats différents après irradiation aux ions et aux électrons. Après une irradiation aux ions Zr^+ 600 keV, l'analyse n'a pu être effectuée que pour une température d'irradiation de 450°C (723 K), et toutes les boucles analysées sont de nature interstitielle. Après irradiation aux électrons de 1 MeV, la proportion des boucles interstitielles semblent croitre avec la température d'irradiation. En effet, la détermination de la nature des boucles montre des boucles majoritairement lacunaires après une irradiation à 400°C (673 K), et des boucles lacunaires et interstitielles en proportion importante à 450°C. A 580°C (853 K), seules des boucles interstitielles ont été observées.

III.3.4.1. Discussion sur la nature des boucles après irradiation aux électrons

Lors d'irradiations aux électrons de 1 MeV, les résultats de la littérature pour le cas des alliages de zirconium ont également mis en avant la présence exclusive de boucles interstitielles pour des températures supérieures à 500°C (773 K) [13], [14]. Pour le cas du zirconium pur, Carpenter et Watters [25] ont montré la présence uniquement de boucles interstitielles à 450°C (725 K), alors que Griffiths et al. [15] montrent que pour des températures d'irradiation allant de 400°C (675 K) à 460°C (730 K) les deux natures, interstitielles et lacunaires, coexistent.

La possibilité que les boucles de dislocation <a> lacunaires puissent nucléer et croître sous irradiation aux électrons a toujours été un phénomène difficile à expliquer. D'une part, à cause de la différence d'interaction élastique (EID) entre les lacunes et les SIAs avec les dislocations, les SIAs sont préférentiellement absorbées par les boucles. Ainsi, les boucles lacunaires sont supposées rétrécir sous irradiation et seules les boucles de dislocation interstitielles peuvent croitre. De plus, l'absence de cascades de déplacements, comme c'est le cas sous irradiation aux électrons, ne favorise pas non plus la nucléation de boucles lacunaires [25], [31]. Plusieurs hypothèses ont été proposées dans la littérature afin d'expliquer la nucléation et la croissance des boucles lacunaires sous irradiation aux électrons du zirconium pur et des alliages de zirconium [32], [33]. Griffiths [32], [34] explique la coexistence des boucles lacunaires et interstitielles dans le zirconium sous irradiation aux électrons par 1) un faible volume de relaxation des interstitiels par rapport aux lacunes (faible EID), 2) à l'effet des éléments d'alliages, qui peuvent ségréger autour des boucles et 3) à la répartition spatiale des boucles lacunaires et interstitielles sous forme de rangées distinctes (contraste de Corduroy) due aux interactions élastiques ou à la diffusion anisotrope des défauts ponctuels.

Après irradiation aux électrons, il est également observé que la proportion de boucles interstitielles augmente avec la température d'irradiation, et que pour des températures supérieures à 500°C la microstructure n'est presque exclusivement composée que de boucles interstitielles. Cette augmentation de la proportion en boucles interstitielles peut s'expliquer par l'émission thermique des lacunes, par les boucles lacunaires, qui augmente avec la température et devient supérieure au flux net de lacunes absorbées par les boucles. Cette émission de lacunes peut entraîner la résorption des boucles lacunaires. Au contraire, le flux net d'interstitiels restant important pour les taux de dommages appliqués, les boucles de dislocation interstitielles continuent de croître.

Ces résultats obtenus après irradiation aux électrons permettent également de discuter du modèle de diffusion anisotrope des défauts (DAD). En effet, afin d'expliquer le phénomène de croissance libre sous irradiation, une théorie basée sur l'anisotropie de diffusion des SIAs et des lacunes a été proposée et un modèle de dynamique d'amas a également été développé [35], [36]. Ainsi, en considérant une diffusion isotrope des lacunes et une diffusion anisotrope des SIAs, rapide dans le plan de base, et plus lente le long de l'axe <c>, Christien et Barbu [35] ont montré une relation entre l'angle d'inclinaison de l'axe <c> par rapport au faisceau d'électrons λ et la densité de boucles lacunaires et interstitielles. Ainsi, ils ont observé que pour un angle λ inférieur à 60°, seules des boucles interstitielles se forment au sein de la microstructure irradiée. Cependant, en se basant sur les résultats présentés précédemment ainsi que ceux de Griffiths et al. [16], des boucles lacunaires sont bien observées après irradiation aux électrons pour des angles λ faibles compris entre 15° et 30°. Il est donc possible de conclure sur une faible différence d'anisotropie de diffusion entre les défauts ponctuels interstitiels et lacunaires. Ces observations sont également en accord avec les récentes simulations *ab-initio* couplées à la méthode de Monte-carlo réalisées par Samolyuk et al. [37], qui montrent en effet une diffusion presque isotrope des SIAs.

III.3.4.2. Discussion sur la nature des boucles après irradiation aux ions

Contrairement aux observations effectuées après irradiation aux électrons, aucune boucle lacunaire n'a été analysée après irradiations aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C, et les microstructures ne sont composées que de boucles interstitielles. Plusieurs hypothèses sont proposées pour expliquer ces différences.

Tout d'abord, les taux de dommage et les mécanismes de formation des défauts ponctuels diffèrent. En effet, les analyses de nature de boucles ont été effectuées après des irradiations à un flux d'environ 10^{-5} dpa.s^{-1} pour les irradiations aux électrons de 1 MeV et pour un flux de 10^{-4} dpa.s^{-1} pour les irradiations aux ions Zr^+600 keV. Les irradiations aux ions impliquent, de plus, la formation de cascades de déplacements, contrairement aux irradiations aux électrons où seules des paires de Frenkel sont créées. Ces deux paramètres peuvent donc influer sur la diffusion des défauts ponctuels à travers le cristal et donc sur les mécanismes de formation des boucles. Il a été démontré lors des analyses après irradiation aux électrons un effet de la température sur la proportion des boucles interstitielles. Un phénomène similaire peut donc être considéré sous irradiation aux ions, avec un décalage en température par rapport aux électrons. Bien que cette hypothèse n'ait pas pu être confirmée par une analyse de la microstructure après une irradiation aux ions à 400°C, Drouet [29] a bien mis en évidence la co-existence des deux natures après irradiation de lames de Zy-4 RXA à 400°C.

La Figure II-5 montre la présence d'un pic d'implantation des ions Zr^+ pour des épaisseurs d'environ 200 nm. Il est donc possible que les interstitiels injectés par l'irradiation aient un effet sur la nucléation et la croissance des boucles interstitielles.

Une dernière hypothèse pour expliquer ces différences de microstructures après irradiation aux ions et aux électrons repose sur la présence des surfaces libres. Ces surfaces libres, proviennent de la préparation des lames minces par création de cuvettes lors de l'électropolissage. Dans le cas où une diffusion anisotrope des défauts ponctuels est considérée (Chapitre I, §II.2), ces cuvettes peuvent être assimilées à des surfaces libres qui agissent comme puits d'élimination des défauts et dont la force d'attraction est dépendante de leur orientation cristallographique. L'effet des surfaces libres peut être

important notamment sur la proportion des boucles lacunaires ou interstitielles, et la concentration en dislocation et l'effet des surfaces libres sur la population de boucles a pu être étudiée de façon expérimentale et par dynamique d'amas [15], [35], [38]. Lors des irradiations aux électrons *in-situ* la lame mince présente deux surfaces libres, alors que lors des irradiations aux ions, seule une surface libre existe (Figure II-2). En considérant une diffusion anisotrope des défauts ponctuels, les surfaces agissent comme des puits, et les lacunes y sont préférentiellement éliminées quand l'axe <c> est proche de la normale, favorisant ainsi la croissance de boucles interstitielles. En se basant sur cette théorie, la concentration en boucles interstitielles devrait donc être plus importante sous irradiation aux électrons que sous irradiation aux ions. Or, des résultats inverses ont été observés lors des essais d'irradiation, ce qui confirme une possible faible différence d'anisotropie de diffusion des défauts ponctuels.

III.3.4.3. Comparaison avec les boucles induites par l'irradiation aux neutrons

Sous irradiation aux neutrons les deux natures de boucles sont observées, ce qui est cohérent avec les observations réalisées après irradiation aux électrons [22]–[24]. Cependant, contrairement aux irradiations aux électrons, la proportion de boucles lacunaires augmente sous irradiation aux neutrons avec la température d'irradiation [22]. Cette différence pourrait être expliquée par l'effet du taux de dommage. En effet, le taux de dommage sous irradiation aux neutrons est d'environ 10^{-8} dpa.s^{-1} contre 10^{-5} à 10^{-4} dpa.s^{-1} sous irradiation aux particules chargées. Le temps d'irradiation est donc beaucoup plus long, et un recuit des boucles a donc lieu en température. Ainsi, les boucles interstitielles se résorbent par l'absorption des lacunes dont la diffusion est thermiquement activée, et de plus grandes boucles lacunaires croissent aux dépens des petites boucles qui se résorbent également par émission de lacunes.

Synthèse du chapitre

Les boucles de dislocation <a> sont impliquées dans les mécanismes de la déformation des alliages de zirconium après et sous irradiation. Leurs caractéristiques ont été précisément déterminées dans la littérature [22]–[24], [34]. Afin de simuler les irradiations aux neutrons, il est usuel, dans le milieu de la recherche des matériaux pour le nucléaire, d'utiliser les irradiations aux particules chargées (électrons et ions). Il est donc également nécessaire de caractériser les boucles de dislocation pour ce type d'irradiation. Pour cela, des irradiations aux électrons de 1 MeV et aux ions lourds Zr^+ 600 keV, ont été réalisées dans le cadre de cette thèse, pour des températures de 400°C et 450°C.

L'évolution des boucles de dislocation <a> a été suivie *in-situ* lors d'irradiation aux électrons de 1 MeV, pour des taux de dommages compris entre 10^{-5} dpa.s^{-1} et 10^{-4} dpa.s^{-1}. Le diamètre moyen des boucles et de leur densité volumique augmentent au cours de l'irradiation. De plus, pour le plus fort taux de dommage (10^{-4} dpa.s^{-1}), l'apparition d'un plateau de saturation de la densité volumique est également observée à partir de doses faibles (environ 0,1 dpa). L'effet des paramètres d'irradiation a également été étudié. Il a été observé qu'une augmentation du flux d'électrons entraînait pour une température donnée, une augmentation de la densité volumique des boucles et une diminution de leur diamètre moyen. De plus une augmentation de la température d'irradiation entraîne une diminution importante de la densité volumique des boucles. Un même effet a également été observé lors des irradiations aux ions Zr^+ 600 keV où le diamètre des boucles apparait également plus important à haute température. Ces différentes observations sont en accord avec les résultats de la littérature [13], [14].

Les résultats obtenus lors des irradiations aux électrons, en termes de densité volumique et de diamètre moyen des boucles, ont été comparés aux analyses réalisées sur les microstructures irradiées aux ions Zr^+ 600 keV pour un même taux de dommage de 10^{-4} dpa.s^{-1} et pour des doses comparables. Les boucles obtenues après irradiation aux ions sont en plus forte densité volumique mais de plus petite taille que celles induites par les irradiations aux électrons. Ces différences peuvent être expliquées par les mécanismes de créations des défauts ponctuels qui diffèrent entre les irradiations aux ions (cascades de déplacements) et les irradiations aux électrons (paires de Frenkel).

Une analyse au MET de la nature des boucles de dislocation <a> a été réalisée après irradiation aux électrons et aux ions. Il existe dans la littérature un désaccord concernant la nature des boucles <a> après irradiation aux électrons. En effet, dans le zirconium pur, Carpenter et Watters [25] identifient uniquement des boucles interstitielles, alors que Griffiths et al. [15] observent les deux types de boucles. Dans le cas des alliages de zirconium les études réalisées jusqu'à maintenant ont montrées que la microstructure n'était composée que de boucles interstitielles [13], [14], [25]. Sous irradiation aux ions, aucune étude de la nature des boucles dans les alliages de zirconium n'est à ce jour connue. Les résultats obtenus suite à nos irradiations aux électrons, montrent que la microstructure du Zy-4 est composée des deux natures de boucles : lacunaires et interstitielles. Il est également observé que la proportion de boucles interstitielles augmente de façon importante avec la température d'irradiation. Après irradiation aux ions à 450°C, les boucles analysées sont toutes de nature interstitielle. Plusieurs hypothèses basées sur la migration des défauts ponctuels ont été proposées pour expliquer ces microstructures. Les résultats obtenus démontrent, en conclusion, que la différence d'anisotropie de diffusion, avancée par le modèle DAD, et la différence de biais d'absorption des défauts par les boucles pourraient en réalité être faibles.

Références bibliographiques

[1] L. K. Mansur, “Correlation of neutron and heavy-ion damage,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 78, no. 1, pp. 156–160, Nov. 1978.

[2] H. Ullmaier, Ed., *Atomic Defects in Metals*, vol. 25. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 1991.

[3] C. Varvenne, O. Mackain, and E. Clouet, “Vacancy clustering in zirconium: An atomic-scale study,” *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 65–77, Oct. 2014.

[4] M. Griffiths, “Displacement energies for Zr measured in a HVEM,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 165, no. 3, pp. 315–317, Jun. 1989.

[5] Y. De Carlan, “Contribution à l’étude des phénomènes d’accélération de la croissance en réacteur des alliages de zirconium. Influence du fer sur la formation des boucles de dislocation de type <c>.,” Institut National Polytechnique de Grenoble, 1996.

[6] C. Hellio, “Étude par microscopie électronique à transmission des défauts induits par irradiation aux ions et aux électrons dans du zirconium pur et quatre de ses alliages,” 1987.

[7] N. Gharbi, “Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose,” 2015.

[8] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, “SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010),” *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 268, no. 11–12, pp. 1818–1823, Jun. 2010.

[9] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. A. Garner, “On the use of SRIM for computing radiation damage exposure,” *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 310, pp. 75–80, Sep. 2013.

[10] “ASTM E521-96, Standart Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation, ASTM International, West Conshohocken, PA, 1996.”

[11] R. Espiau de Lamaestre, H. Béa, H. Bernas, J. Belloni, and J. L. Marignier, “Irradiation-induced Ag nanocluster nucleation in silicate glasses: Analogy with photography,” *Phys. Rev. B*, vol. 76, no. 20, Nov. 2007.

[12] R. Espiau de Lamaestre and H. Bernas, “Ion beam-induced quantum dot synthesis in glass,” *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 257, no. 1–2, pp. 1–5, Apr. 2007.

[13] C. Hellio, C. H. de Novion, and L. Boulanger, “Influence of alloying elements on the dislocation loops created by Zr+ ion or by electron irradiation in α-zirconium,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 368–378, Oct. 1988.

[14] H. Nakamichi, C. Kinoshita, K. Yasuda, and S. Fukada, “Formation and Growth Process of Dislocation Loops in Zircaloys under Electron Irradiation,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 34, no. 11, pp. 1079–1086, Nov. 1997.

[15] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, “Anisotropic distribution of dislocation loops in HVEM-irradiated Zr,” *Philos. Mag. A*, vol. 49, no. 5, pp. 613–624, Nov. 1984.

[16] M. Griffiths, R. C. Styles, C. H. Woo, F. Phillipp, and W. Frank, “Study of point defect mobilities in zirconium during electron irradiation in a high-voltage electron microscope,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 208, no. 3, pp. 324–334, Feb. 1994.

[17] M. Kiritani and H. Takata, “Dynamic studies of defect mobility using high voltage electron microscopy,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 69–70, pp. 277–309, Feb. 1978.

[18] M. Kiritani, N. Yoshida, H. Takata, and Y. Maehara, “Growth of Interstitial Type Dislocation Loops and Vacancy Mobility in Electron Irradiated Metals,” *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 38, no. 6, pp. 1677–1686, Jun. 1975.

[19] F. Gao, D. J. Bacon, A. F. Calder, P. E. J. Flewitt, and T. A. Lewis, “Computer simulation study of cascade overlap effects in α-iron,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 230, no. 1, pp. 47–56, May 1996.

[20] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, “Electron damage in zirconium I,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, no. 2–3, pp. 313–322, Apr. 1983.

[21] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium II," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, no. 2–3, pp. 323–330, Apr. 1983.
[22] A. Jostsons, P. M. Kelly, and R. G. Blake, "The nature of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, no. 3, pp. 236–256, May 1977.
[23] P. M. Kelly and R. G. Blake, "The characterization of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *Philos. Mag.*, vol. 28, no. 2, pp. 415–426, Aug. 1973.
[24] D. O. Northwood *et al.*, "Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys — an international 'round-robin' experiment," *J. Nucl. Mater.*, vol. 79, no. 2, pp. 379–394, Feb. 1979.
[25] G. J. C. Carpenter and J. F. Watters, "A study of electron irradiation damage in Zirconium using a high voltage electron microscope," *J. Nucl. Mater.*, vol. 96, no. 3, pp. 213–226, Feb. 1981.
[26] D. M. Maher and B. L. Eyre, "Neutron irradiation damage in molybdenum," *Philos. Mag.*, vol. 23, no. 182, pp. 409–438, Feb. 1971.
[27] H. Föll and M. Wilkens, "A simple method for the analysis of dislocation loops by means of the inside-outside contrast on transmission electron micrographs," *Phys. Status Solidi A*, vol. 31, no. 2, pp. 519–524, Oct. 1975.
[28] M. H. Loretto and R. E. Smallman, *Defect analysis in electron microscopy*. London; New York: Chapman and Hall ; Wiley : Distributed by Halstead Press, 1975.
[29] J. Drouet, "Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation," Université de Toulouse, 2014.
[30] M. Griffiths, J. White, R. E. Smallman, M. H. Loretto, and I. P. Jones, "Asymmetric ±g contrast in oxidised Zr and Ti," presented at the Proc. 10th Int. Cong. on Electron Microscopy, Hamburg, 1982, p. 105.
[31] S. N. Buckley, R. Bullough, and M. R. Hayns, "The direct observation of irradiation damage in zirconium and its alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 89, no. 2–3, pp. 283–295, Apr. 1980.
[32] M. Griffiths, "Microstructure evolution in h.c.p. metals during irradiation," *Philos. Mag. A*, vol. 63, no. 5, pp. 835–847, May 1991.
[33] F. Onimus and J. L. Béchade, "Radiation Effects in Zirconium Alloys," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 1–31.
[34] M. Griffiths, "A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 190–218, Oct. 1988.
[35] F. Christien and A. Barbu, "Effect of self-interstitial diffusion anisotropy in electron-irradiated zirconium: A cluster dynamics modeling," *J. Nucl. Mater.*, vol. 346, no. 2–3, pp. 272–281, Nov. 2005.
[36] C. H. Woo, "Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: Effects of anisotropic diffusion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 237–256, Oct. 1988.
[37] G. D. Samolyuk, A. V. Barashev, S. I. Golubov, Y. N. Osetsky, and R. E. Stoller, "Analysis of the anisotropy of point defect diffusion in hcp Zr," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 173–180, Oct. 2014.
[38] C. H. Woo, "Rate theory analysis of radiation damage effects near surfaces in hexagonal metals," *Philos. Mag. A*, vol. 63, no. 5, pp. 915–923, May 1991

Chapitre III. Mécanismes de la déformation plastique après irradiation

Objectif

Au niveau macroscopique, l'irradiation neutronique entraîne un durcissement des alliages de zirconium ainsi qu'une diminution de leur ductilité. Ces évolutions macroscopiques sont dues à la formation des boucles de dislocation et à leur interaction avec les dislocations mobiles. Au vue de l'étude bibliographique, les objectifs suivants ont été définis dans le cas de l'étude du Zy-4:

- Quels sont les systèmes de glissement activés lors des essais de traction *in-situ* ?

- Quelles sont les interactions responsables du durcissement d'irradiation ?

- Quelles sont les mécanismes d'interaction pouvant contribuer à la canalisation ?

Sommaire

I. Protocole expérimental 94

I.1. Essais de traction *in-situ* au MET 94

I.2. Optimisation des défauts créés par l'irradiation aux ions des éprouvettes 96

II. Analyse des systèmes de glissement 97

II.1. Méthode de détermination des systèmes de glissement des dislocations 97

II.2. Systèmes de glissement observés lors des essais de traction *in-situ* 100

III. Observation des cas d'interactions dislocations-boucles 112

III.1. Ancrage des dislocations sur les boucles de dislocation 113

III.2. Absorption des boucles par les dislocations 122

IV. Occurrence des interactions dislocation-boucle 128

Synthèse du chapitre 131

Références bibliographiques 132

I. Protocole expérimental

I.1. Essais de traction *in-situ* au MET

I.1.1. Réalisation des essais de traction *in-situ* en MET

La réalisation d'essais de traction *in-situ* en MET permet d'observer et d'étudier les mécanismes de la déformation plastique induite par le glissement des dislocations. Ces essais ont été effectués à température ambiante au MET 200 keV FEI-Tecnaï du laboratoire du SRMP (CEA de Saclay), et à haute température (entre 350 et 500°C) au MET 200 keV JEOL 2010 du laboratoire du CEMES-CNRS (Toulouse). Les éprouvettes sont fixées sur les porte-objets de traction, comme illustré sur la Figure III-1, où l'éprouvette est positionnée sur le porte objet de traction à température ambiante. Un mors mobile permet d'appliquer une contrainte de traction à l'éprouvette. Des incréments de déplacement sont appliqués au cours de l'essai, et les observations du glissement des dislocations sont réalisées pendant la relaxation de la contrainte. Le porte-objet de traction à haute température utilisé au CEMES-CNRS est également équipé d'un four, composé d'une résistance chauffante et d'écrans permettant d'obtenir une température homogène autour de l'éprouvette. Des caches métalliques sont de plus installés sur le porte-objet, au-dessus et en dessous de l'éprouvette, afin de minimiser les pertes de chaleur.

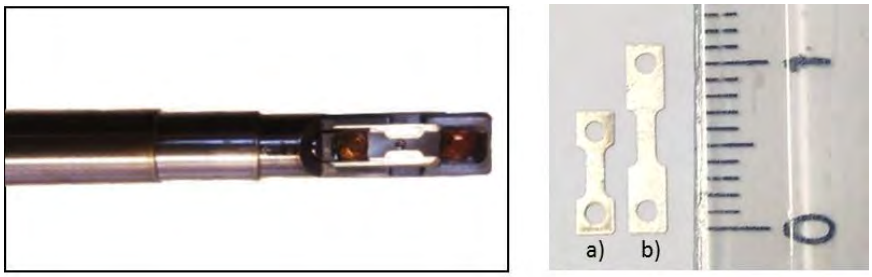


Figure III-1. Porte objet de traction et éprouvettes de traction *in-situ* a) pour les essais à haute température (longueur 7,5 mm) b) pour les essais à température ambiante (longueur 11,5 mm).

Ces deux porte-objets « simple-tilt » permettent uniquement une rotation autour de l'axe de traction. Sur les illustrations des cas de glissement observés lors de ces essais, données dans la suite de ce chapitre, l'axe de traction est orienté à la verticale sur les images. Ces différentes séquences d'images proviennent des enregistrements vidéo effectués lors des essais, à 25 images par seconde.

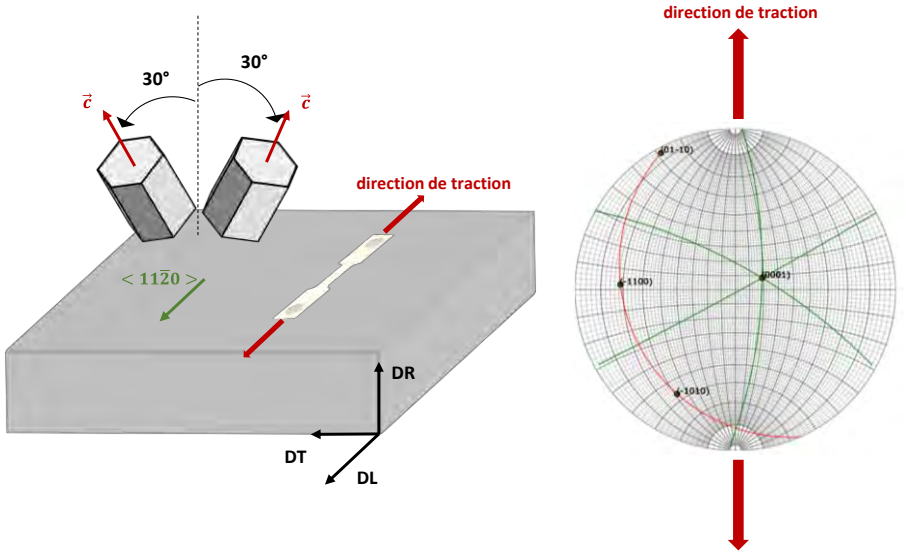
I.1.2. Caractéristiques des éprouvettes de traction

Des éprouvettes de deux longueurs ont été prélevées, pour des raisons de compatibilité avec chacun des porte-objets utilisés, l'espace entre les mors étant différents (Figure III-1).

Les essais de traction et de pression interne réalisés sur échantillons massifs après irradiation aux neutrons par Onimus [1], ont montré la présence préférentielle d'un mécanisme de canalisation dans le plan de base, et dans certains cas dans les plans prismatiques et pyramidaux, impliquant l'existence de nombreuses réactions entre les dislocations et les boucles induites par l'irradiation (Chapitre I,

§III.2). Afin de faciliter l'observation de ces réactions, les éprouvettes ont été prélevées pour permettre l'activation principale du glissement dans ces systèmes.

Les éprouvettes ont été prélevées dans la tôle de Zy-4 recristallisée de 0,4 mm d'épaisseur, dans le plan (DL-DT), avec la direction de traction parallèle à la direction longitudinale DL (Figure III-2). Pour rappel, la texture des tôles de Zy-4 recristallisées est caractérisée par l'inclinaison des axes <c> de 20 à 30° autour de la normale à la lame. Un cas d'orientation théorique est représenté par la projection stéréographique, avec un axe <c> incliné à 20° par rapport à la normale à la lame (Figure III-2). Le calcul des facteurs de Schmid des différents systèmes de glissement <a> montrent des systèmes de glissement prismatique, et pyramidaux où le facteur de Schmid est supérieur à 0,3, laissant supposer une activation préférentielle de ces systèmes.



a) b)

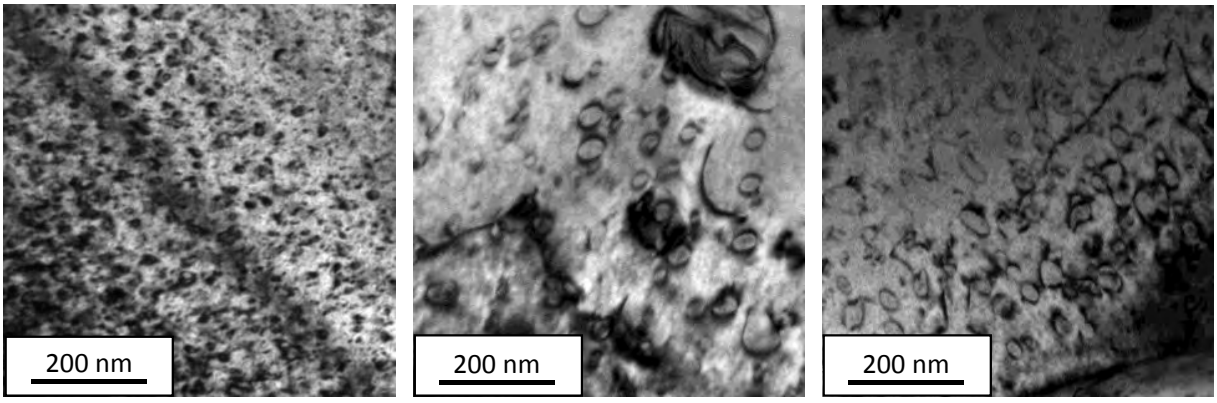
Système de glissement	Plan de glissement	Facteur de Schmid
Basal <a>	(0001)	Entre 0,08 et 0,15
Prismatique <a>	$(\bar{1}100)$	0
	$(\bar{1}010)$	**0,42**
	$(01\bar{1}0)$	**0,42**
Pyramidal <a>	$(0\bar{1}11)$	0,33
	$(\bar{1}011)$	0,33
	$(\bar{1}101)$	0
	$(01\bar{1}1)$	**0,41**
	$(10\bar{1}1)$	**0,41**
	$(1\bar{1}01)$	0,08

c)

Figure III-2. a) sens de prélèvement des éprouvettes de traction *in-situ* dans la tôle recristallisée b) Projection stéréographique théorique donnant l'orientation du grain c) Facteur de Schmid des systèmes de glissement.

I.2. Optimisation des défauts créés par l'irradiation aux ions des éprouvettes

Afin de maximiser la probabilité d'observation d'interactions dislocation-boucle lors des essais de traction *in-situ*, une optimisation de la microstructure après irradiation est nécessaire. Pour cela, des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV ont été réalisées sous trois conditions (température, fluence) sur l'accélérateur ARAMIS du CSNSM d'Orsay : 400°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} (soit, d'après les calculs réalisés avec le logiciel SRIM, 0,5 dpa), 450°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} et 450°C et $2{,}4.10^{18}$ ions.m^{-2} (soit 1,4 dpa). Le détail des irradiations ainsi que les caractéristiques des boucles obtenues suite à ces trois conditions d'irradiation ont été présentées au Chapitre II. Un rappel des microstructures obtenues est présenté ci-dessous (Figure III-3). La microstructure irradiée à 400°C jusqu'à une fluence de 8.10^{17} ions.m^{-2} présente des boucles de petite taille, avec un diamètre moyen de 13 nm, et en densité importante de $3{,}2.10^{21}$ m^{-3}. Cette petite taille de boucles et cette forte densité compliquent l'observation précise des interactions dislocation-boucle. En effet, un plus grand diamètre des boucles permet une surface possible d'interaction avec les dislocations plus importante. Une densité volumique des boucles importante permet également d'augmenter la probabilité d'interactions entre les dislocations et les boucles. Cependant, lorsque la densité volumique est trop importante, la microstructure après irradiation présente de forts contrastes pouvant rendre difficile les observations des réactions individuelles (Figure III-3 a)). Deux autres campagnes d'irradiation ont ainsi été réalisées à plus haute température, et dans un cas, à plus forte fluence, afin de permettre une croissance suffisante du diamètre des boucles et une diminution suffisante de leur densité volumique. Les boucles obtenues après ces irradiations à 450°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} et 450°C et $2{,}4.10^{18}$ ions.m^{-2} ont un diamètre moyen d'une trentaine de nm et une densité volumique d'environ 6.10^{20} m^{-3}. Les éprouvettes présentant ces deux microstructures favorables ont été préférentiellement utilisées lors des essais de traction *in-situ*. Après irradiation, les éprouvettes sont percées à l'aide d'un polissage électrolytique dont les étapes sont décrites précisément au Chapitre II.



a) b) c)

Figure III-3. Microstructures obtenues après irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV d'éprouvettes de Zy-4 recristallisé a) à 400°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} b) à 450°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} c) 450°C à $2{,}4.10^{18}$ ions.m^{-2}.

II. Analyse des systèmes de glissement

II.1. Méthode de détermination des systèmes de glissement des dislocations

II.1.1. Détermination du plan de glissement

Lors de leur glissement, les dislocations laissent sur leur passage deux traces correspondant à l'émergence des segments de la dislocation à la surface de la lame. Ces lignes de glissement sont représentatives de l'intersection entre la surface et le plan de glissement de la dislocation. Une première méthode de détermination du plan de glissement repose donc sur le report de l'orientation des traces sur la projection stéréographique, comme illustré en Figure III-4 dans le cas d'un angle de tilt nul. Dans ce cas précis, la surface de la lame correspond au grand cercle de la projection stéréographique.

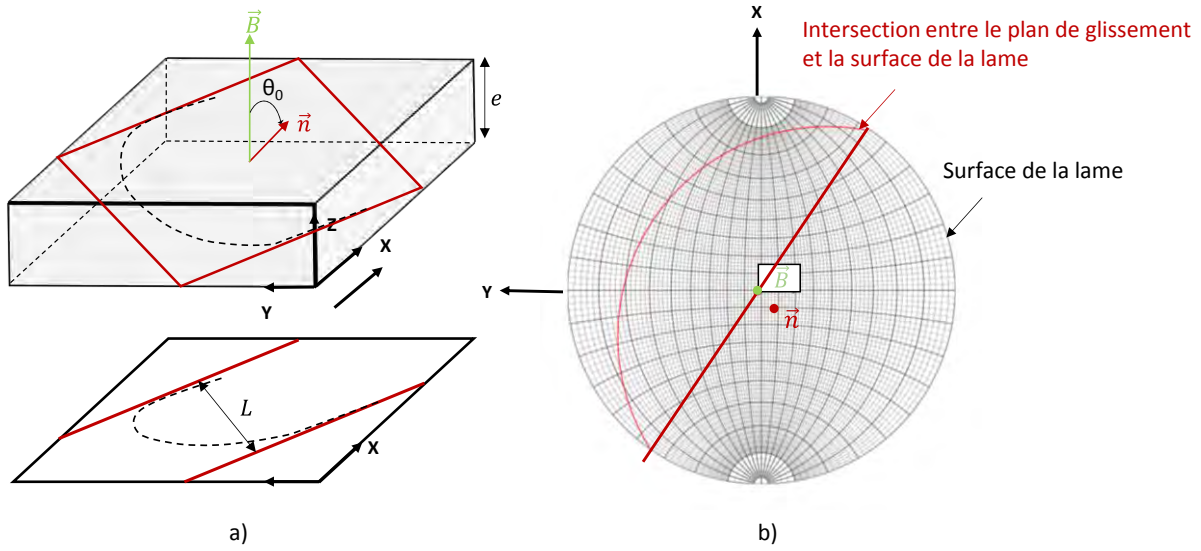


Figure III-4. Méthode de détermination du plan de glissement à tilt nul a)Projection des traces de glissement sur l'écran du MET b) Report de la direction des traces de glissement sur la projection stéréographique.

Dans certains cas, l'orientation des traces peut correspondre à plusieurs plans de glissement. Afin de lever l'ambiguïté, il est alors possible d'observer l'évolution de la distance entre les traces de la dislocation pour différents angles de tilt et de la comparer à l'inclinaison des plans. Dans le cas où cette méthode n'a pas pu être réalisée lors des expériences, une seconde méthode de détermination est possible grâce à la mesure de la largeur apparente entre les traces de glissement L_α, projetée sur l'écran d'observation du MET à un tilt donné. Dans le cas où l'angle de tilt α est nul, il est possible d'exprimer la largeur L en fonction l'épaisseur de la lame e, et de l'angle θ_0 entre la normale à la lame $\vec{B}$ et la normale au plan de glissement $\vec{n}$:

$$L_0 . \tan(\theta_0) = e \qquad \textbf{Eq. III-1}$$

Dans le cas où les traces de glissement des dislocations sont observées à un angle de tilt α différent de 0, la largeur apparente entre les traces est modifiée. Connaissant l'angle entre la normale à la lame et la normale au plan θ_α, il est possible d'exprimer de la même manière que précédemment l'épaisseur apparente à ce tilt d'observation e_α en fonction de L_α :

$$L_\alpha . \tan(\theta_\alpha) = e_\alpha \qquad \textbf{Eq. III-2}$$

Il est alors possible d'exprimer la valeur réelle de l'épaisseur de la lame en fonction de l'épaisseur mesurée au tilt d'observation e_α, en connaissant l'angle de tilt α, et les angles θ_0 et θ_α donnés par la projection stéréographique :

$$\cos(\theta_0) = \frac{L_0}{L} \text{ et } \cos(\theta_\alpha) = \frac{L_\alpha}{L}$$

Avec L, la largeur réelle entre les traces dans le plan de glissement étudié.

$$L_0 = \frac{L_\alpha . \cos(\theta_0)}{\cos(\theta_\alpha)} \qquad \textbf{Eq. III-3}$$

En associant les équations Eq. III-1 et Eq. III-3, on obtient :

$$e = \frac{L_\alpha . cos(\theta_0)}{cos(\theta_\alpha)} . tan\,\theta_0 \qquad \textbf{Eq. III-4}$$

Cette relation permet d'estimer la valeur de l'épaisseur de la lame, que l'on sait comprise entre 100 et 250 nm, et dans le cas où plusieurs plans de glissement sont cohérents avec les traces de la dislocation, de discriminer certains d'entre eux.

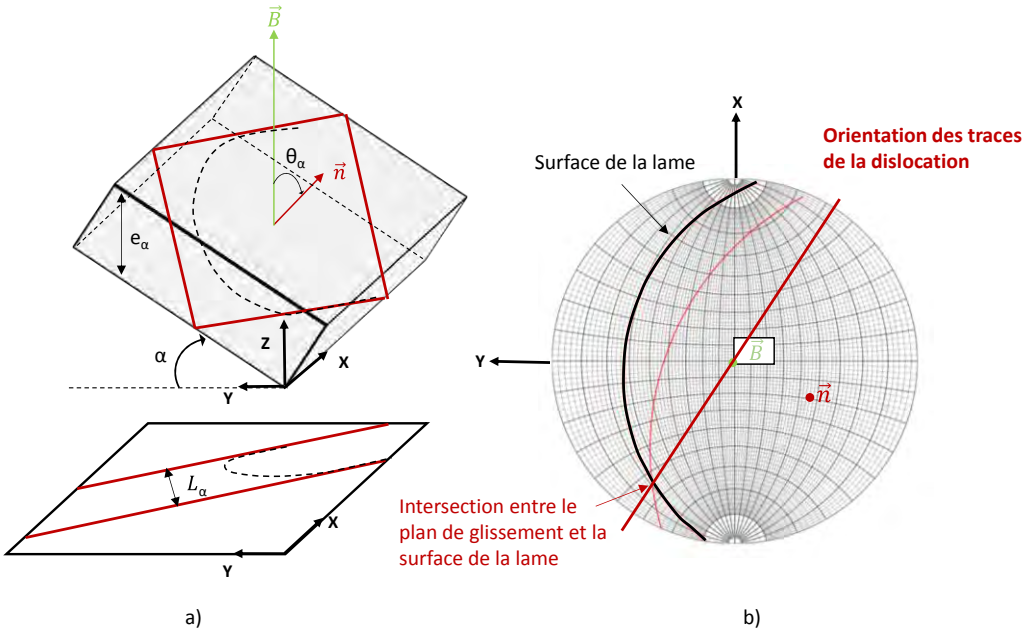
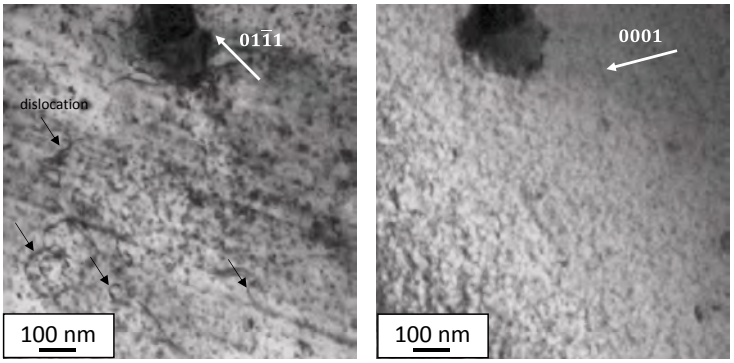


Figure III-5. Méthode de détermination du plan de glissement à un angle de tilt α≠0 a) Projection des traces de glissement sur l'écran du MET b) Report de la direction des traces de glissement sur la projection stéréographique.

II.1.2. Détermination du vecteur de Burgers de la dislocation

La méthode de détermination du vecteur de Burgers des dislocations repose sur le critère d'extinction. En raison des conditions de réalisation des expériences *in-situ* (dynamique des dislocations, porte-objet simple tilt), les extinctions permettant de s'assurer du type de vecteur de Burgers de la dislocation (<a> ou <c+a>) n'ont pas pu être effectuées de manière systématique. D'après la hiérarchisation qualitative des cissions critiques (Eq. I-5), le glissement des dislocations de vecteur de Burgers de type <c+a> dans les plans pyramidaux est plus difficile à activer que le glissement des dislocations de vecteur de Burgers <a> dans les plans prismatiques, pyramidaux et basal. Dans le cadre des expériences de traction *in-situ*, il est donc possible de supposer que les dislocations observées seront principalement des dislocations ayant un vecteur de Burgers de type <a>. De plus, certains des essais analysés confirment cette supposition comme illustré à la Figure III-6, lors de la traction d'une éprouvette à 350°C. Dans ce grain, plusieurs familles de glissement ont été analysées dans les plans prismatiques et pyramidaux de première espèce. La Figure III-6 a) illustre le grain dans le cas où le vecteur de diffraction est $\vec{g}$=$01\bar{1}1$, qui met en contraste 2/3 des familles de dislocations ayant un vecteur de Burgers de type <a>= $\frac{1}{3} < 11\bar{2}0 >$, ainsi que les dislocations ayant un vecteur de Burgers de type <c+a>=$\frac{1}{3} < 11\bar{2}3 >$. Le vecteur de diffraction de la Figure III-6 b) est $\vec{g}$=0001, qui éteint les dislocations ayant un vecteur de Burgers de type <a> et met en contraste les dislocations ayant un vecteur de Burgers de type <c+a>. Aucune trace n'est ici visible, prouvant que le glissement dans les systèmes définis par un vecteur de type <c+a> n'est pas activé .



a) b)

Figure III-6. Détermination du type de vecteur de Burgers des dislocations a) $\vec{g}$=$\mathbf{01\bar{1}1}$ b) $\vec{g}$=0001.

II.2. Systèmes de glissement observés lors des essais de traction *in-situ*

L'activation de trois systèmes de glissement principaux a été observée lors des essais de traction *in-situ* à température ambiante et à haute température : le système prismatique <a>, le système pyramidal de première espèce <a> et le système basal <a>. L'analyse des différents systèmes de glissement observés est présentée dans la suite de cette partie. Un essai de traction a également été réalisé à température ambiante sur une éprouvette non irradiée. L'étude du glissement des dislocations dans le cas du Zy-4 non irradié permet de s'affranchir des contrastes importants engendrés par la présence des boucles de dislocation, ainsi que des possibles réactions dislocation-boucle, rendant l'analyse des systèmes de glissement plus « facile ». Les résultats obtenus lors de cet essai viendront compléter les observations faites lors des essais de traction *in-situ* sur éprouvettes irradiées. Les méthodes de détermination des plans de glissement présentées précédemment seront illustrées ici pour certains des cas étudiés.

II.2.1. Glissement <a> dans les plans prismatiques

II.2.1.1. Caractéristiques du glissement dans les plans prismatiques

Dans le cas de l'essai sur l'éprouvette non-irradiée, tractionnée à température ambiante, le glissement dans deux plans prismatiques a été observé, et les traces associées sont très nettes et droites. La Figure III-7 a) à d) illustre la méthode de détermination du plan de glissement par étude des traces de glissement à différents tilts pour l'un des deux plans prismatiques. Lors du report des traces aux différents tilts sur la projection stéréographique, plusieurs plans peuvent correspondre : le plan prismatique $(01\bar{1}0)$ en vert, le plan de base (0001) en rouge et deux plans pyramidaux $(01\bar{1}1)$ et $(01\bar{1}\bar{1})$ en bleu. Il est observé que lorsque l'angle de tilt augmente, la largeur apparente entre les traces diminue : pour α=-15, L_α=124 nm et pour α=+26,6, L_α=33 nm. Parmi les plans possibles cités précédemment, seuls deux s'inclinent de façon cohérente avec la variation de L_α : le plan prismatique $(01\bar{1}0)$ et le plan pyramidal $(01\bar{1}1)$. Afin de lever l'ambiguïté entre ces deux plans, une estimation de l'épaisseur de la lame est réalisée (Eq. III-4).

Dans le cas d'un glissement dans le plan prismatique, l'épaisseur estimée pour chacun des tilts est comprise entre 183 et 235 nm, donnant une épaisseur moyenne estimée de 205,6 nm, ce qui est cohérent avec l'épaisseur moyenne de la lame mince généralement comprise entre 100 et 250 nm. Pour le cas du plan pyramidal, les épaisseurs estimées à chacun des tilts sont petites et comprises entre 33 nm et 87,6 nm, donnant une épaisseur moyenne estimée de 63 nm qui n'est pas compatible avec l'épaisseur de la lame mince. La Figure III-7 e) montre l'évolution du cosinus de l'angle θ_α en fonction de la largeur entre traces L_α pour le plan prismatique et le plan pyramidal. Contrairement au plan pyramidal, une régression linéaire de L_α en fonction de $\cos(\theta_\alpha)$ est observée dans le plan prismatique. Les traces de glissement analysées correspondent donc bien à du glissement dans le plan $(01\bar{1}0)$.

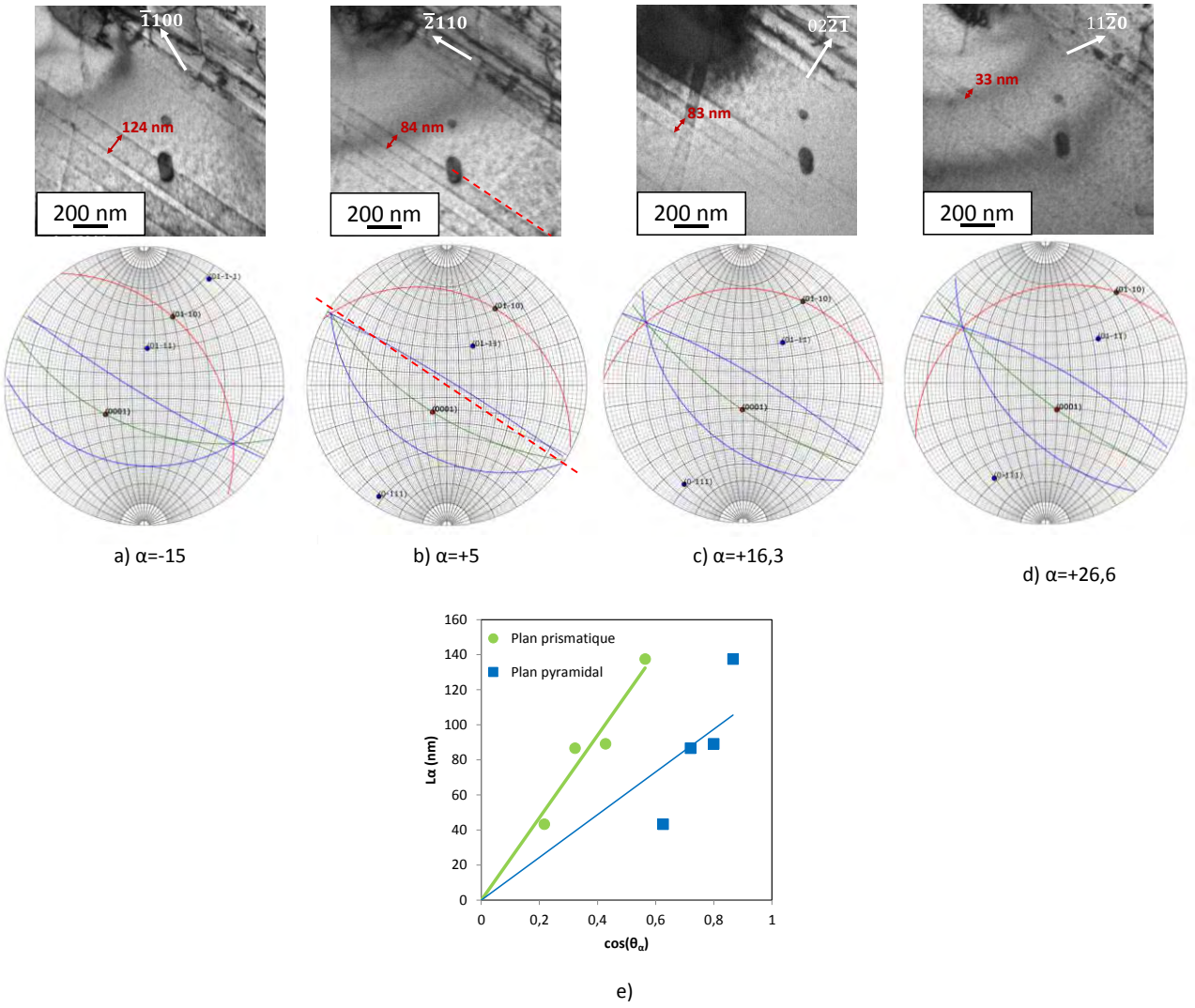
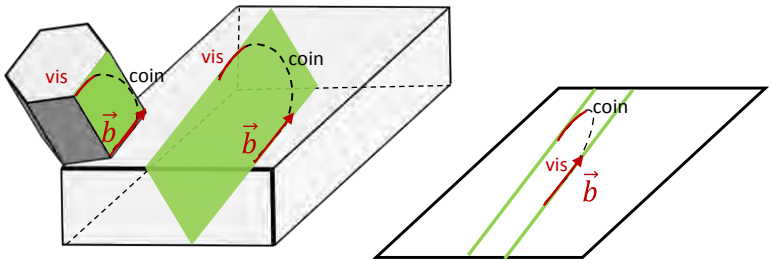


Figure III-7. Identification du plan de glissement par étude de la largeur apparente entre traces en fonction de l'angle de tilt α, essai à température ambiante sur une éprouvette de Zy-4 RXA non irradiée.

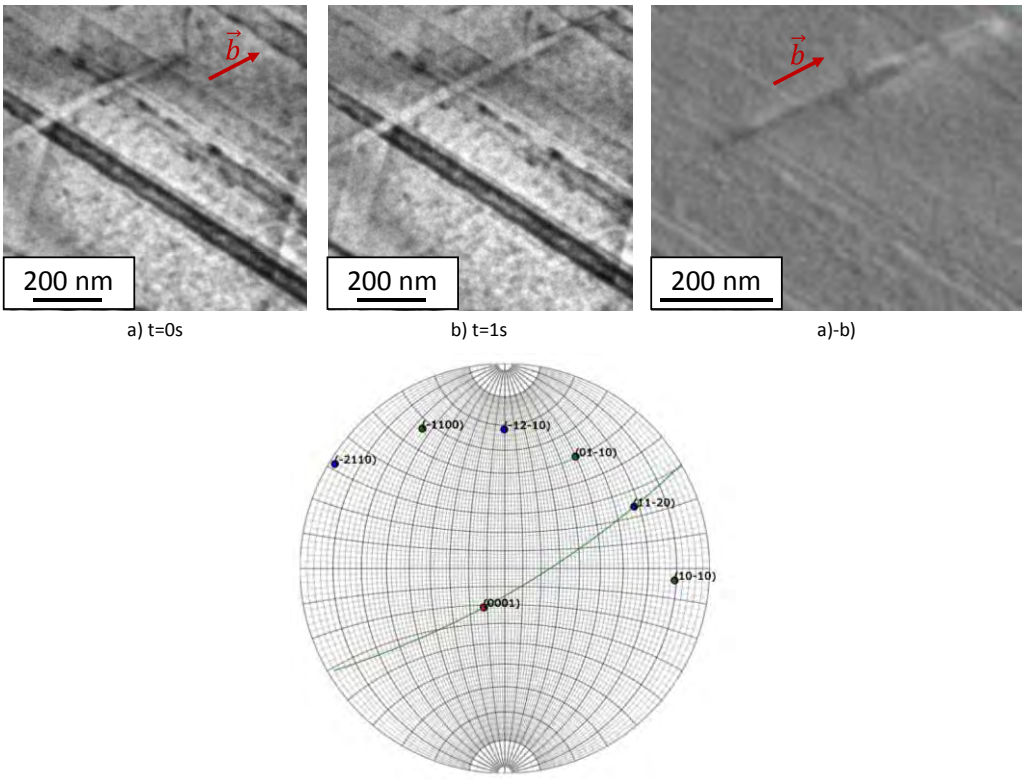
Le glissement prismatique a également été observé lors des essais sur éprouvettes pré-irradiées aux ions, à température ambiante et à haute température. A température ambiante, ce système de glissement est même le seul à avoir été observé. Tout comme lors de l'essai sur l'éprouvette non irradiée, les traces de glissement dans les plans prismatiques sont droites. Cette caractéristique peut être liée à la texture de la tôle recristallisée, où l'axe <c> est incliné de 20 à 30° autour de la normale à la lame, ce qui entraîne des plans prismatiques qui se retrouvent très peu inclinés, avec des dislocations dont le brin dans l'épaisseur tend à être plus de nature coin que vis (Figure III-8). Le glissement dévié de ces dislocations est donc difficilement activable car il nécessite que la dislocation s'allonge dans la lame jusqu'à présenter un caractère purement vis.



a) b)

Figure III-8. Etalement d'une dislocation dans un plan prismatique (a)) et projection sur l'écran du MET (b)).

La vitesse de glissement des dislocations dans les plans prismatiques est, dans la majeure partie des cas, élevée et est estimée à environ plusieurs centaines de nm par seconde. Aucune preuve ne permet de confirmer la présence d'une différence de mobilité entre les dislocations vis et coins dans les plans prismatiques. Dans le cas illustré en Figure III-9, le déplacement de la dislocation se fait par l'avancée de sa partie mixte, inclinée d'environ 30° de la direction vis. La soustraction d'images (a)-b)) permet d'observer en noir la position initiale de la dislocation, et en blanc la position suivante. Il n'est pas observé ici de différence de mobilité entre les parties vis et coins des dislocations prismatiques. Cependant, lors de l'analyse d'échantillons prélevés dans une tôle de de Zy-4 pré-écrouie (Chapitre V), des dislocations rectilignes de caractère majoritairement vis sont observées dans les plans prismatiques. Ces observations laissent donc penser qu'il existe bien une différence de mobilité vis-coin, comme avancé dans la littérature [2].



a) t=0s b) t=1s a)-b)

Projection stéréographique du grain à tilt +5

Figure III-9. Cinétique de glissement dans les plans prismatiques lors d'un essai sur éprouvette non irradiée à température ambiante.

II.2.1.2. Détermination du coefficient de viscosité du glissement prismatique

Lorsqu'une dislocation est immobile, la contrainte résolue appliquée à la dislocation τ s'oppose à la contrainte de tension de ligne τ_l : $\tau = \tau_l$. Dans le cas où le régime est dynamique, la dislocation glisse à une vitesse *v*, et une contrainte supplémentaire, appelée contrainte de friction τ_f, s'oppose également à τ :

$$\tau = \tau_l + \tau_f \qquad \textbf{Eq. III-5}$$

Cette contrainte de friction dépend de différents paramètres tels que le système de glissement et le caractère de la dislocation et sa valeur peut être estimée par :

$$\tau_f = Bv/b \qquad \textbf{Eq. III-6}$$

avec *B* le coefficient de viscosité en MPa.s, *v* la vitesse de glissement de la dislocation et *b* la norme du vecteur de Burgers de la dislocation.

La Figure III-10 illustre un cas de glissement d'une dislocation dans un plan prismatique lors d'un essai de traction à 350°C sur une lame mince pré-irradiée aux ions. L'observation du glissement de la dislocation est effectuée à proximité d'une source de dislocations. Les effets de projections de l'image engendrés par l'inclinaison du plan de glissement par rapport au plan d'observation ont été corrigés, en étirant l'image de façon appropriée. La contrainte de tension de ligne τ_l et la vitesse de glissement v de la dislocation ont été déterminées pour des intervalles de temps de 1 seconde. La contrainte de tension de ligne τ_l peut être déterminée grâce à la courbure de la dislocation, qui est comparée à la forme d'équilibre de la dislocation obtenue à l'aide du logiciel DISDI. Ce logiciel, développé par J. Douin au CEMES-CNRS, permet d'accéder à la configuration d'équilibre d'une dislocation, dans un modèle d'élasticité anisotrope, soumise à une contrainte de ligne donnée et en fonction de son système de glissement. Les coefficients d'élasticité adoptés sont donnés par Fisher et Renken [3] à 350°C : C_{11}=1,278.10^2 GPa, C_{12}=0,793.10^2 GPa, C_{33}=1,543.10^2 GPa, C_{13}=0,658.10^2 GPa, C_{44}=0,276.10^2 GPa. Les contraintes obtenues pour différents stades de glissement de la dislocation sont illustrées en Figure III-10.

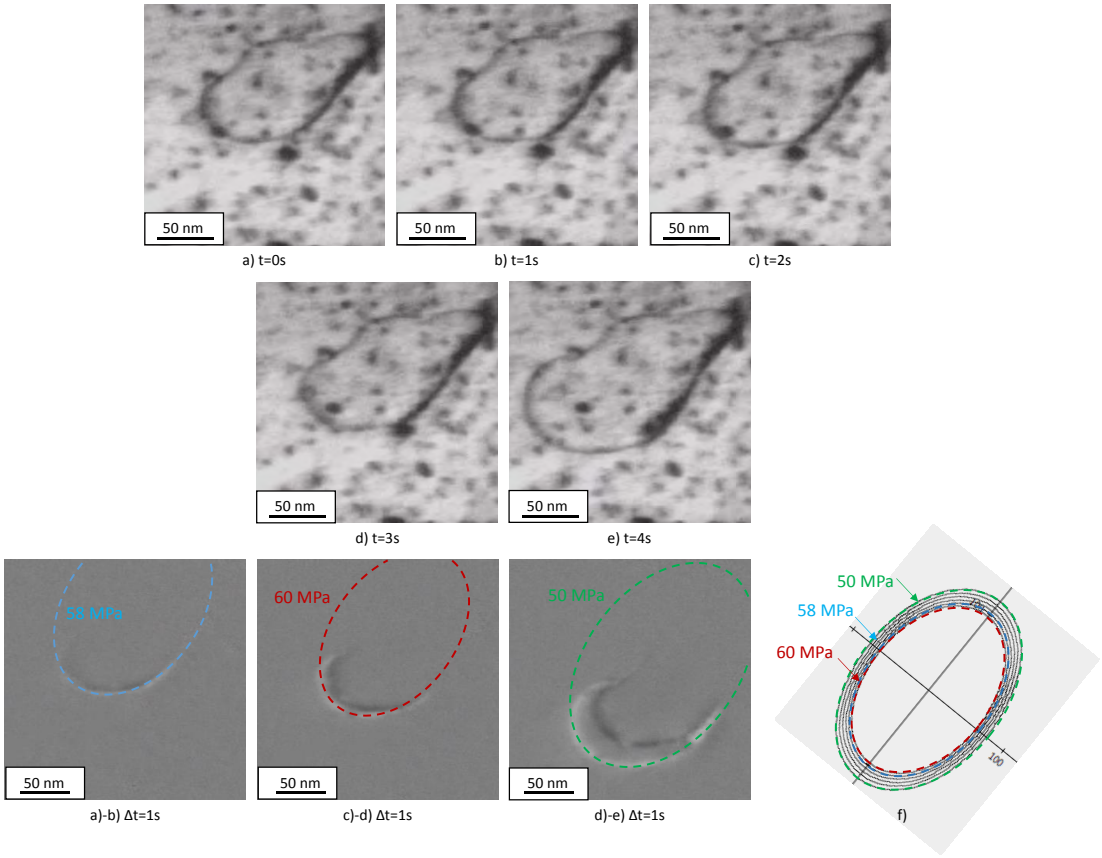


Figure III-10. Détermination du coefficient de viscosité dans le plan prismatique à 350°C. La forme d'équilibre de la dislocation en fonction de la contrainte obtenue à l'aide de DISDI est donnée en f).

L'évolution de la tension de ligne en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation est donnée en Figure III-11. Comme attendu, une relation linéaire est observée, relative aux équations Eq. III-5 et Eq. III-6 : $\tau_l = -Bv/b + \tau$.

L'erreur de mesure considérée sur la contrainte est de ± 2 MPa et de ± 0,1nm.s^{-1} sur la vitesse. Il est alors possible d'obtenir une estimation du coefficient de viscosité *B* qui est ici d'environ 0,17 MPa.s.

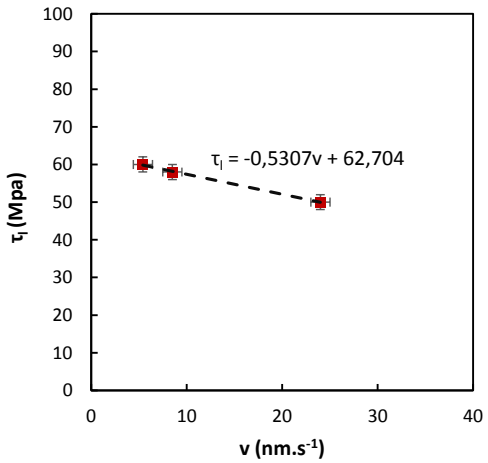


Figure III-11. Evolution de la contrainte de tension de ligne τ_l en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation dans un plan prismatique à 350°C.

Le coefficient de viscosité des plans de glissement est un paramètre important, pris en compte dans les lois de mobilités linéaires de type visqueuses des dislocations, et qui permet une meilleure estimation des contraintes de friction. Il sera notamment ré-utilisé dans le cadre de cette thèse lors des simulations en Dynamique des Dislocations (Chapitre IV). Ce coefficient ne peut être mesuré expérimentalement que sous certaines conditions lors des essais de traction *in-situ,* quand une évolution de la vitesse de glissement des dislocations est observée avec la contrainte.

Une seconde estimation du coefficient de viscosité a été réalisée pour une dislocation glissant dans un plan prismatique à 350°C, et également à proximité d'une source de dislocations (Figure III-12). La dislocation observée est ancrée sur une petite boucle ce qui entraîne le blocage du glissement du brin de gauche. Le brin de droite continue de glisser autour du point d'ancrage. Deux mesures de vitesses ont été réalisées, pour une période où la contrainte résolue appliquée peut être supposée constante ($\Delta\tau = 0$). La variation de la contrainte de tension de ligne évolue en fonction de la vitesse de glissement et s'exprime : $\Delta\tau_l = -\Delta\tau_f = -B\Delta v/b$. Les vitesses de glissement obtenues sont respectivement de 13,5 nm.s^{-1} pour une contrainte de 50 MPa et de 21,3 nm.s^{-1} pour une contrainte de 44 MPa. La valeur du coefficient de viscosité obtenue est de $B = b\Delta\tau_l/\Delta v = 0{,}25$ MPa.s. Si l'on prend en compte les erreurs de mesure sur la tension de ligne et la vitesse de glissement, B est compris dans l'intervalle [0,07 ; 0,6] MPa.s.

Ces mesures ponctuelles permettent d'obtenir une estimation de la valeur des coefficients de viscosité dans les plans prismatiques à 350°C. Des mesures de la vitesse des dislocations en fonction de la contrainte de tension de ligne ont également été réalisées par Caillard et al. [4] lors d'essais de glissement thermiquement activé dans du M5 non irradié. L'étude des résultats obtenus par Caillard et al. [4] montre un coefficient de viscosité B d'environ 0,3 MPa.s pour un glissement dans le système prismatique à 400°C. Drouet [5] confirme ces résultats en trouvant un coefficient de viscosité du plan prismatique d'environ 0,15 MPa.s à 500°C lors d'essais de traction sur des éprouvettes de Zy-4 irradiées.

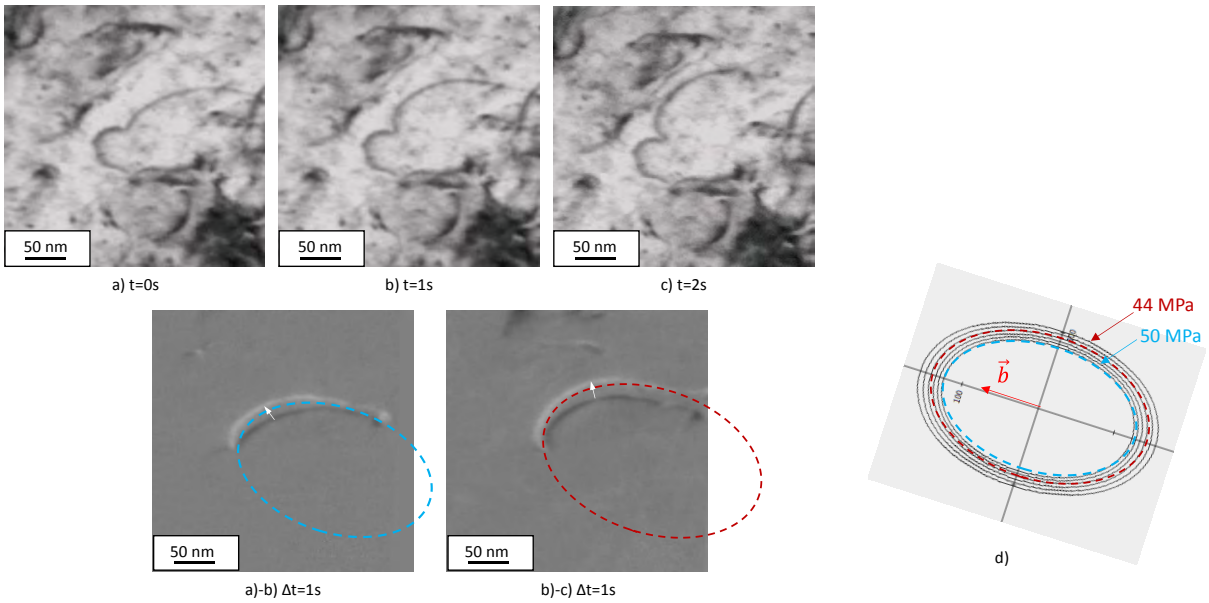


Figure III-12. Détermination du coefficient de viscosité dans le plan prismatique à 350°C. La forme d'équilibre de la dislocation en fonction de la contrainte obtenue à l'aide de DISDI est donnée en d).

II.2.2. Glissement <a> dans le plan pyramidal de première espèce

II.2.2.1. Glissement dans les plans pyramidaux

Des preuves de l'activation du système de glissement pyramidal <a> ont pu être mises en évidence lors de ce travail de thèse dans le cas de l'essai à température ambiante sur la lame de Zy-4 non irradiée, mais également lors des essais post-irradiation à haute température (entre 350 et 500°C). Pour ces températures, ce système semblerait même être, avec le système prismatique, préférentiellement activé. Des essais complémentaires à haute température sur des éprouvettes non irradiées permettraient de confirmer cette observation.

Un cas de glissement pyramidal observé lors des essais de traction à température ambiante sur une éprouvette non irradiée est illustré en Figure III-13. Ce cas a été observé dans le même grain que celui des Figure III-7 et Figure III-9 illustrant le glissement dans les plans prismatiques. Les traces des dislocations (en pointillés rouges sur la Figure III-13) semblent correspondre exactement au plan pyramidal $(10\bar{1}1)$, en bleu. Afin de lever toute ambiguïté avec un possible glissement prismatique dans le plan $(10\bar{1}0)$ en vert, une analyse des plans basée sur la mesure de l'épaisseur et sur l'évolution de la largeur entre traces de la dislocation en fonction de l'angle de tilt a été réalisée. L'épaisseur de lame estimée dans le cas où le glissement serait pyramidal est de 174 nm et de 400 nm si le glissement était prismatique. De plus, le graphique qui présente l'évolution de L_α en fonction de $\cos(\theta_\alpha)$ confirme bien une la validité du plan pyramidal comme plan de glissement.

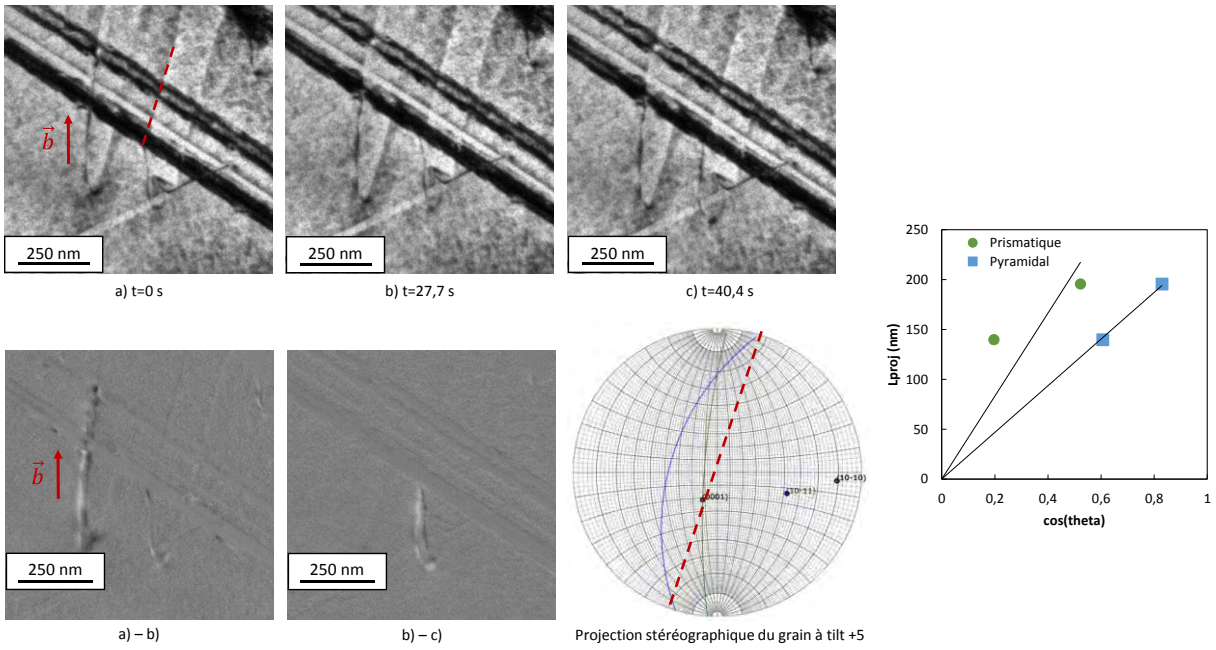


Figure III-13. a)-c) Identification du glissement dans le système pyramidal <a> lors d'un essai de traction *in-situ* à température ambiante sur du Zy-4 non irradié d) Evolution de L_α en fonction de $\cos(\theta_\alpha)$.

Les dislocations glissant dans les systèmes pyramidaux de première espèce se présentent sous la forme de brins très peu courbés. Les traces de glissement observées dans les systèmes de glissement pyramidaux semblent moins nettes et, dans certains cas, moins droites que dans le cas du glissement prismatique. La vitesse de glissement semblent également plus lente, d'environ une dizaine de $nm.s^{-1}$. Le glissement des dislocations est saccadé et semble s'effectuer par le déplacement des parties vis de

la dislocation (Figure III-13). D'après les soustractions d'images, le glissement de la dislocation se produit en effet, à température ambiante, grâce à l'avancée de la partie vis de la dislocation. Ce mécanisme de glissement est cohérent avec le mécanisme de Peierls où la dislocation franchie les vallées par la formation de doubles décrochements coins (ou « kinks ») qui se propagent (Chapitre I §I.3.1.2.1).

Lors des essais de traction réalisés à haute température sur des éprouvettes pré-irradiées aux ions, le glissement des dislocations dans le système pyramidal <a> a également pu être identifié, comme illustré en Figure III-14. Bien que l'observation des traces de la dislocation soit difficile, il est possible de les reconstituer par soustraction d'images (Figure III-14 a)-b)). Les traces inférieures de la dislocation correspondent exactement aux traces du plan pyramidal $(10\bar{1}\bar{1})$, et les traces supérieures sont également proches de ce plan. De plus l'épaisseur mesurée pour un glissement de la dislocation dans ce plan est de 300 nm contre 1000 nm si la dislocation glissait dans le plan prismatique $(10\bar{1}0)$. L'épaisseur de 300 nm, bien qu'élevée, est plus cohérente avec les conditions d'observation en lames minces.

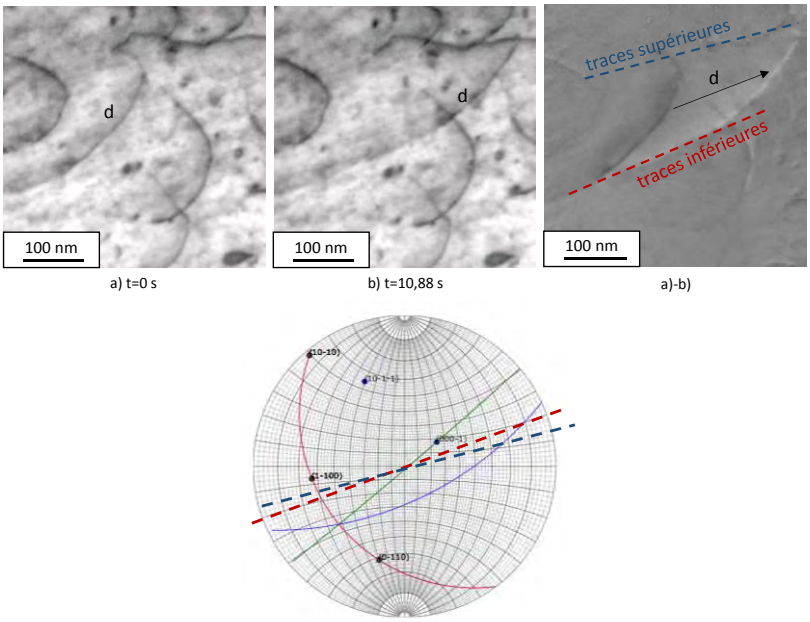


Figure III-14. Preuve de l'activation du glissement pyramidal lors des essais de traction *in-situ* à haute température sur éprouvette pré-irradiée.

Lors des essais de traction réalisés à haute température sur éprouvettes irradiées, les dislocations glissant dans des plans pyramidaux semblent avancer grâce à une succession de doubles glissements déviés, ou double « cross-slip », qui entraînent la formation de crans (ou « jogs ») le long de la ligne de dislocation. Ces crans agissent comme points d'ancrage et ralentissent fortement le glissement de la dislocation. Le mouvement de ces crans est cependant possible selon trois mécanismes dépendant de leur taille. Les crans peuvent être soit traînés par les dislocations lorsqu'ils sont de petite taille, soit étirés lorsqu'ils sont de taille moyenne ou encore contournés quand leur taille est importante [6]. Le mécanisme de déplacement des crans majoritairement identifié lors de ces essais, est un mécanisme de traînage des crans. Quelques cas de contournement ont également été observés. La Figure III-15 illustre un cas de double glissement dévié pour une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 400°C.

Le glissement dévié d'une dislocation s'effectue dans un plan qui contient son vecteur de Burgers, soit dans notre cas le plan de base, un plan prismatique ou un second plan pyramidal. Le facteur de Schmid du plan de glissement pyramidal de la dislocation est le plus important et est de 0,46, ce qui explique la forte activation du glissement dans ce plan. Les facteurs de Schmid du plan de base, du plan prismatique et du second plan pyramidal pouvant être impliqués dans le double glissement dévié sont respectivement de 0,13, 0,44 et 0,33. Le plan prismatique et le second plan pyramidal semblent donc plus favorablement orientés par rapport à la contrainte que le plan de base pour permettre le glissement dévié, mais aucune preuve expérimentale ne permet de déterminer avec exactitude le plan de double glissement dévié. Les traces des différents plans sont reportées en Figure III-15 b)-c), avec en noir la trace du plan de glissement pyramidal π_1, en vert la trace du plan prismatique P, en bleu la trace du second plan pyramidal π_2 et en rouge la trace du plan de base B. Le cran créé se déplace le long de la ligne de dislocation, parallèlement à la direction du vecteur de Burgers, puis, lorsqu'il arrive à l'extrémité de la ligne de dislocation, se referme, entraînant la formation d'une boucle de dislocation.

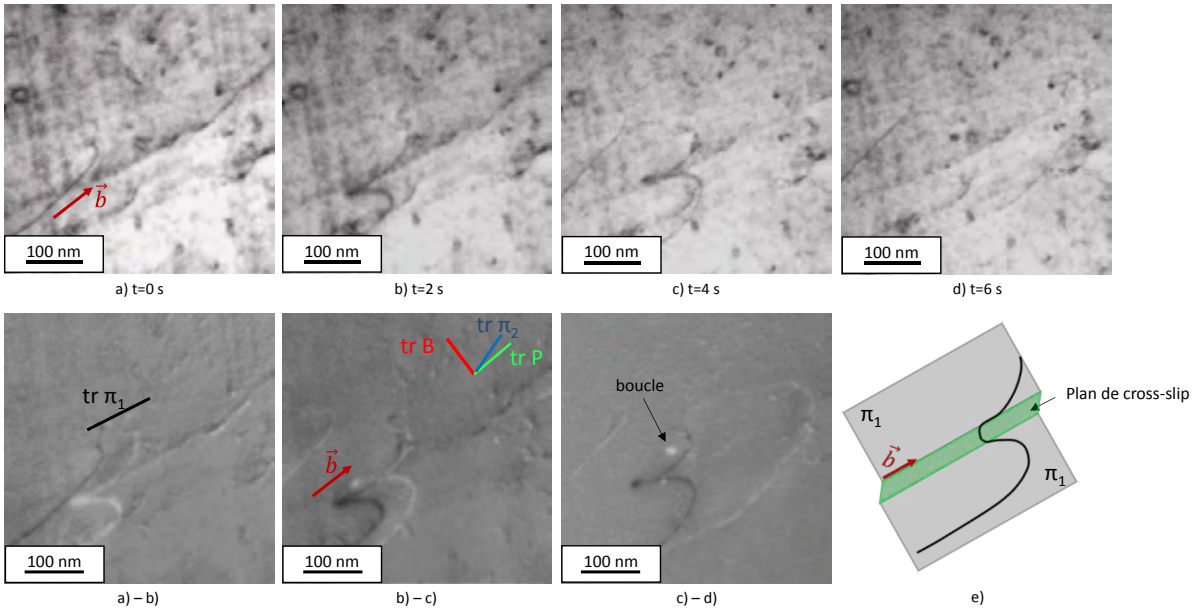


Figure III-15. Glissement des dislocations dans le plan pyramidal par un mécanisme de double glissement dévié lors d'un essai de traction à 400°C sur une éprouvette de Zy-4 pré-irradiée aux ions.

II.2.2.2. Détermination du coefficient de viscosité dans les plans pyramidaux de première espèce

La détermination du coefficient de viscosité dans les plans pyramidaux π_1 est rendue délicate, les lignes de dislocation observées étant peu courbées. Afin d'obtenir un ordre de grandeur de ce coefficient, la mesure a été réalisée lors du double glissement dévié illustré en Figure III-15 où la dislocation se courbe sous l'effet ancrant de ce dernier. L'évolution de la contrainte de ligne en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation est donnée en Figure III-16. Le coefficient de viscosité obtenu est d'environ 0,42 MPa.s à une température de 400°C. L'ordre de grandeur du coefficient de viscosité dans le plan pyramidal est donc similaire à celui dans le plan prismatique pour des températures de 350 et 400°C. Drouet [5] donne également un coefficient de viscosité compris entre 0,1 et 0,8 MPa.s lors d'un glissement dans le plan pyramidal observé à 500°C.

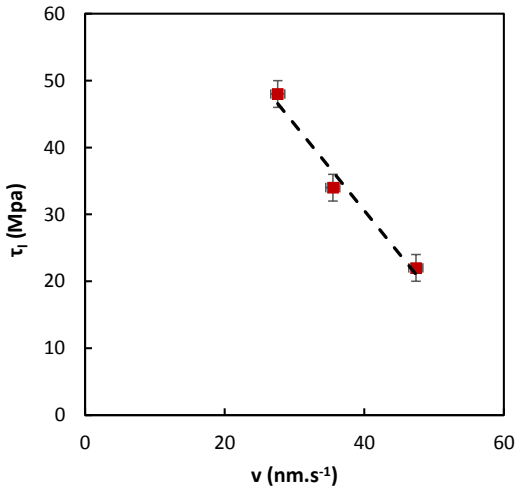


Figure III-16. Evolution de la contrainte de tension de ligne τ_l en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation dans un plan pyramidal à 400°C.

II.2.3. Glissement <a> dans le plan de base

Bien que l'étude d'Onimus [1] ait mis en évidence une activation du glissement préférentielle dans le plan de base après irradiation aux neutrons d'échantillons de Zy-4 massifs, l'observation de ce système est rare lors des essais de traction *in-situ* sur lame mince. En effet, le glissement basal semble favorable uniquement dans le cas où son facteur de Schmid est important face aux facteurs de Schmid des autres systèmes.

Un essai de traction *in-situ* effectué à 500°C a montré une activation du glissement qui semble s'effectuer dans le plan de base (Figure III-17). Pour ce cas précis, l'éprouvette a été prélevée exclusivement dans un tube TREX, dans une orientation favorable à l'activation du glissement basal. L'éprouvette a été prélevée dans un plan incliné de 45° du plan (DL-DT) avec une direction de traction parallèle à la direction <DR-DT>. Cette orientation permet, théoriquement, de maximiser le facteur de Schmid du glissement <a> dans le plan de base et de rendre défavorable le glissement dans les plans prismatiques. Dans le cas de l'expérience réalisée, le facteur de Schmid du glissement <a> observé dans le plan de base est de 0,17 contre 0,06 pour les plans prismatiques et 0,13 à 0,16 pour les plans pyramidaux.

Les caractéristiques du glissement dans le système basal <a> sont similaires à celles observées lors du glissement dans les plans pyramidaux. Un glissement visqueux de dislocations rectilignes à caractère principalement vis a lieu. Les traces de glissement sont également difficiles à appréhender. De nombreux cas de doubles glissements déviés ont également été observés, comme illustré en Figure III-17 d) où les dislocations d_1 et d_2 subissent un double glissement dévié.

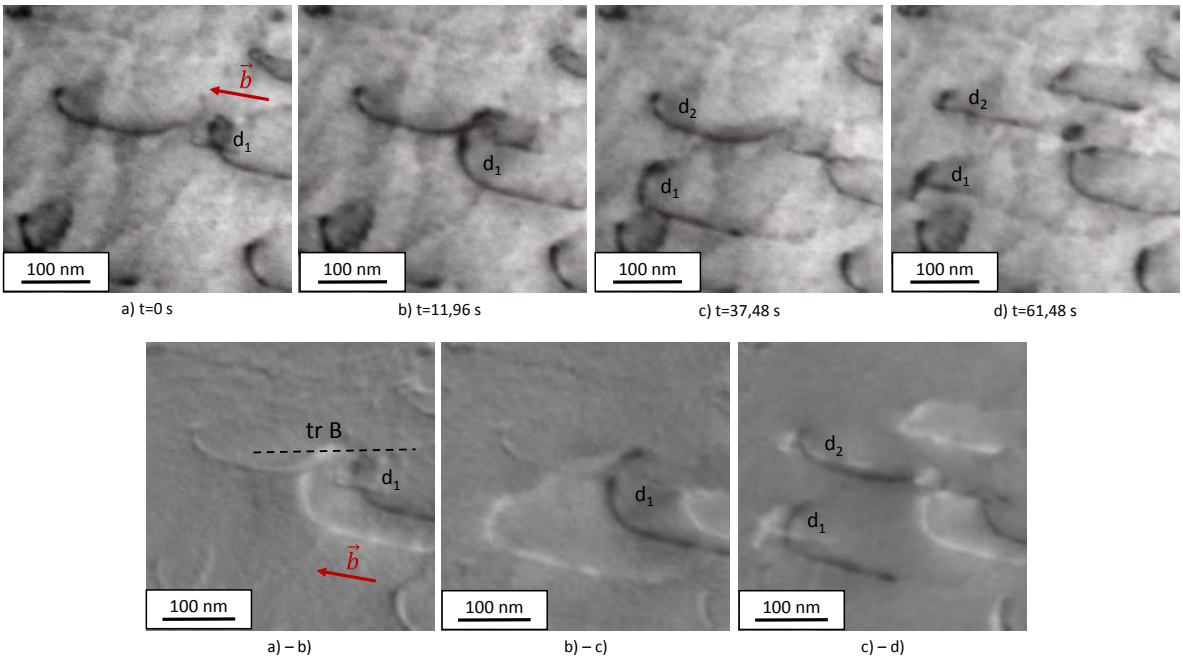


Figure III-17. Glissement des dislocations dans le plan de base lors d'un essai de traction à 500°C.

Un second cas de glissement dans le plan de base a été observé de façon plus précise lors d'un essai de traction *in-situ* effectué à 350°C. Dans ce cas également, bien que l'éprouvette ait été prélevée dans la tôle de Zy-4 recristallisée, l'orientation du grain étudiée est favorable à l'observation du glissement basal. En effet, le facteur de Schmid du système basal <a> est de 0,4, celui du système prismatique de 0,28 et celui du système pyramidal de 0,45. Les dislocations sont rectilignes et de caractère purement vis (Figure III-18). Un mécanisme de franchissement des vallées de Peierls est également envisageable afin d'expliquer la présence de ces longues dislocations vis. Quelques cas de doubles glissements déviés vers des plans prismatiques ou pyramidaux ont également été observés.

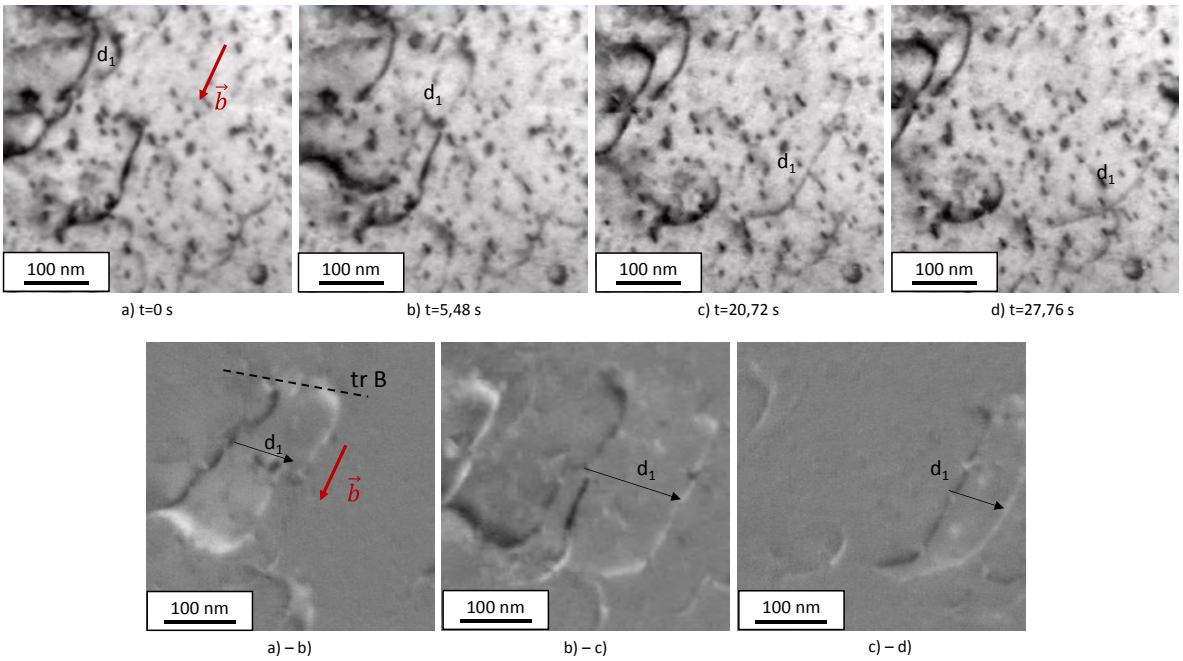


Figure III-18. Glissement des dislocations dans le plan de base lors d'un essai de traction à 350°C.

II.2.4. Discussion sur l'activation des différents systèmes de glissement

Le glissement des dislocations, de vecteur de Burgers de type <a>, a pu être étudié dans différents systèmes. Trois systèmes de glissement principaux ont été mis en évidence dans les alliages de zirconium : le glissement prismatique <a>, le glissement pyramidal <a> et le glissement basal <a>. Les essais de traction *in-situ* réalisés à température ambiante sur du Zy-4 non irradié et à température ambiante et haute température sur du Zy-4 pré-irradié ont démontré que :

- Le glissement prismatique est le système de glissement préférentiellement activé lors des essais réalisés à température ambiante. Le mouvement des dislocations y est généralement très rapide (plusieurs centaines de $nm.s^{-1}$). Aucune preuve de la différence de mobilité entre les parties vis et coins des dislocations n'a été démontrée.

- Le glissement pyramidal a été observé à température ambiante dans le cas du Zy-4 non irradié, et uniquement à haute température dans le cas du Zy-4 irradié. Dans le cas des éprouvettes pré-irradiées aux ions, le glissement pyramidal a été observé lors des essais réalisés entre 350 et 500°C, et semble être, avec le glissement prismatique, le système de glissement principal à ces températures. Le mouvement des dislocations est plus lent que pour le glissement dans les plans prismatiques, et de nombreux cas de doubles glissements déviés vers les plans prismatiques, pyramidaux ou basal ont été observés. Ces résultats montrent que les plans pyramidaux ne sont pas seulement des plans de déviation du glissement prismatique, mais constituent des systèmes de glissement impliqués dans la déformation plastique des alliages de zirconium après irradiation.

- Le glissement dans le plan de base n'a été que rarement observé. Ce système n'est activé que dans les cas où son facteur de Schmid est élevé, et en particulier plus élevé que le facteur de Schmid des systèmes prismatiques. Les dislocations observées sont rectilignes et de caractère principalement vis. Des cas de double glissement dévié ont également été observés.

Une comparaison des vitesses de glissement a pu être effectuée dans le cadre de l'essai sur éprouvette non irradiée à température ambiante, où les deux systèmes de glissement : prismatique et pyramidal, sont activés (Figure III-9 et Figure III-13). Ces mesures de vitesses ont été effectuées dans le plan de glissement des dislocations en réalisant les modifications géométriques nécessaires. Dans le plan prismatique, la vitesse de glissement des parties coins des dislocations varie entre 60 et 800 $nm.s^{-1}$ en fonction des dislocations étudiées. De plus, il est important de noter que ces valeurs ont été relevées sur les dislocations dont le glissement est le plus lent, et donc observable lors de l'enregistrement vidéo. Cependant, pour de nombreux cas, le mouvement des dislocations est trop rapide pour que la vitesse puisse être mesurée. Dans le plan pyramidal, les segments vis des dislocations avancent à une vitesse beaucoup plus lente comprise entre 1 $nm.s^{-1}$ et 13 $nm.s^{-1}$. Bien que le facteur de Schmid du système pyramidal étudié soit légèrement inférieur à celui du système prismatique (respectivement 0,21 et 0,34), ces résultats montrent que, à température ambiante et pour une même contrainte appliquée, la vitesse de glissement dans les plans pyramidaux est au moins 100 fois inférieure à la vitesse de glissement dans les plans prismatiques.
Des mesures de vitesses réalisées dans un grain à 400°C, lors d'un essai sur éprouvette pré-irradiées, montrent que, bien que le glissement prismatique soit toujours plus rapide, l'écart entre les vitesses de glissement dans les plans prismatiques et pyramidaux est moins important. En effet, les vitesses de glissement des dislocations dans les plans prismatiques sont comprises entre 100 et 300 $nm.s^{-1}$. Dans le même grain, les vitesses de glissement dans les plans pyramidaux sont d'environ une centaine de

$nm.s^{-1}$ (quand ce dernier n'est pas ralenti par un mécanisme double glissement dévié). Les coefficients de viscosité ont été mesurés de façon ponctuelle dans les plans prismatiques à 350°C et pyramidaux 400°C et sont estimés comme étant du même ordre de grandeur : environ 0,17 à 0,25 MPa.s pour les plans prismatiques et 0,42 MPa.s pour les plans pyramidaux. Cependant l'étude des vitesses démontrent bien qu'il existe une différence de viscosité entre ces deux systèmes.

Après irradiation, le glissement des dislocations dans ces différents systèmes est ralenti par la présence des défauts d'irradiation. Cependant il a été généralement observé une même hiérarchie des vitesses, à savoir des dislocations très rapides dans les plans prismatiques, et des dislocations plus lentes dans les plans pyramidaux et dans le plan de base.

III. Observation des cas d'interactions dislocations-boucles

Les résultats des interactions entre les dislocations et les boucles induites par l'irradiation sont présentés dans la suite de ce chapitre. Au total 13 éprouvettes ont été testées en température (entre 350 et 500°C) et 7 à température ambiante. Les essais réalisés à température ambiante se sont avérés délicats en raison des forts contrastes engendrés par la présence des boucles et par une possible oxydation superficielle de la surface de la lame mince. L'augmentation de la température semble améliorer l'état de surface de la lame, ce qui facilite l'observation des interactions dislocations-boucles pour les essais réalisés à haute température.

Il est important de noter que les essais de traction en température, ont été réalisés à 350-400°C, températures proches des conditions nominales en réacteur. Cependant, ces températures font également partie du domaine de vieillissement dynamique, où il existe des instabilités plastiques, souvent associées au traînage des solutés par les dislocations.

Principalement deux types d'interactions dislocations-boucles ont été observés lors de ces essais pour les différents systèmes de glissement activés :
- l'ancrage de la dislocation sur une boucle,
- l'absorption des boucles par la dislocation.

Ces deux types d'interactions seront illustrés dans la suite de ce chapitre. Comme présenté précédemment, différents systèmes de glissement ont été observés en fonction des températures d'essais. Les résultats obtenus seront donc présentés et discutés pour chacun de ces différents systèmes. L'occurrence des interactions sera également discutée à la fin de ce chapitre.

III.1. Ancrage des dislocations sur les boucles de dislocation

III.1.1. Cas d'une dislocation glissant dans un plan prismatique

III.1.1.1. Ancrage d'une dislocation prismatique à température ambiante

L'interaction présentée en Figure III-19 montre un cas d'ancrage d'une dislocation glissant dans le plan prismatique $(\bar{1}100)$ à température ambiante. La dislocation présente un vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[11\bar{2}0]$, et l'orientation du grain au tilt d'observation est également donné en Figure III-19. Le glissement de la dislocation est très rapide (plusieurs centaines de nm.s^{-1}) et cette dernière n'est donc observable que lorsque son glissement est ralenti, soit quand elle se retrouve ancrée sur la boucle de dislocation (images b) et c)). La boucle de dislocation n'est mise en contraste qu'à l'approche de la dislocation, et est indiquée sur les clichés b), c) et d) par la flèche noire. Le glissement de la dislocation est fortement ralenti à l'approche de la boucle, et elle s'ancre sur cette dernière. En raison des contrastes, il est difficile de dire si l'interaction entre la dislocation et la boucle a eu lieu avec la partie coin ou vis de la dislocation. La dislocation se courbe alors progressivement sous l'effet de la contrainte, autour de la boucle. Pour un certain angle critique, la dislocation se libère de l'obstacle ancrant et continue son glissement.

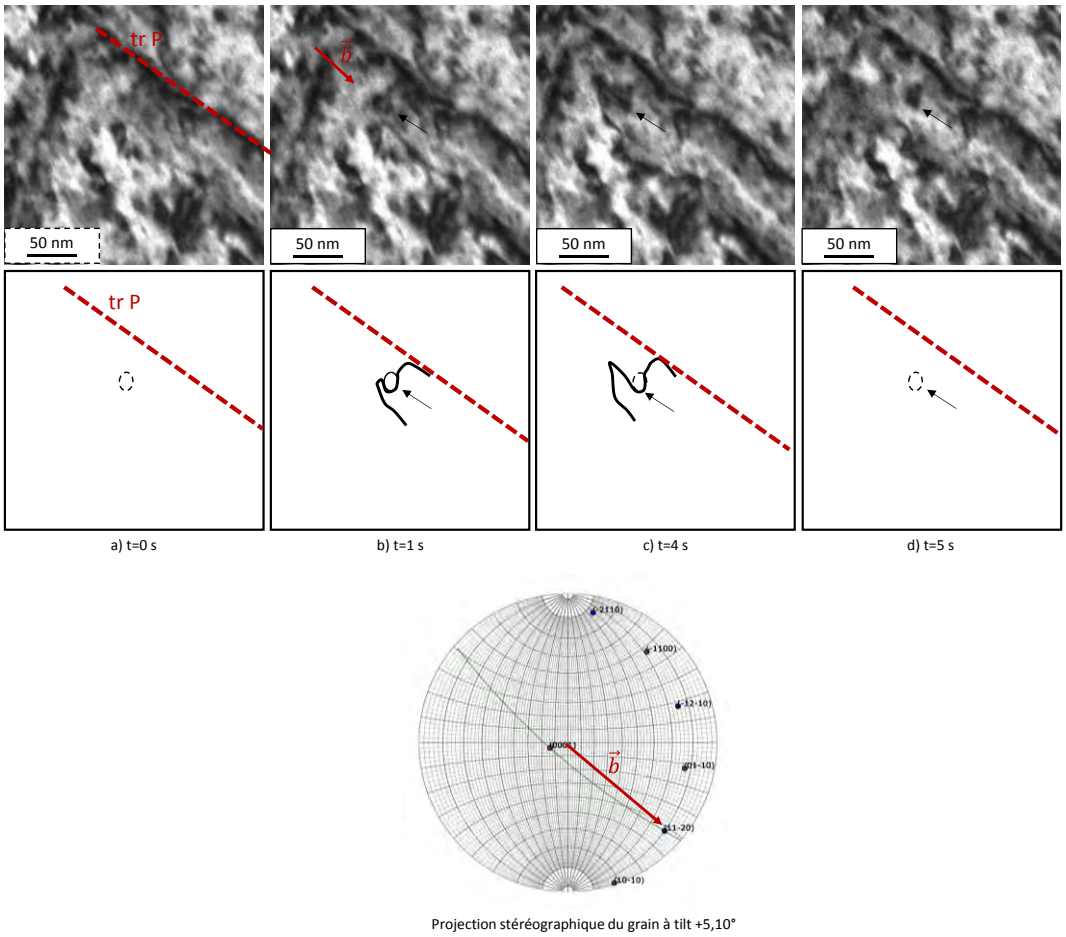
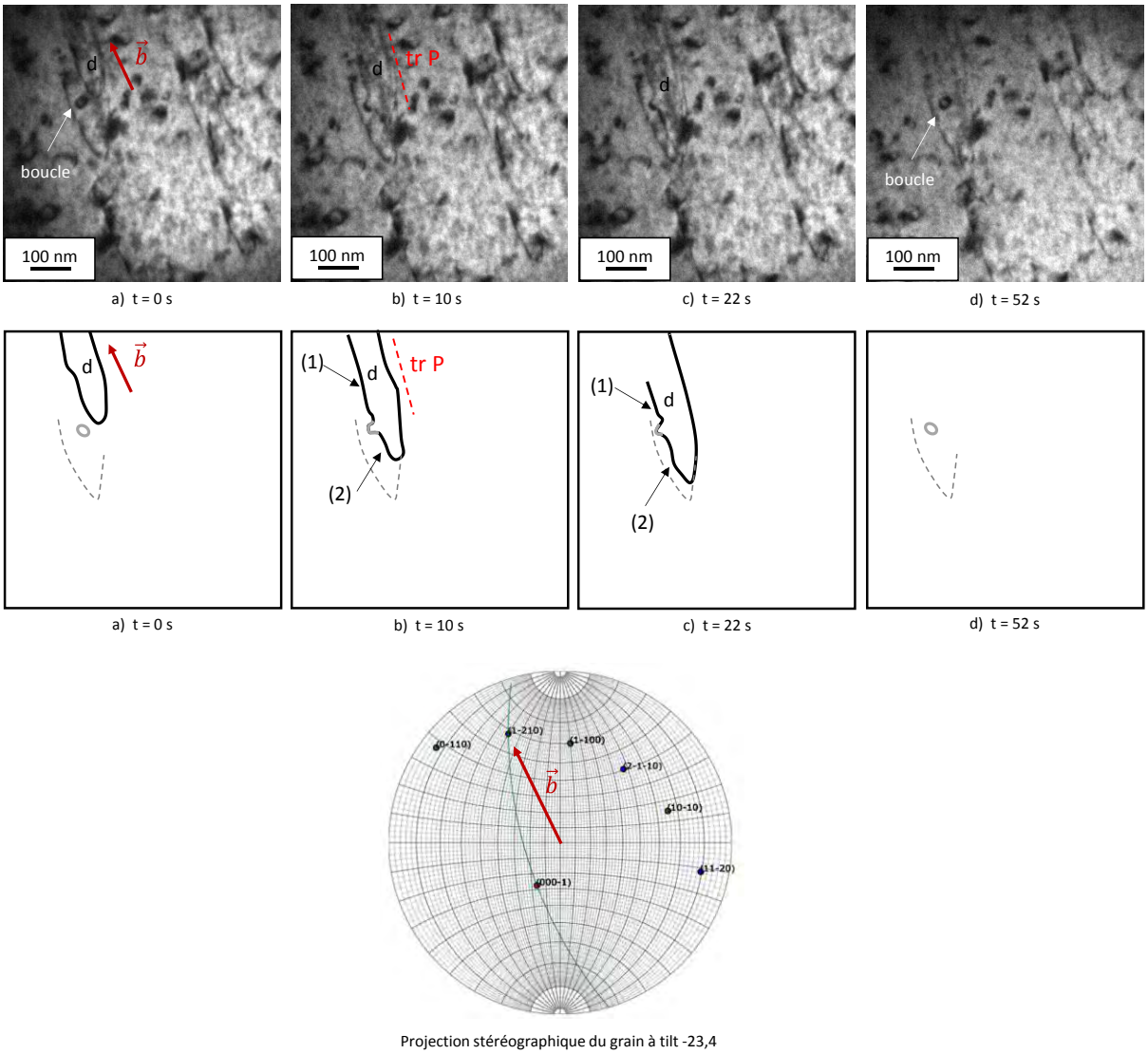


Figure III-19. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation <a> à température ambiante. e) projection stéréographique au tilt d'observation : +5,10°.

Un second cas d'ancrage d'une dislocation prismatique glissant à température ambiante a été observé. Dans ce cas l'interaction d'ancrage est plus nette. La dislocation glisse dans le plan prismatique $(10\bar{1}0)$ et a un vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$, comme indiqué sur la projection stéréographique donnée au tilt d'observation (Figure III-20). D'après son orientation la boucle semble avoir un vecteur de Burgers différent de celui de la dislocation : $\frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$ ou $\frac{1}{3}[11\bar{2}0]$. Lorsqu'elle approche de la boucle, la dislocation interagit avec cette dernière sur sa partie vis. Après l'interaction, la boucle semble alors incorporée le long de la ligne de dislocation sous la forme d'un cran (Figure III-20 b)). Ce cran est fortement ancrant pour la dislocation et ralentit en particulier l'avancée du brin (1) indiquée sur les images b) et c). Le brin (2) continue son glissement vers la surface de la lame. Sur l'image d), on note que la dislocation s'est désancrée de la boucle et que cette dernière est reconstruite suite à l'interaction. Cette observation permet d'avancer l'hypothèse que, bien que sa vitesse soit ralentie, le brin (1) continue de glisser dans la direction du vecteur de Burgers, et le cran formé avec la boucle est finalement refermé lors de son interaction avec le brin (2).



Projection stéréographique du grain à tilt -23,4

Figure III-20. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation <a> à température ambiante. e) projection stéréographique au tilt d'observation : -23.4.

III.1.1.2. Ancrage d'une dislocation prismatique à haute température

Le cas présenté ci-dessous (Figure III-21) permet d'observer l'ancrage d'une dislocation prismatique lors d'un essai de traction *in-situ* réalisé à 350°C. L'observation de cette interaction est faite à côté d'une source de dislocations. Les dislocations « moulinent » autour d'un point fixe, et une fois libérées, glissent dans le plan prismatique $(1\bar{1}00)$ dont la trace est donnée en Figure III-21. Le vecteur de Burgers des dislocations est le vecteur $\frac{1}{3}[11\bar{2}0]$. Au cours de leur formation, les dislocations s'ancrent sur une petite boucle de dislocation d'environ 9 nm, indiquée par la flèche noire sur les clichés donnés en Figure III-21. Toutes les dislocations observées et provenant de la source s'ancrent sur cette boucle sur leur partie vis. Au total, une vingtaine de cas a été observée. Une fois la dislocation ancrée, le brin de droite de la dislocation se courbe sous l'effet de la contrainte (images b) et c) de la Figure III-21). Pour un certain angle critique, la dislocation se libère de l'obstacle, et la boucle de dislocation reste inchangée. L'interaction est très rapide, et la dislocation se désancre de la boucle au bout de quelques secondes.

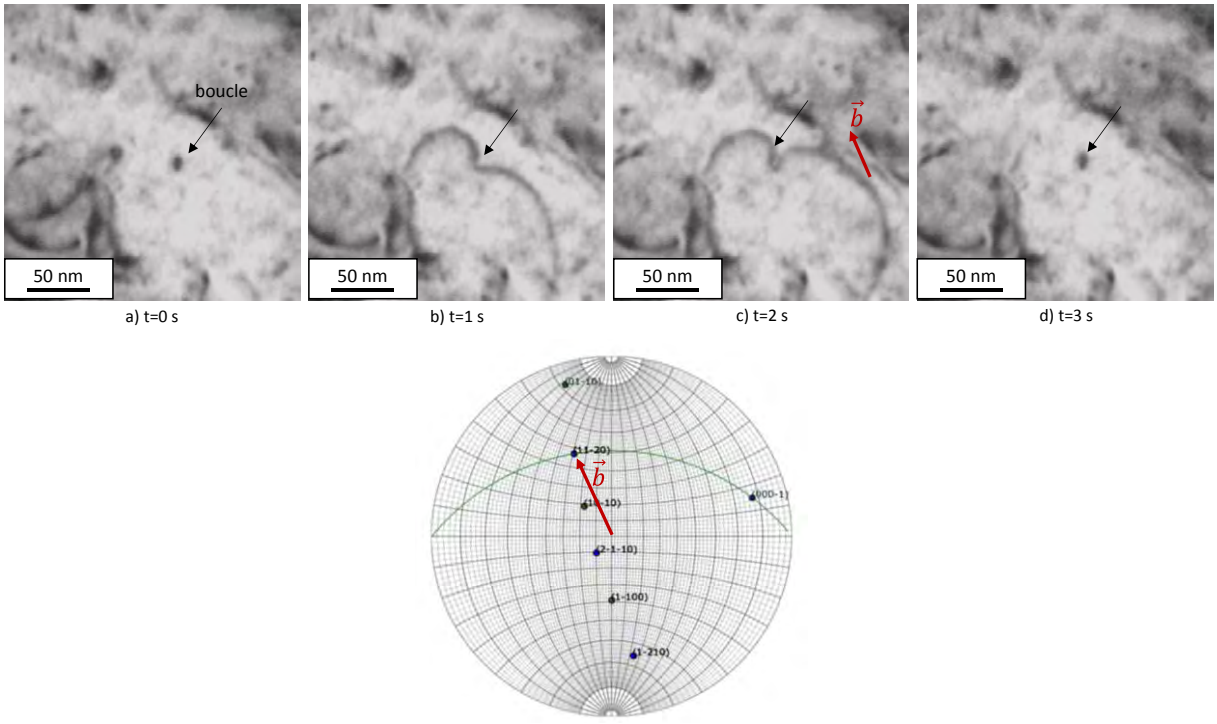


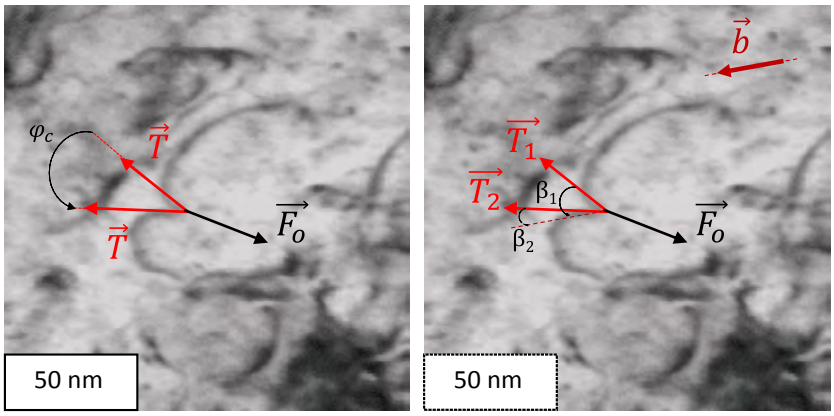
Figure III-21. Ancrage de dislocations glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation à 350°C.

Lors de l'observation d'une interaction d'ancrage, il est possible de déterminer la force d'obstacle appliquée par la boucle sur la dislocation. Cette force est dépendante d'une part de la nature de l'obstacle (vecteur de Burgers de la boucle, taille, …) et des caractéristiques de la dislocation (système de glissement, vecteur de Burgers, caractère du brin où a lieu l'interaction…). En se courbant autour de l'obstacle, deux forces de tension de ligne $\vec{T}$ sont appliquées à la dislocation, de part et d'autre de l'obstacle. Ces deux forces s'opposent à la force d'obstacle $\overrightarrow{F_o}$ (cf Figure III-22 a)). En première approximation, ces deux forces peuvent être considérées comme indépendantes du caractère de la ligne de dislocation, et donc égales. La force d'obstacle est liée à l'angle critique de désancrage φ_c de la dislocation sur la boucle par la relation :

$$F_o = 2\mathrm{T}.\cos(\frac{\varphi_c}{2})$$ **Eq. III-7**

Dans le cas où les dislocations ancrées présentent des brins à caractères vis et coin, il est nécessaire, et plus précis, de prendre en compte le caractère des lignes dans le modèle de tension de ligne, et donc considérer deux forces de tension de ligne distinctes : $\overrightarrow{T_1}$ et $\overrightarrow{T_2}$. Les angles entre ces deux vecteurs et le vecteur de Burgers de la dislocation, β_1 et β_2, sont mesurés dans le plan de la dislocation (Figure III-22 b)). Dans ce cas, la valeur de la force d'obstacle est donnée par la relation :

$$F_o = \sqrt{{T_1}^2 + {T_2}^2 + 2T_1T_2.\cos(\beta_1 - \beta_2)}$$ **Eq. III-8**



a) b)

Figure III-22. Ancrage d'une dislocation sur une boucle : estimation de la force d'obstacle sur l'image ramené dans le plan de la dislocation a) modèle ne prenant pas en compte le caractère des lignes b) modèle prenant en compte le caractère vis ou coin des lignes.

En connaissant le plan de glissement de la dislocation, ainsi que son vecteur de Burgers, il est possible d'obtenir les valeurs de tension de ligne $\overrightarrow{T_1}$ et $\overrightarrow{T_2}$ grâce au logiciel DISDI. Dans le cas présenté ci-dessus, les mesures ont été réalisées pour 12 dislocations s'ancrant sur cette même boucle. Ces mesures sont effectuées sur la dernière image obtenue avant le désancrage de la dislocation [7]. Une valeur moyenne de 3,6 ± 0,5 nN a été déterminée pour ce cas.

III.1.2. Cas d'ancrage pour des dislocations glissant dans les plans pyramidaux

Des cas d'ancrage ont également été observés lors d'interactions entre une boucle de dislocation et une dislocation glissant dans un plan pyramidal. Le cas illustré ci-dessous (Figure III-23) a été observé lors d'un essai effectué à 400°C. La dislocation glisse dans le plan $(10\bar{1}\bar{1})$ et a un vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3} < 1\bar{2}10 >$, similaire à celui de la boucle avec laquelle elle interagit. Avant l'interaction avec la boucle, la dislocation subit un glissement dévié (Figure III-23 a) à c)), mais semble revenir dans son plan de glissement juste avant l'interaction (Figure III-23 d)). La dislocation est donc ancrée dans un premier temps par le cran créé lors du glissement dévié, puis par l'interaction avec la boucle. La partie vis de la dislocation interagit avec la boucle, et comme pour les cas illustrés précédemment, la dislocation se courbe au niveau de la boucle, et se désancre pour un certain angle critique, laissant la boucle

inchangée. La valeur de la force d'obstacle a été déterminée suivant la méthode décrite précédemment. La force d'obstacle obtenue est de 2,9 nN. Un second cas d'ancrage pour cette même dislocation est également présenté en Figure IV-3 du chapitre IV.

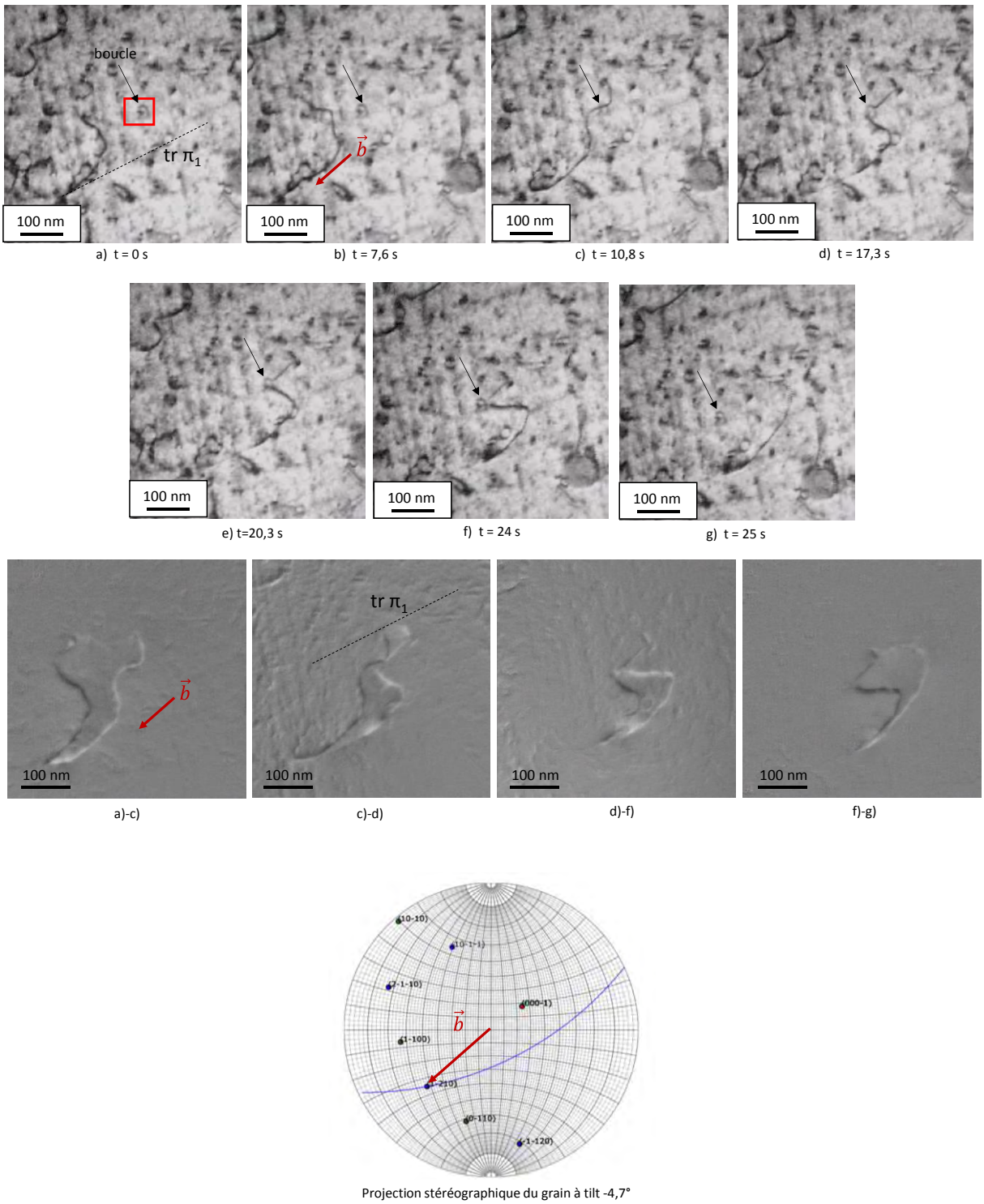


Figure III-23. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal sur une boucle de dislocation <a> à 400°C.

III.1.3. Ancrages dans le plan de base

Comme expliqué précédemment, l'observation du glissement dans le plan de base n'a été possible que dans de rares cas où le facteur de Schmid du système est élevé. Seul un des cas où ce système était activé nous a permis d'étudier l'interaction des dislocations avec les boucles. Une séquence d'images illustre ce cas en Figure III-24. Les dislocations sont assez rectilignes et leurs segments vis s'ancrent de façon fréquente sur les petites boucles de la microstructure. Le glissement des dislocations se fait alors par une succession d'ancrages et de désancrage d'une boucle à une autre. Le vecteur de Burgers des dislocations est le vecteur $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. Seules des interactions de type ancrage ont pu être observées lors de cet essai. L'observation de ce glissement a été effectuée avec un vecteur de diffraction $\vec{g} = \bar{1}10\bar{1}$ qui éteint la famille de boucles de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}20]$. Les boucles observées sont allongées en particulier dans une orientation proche du plan prismatique $(1\bar{1}00)$ et ont donc un vecteur de Burgers soit $\vec{b} = \frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$ ou $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$, ce qui peut expliquer pourquoi un seul type d'interaction est observé. La force d'obstacle a été déterminée pour huit ancrages distincts et varie entre 1 et 4 nN.

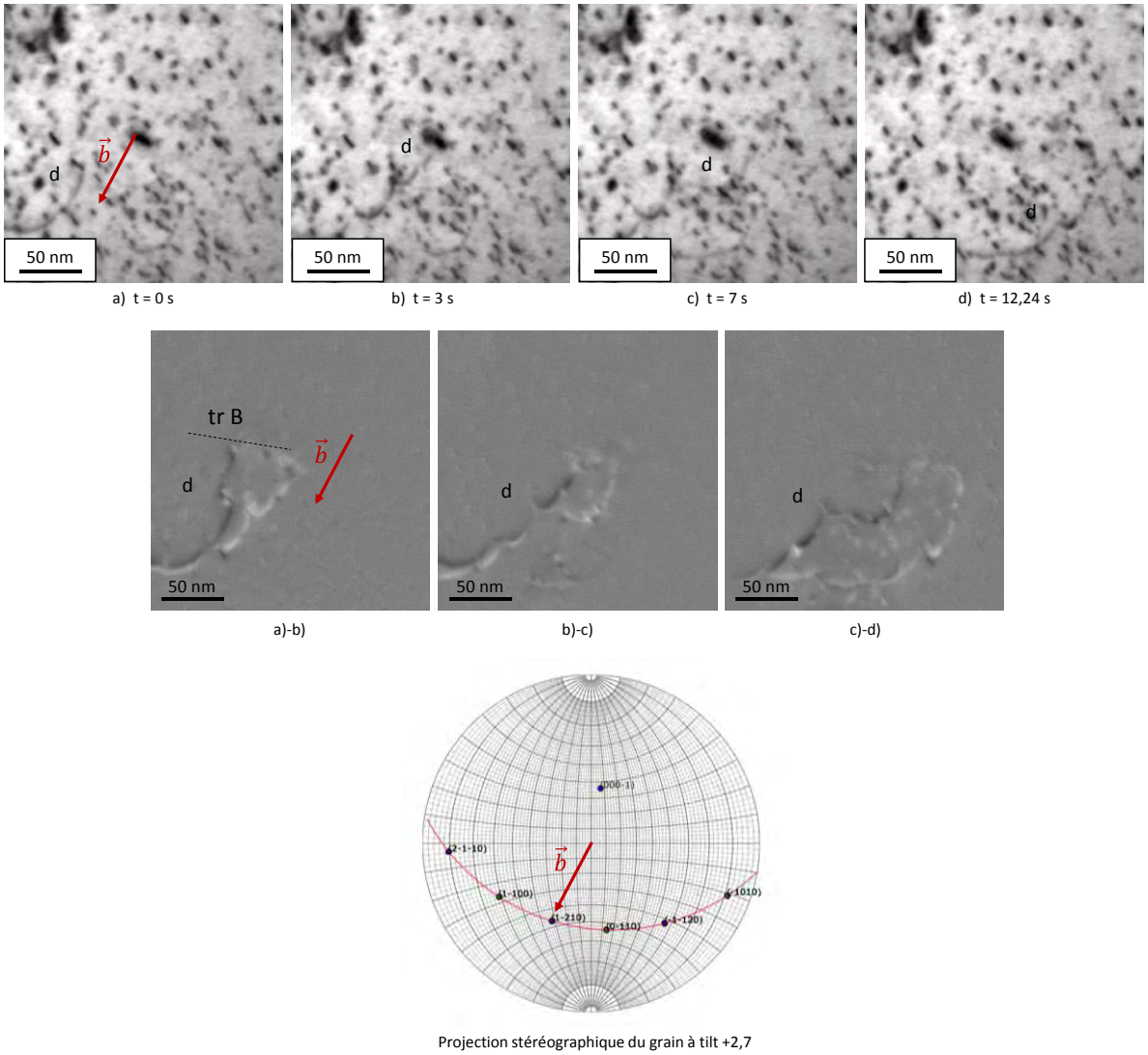


Figure III-24. Ancrage d'une dislocation glissant dans le plan de base sur des boucles de dislocation <a> à 350°C.

III.1.4. Discussion sur les interactions de type ancrage

III.1.4.1. Forces d'ancrage des boucles de dislocation

La courbure que prend la dislocation sous l'effet de la contrainte lors de son ancrage sur une boucle permet de remonter à la force d'obstacle. Cette force a été déterminée précédemment pour deux cas spécifiques d'ancrage avec les partie vis de dislocations glissant dans un prismatique à 350°C (Figure III-21) et d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 400°C (Figure III-23). Des valeurs respectives de 3,6 nN et 2,9 nN ont été mesurées. Une mesure de la force d'ancrage a également été effectuée pour plusieurs dislocations glissant dans le plan de base, et montre que celle-ci varie entre 1 et 4 Nn. Théoriquement, la contrainte critique de franchissement de l'obstacle, $\Delta\tau_c$, peut s'exprimer selon la loi :

$$\Delta\tau_c = \frac{F_o}{L.b} \qquad \textbf{Eq. III-9}$$

avec L la longueur entre obstacles définie par :

$$L = d.(\frac{\mu b}{\Delta\tau_c d})^{1/3} \qquad \textbf{Eq. III-10}$$

Avec μ le module de cisaillement du matériau d'environ 28,6 GPa à 350°C, et d la distance moyenne entre obstacles.

En combinant l'équation Figure III-9 et l'équation Eq. III-10, $\Delta\tau_c$ s'exprime :

$$\Delta\tau_c = \frac{\mu b}{d}.(\frac{F_o}{\mu b^2})^{3/2} \qquad \textbf{Eq. III-11}$$

Dans le cas d'ancrage des dislocations dans les plans prismatiques, la moitié des cas d'interactions est considérée comme ancrante, les dislocations pouvant être de caractère vis ou coin [5]. La distance entre obstacles dans les plans prismatiques peut s'exprimer par : $d=1/((0.5xN)^{1/3})$, avec N la densité volumique des boucles de 6.10^{20} m^{-3}. La contrainte critique de franchissement mesurée dans le cas des ancrages dans le plan prismatique (Figure III-21) est alors de 82 MPa.
Dans le cas du glissement dans les plans pyramidaux, les essais de traction *in-situ* ont montré des dislocations à caractère principalement mixte ou vis, ce qui permet de considérer que la majorité des interactions seront ancrantes, soit $d=1/(N^{1/3})$. Le cas d'ancrage observé Figure III-23 permet alors de remonter à une contrainte de franchissement de 70,8 MPa.
Dans le cas du glissement dans le plan de base, une famille de boucles est hors contraste (Figure III-24), ce qui implique que seul 2/3 de la population totale des boucles est visible. En considérant ces boucles hors contraste comme non ancrantes pour les dislocations, d peut s'exprimer : $d=1/((2/3.N)^{1/3})$. La contrainte de franchissement critique obtenue varie entre 13,2 MPa (ancrage faible) lorsque la force d'obstacle est de 1 nN à 105,6 MPa (ancrage fort) lorsque la force d'obstacle est de 4 Nn. En moyenne sur une quinzaine d'ancrages, la force d'obstacle est de 2,8 nN soit un $\Delta\tau_c$ de 61,9 MPa.

Au niveau macroscopique, la contrainte de franchissement des obstacles est liée à l'incrément de limite d'élasticité induit par l'irradiation $\Delta\sigma_{0,2}$:

$$\Delta\sigma_{0,2} = M.\Delta\tau_c \qquad \textbf{Eq. III-12}$$

Avec M le coefficient de Taylor, généralement compris entre 2 [6] et 4 [8] pour le Zy-4.

Dans cette équation, $\Delta\tau_c$ est représentative de l'effet des ancrages, tous systèmes de glissement confondus. Il est alors possible d'exprimer la contrainte critique de franchissement par une formule, qui ne prend plus en compte le caractère vis ou coin des dislocations, et permet donc de considérer toute la population de dislocations dont le glissement est activé :

$$\Delta\tau_c = \alpha \frac{\mu . b}{L} \qquad \textbf{Eq. III-13}$$

avec α le coefficient d'ancrage des dislocations sur les boucles.

Le coefficient d'ancrage α est utilisé dans les modèles polycristallins [9] pour prendre en compte l'effet du durcissement par ancrage des dislocations dans les différents systèmes de glissement. A notre échelle, il existe deux méthodes possibles afin de déterminer le coefficient d'ancrage α. La première méthode est basée sur la mesure des forces d'ancrages et permet de prendre en compte le caractère vis ou coin des brins des dislocations. Elle consiste à calculer la valeur du coefficient α en ré-injectant les valeurs de $\Delta\tau_c$ obtenues précédemment dans l'équation Eq. III-13. Ces valeurs sont rappelées dans le Tableau III-1. La seconde méthode repose sur une mesure géométrique directe du coefficient α. Ce dernier est défini comme égale à $\cos(\varphi_c/2)$. La méthode de détermination de φ_c est donnée en Figure III-22. Cette méthode semble, aux premiers abords, moins précise que la première, car elle ne prend pas en compte le caractère vis ou coin des dislocations. Les valeurs obtenues par ces deux méthodes sont données au Tableau III-1, avec α_1 le coefficient d'ancrage déterminé par la première méthode et α_2 le coefficient d'ancrage déterminé par la seconde méthode.

Tableau III-1. Estimation de la contrainte critique de franchissement d'obstacle et du $\alpha_{mesuré}$ moyenné sur le système de glissement.

	$\Delta\tau_c$ (MPa)	α_1	α_2
Plan prismatique <a> 350°C	82	1,2	0,97
Plan pyramidal <a> 400°C	70,8	0,94	0,75
Plan basal <a> 350°C	61,9	0,94	0,88

Ces résultats démontrent un effet de la prise en compte du caractère de la dislocation, avec des valeurs de α_1 plus importantes que α_2. Bien que la mesure de α_1 semble plus appropriée, les valeurs de α_2, bien que ne prenant pas en compte le caractère vis coin des dislocations, sont proches des valeurs utilisées dans les modèles polycristallins pour les plans prismatiques et pyramidaux. En effet, dans leur modèle, Onimus et Béchade [9] considèrent des coefficients d'ancrage à 350°C de 0,94 dans le plan prismatique, 0,87 pour le système pyramidal <a>. Dans le plan de base, un coefficient plus faible est choisi, de 0,5, afin de traduire notamment l'effet de canalisation, et donc d'absorption des boucles, observé préférentiellement dans le plan de base après irradiation aux neutrons [1].

Ribis [10] détermine expérimentalement le coefficient d'ancrage, tous systèmes de glissement confondus, lors d'essais de dureté sur des alliages de zirconium recristallisés et irradiés aux neutrons à une quinzaine de dpa à 350°C. Les essais de dureté sont réalisés à température ambiante, après plusieurs recuits, et la relation de proportionnalité entre l'incrément de dureté et l'incrément de limite d'élasticité permet de déterminer α. Des valeurs variant de 0,39 à 0,78 ont été mesurées. La valeur du coefficient d'ancrage mesuré par Ribis [10], est une valeur qui prend en compte tous les plans de glissement pouvant être activés : les systèmes prismatiques, pyramidaux et basaux, et permet de

remonter à l'incrément de limite d'élasticité $\Delta\sigma_{0,2}$, d'après l'équation Eq. III-12 qui est, dans ces conditions, égale à 235 MPa (avec le coefficient de Taylor *M* égal à 2). Dans notre cas, la mesure des coefficients d'ancrage est effectuée pour un unique plan de glissement. Si l'on considère, à l'échelle macroscopique, la même probabilité d'activation du glissement dans les plans prismatiques, pyramidaux et dans le plan basal, le coefficient d'ancrage peut être considéré comme la moyenne des coefficients α_2 de chacun des systèmes. Une valeur de 0,87 est alors obtenue, proche des valeurs calculées par Ribis [10]. Dans nos conditions d'irradiation et pour ce coefficient d'ancrage moyen, l'incrément de limite d'élasticité $\Delta\sigma_{0,2}$ est de 71 MPa.

III.1.4.2. Résumé et discussion des interactions d'ancrage

Les interactions de type ancrage ont été observées lors du glissement de dislocations dans les systèmes prismatique <a>, pyramidal <a> et basal <a>, à température ambiante et à haute température. Ces interactions se traduisent par un fort ralentissement du glissement des dislocations qui s'ancrent sur la boucle et se courbent de part et d'autre de cette dernière. Les interactions de type ancrage sont donc directement liées au durcissement d'irradiation observé au niveau macroscopique. Dans le système basal, et en raison des conditions d'observation, seul ce type d'interaction a été observé. Ces interactions semblent appartenir à la catégorie *R1* [11], car la boucle et la dislocation semblent inchangées après l'interaction.

Drouet [5] réalise des simulations par dynamique des dislocations des différentes interactions dislocation-boucle, en faisant varier le caractère de la dislocation et le vecteur de Burgers de la boucle dans les plans prismatiques et dans le plan basal. Le résumé des interactions observées lors de ces simulations est présenté en Chapitre I, Tableau I-3**.** Dans le cas des glissements dans le plan prismatique, il a été observé lors des essais de traction, l'ancrage de dislocations coin et vis glissant dans les plans prismatiques. Selon Drouet [5], l'interaction entre une dislocation vis et une boucle mène effectivement dans tous les cas à l'ancrage de la dislocation sur la boucle. Un tour d'hélice très ancrant pour la dislocation de type *R4* est souvent formé. Il est donc probable que les interactions observées lors des expériences de traction *in-situ* ne soient pas toutes de type *R1*, mais que dans certains cas, la boucle soit absorbée de façon temporaire sous la forme d'un tour d'hélice, puis reconstruite lors du désancrage de la dislocation. Ce type d'interaction est très bien illustré en Figure III-20. La simulation par dynamique des dislocations a également montré que l'interaction entre des dislocations coins et les boucles dans les plans prismatiques mènent dans tous les cas à l'entraînement des boucles par la dislocation.

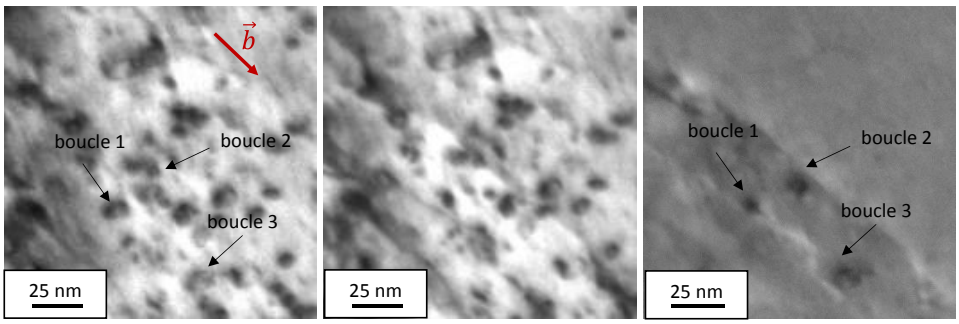
Les simulations en dynamique des dislocations, réalisées par Drouet [5], pour des dislocations vis glissant dans le plan de base montrent des réactions ancrantes uniquement lorsque la boucle a le même vecteur de Burgers que la dislocation. Les observations expérimentales ont montré de nombreux ancrages des dislocations vis sur les boucles. Un tour d'hélice ancrant se forme lors de l'interaction de la dislocation avec les boucles, et se referme, entraînant la reconstruction de la boucle et la libération de la dislocation de son point d'ancrage.

III.2. Absorption des boucles par les dislocations

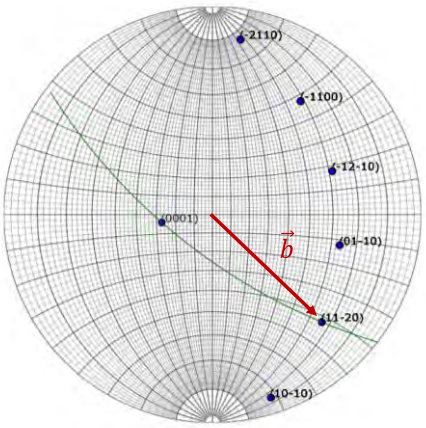
III.2.1. Cas de dislocations glissant dans un plan prismatique

La séquence présentée en Figure III-25 présente un cas où l'on note la disparition de boucles après le passage d'une dislocation glissant dans le plan $(\bar{1}100)$ à température ambiante. La vitesse de glissement est trop rapide pour que les mécanismes précis d'interactions soient observables. Les images a) et b) présentent l'état de la microstructure avant et après le passage de la dislocation. Trois boucles distinctes sont annihilées par la dislocation, ce qui est visible en particulier grâce à la soustraction d'images, présentée en d), où les tâches noires représentent les objets manquants entre la première et la deuxième image.

D'après la littérature, l'absorption des boucles se fait selon une interaction de type « R3 », engendrant la création d'un double super-cran glissile le long de la ligne de dislocation [12], [13].



a) t = 0 s b) t = 2,8 s a)-b)



Projection stéréographique du grain à tilt -8;5

Figure III-25. Absorption de boucle par une dislocation glissant dans un plan prismatique à température ambiante.

La même dislocation interagit ensuite avec d'autres boucles, comme illustré en Figure III-26. On retrouve la boucle 3 sur l'image a), absorbée sur la séquence précédente (Figure III-25). La partie vis de la dislocation interagit avec une des boucles présentes dans l'amas encadré en vert (image a) Figure III-26) formant, le long de la partie vis de la dislocation, un cran visible sur la soustraction d'image b)-c).

Une quatrième boucle (boucle 4) a également été absorbée lors du passage de la dislocation. Le cran créé est fortement ancrant pour la dislocation, et évolue en un tour d'hélice, entraînant la formation d'un cran glissile, qui s'étend le long de la partie vis de la dislocation, parallèlement au vecteur de Burgers de la dislocation (image c)-d)).

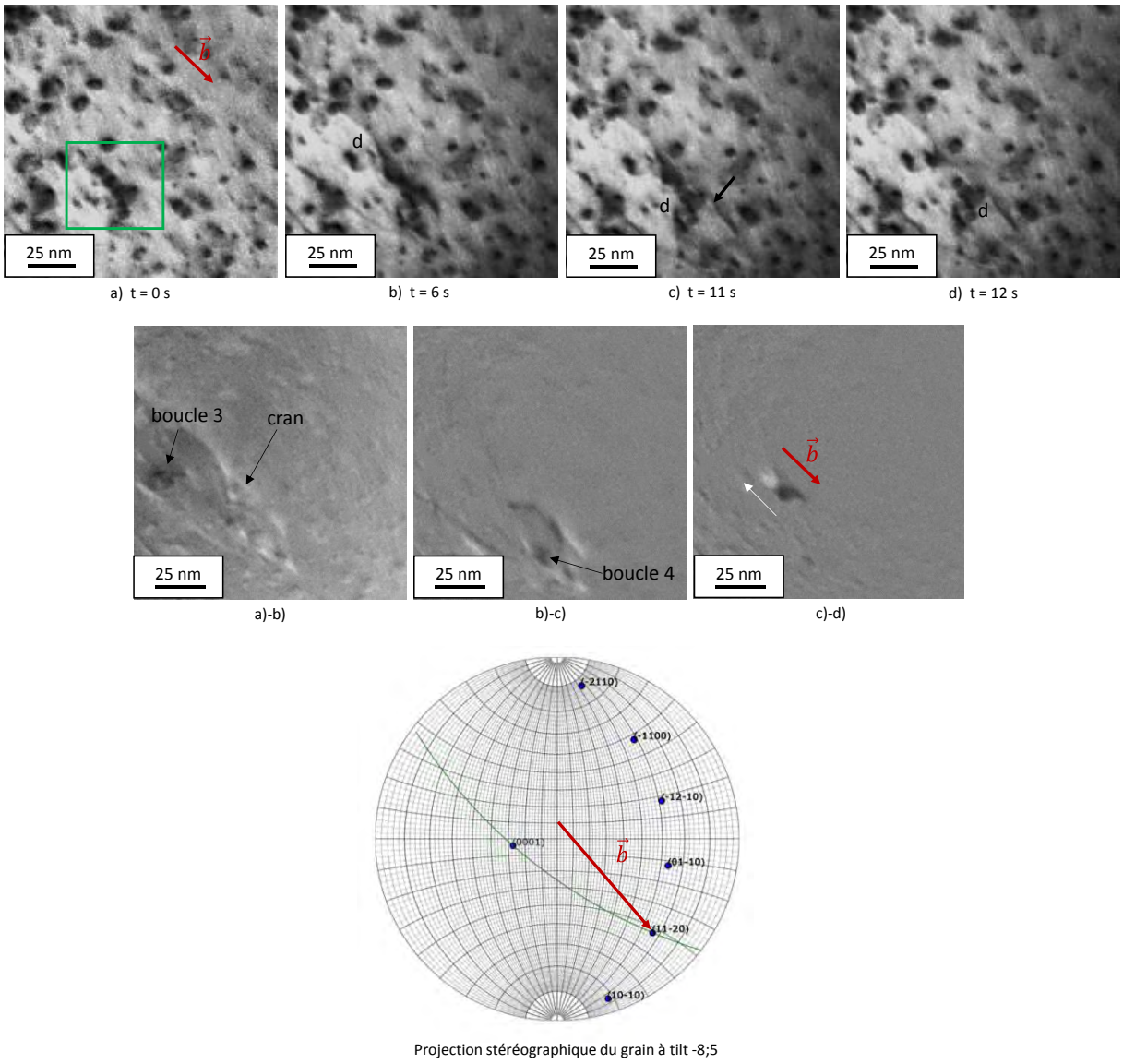


Figure III-26. Formation d'un tour d'hélice le long d'une dislocation glissant dans un plan prismatique à température ambiante.

III.2.2. Cas de dislocations glissant dans un plan pyramidal

Des cas similaires d'absorption ont pu être observés lors des essais de traction réalisés à haute température. Quatre sont décrits et illustrés pour des cas de glissement pyramidal.

Le premier cas présente une interaction assez complexe mêlant absorption de boucle et glissement dévié de la dislocation. La dislocation glisse dans le plan pyramidal $(10\bar{1}\bar{1})$ et a un vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. Elle interagit avec une boucle de dislocation qui ne se met en contraste qu'à l'approche de la dislocation (Figure III-27 b). La trace de la boucle nous indique que cette dernière a très

probablement un vecteur de Burgers similaire à celui de la dislocation. La boucle est absorbée par la partie vis de la dislocation, menant à la formation d'un cran (image c) et soustraction d'images b)-c)). Ce cran évolue ensuite en un tour d'hélice (image d), probablement associé à un mécanisme de double glissement dévié (images e) et f)), qui remonte le long de la ligne de dislocation jusqu'à s'éliminer en surface (image g)). La forme de la dislocation très sinueuse, illustrée en h), est le témoin de nombreuses interactions de type absorption par création d'un tour d'hélice, et/ou de nombreux double glissements déviés.

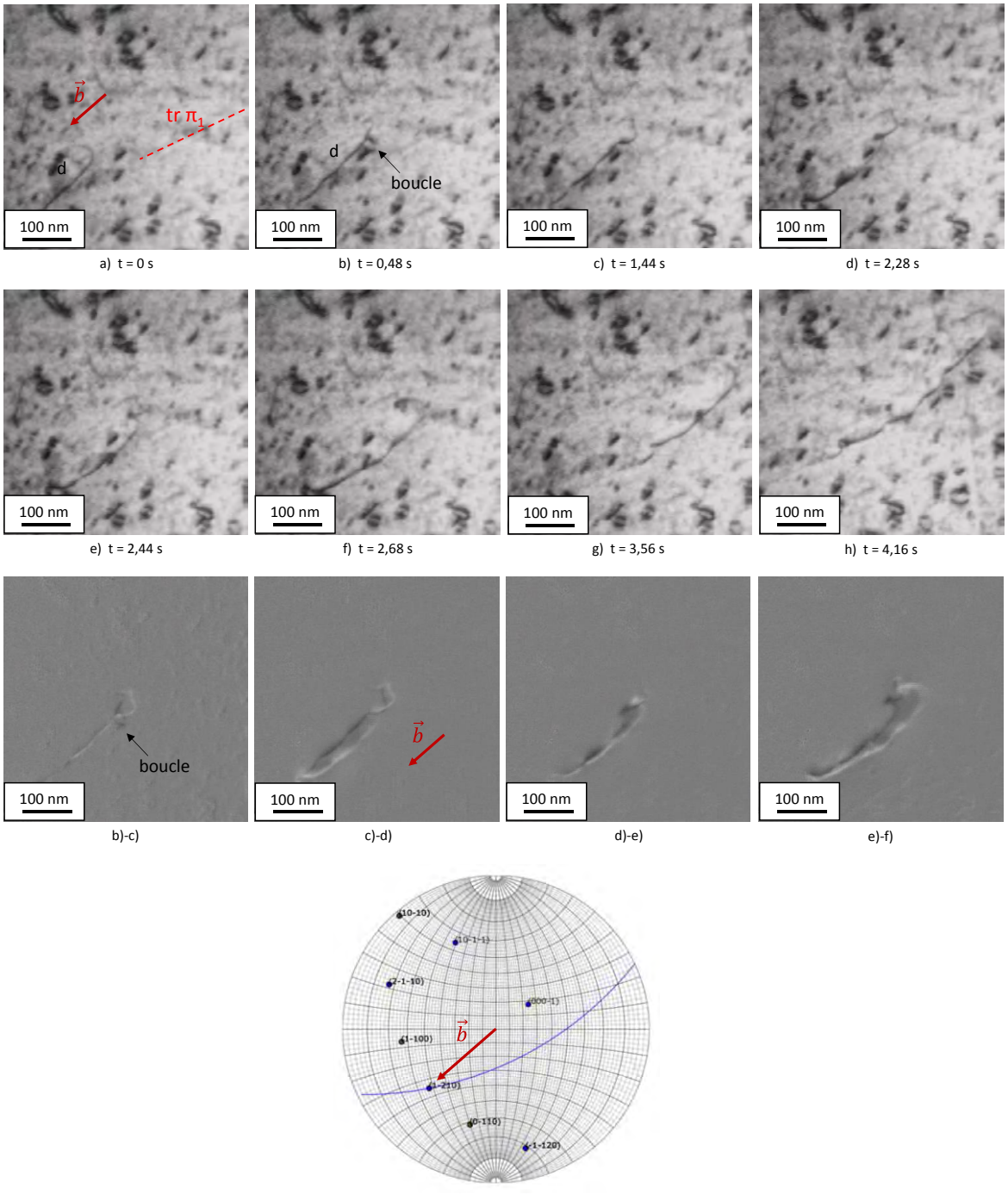


Figure III-27. Absorption d'une boucle sous la forme d'un tour d'hélice par une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 400°C.

Le cas suivant illustre l'absorption rapide de deux boucles par une dislocation glissant supposément dans un plan pyramidal à 400°C. Lors de cet essai, le glissement de nombreuses dislocations est activé, ce qui rend difficile l'analyse de leur trace, et donc de leur plan de glissement respectif. La dislocation semble donc glisser dans le plan pyramidal $(10\bar{1}\bar{1})$, en bleu sur la projection stéréographique (Figure III-28), mais pourrait aussi glisser dans le plan prismatique $(10\bar{1}0)$, en vert, qui semble cependant trop peu incliné. Le vecteur de Burgers de la dislocation est le vecteur $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. D'après l'analyse de sa trace, la première boucle de dislocation (boucle 1) absorbée par la dislocation est purement coin et a un vecteur de Burgers identique de celui de la dislocation. La seconde boucle absorbée par la dislocation (boucle 2) est également coin et a également un vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. Cette boucle n'est cependant pas issue de l'irradiation, mais a été précédemment créée par l'interaction de deux dislocations. Ces deux boucles sont totalement absorbées par la partie vis de la dislocation, sans mécanisme clairement apparent.

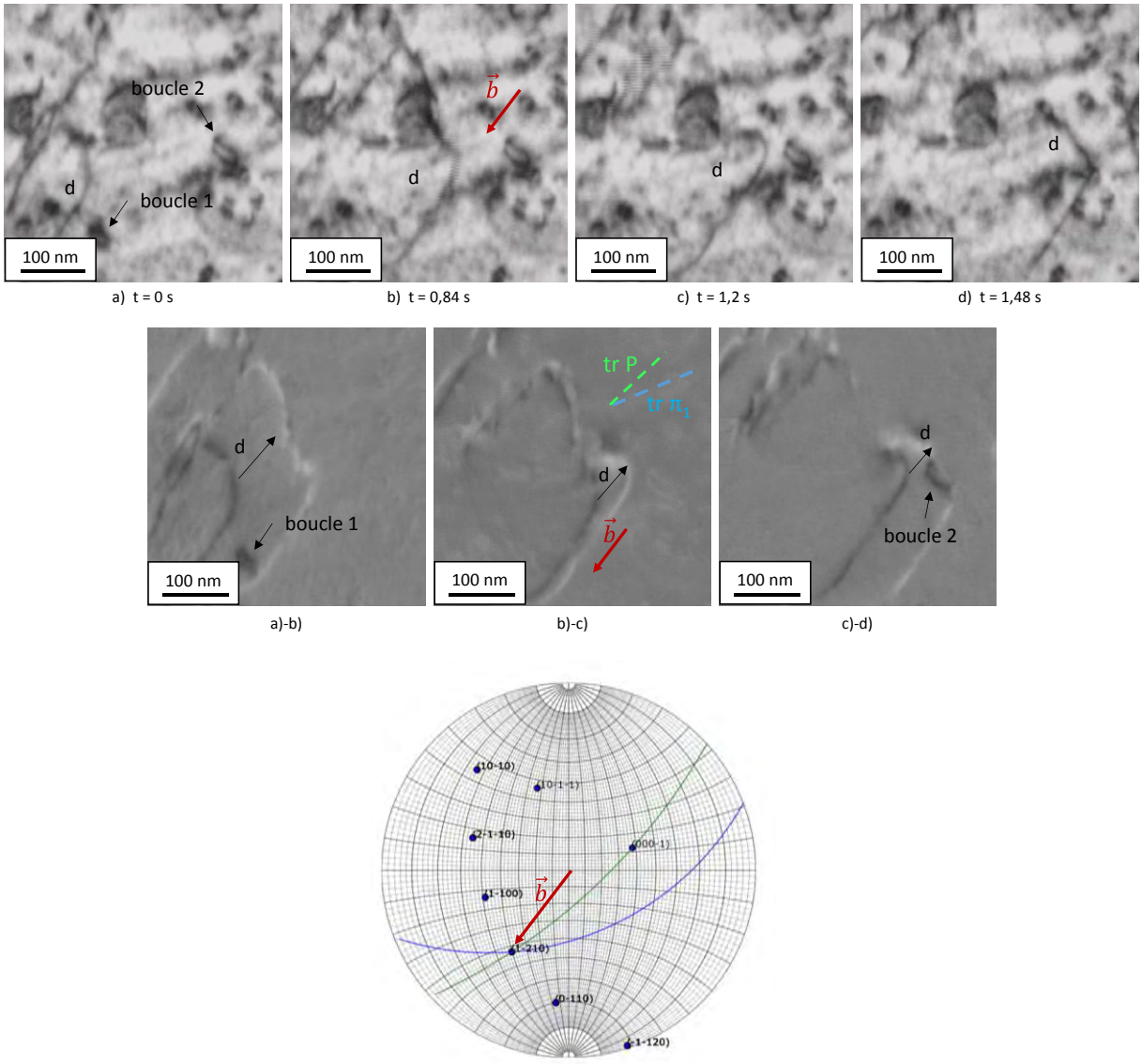


Figure III-28. Absorption de deux boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal ou prismatique à 400°C.

Plusieurs autres cas d'interactions de type absorption ont été observés lors des essais à haute température (350°C-400°C). Deux d'entre eux sont illustrés, en supplément de ceux déjà présentés, en Figure III-29. Le contraste de la dislocation étant très faible, une schématisation de l'interaction est également proposée. Ces deux cas impliquent la même dislocation qui glisse dans le plan $(10\bar{1}\bar{1})$ et de vecteur de Burgers $\frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. Lors de la première interaction (images a) à e)), la dislocation interagit avec une boucle sur sa partie mixte, entrainant la formation d'un tour d'hélice, qui s'étire le long de la dislocation, jusqu'à son extrémité supérieure (image e), puis s'élimine en surface (image f)). Une seconde boucle est ensuite annihilée par le passage de la dislocation (images e) à g)).

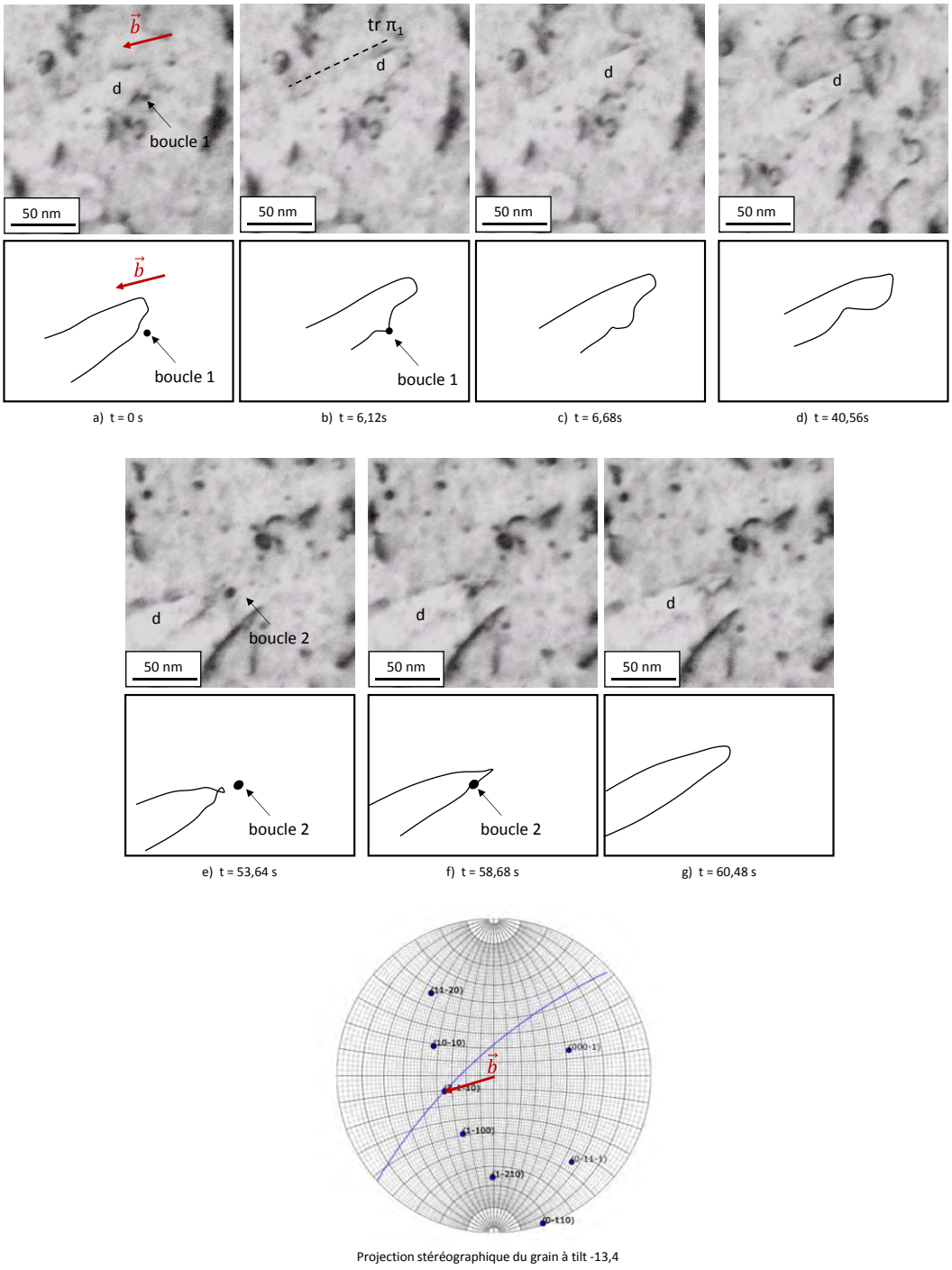


Figure III-29. Absorption de boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 350°C.

III.2.3. Discussion sur les interactions de type absorption des boucles

Des interactions de type absorption des boucles ont été observées lors du glissement de dislocations de vecteur de Burgers <a> dans les plans prismatiques et pyramidaux. Dans certains cas ces interactions sont de type *R3*, et les boucles sont complètement absorbées lors du passage de la dislocation. Dans certains des cas observés, l'interaction est trop rapide pour permettre une observation précise du mécanisme d'interaction. La boucle devrait, en principe, être incorporée sous la forme d'un double super-cran glissile le long de la ligne de dislocation. Ces interactions sont donc la preuve directe que les boucles peuvent être annihilées par les dislocations, et que la formation d'un mécanisme de canalisation dans les plans prismatiques et pyramidaux est possible. Cependant dans les cas de traction *in-situ* au MET, les conditions d'essai ne semblent pas favorables à l'observation directe d'un mécanisme de canalisation. En effet, des bandes claires ont été observées dans le cas d'échantillons massifs pré-irradiés aux neutrons et présentant une densité de boucles plus importante, de 2 à 5.10^{22} m^{-3} [1]. La formation des canaux se produit par le passage de plusieurs dislocations qui vont « nettoyer » les défauts. Hors, dans le cas des essais de traction *in-situ*, les observations d'absorption sont souvent ponctuelles et ne concernent qu'une dislocation. De plus la densité des boucles étant plus faible (6.10^{20} m^{-3}) que lors des irradiations aux neutrons, le mécanisme de canalisation peut être difficile à observer.

Dans d'autres cas, la formation d'un tour d'hélice est observée, suggérant une interaction de type *R4*. Ces interactions semblent plus nombreuses à haute température (350°C-400°C) qu'à température ambiante. La formation des tours d'hélice participe à l'annihilation des défauts, mais est également un mécanisme temporairement ancrant, et donc impliqué dans le durcissement d'irradiation. En effet l'annihilation de la boucle par la dislocation mène à la formation d'une jonction ancrante. Le tour d'hélice se recombine ensuite pour permettre de nouveau le glissement de la dislocation.

Les cas d'absorption par formation d'un tour d'hélice ont, en majorité, lieu lors de l'interaction de la partie vis d'une dislocation avec une boucle dans les plans pyramidaux. Selon les simulations effectuées par Drouet [5], l'interaction de dislocations vis avec des boucles dans les plans prismatiques mène dans tous les cas à l'ancrage de la dislocation par la création d'un tour d'hélice. Les cas observés en traction *in-situ* montrent effectivement des tours d'hélice fortement ancrants pour la dislocation. Cependant la jonction créée s'accommode en devenant glissile, et s'étire le long de la ligne de dislocation où s'élimine à la surface de la lame, permettant le désancrage de cette dernière.

IV. Occurrence des interactions dislocation-boucle

Le Tableau III-2 résume la totalité des interactions observées lors des essais de traction *in-situ*. Les cas d'ancrages des dislocations sont divisés en deux catégories : les « ancrages faibles » correspondant en particulier aux ancrages ponctuels des dislocations sur les boucles, pour lesquels la force d'ancrage est faible, qui semblent être de type R1 ou des interactions élastiques à distance. Les « ancrages forts » catégorisent les cas où le désancrage de la dislocation est lent, et où le mécanisme d'ancrage est de type R1 ou R4 avec la formation d'un tour d'hélice.

Tableau III-2. Résumé des interactions dislocation-boucles observées lors des essais de traction *in-situ.*

	Prismatique <a>	**Pyramidal <a>**	**Basal <a>**
T ambiante	Ancrages forts : 2		
	Absorption (R3) : 7		
	Tour d'hélice (R4) : 1		
350°C 400°C	Ancrages faibles: nombreux (>10)	Ancrages faibles: nombreux (>10)	Ancrages faibles: nombreux (>>10)
	Ancrage fort : 3	Ancrage fort : 3	Ancrage fort : Nombreux (>10)
	Absorption (R3) : 5	Absorption (R3) : 2	
	Tour d'hélice (R4) : 3	Tour d'hélice (R4) : 1	

Bien que certains cas d'interactions dislocation-boucle aient été observés lors de ces essais, ces derniers restent rares en comparaison à la densité important de boucles et de dislocations dont le glissement est activé. Lors des expériences de traction *in-situ* réalisées par Drouet [5] sur des éprouvettes de Zy-4 pré-irradiées aux ions, peu de cas d'interactions ont également été observé. Drouet [5] réalise une étude statistique de l'occurrence des interactions qui démontre que le pourcentage de non-interaction entre une dislocation et les boucles est faible, ce qui est donc en désaccord avec les observations expérimentales.

La Figure III-30 illustre la faible probabilité des interactions dislocation-boucle dans le cas de dislocations glissant dans le plan prismatique. Les soustractions d'images permettent notamment de suivre deux d'entre elles, d_1 et d_2, et montrent que seuls quelques cas d'ancrages surviennent (soustraction a)-b) pour la dislocation d_1 par exemple). En effet, sur cette séquence, les dislocations passent au voisinage d'une cinquantaine de boucles et moins de 5 ancrages sont observés pour chacune des dislocations. Ces estimations sont cohérentes avec l'étude statistique de Drouet [5], qui démontre pour une dislocation glissant dans un plan prismatique à température ambiante, que le nombre moyen d'interactions attendu est d'environ 10%.

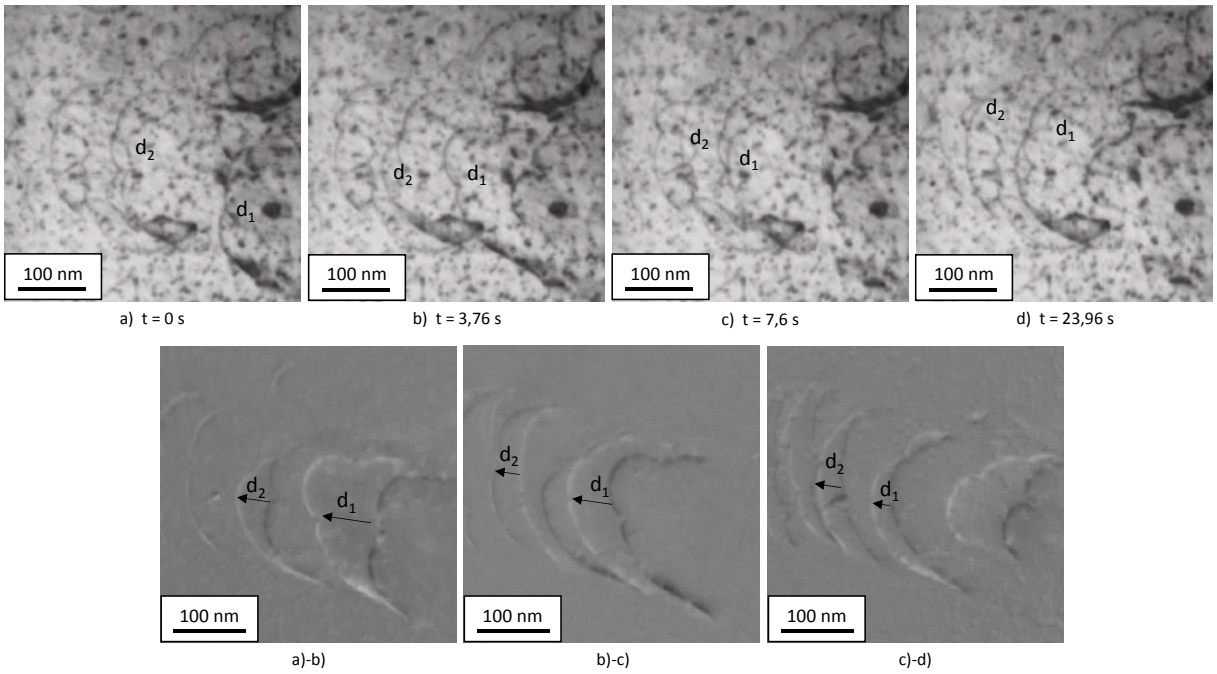


Figure III-30. Faible occurrence d'interaction lors du glissement de dislocations dans un plan prismatique à 350°C.

Les cas de non-interaction peuvent tout d'abord être dus à des raisons géométriques (position de la boucle par rapport au plan de glissement, vecteur de Burgers). La Figure III-31 illustre un possible cas de non interaction dû à des raisons géométriques pour une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 400°C. L'image a) montre deux boucles distinctes pouvant potentiellement interagir avec la dislocation. Cependant, comme observé sur les soustractions d'images, aucune interaction, ni mouvement des boucles lors du passage de la dislocation n'est observé.

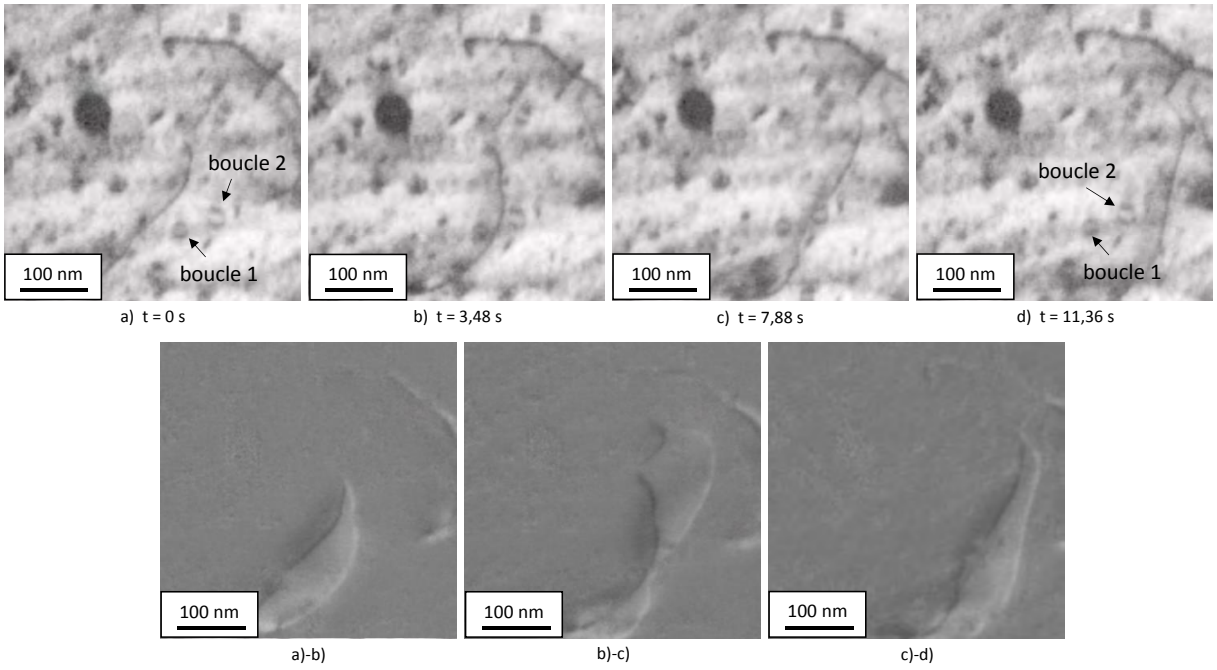


Figure III-31. Non interaction entre une dislocation glissant dans un plan pyramidal et deux boucles à 400°C.

Des mécanismes d'évitement des boucles par les dislocations ont de plus été suggérés afin d'expliquer le peu d'interactions observées [5]. Ce mécanisme d'évitement peut tout d'abord se produire par un double glissement dévié de la dislocation ce qui réduit les chances d'interactions avec les boucles dans le plan de glissement. De plus, un mouvement des boucles le long de leur cylindre est possible et peut se produire à courte distance. Comme expliqué précédemment, le ralentissement du glissement des dislocations peut être dû à des ancrages par interaction directe avec les boucles. Cependant, dans certains cas, le glissement des dislocations peut être ralenti par des interactions élastiques répulsives à distance entre les dislocations et les boucles. Ces interactions élastiques entraînent un ralentissement du glissement des dislocations au voisinage des boucles, et un glissement des boucles sur leur cylindre, sur une très faible distance. L'éloignement des boucles du plan de glissement des dislocations permet alors de nouveau le glissement de ces dernières.

Synthèse du chapitre

A l'échelle macroscopique, l'irradiation aux neutrons rapides entraîne le durcissement des alliages de zirconium ainsi qu'une diminution de leur ductilité. Les principaux modèles pouvant expliquer ces évolutions de propriétés mécaniques sont basés sur l'interaction des dislocations, dont le glissement est activé lors de la déformation plastique, avec les défauts induits par l'irradiation, et notamment les boucles de dislocation. Il est généralement admis que les boucles agissent comme obstacles au glissement des dislocations, et sont donc à l'origine du durcissement d'irradiation. Onimus [1] a montré expérimentalement, la présence d'un mécanisme de canalisation du glissement après irradiation aux neutrons d'échantillons de Zy-4, conduisant à la formation de bandes claires, dénuées de défauts, dans les plans basaux, prismatiques et pyramidaux. Ce mécanisme traduit la possibilité que les boucles peuvent également être entraînées ou annihilées par les dislocations. Dans une optique de meilleure compréhension des interactions dislocation-boucle, des essais de traction *in-situ* au MET ont été menés dans le cadre de ce travail de thèse à température ambiante et à plus haute température (350-500°C).

L'activation de différents systèmes de glissement a été observée lors de ces essais. Le système de glissement prismatique est le système favorablement activé, en particulier à température ambiante. Il se caractérise par des vitesses de glissement des dislocations de plusieurs centaines de $nm.s^{-1}$. A haute température, le système de glissement pyramidal est thermiquement activé. Le glissement y est plus visqueux, et se caractérise par de nombreux doubles glissements déviés des dislocations à caractère vis. Le système de glissement dans le plan de base n'est activé que dans des cas spécifiques où son facteur de Schmid est important. Le glissement des dislocations est similaire à ce qui est observé pour le glissement pyramidal, avec de longues dislocations vis fortement soumises au double glissement dévié.

Deux types d'interactions ont été observés lors de ces essais : l'ancrage des dislocations sur les boucles et l'absorption des boucles par les dislocations. Ces interactions entraînent dans la majorité des cas un ralentissement du glissement des dislocations, notamment à haute température, et participent au durcissement d'irradiation.

Les dislocations glissant dans les plans prismatiques et dans le plan basal à haute température (350-400°C) sont soumises à des ancrages très nombreux, de type *R1*. Des cas d'ancrage très forts ont également été observés pour les systèmes prismatiques et pyramidaux.

L'absorption des boucles de dislocation a été observée lors du glissement dans les plans prismatiques et pyramidaux à température ambiante et haute température. Ces absorptions peuvent se faire par incorporation des boucles sous la forme de crans (réaction *R3*) ou sous la forme de tours d'hélice (réaction *R4*). Dans les deux cas, des jonctions sessiles temporairement ancrantes sont créées entraînant le ralentissement du glissement des dislocations. Ces interactions sont donc d'une part la preuve qu'il existe bien un mécanisme d'annihilation des boucles, et d'autre part qu'elles sont également directement impliquées dans le durcissement d'irradiation observée macroscopiquement.

Références bibliographiques

[1] F. Onimus, “Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés,” 2003.

[2] P. GEYER, “Comportement elasto-viscoplastique de tubes en zircaloy-4 : approche experimentale et modelisation micromecanique,” 1999.

[3] E. S. Fisher and C. J. Renken, “Single-Crystal Elastic Moduli and the hcp → bcc Transformation in Ti, Zr, and Hf,” *Phys. Rev.*, vol. 135, no. 2A, pp. A482–A494, Jul. 1964.

[4] D. Caillard, M. Rautenberg, and X. Feaugas, “Dislocation mechanisms in a zirconium alloy in the high-temperature regime: An in situ TEM investigation,” *Acta Mater.*, vol. 87, pp. 283–292, Apr. 2015.

[5] J. Drouet, “Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation,” Université de Toulouse, 2014.

[6] J. H. Moon, P. E. Cantonwine, K. R. Anderson, S. Karthikeyan, and M. J. Mills, “Characterization and modeling of creep mechanisms in Zircaloy-4,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 353, no. 3, pp. 177–189, Jul. 2006.

[7] F. Pettinari, A. Couret, D. Caillard, G. Molénat, N. Clément, and A. Coujou, “Quantitative measurements in in situ straining experiments in transmission electron microscopy,” *J. Microsc.*, vol. 203, no. 1, pp. 47–56, 2001.

[8] J. L. Derep, S. Ibrahim, R. Rouby, and G. Fantozzi, “Deformation behaviour of zircaloy-4 between 77 and 900 K,” *Acta Metall.*, vol. 28, no. 5, pp. 607–619, May 1980.

[9] F. Onimus and J.-L. Béchade, “A polycrystalline modeling of the mechanical behavior of neutron irradiated zirconium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 384, no. 2, pp. 163–174, 2009.

[10] J. Ribis *et al.*, “Experimental study and numerical modelling of the irradiation damage recovery in zirconium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 403, no. 1, pp. 135–146, 2010.

[11] D. J. Bacon, Y. N. Osetsky, and D. Rodney, “Dislocation–Obstacle Interactions at the Atomic Level,” in *Dislocations in Solids*, vol. 15, Elsevier, 2009, pp. 1–90.

[12] T. Nogaret, C. Robertson, and D. Rodney, “Atomic-scale plasticity in the presence of Frank loops,” *Philos. Mag.*, vol. 87, no. 6, pp. 945–966, Feb. 2007.

[13] S. J. Zinkle and Y. Matsukawa, “Observation and analysis of defect cluster production and interactions with dislocations,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 329–333, pp. 88–96, Aug. 2004.

Chapitre IV. Etude des interactions dislocation-boucle par Dynamique des Dislocations

Objectif

Les essais de traction *in-situ* ont montré deux types principaux d'interactions dislocation-boucle, à savoir l'ancrage de la dislocation ou l'absorption de la boucle. Bien que les caractéristiques des dislocations impliquées dans les interactions soient généralement connues (plan de glissement et vecteur de Burgers), certains paramètres restent inconnus expérimentalement, notamment en ce qui concernent les boucles. Des simulations par Dynamique des Dislocations des cas d'interaction observés expérimentalement sont alors réalisées afin :
- d'interpréter les observations réalisées expérimentalement
- de déterminer les paramètres manquants ou peu connus
- d'obtenir une meilleure compréhension globale des interactions
- de valider l'outil de Dynamique des Dislocations, permettant, à terme, des simulations prédictives du comportement des matériaux.

Sommaire

I. Principe de la simulation par Dynamique des Dislocations 134
I.1. Modélisations 3D en Dynamique des Dislocations 134
I.2. Le code Numodis 135
I.3. Définition des paramètres de simulation 136
II. Simulations de cas observés expérimentalement 136
II.1. Ancrage d'une dislocation glissant dans un système pyramidal <a> 136
II.2. Absorption de boucles par une dislocation glissant dans un système pyramidal <a> 147
II.3. Ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base 151
Synthèse du chapitre 156
Références bibliographiques 157

I. Principe de la simulation par Dynamique des Dislocations

Lors des essais de traction *in*-situ (Chapitre III), différents types d'interaction dislocation-boucle de type ancrage de la dislocation ou absorption de la boucle ont été observés. Dans l'optique d'une meilleure compréhension de ces interactions, l'outil de Dynamique des Dislocations est utilisé afin de simuler les cas observés expérimentalement. Le principe de la modélisation par Dynamique des Dislocations sera présenté en premier lieu, puis les différentes simulations réalisées seront présentées dans la suite de ce chapitre.

I.1. Modélisations 3D en Dynamique des Dislocations

Dans le cadre d'une approche multi-échelle de la plasticité (Figure IV-1), l'étude du comportement des dislocations à l'échelle mésoscopique (entre le nanomètre et le micron) est devenue essentielle. Pour cela, des simulations numériques par Dynamique des Dislocations (DD) ont été développées. Ces simulations permettent de faire le lien entre les études à l'échelle atomique par Dynamique Moléculaire (DM) qui s'intéressent aux propriétés élémentaires des dislocations et les études à l'échelle macroscopique par éléments finis qui permettent de prédire un comportement plus global du matériau [1].

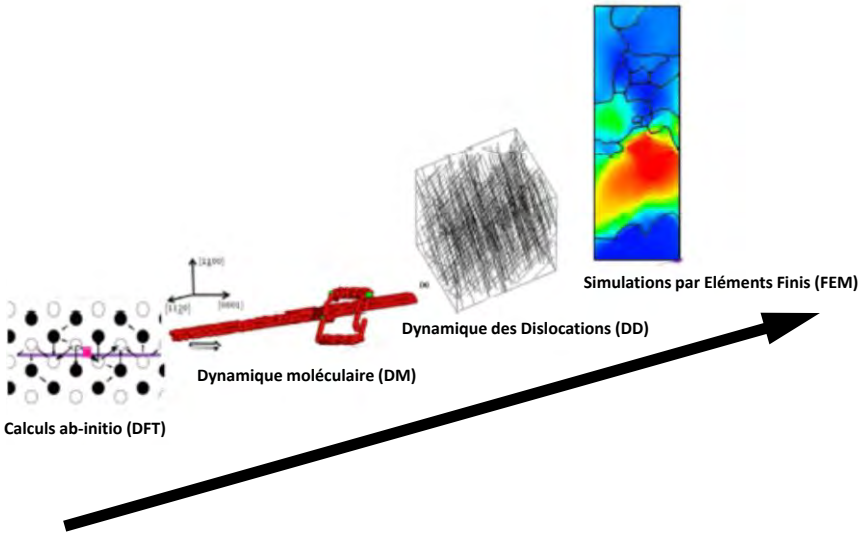


Figure IV-1. Approche multi-échelle de la déformation plastique [2].

Les modélisations par Dynamique des Dislocations 3D sont développées depuis les années 1990 en premier lieu par Kubin et al. [3]. Elles permettent de modéliser de façon assez précise l'évolution d'une ou d'un groupe de dislocations sous l'application d'un chargement mécanique, en prenant en compte les possibles interactions élastiques à longue distance ou de contact entre les dislocations [4], [5]. Les modélisations par Dynamique des Dislocations sont donc tout à fait adaptées pour une étude des interactions entre les dislocations et les boucles induites par l'irradiation. Il existe plusieurs codes de calculs qui se différencient par le type de discrétisation appliqué à la dislocation [5]. Dans le cadre de ce travail, le code utilisé est le code nodal NUMODIS (Numerical Modelling of Dislocations) développé au CEA de Saclay en partenariat avec l'INP de Grenoble, le CNRS de Thiais et l'INRIA de Bordeaux. Ce code est proche, dans son principe, du code nodal Paradis développé au LLNL aux Etats-Unis [4], [6].

I.2. Le code Numodis

Les simulations par Dynamique des Dislocations reposent sur un algorithme dont les étapes principales sont souvent communes aux différents codes (Figure IV-2). Ces différentes étapes de calculs sont décrites de façon détaillée par Drouet [2] et Shi [7] dans le cadre de l'utilisation du code NUMODIS. Chaque dislocation y est tout d'abord discrétisée par une succession de segments rectilignes reliés par des nœuds, chaque segment ayant un sens de parcours, un plan de glissement et un vecteur de Burgers. Il existe deux types de nœuds : les nœuds dit « physiques » qui se trouvent aux extrémités d'une dislocation ou au niveau du point de jonction entre plusieurs dislocations de caractéristiques différentes (plan de glissement et vecteur de Burgers) et les nœuds dit « topologiques » qui permettent la discrétisation de la dislocation entre deux nœuds physiques.

Indépendamment de la discrétisation de la dislocation, les deux premières étapes du calcul consistent en une estimation des contraintes et des forces appliquées aux nœuds. Le calcul de la force s'appliquant sur chaque segment de la dislocation s'effectue dans le cadre de l'élasticité isotrope. Sa principale contribution est la force de Peack-Koehler : $F_{PK} = (\sigma.b)x\xi$, σ est le champ de contrainte local, b est le vecteur de Burgers et ξ est le vecteur unitaire tangent à l'élément. Le champ de contrainte σ comprend les contraintes externes appliquées au matériau et les contraintes internes résultantes des champs élastiques induits par les différents objets (dont les dislocations). L'estimation des forces internes implique dans NUMODIS l'introduction de paramètres élastiques tels que le module de cisaillement isotrope μ et le coefficient de poisson ν, le rayon de cœur de la dislocation a, utilisé dans le cadre de la théorie non singulière des dislocations [8], ainsi qu'un paramètre a_{core} qui attribue une énergie de cœur à chaque dislocation [2], [7]. Une estimation de la valeur de ces deux derniers coefficients a été réalisée par Drouet [2]. Suite à la détermination des forces appliquées aux nœuds, la vitesse de chacun des nœuds est déduite à l'aide des lois de mobilités qui prennent en compte le coefficient de viscosité du plan de glissement. A la suite de l'étape de calcul des vitesses, les nœuds sont déplacés avant un nouveau pas de temps, en prenant soin de gérer les éventuelles collisions ou recombinaisons. Cette étape est réalisée à l'aide d'un algorithme complexe nommé « Split Node » qui détermine alors les différentes configurations possibles d'interactions (jonction ou annihilation) et retient la configuration qui entraîne une dissipation d'énergie la plus importante. Suite à la nouvelle configuration une étape de remaillage est parfois nécessaire avant de passer à un nouveau pas de temps du calcul.

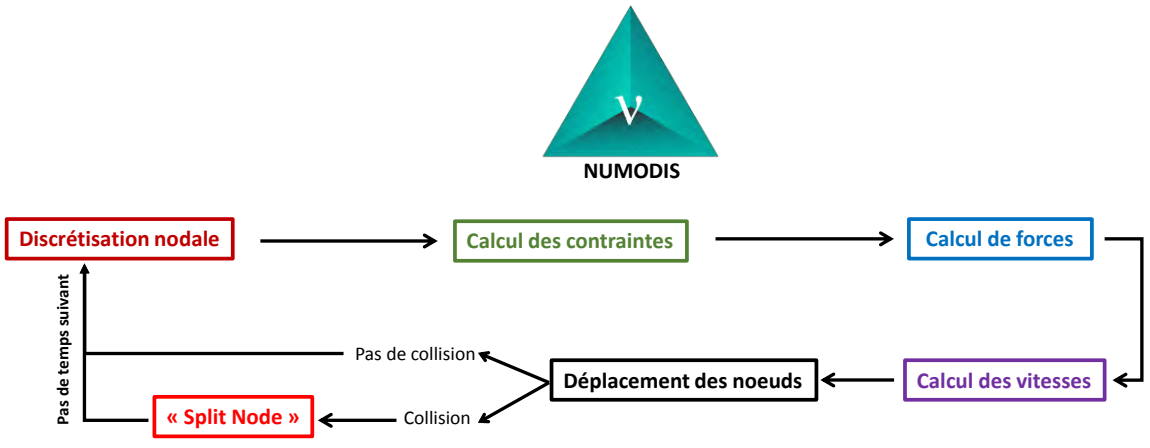


Figure IV-2. Etapes principales du calcul réalisé par le code NUMODIS pour les modélisations en Dynamique des Dislocations.

I.3. Définition des paramètres de simulation

L'objectif des simulations réalisées dans le cadre de cette thèse est de reproduire de façon numérique des interactions dislocation-boucle observées expérimentalement lors des essais de traction *in-situ* (Chapitre III) afin de mieux comprendre les mécanismes d'interaction. Pour cela, l'utilisation de la Dynamique des Dislocations requiert un certain nombre de paramètres d'entrée et de paramètres « ajustables ».

Les paramètres d'entrée sont distingués en différentes catégories et peuvent être définis grâce aux données expérimentales :
1) Les données géométriques et cristallographiques (épaisseur de la lame mince, orientation du grain)
2) Les coefficients élastiques du matériau
3) Les propriétés des dislocations (systèmes de glissement, mobilité)
3) La contrainte externe appliquée
4) Le temps de calcul

Les paramètres « ajustables » des calculs de Dynamique des Dislocations concernent principalement les caractéristiques des boucles de dislocation impliquées dans les interactions observées :
1) Leur position dans la boîte de simulation
2) Leur vecteur de Burgers
3) Leur nature lacunaire ou interstitielle

Dans la suite de ce chapitre, la définition de ces différents paramètres sera décrite de façon précise pour un premier cas de modélisation. D'autres cas seront ensuite présentés de manière plus succincte.

II. Simulations de cas observés expérimentalement

II.1. Ancrage d'une dislocation glissant dans un système pyramidal <a>

II.1.1. Description du cas observé expérimentalement

Les essais de traction *in-situ* réalisés sur des éprouvettes de Zy-4 pré-irradiées aux ions ont permis l'observation de l'ancrage des dislocations sur les boucles présentes au sein de la microstructure. La Figure IV-3 illustre l'un de ces cas d'ancrage, observé lors d'un essai de traction à 400°C. Ce cas est la suite directe d'un premier ancrage (Figure III-23, Chapitre III) impliquant une dislocation glissant dans le plan pyramidal $(10\bar{1}\bar{1})$ et de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. A la suite de cette première interaction, la dislocation se désancre et glisse à une vitesse rapide de 98 nm.s^{-1} (Figure IV-3 a)). Ce glissement est ensuite de nouveau stoppé lors de l'interaction de la partie mixte de la dislocation avec une boucle (Figure IV-3 d)). Le brin inférieur de la dislocation se courbe alors sous l'effet de la contrainte et se déplace parallèlement au vecteur de Burgers de la dislocation (Figure IV-3 e)-f)) et se désancre en entraînant la formation d'une nouvelle boucle lors de l'interaction de ses deux brins (Figure IV-3 g) et h)). La projection stéréographique du grain au tilt d'observation est indiquée en Figure III-23.

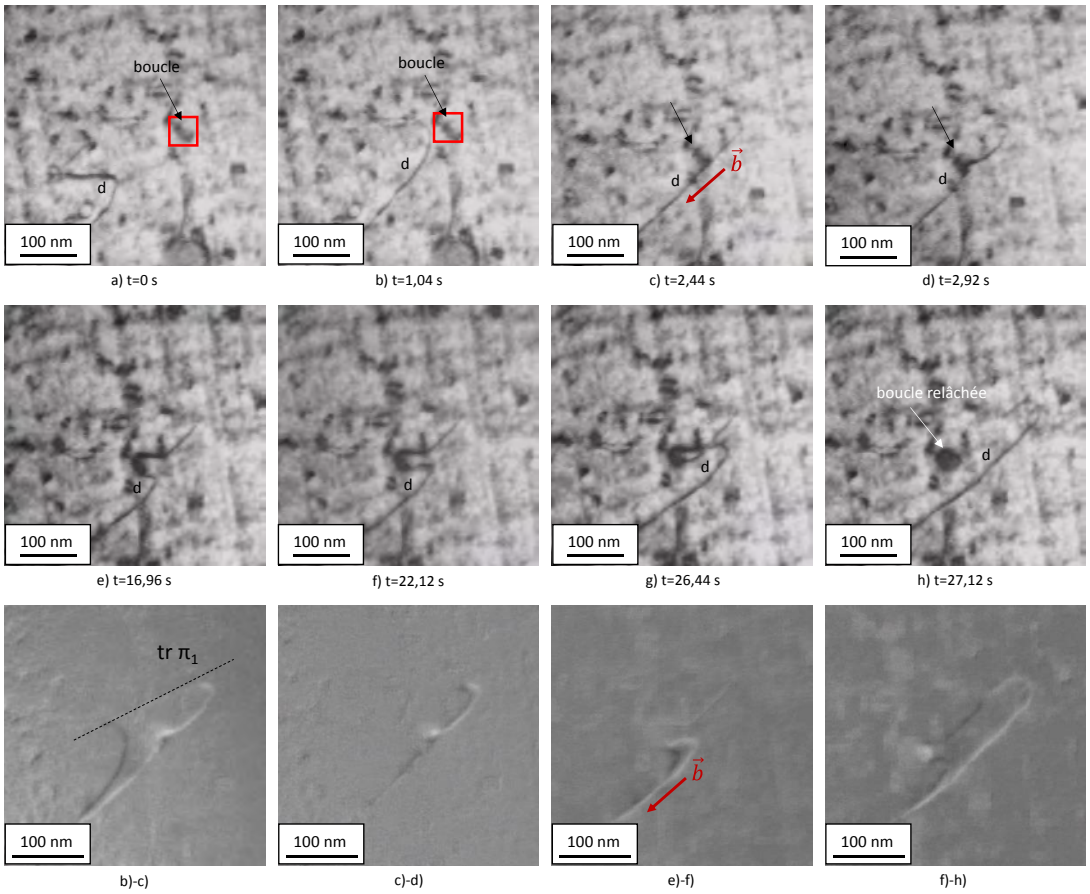


Figure IV-3. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal sur une boucle de dislocation <a> à 400°C.

II.1.2. Définition des paramètres d'entrée

II.1.2.1. Données géométriques et cristallographique

Les dimensions de la boîte de simulation, sous forme d'un parallélépipède (Figure IV-4 a)), ont été choisies afin de respecter au mieux les conditions d'observation lors des essais de traction *in-situ*. Cette boîte est définie par trois axes X, Y et Z, le plan (XY) correspondant au plan de l'image et la direction Z correspondant à la direction du faisceau d'électron. Les dimensions définies selon les axes X et Y ont été choisies suffisamment importantes pour permettre une distance de parcours suffisante de la dislocation (X=600 nm, Y=480 nm). La dimension selon l'axe Z est caractéristique de l'épaisseur de la lame, calculée expérimentalement grâce aux traces de glissement de la dislocation et à l'inclinaison du plan de glissement, selon la méthode donnée au Chapitre III §I.1.1. La valeur mesurée de l'épaisseur du grain dans ce cas spécifique est estimée comprise entre 240 nm et 322 nm. Les calculs en Dynamique des Dislocations permettent, à l'aide des données cristallographiques, de générer la trace du plan de glissement de la dislocation, qui peut être directement comparée à la trace de la dislocation observée expérimentalement. La valeur de l'épaisseur mesurée peut alors être réajustée. Dans le cas décrit ici, une bonne correspondance entre les traces de la dislocation et les traces du plan générées en DD conduit à une épaisseur de 250 nm. La Figure IV-4 b) illustre la bonne correspondance géométrique et cristallographique entre l'expérience et la simulation par Dynamique des Dislocations. Les images de modélisations sont visualisées grâce au logiciel Paraview [9], [10].

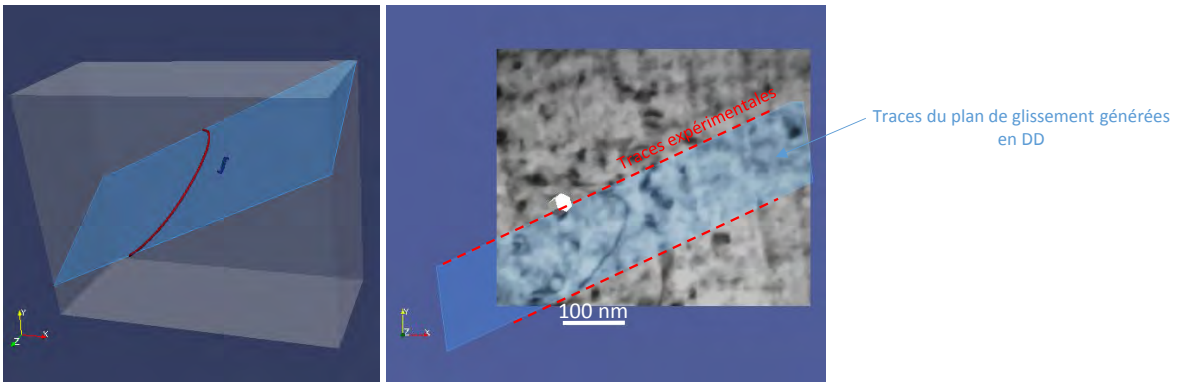


Figure IV-4. a) Boîte de simulation en Dynamique des Dislocations b) Vérification de la correspondance des traces après avoir renseigné les données géométriques et cristallographiques.

L'orientation cristallographique du grain est obtenue expérimentalement lors des essais de traction *in-situ*. La projection stéréographique associée permet d'obtenir, à tilt nul, les angles d'Euler caractéristiques de cette orientation et de les renseigner pour les calculs en DD. Afin de réaliser les modélisations dans des conditions semblables à celles connues lors des essais, il est également possible de renseigner l'angle de tilt appliqué lors des observations expérimentales, qui va entraîner une inclinaison de la boîte de simulation autour de l'axe Y, correspondant à l'axe de tilt et d'application de la contrainte de traction.

Le plan de glissement de la dislocation ainsi que son vecteur de Burgers ont également été déterminés expérimentalement et sont indiqués pour les calculs en Dynamique des Dislocations.

II.1.2.2. Coefficients élastiques

La détermination de la contrainte appliquée s'effectue à l'aide du logiciel DISDI (Chapitre III) dans le cadre de l'élasticité linéaire anisotrope. Les coefficients élastiques utilisés sont donnés par Fisher et Renken [11] et leurs valeurs à 350°C sont les suivantes : C_{11}=1,278.10^2 GPa, C_{12}=0,793.10^2 GPa, C_{33}=1,543.10^2 GPa, C_{13}=0,658.10^2 GPa et C_{44}=0,276.10^2 GPa. Dans le cadre de nos simulations en DD, la théorie de l'élasticité isotrope est adoptée. Il est donc nécessaire de calculer les coefficients d'élasticité équivalents en élasticité isotrope. Pour cela, une moyenne de Voigt a été effectuée [12]. Les valeurs des coefficients obtenues sont données au Tableau IV-1.

Tableau IV-1. Définition des coefficients élastiques du zirconium à 350°C, moyennés dans le cadre d'un modèle d'élasticité isotrope.

Coefficient de Lamé λ (GPa)	Module de cisaillement μ (GPa)	Module d'Young E (GPa)	Coefficient de poissonv
73	29,2	79	0,36

II.1.2.3. Coefficient de viscosité

Le coefficient de viscosité a été déterminé lors de l'analyse des essais de traction *in-situ* dans le cas du glissement prismatique à 350°C, et dans le cas du glissement pyramidal à 400°C. Des valeurs d'environ 0,2 MPa.s et 0,4 MPa.s ont été déterminées expérimentalement, respectivement dans le plan prismatique et pyramidal. Drouet [2] estime ce coefficient également à 0,3 MPa.s pour les plans pyramidaux à 500°C. Une valeur moyenne de 0,3 MPa.s sera alors considérée pour les deux systèmes de glissement. Cependant, la vitesse des dislocations glissant dans les plans pyramidaux semblant être inférieure à celle des dislocations glissant dans les plans prismatiques, il est possible que la valeur de ce coefficient, déterminée expérimentalement de façon ponctuelle, ait été respectivement sous-estimée ou surestimée. Il est donc raisonnable d'ajuster les valeurs du coefficient de viscosité lors des simulations en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation et de la contrainte appliquée. Ce coefficient n'a cependant pas pu être déterminé pour le plan de base. Le glissement dans le plan de base ayant été très peu observé, il est possible de considérer que ce dernier est difficilement activable. Ainsi, un coefficient de viscosité plus important de 1 MPa.s sera ainsi appliqué pour les simulations du glissement dans le plan de base.

II.1.2.4. Définition du chargement

Lors du glissement d'une dislocation, la contrainte résolue dans son plan de glissement τ est définie comme la somme de la tension de ligne τ_l et de la contrainte de friction τ_f (Eq. III-5). La valeur de la tension ligne peut être déterminée à l'aide du logiciel DISDI, et en connaissant le coefficient de viscosité du plan et la vitesse de glissement de la dislocation, il est possible de déterminer τ_f (Eq. III-6). Le facteur de Schmid, permet ensuite de relier la contrainte de traction σ_T à la contrainte résolue τ selon la relation :

$$\tau = \sigma_T . cos\theta . cos\chi \qquad \textbf{Eq. IV-1}$$

avec θ l'angle entre la normale au plan et la direction de traction et χ l'angle entre la direction de glissement et la direction de traction

Dans notre cas, la contrainte τ a été estimée pour un coefficient de viscosité du plan pyramidal de 0,3 MPa.s et mène a une valeur de σ_T de 158 MPa.

II.1.2.5. Détermination du temps de calcul

Afin de synchroniser les images du film expérimental et de la simulation en DD, il est important de coordonner certains paramètres tels que le pas de temps, le nombre de sauvegardes entre chaque pas de temps et le nombre de pas total.

Le pas de temps est fixé à une valeur de 4.10^{-4} s [2] lors des simulations par Dynamique des Dislocations. Il permet d'assurer la stabilité numérique du calcul tout en limitant le nombre de pas de calcul à effectuer. La durée du film expérimental est connue et la fréquence d'enregistrement appliquée lors des enregistrements vidéo des essais de traction *in-situ* est de 25 images.s^{-1}. La fréquence de sauvegarde appliquée lors des simulations est choisie de manière à rester cohérent avec la fréquence d'enregistrement des films *in-situ*, soit une sauvegarde tous les 100 pas.

II.1.3. Définition des paramètres ajustables

Les principaux paramètres ajustables des modélisations concernent la boucle de dislocation impliquée dans l'interaction observée expérimentalement. NUMODIS permet de modéliser ces objets comme des dislocations carrées ou octogonales dont les paramètres sont : leur taille, leur position, leur vecteur de Burgers et leur caractère lacunaire ou interstitiel.

Expérimentalement, il est possible d'obtenir des informations telles que le diamètre des boucles et leur position dans le plan de l'image (plan XY en DD). Cependant leur position dans l'épaisseur de la lame (selon l'axe Z) reste inconnue, et constitue un paramètre ajustable lors des simulations.

Comme cela a été démontré lors du chapitre précédent, l'occurrence des interactions dislocation-boucle lors des essais de traction *in-situ* est faible. Il est ainsi difficile d'entreprendre une caractérisation des boucles de la microstructure. De plus l'utilisation d'un porte-objet simple tilt rend également difficile l'analyse du vecteur de Burgers et de la nature des boucles. Concernant ce dernier point, une étude fine réalisée après irradiation aux ions a montré que les boucles de dislocation analysées étaient toutes de nature interstitielle (Chapitre II). Il est toutefois possible, et donc intéressant, de vérifier ce point à travers les simulations, en testant numériquement pour quelle nature de boucle (lacunaire ou interstitielle) l'interaction est la plus représentative de l'observation expérimentale. De nombreux calculs ont donc été réalisés en faisant varier ces différentes caractéristiques de la boucle, jusqu'à l'obtention d'une interaction cohérente avec l'expérience.

II.1.4. Comparaison des résultats de la simulation avec le cas d'ancrage expérimental

II.1.4.1. Caractéristiques de la boucle de dislocation

Les vecteurs de Burgers des différents objets sont matérialisés par les flèches et un code couleur correspondant au plan d'appartenance des différents segments a été défini : rouge pour le plan de base, vert pour les plans prismatiques et bleu pour les plans pyramidaux. La boucle de dislocation est modélisée par un objet carré comprenant deux brins dans un plan prismatique et deux brins dans le plan de base. Après plusieurs essais, la nature de la boucle a été déterminée comme étant interstitielle et le vecteur de Burgers retenu pour la boucle est un vecteur identique à celui de la dislocation : $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$. La Figure IV-5 démontre que pour les deux autres vecteurs de Burgers <a> possibles (images c) et d)), les interactions ne correspondent pas à ce qui est observé expérimentalement. Dans le cas c), la formation d'un cran identique à celui de l'expérience n'est pas observée, et la boucle est totalement absorbée par la dislocation sous la forme d'un tour d'hélice qui s'étend le long de la ligne de dislocation. Dans le cas d) l'interaction entre la boucle et la dislocation est très faible et le glissement de cette dernière n'est ralenti que pour un court instant. La boucle reste inchangée après le passage de la dislocation.

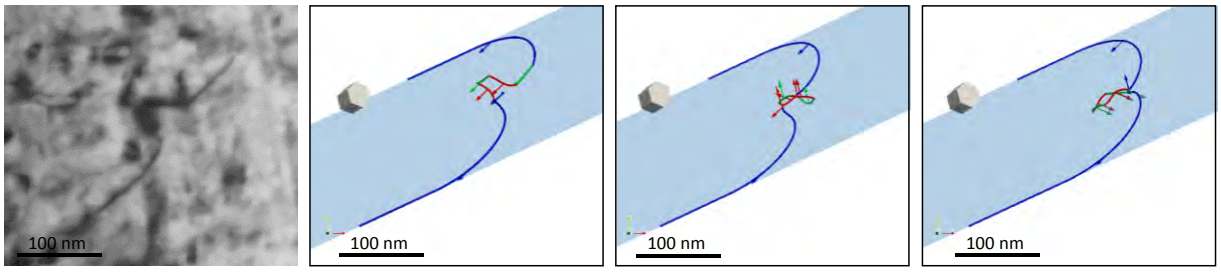


Figure IV-5. Modélisation des interactions obtenues en fonction des différents vecteurs de Burgers de la boucle interstitielle a) cas expérimental b) $\vec{\mathbf{b}} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$ (cas retenu) c) $\vec{\mathbf{b}} = \frac{1}{3}[11\bar{2}0]$ et d) $\vec{\mathbf{b}} = \frac{1}{3}[\bar{2}110]$.

Lors des différents calculs, il a été observé que la contrainte appliquée avait un effet sur les boucles et entraînait un changement important de leur orientation, dû à leur glissement le long de leur cylindre. Cependant lors des essais de traction, un tel mouvement des boucles n'est pas observé. Une explication possible pour expliquer le blocage des boucles de dislocation observé expérimentalement est liée au phénomène de vieillissement dynamique. En effet, les essais de traction *in-situ* sont réalisés pour une gamme de températures allant de 350°C à 500°C. Pour des températures similaires, allant de 300 à 400°C [13], le Zircaloy-4 est soumis au phénomène DSA (Dynamic Strain Aging) qui se traduit, lors d'essais de traction, par la présence d'un plateau athermique lors de l'étude de l'évolution de la contrainte d'écoulement en fonction de la température [14], [15]. Au niveau microscopique, la présence de ce plateau athermique s'explique par une mobilité des solutés, et en particulier des atomes d'oxygène, activée par la température, qui font obstacles au mouvement des dislocations [14]–[16]. Les solutés ségrégent sous la forme de nuages de Cottrel qui bloquent les dislocations [17]. Picu [18] propose un mécanisme impliquant la ségrégation des solutés autour des dislocations de la forêt, immobiles. Chaari et al. [19] démontrent également par des modélisations *ab-initio* un effet des atomes d'oxygène, qui migrent vers les dislocations vis <a> entraînant leur piégeage dans une configuration sessile. Il est donc probable que les boucles de dislocation soient également bloquées par un nuage de solutés pour les gammes de températures appliquées lors des essais, comme observé en particulier lors du vieillissement statique [15], [20], [21]. Afin de permettre ce blocage des boucles lors des calculs en Dynamique des Dislocations, les coefficients de viscosité des plans d'appartenance des différents brins de la boucle ont été augmentés. Ainsi, un coefficient de viscosité de 3 MPa.s a été appliqué dans le plan prismatique (au lieu des 0,3 MPa.s déterminé expérimentalement) et un coefficient de 30 MPa.s est choisi dans le plan de base. Cet ajustement permet de mieux rendre compte les observations expérimentales de faible mobilité des boucles.

II.1.4.2. Résultats de la simulation en Dynamique des Dislocations

Lors de la simulation DD, l'interaction entre la dislocation glissant dans le plan pyramidal et la boucle carrée est très proche de ce qui est observé expérimentalement. La Figure IV-6 illustre l'interaction dislocation-boucle observée expérimentalement (à gauche) et la simulation la plus adéquate en DD (à droite) pour de mêmes étapes d'interaction. Le temps d'occurrence de chacune de ces étapes est indiqué à chaque fois pour le cas expérimental et le cas de modélisation en DD.

L'orientation du grain est représentée de façon schématique en DD par un prisme hexagonal donnant la direction des axes de la maille hexagonale et des plans de glissement. La description de l'interaction, détaillée ci-dessous, est également copiée sous l'illustration de la Figure IV-6 pour des facilités de lecture.

La courbure de la dislocation obtenue en DD est d'une part tout à fait comparable à celle observée expérimentalement, avant, pendant et après l'interaction. Grâce à la modélisation, il est possible de mieux comprendre le mécanisme d'ancrage de la dislocation. La dislocation interagit avec le brin prismatique inférieur de la boucle entraînant l'absorption de ce dernier et la formation d'un super cran le long de la partie mixte de la dislocation (image C)). Les segments obtenus à la suite de cette interaction sont donc composés de deux brins dans le plan prismatique et de deux brins dans le plan de base qui sont fortement ancrants pour la dislocation, une faible mobilité ayant été appliquée dans ces plans (image D)). Le glissement de la partie supérieure de la dislocation est fortement ralenti. La partie inférieure, bien qu'également ralentie, continue de glisser parallèlement à son vecteur de Burgers (images D) à F)). Cette partie inférieure se referme ensuite sur un brin du cran compris dans le plan prismatique ce qui entraîne la création d'une nouvelle boucle et permet de nouveau le glissement de la dislocation (images G) et H)).

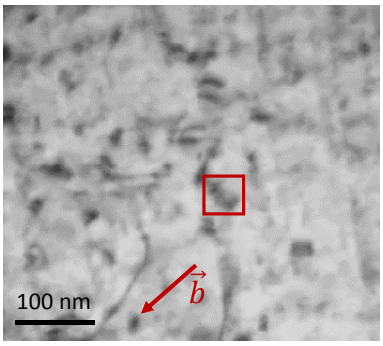
II.1.4.3. Cinétique de glissement de la dislocation

En termes de mécanisme, les résultats obtenus en DD semblent bien correspondre au cas observé expérimentalement. Le temps de référence t=0 s, illustré sur les images a) et A), est choisi avant l'interaction, pour un même stade d'avancée de la dislocation entre l'expérience et la simulation en DD. Concernant la cinétique de glissement, il existe un bon accord global entre la vitesse de glissement de la dislocation obtenue expérimentalement et celle obtenue par simulation. En effet, la formation du cran le long de la dislocation survient avec une différence de quelques millièmes de secondes (images c) et C)). Egalement, quelques secondes seulement (environ 3 s) séparent l'observation du désancrage dans l'expérience par rapport à la simulation DD.

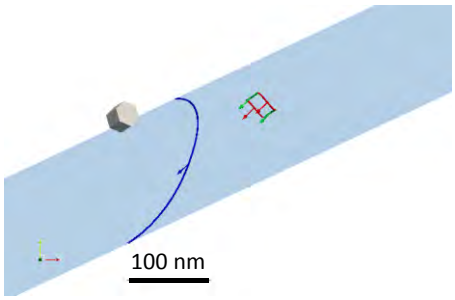
Une différence de cinétique est cependant observée lors du déroulement de l'interaction. En effet, l'ancrage semble avoir un effet plus important dans le cas expérimental que dans le cas simulé en DD. Le glissement de la partie inférieure de la dislocation est plus difficilement activable expérimentalement et n'est visible sur l'image e) qu'à 19,48 s alors que ce même état est observable à 8 s lors des simulations par DD, soit une différence de 11,48 s. Au contraire l'interaction entre le brin inférieur de la dislocation et le brin prismatique de la jonction (images g) et G)) surviendra plus rapidement pour le cas expérimental (à 25,88 s) que lors de la simulation en DD (à 28 s).

La différence de cinétique peut tout d'abord s'expliquer par la non prise en compte en DD des effets des solutés, qui, comme décrit précédemment, peuvent agir comme obstacles au glissement des dislocations. De plus, la simulation en DD ne prend en compte que la dislocation et la boucle qui interagissent, négligeant l'influence des autres dislocations ou boucles. De plus les forces images liées à la taille finie du volume étudié sont ici également négligées. Enfin, les lois de mobilité utilisées lors des calculs DD sont des lois visqueuses linéaires, simplifiées, ce qui peut expliquer la différence de cinétique observée entre l'expérimental et le cas simulé en DD.

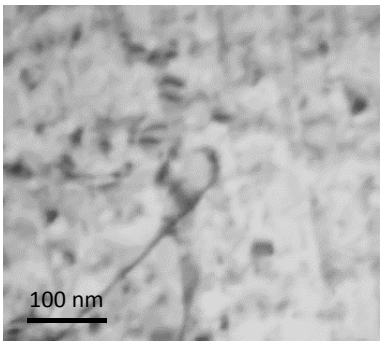
Une solution possible pour améliorer l'accord entre expérience et simulation est d'introduire un coefficient de viscosité pour le système pyramidal qui soit dépendant du caractère vis ou coin de la dislocation. Afin d'obtenir, par exemple, une cinétique plus proche au début de l'interaction, la vitesse de glissement de la partie inférieure de la dislocation doit être diminuée dans le cas des modélisations DD. Cette partie inférieure est notamment composée d'une section de nature coin qui glisse dans la direction du vecteur de Burgers. Le coefficient de viscosité des parties vis de la dislocation a donc été augmenté à 0,5 MPa.s, et celui des parties coin est maintenu à 0,3 MPa.s. Ce cas précis sera illustré en annexe (Annexe C). La cinétique de glissement de la partie inférieure de la dislocation obtenue en DD est plus proche de l'expérience. En effet, la différence de temps entre les états observables sur l'image expérimentale e) et l'image obtenue en simulation E) n'est plus que de 6,64 s (contre 11,48 s dans le cas où le coefficient de viscosité est identique pour les parties vis et coins).



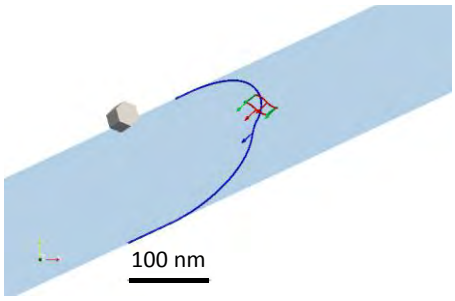
a) t=0 s



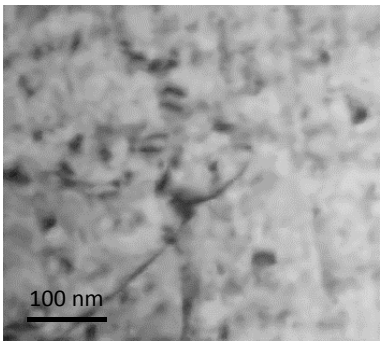
A) t=0 s



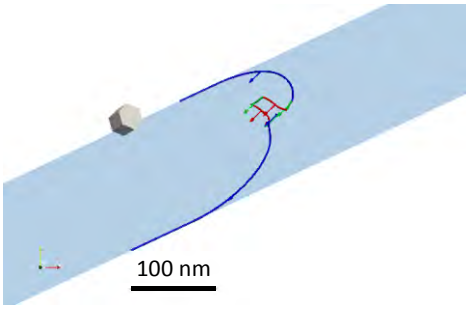
b) t=1,16 s



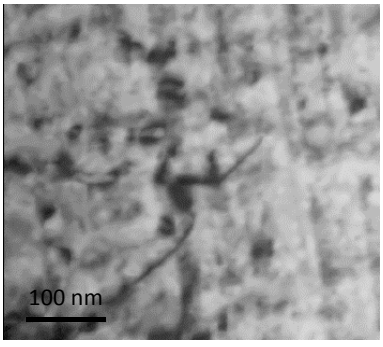
B) t=2 s



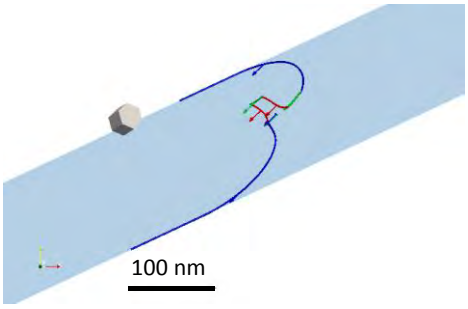
c) t=2,64 s



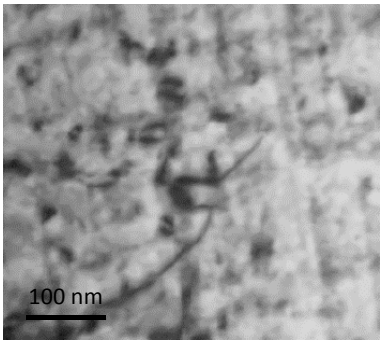
C) t=2,8 s



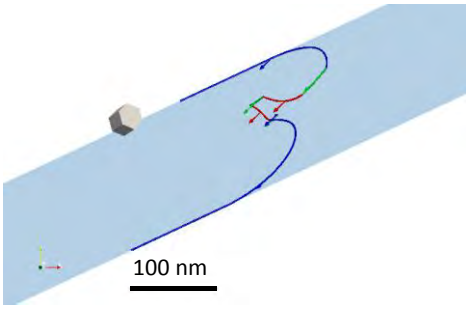
d) t=12,44 s



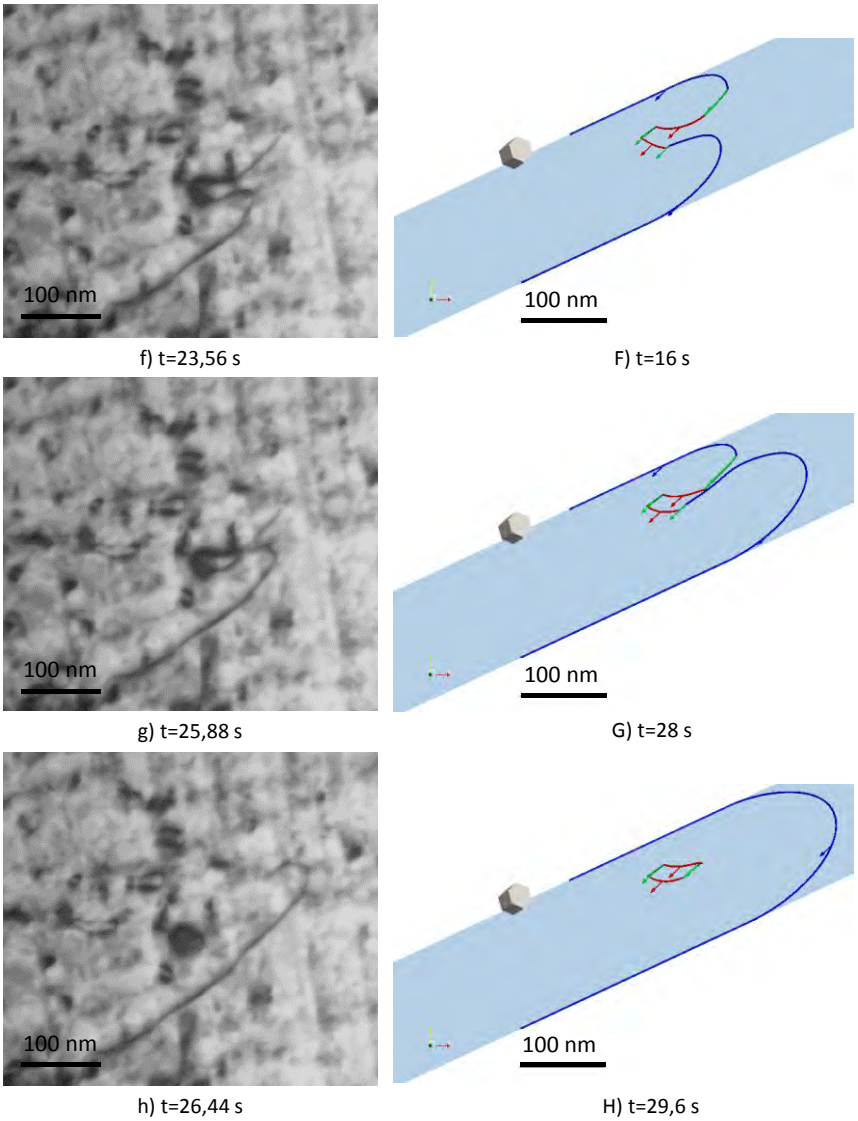
D) t=3,6 s



e) t=19,48 s



E) t=8 s



Comparaison expérimental-DD:
La courbure de la dislocation obtenue en DD est d'une part tout à fait comparable à celle observée expérimentalement, avant, pendant et après l'interaction. Grâce à la modélisation, il est possible de mieux comprendre le mécanisme d'ancrage de la dislocation. La dislocation interagit avec le brin prismatique inférieur de la boucle entraînant l'absorption de ce dernier et la formation d'un super cran le long de la partie mixte de la dislocation (image C)). Les segments obtenus à la suite de cette interaction sont donc composées de deux brins dans le plan prismatique et de deux brins dans le plan de base qui sont fortement ancrants pour la dislocation, une faible mobilité ayant été appliquée dans ces plans (image D)). Le glissement de la partie supérieure de la dislocation est fortement ralenti. La partie inférieure, bien qu'également ralentie, continue de glisser parallèlement à son vecteur de Burgers (images D) à F)). Cette partie inférieure se referme ensuite sur un brin du cran compris dans le plan prismatique ce qui entraîne la création d'une nouvelle boucle et permet de nouveau le glissement de la dislocation (images G) et H)).

Figure IV-6. Simulation d'une interaction d'ancrage entre une dislocation glissant dans un plan pyramidal et une boucle de dislocation ayant des vecteurs de Burgers identiques (angles d'Euler en radians à tilt nul : φ_1= 0,994, ϕ=2,548, φ_2=1,937 et angle de tilt : 0,0698).

II.2. Absorption de boucles par une dislocation glissant dans un système pyramidal <a>

II.2.1. Description du cas expérimental

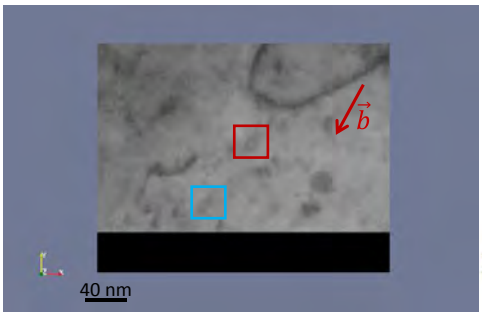
Le cas d'absorption des boucles simulé ici, et illustré en Figure IV-7, a été observé expérimentalement lors de la thèse de Drouet [2]. Il implique une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 350°C et de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[2\bar{1}\bar{1}0]$. La vitesse de glissement avant l'interaction de la dislocation est d'environ 2,2 nm.s^{-1}. La dislocation interagit avec deux boucles de dislocation (encadrées en rouge et en bleu sur l'image a) de la Figure IV-7). Lors de leur interaction avec la dislocation, les deux boucles sont absorbées entraînant la formation de crans, fortement ancrants pour le glissement, qui sont entraînés dans la direction du vecteur de Burgers de la dislocation et qui s'étendent ensuite le long de la partie vis de la dislocation.

II.2.2. Caractéristiques des boucles de dislocation

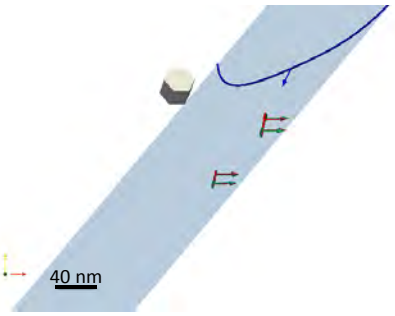
Le vecteur de Burgers de chacune des boucles a été déterminé en testant systématiquement tous les vecteurs <a> possibles. La configuration permettant la meilleure correspondance entre l'expérience et la simulation par DD est obtenue pour des boucles de nature interstitielle présentant un vecteur de Burgers différent de celui de la dislocation : $\vec{b} = \frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}0]$.

Afin de bloquer le glissement des boucles le long de leur cylindre, des coefficients de viscosité importants ont été appliqués dans le plan prismatique et dans le plan de base, soit des valeurs respectives de 1 MPa.s dans le plan prismatique et de 10 MPa.s dans le plan de base.

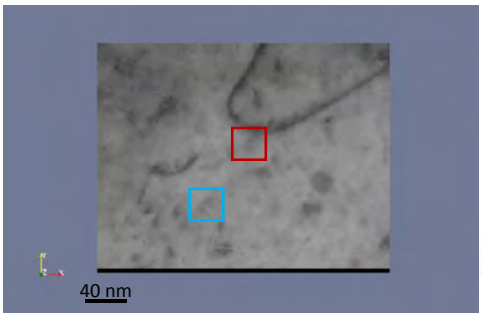
La concordance entre les traces de la dislocation, très nettes expérimentalement, avec les traces du plan de glissement en DD est très satisfaisante. Cependant au cours du glissement, un léger décalage est remarqué quant à la direction de glissement de la dislocation obtenue lors des simulations par DD par rapport à l'expérience. Ce décalage implique alors d'appliquer certaines corrections géométriques, notamment en ce qui concerne la position des boucles. Expérimentalement, l'interaction entre la première boucle et la dislocation a lieu sur la partie mixte de cette dernière. Hors, lors des simulations par Dynamique des Dislocations, si la boucle est positionnée dans le plan (XY), comme déterminé expérimentalement, l'interaction se fera avec la partie coin de la dislocation. Il est donc nécessaire de décaler la boucle à droite de la boite de simulation, selon l'axe X, d'environ 40 nm, afin que la boucle interagisse avec la partie mixte de la dislocation. Pour cette même raison la seconde boucle a également été décalée par rapport à sa position réelle.



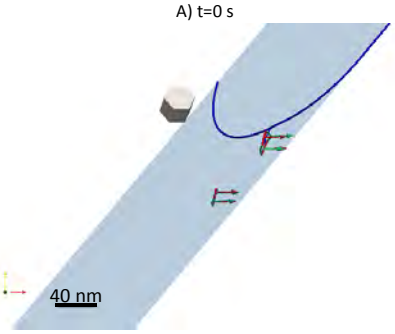
a) t=0 s



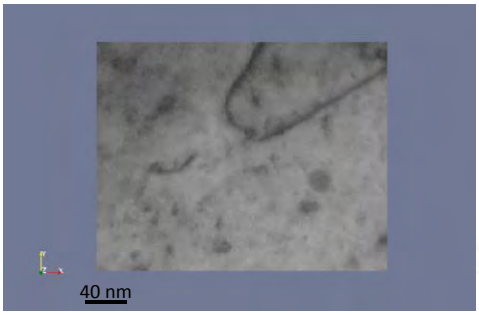
A) t=0 s



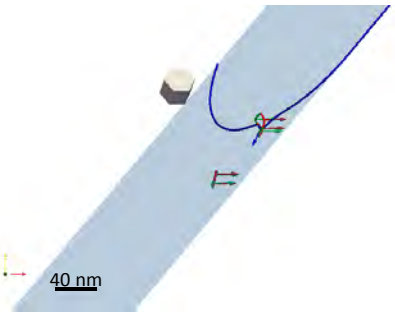
b) t=12 s



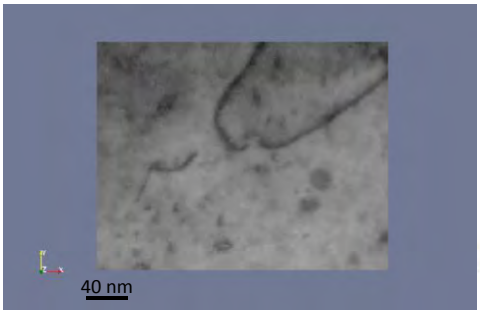
B) t=12 s



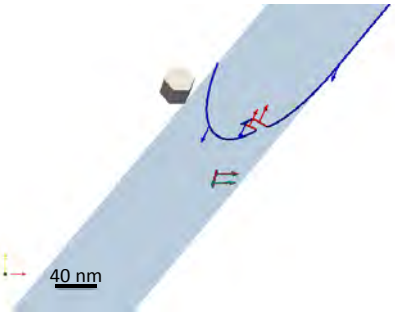
c) t=16 s



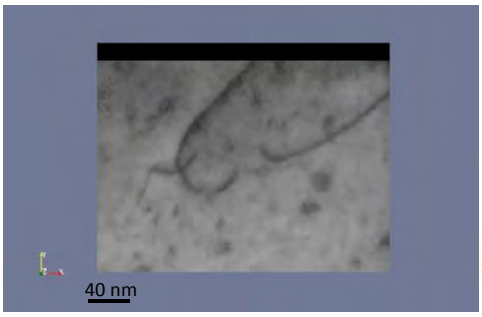
C) t=16 s



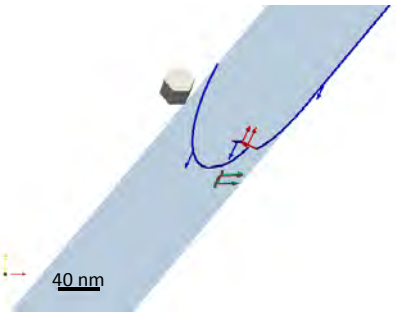
d) t=35,72 s



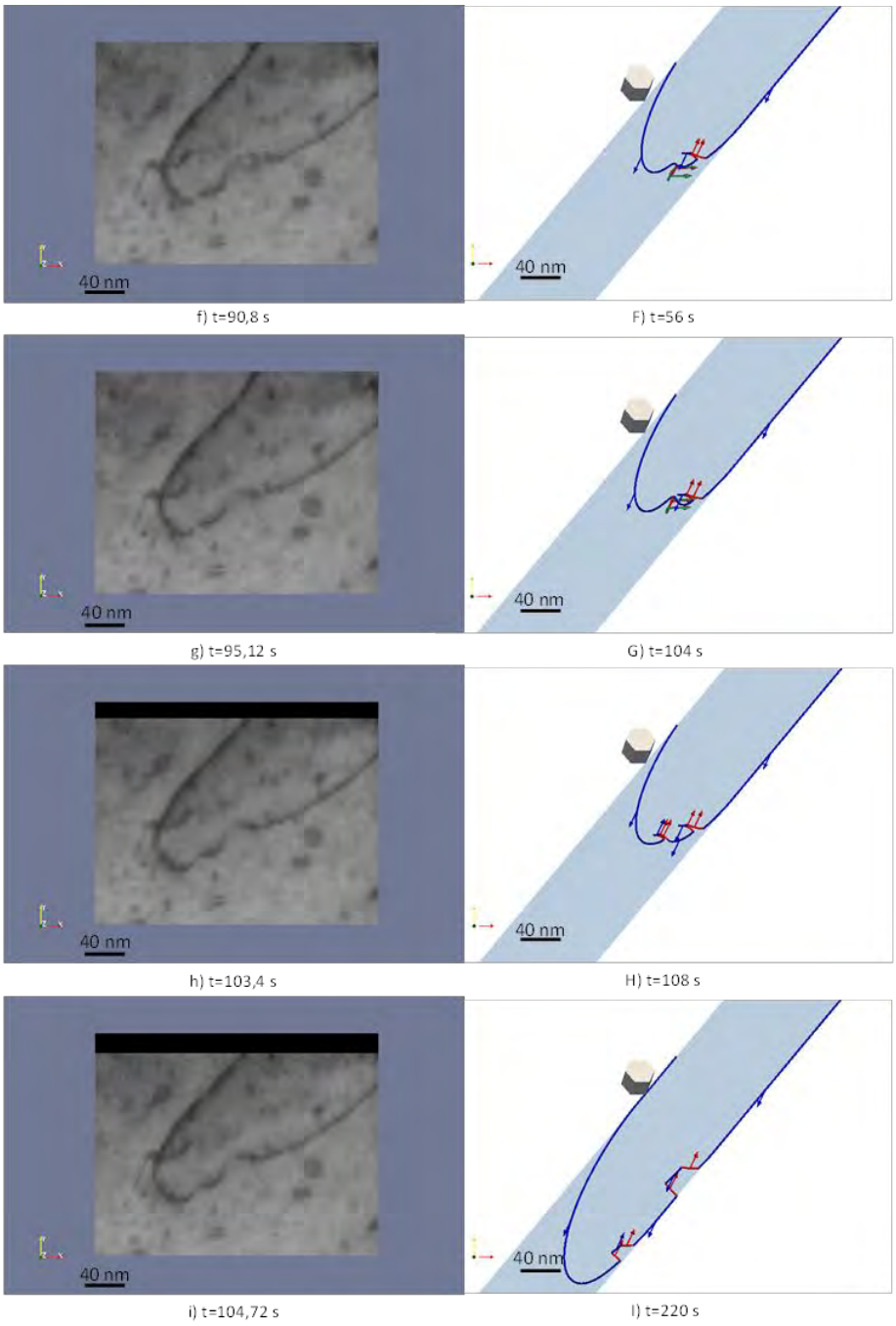
D) t=20 s



e) t=80 s



E) t=36 s



Comparaison expérimental-DD:
L'interaction obtenue en simulation entre la dislocation et les boucles est très proche de ce qui est observé expérimentalement. La courbure de la dislocation est également tout à fait comparable, notamment avant l'interaction (images a) et A)). La partie mixte de la dislocation interagit avec le brin prismatique inférieur de la première boucle de dislocation (images B) et C)). La boucle est alors absorbée par la dislocation et un cran est créé le long de la partie vis de la dislocation, composé de deux brins ancrants dans le plan de base (images C) à E)). Contrairement à ce qui est observé lors de l'essai de traction in-situ, le cran ne s'étend pas autant en DD, mais est trainé par la dislocation le long de son cylindre (images E) et F)). Le même type d'interaction est observé avec la deuxième boucle, menant à la formation d'un second cran identique au premier (images F) à I)). A la suite de cette seconde interaction, l'étalement des crans est constaté, menant à une forme de la dislocation très proche de celle observée expérimentalement (images i) et I)).

Figure IV-7. Simulation d'une interaction d'absorption de boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal et de vecteur de Burgers différents (angles d'Euler en radians à tilt +11° : φ_1=2,88, ϕ =0,593 et φ_2=0,942).

II.2.3. Comparaison des modélisations en DD avec le cas expérimental

La comparaison entre l'interaction expérimentale et la simulation en Dynamique des Dislocations est présentée en Figure IV-7, pour des stades comparables. Tout comme pour le cas précédent, la simulation par DD démontre que, pour les paramètres retenus, l'interaction entre la dislocation et les boucles est très proche de ce qui est observé expérimentalement. La courbure de la dislocation est également tout à fait comparable, notamment avant l'interaction (images a) et A)).

La partie mixte de la dislocation interagit avec le brin prismatique inférieur de la première boucle de dislocation (images B) et C)). La boucle est alors absorbée par la dislocation et un cran est créé le long de la partie vis de la dislocation, composé de deux brins ancrants dans le plan de base (images C) à E)). Contrairement à ce qui est observé lors de l'essai de traction *in-situ*, le cran ne s'étend pas autant en DD, mais est trainé par la dislocation le long de son cylindre (images E) et F)). Le même type d'interaction est observé avec la deuxième boucle, menant à la formation d'un second cran identique au premier (images F) à I)). A la suite de cette seconde interaction, l'étalement des crans est constaté, menant à une forme de la dislocation très proche de celle observée expérimentalement (images i) et I)).

Hirsch [22] propose un mécanisme d'absorption des boucles circulaires par une dislocation vis sous la forme de crans, basé sur la possibilité qu'ont les boucles à glisser sur leur cylindre et à adopter le même vecteur de Burgers que la dislocation. Foreman et Sharp [23] ont également proposé un mécanisme similaire pour l'absorption des boucles par une dislocation. La Figure IV-8 présente de façon schématique le mécanisme proposé (images a) à e)) et également une comparaison avec la réaction observée lors des simulations (images A à E)). Pour le mécanisme de Foreman et Sharp, la dislocation D glisse vers la boucle B (images a) et b)) et forme une jonction notée J (image c)). La jonction J et la boucle B s'inclinent ensuite selon leur cylindre de glissement (image d)) et se combinent pour former un segment de même vecteur de Burgers que la dislocation D (image e)). L'interaction obtenue lors des simulations (images A) à E)) montre un mécanisme tout à fait comparable. Cependant, l'étape décrite en image c) n'est pas observée lors de la simulation, où l'on passe directement de l'étape b) du mécanisme théorique (image B)) à l'étape d) (images C) et D)). La jonction J glisse dans son plan, et la boucle pivote sur son cylindre pour se retrouver dans le plan de glissement de la jonction. Une réaction entre la jonction et un des brins prismatiques de la boucle est alors possible (images D)), entraînant la formation d'un cran de même vecteur de Burgers que la dislocation (image E)).

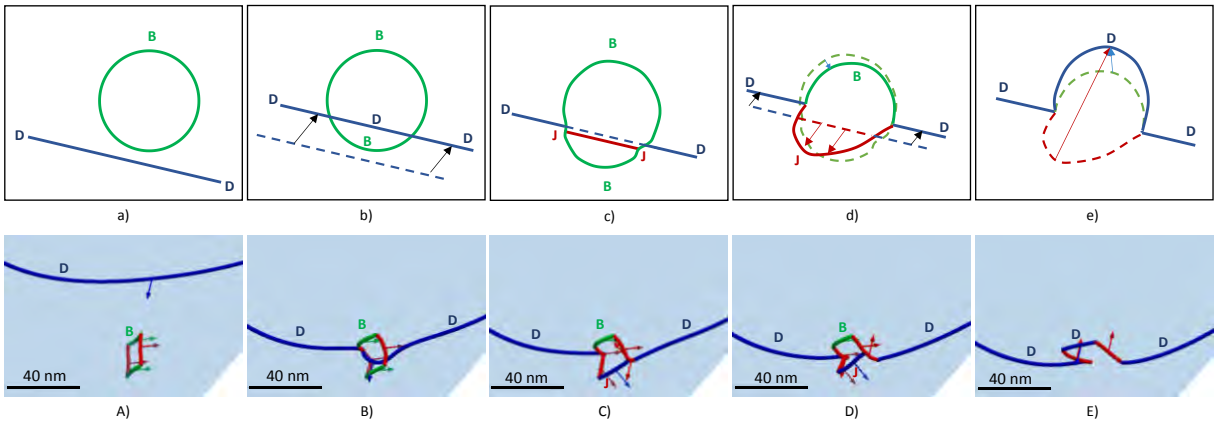


Figure IV-8. Mécanisme d'absorption d'une boucle L par une dislocation G [23] et comparaison avec l'interaction obtenue lors des simuations.

En termes de cinétique, les paramètres initialement imposés étaient cohérents avec les déterminations expérimentales, soit un coefficient de viscosité du plan pyramidal de 0,3 MPa.s et une contrainte calculée de 95 MPa. Cependant, pour ces paramètres, la vitesse de glissement de la dislocation obtenue en DD était trop importante en comparaison à la vitesse expérimentale. Il a donc été décidé d'ajuster la valeur du coefficient de viscosité afin d'atteindre des cinétiques de glissement plus proches. En conséquence, il est nécessaire de ré-estimer la contrainte de friction τ_f, et donc la contrainte appliquée σ_T (Eq. III-6). Il a été choisi de faire correspondre la vitesse de la dislocation en DD avec l'expérience avant l'interaction avec la première boucle, où la vitesse de la dislocation a été déterminée comme étant très faible à 2,2 nm.s^{-1}. La valeur du coefficient réajustée est de 3 MPa.s^{-1}, soit dix fois plus grande que la valeur initialement estimée. La contrainte appliquée recalculée pour ce coefficient de viscosité est alors de 124 MPa. Dans ces conditions, les vitesses de glissement de la dislocation obtenues entre la DD et l'expérimental avant l'interaction sont tout à fait en accord, comme illustré en Figure IV-7 des images a) et A) à c) et C). Il subsiste cependant encore une différence de cinétique lors des interactions de la dislocation avec les boucles. En effet, la force d'ancrage de la première jonction semble plus importante dans le cas des observations expérimentales où la formation du cran n'est observée qu'après 35,72 s, alors qu'elle est observée après 20 s en simulation en DD. De plus l'interaction avec la seconde boucle et la formation d'un cran ne survient qu'après 90,8 s dans l'expérience. Au contraire, une interaction élastique entre la dislocation et la boucle est déjà observable dès 56 s en DD. Cependant le cran est formé pour des temps plus longs (après 180 s) et l'étalement de ces derniers le long de la partie vis est très lent.

II.3. Ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base

II.3.1. Rappel du cas expérimental

Les essais de traction *in-situ* ont permis l'observation d'interactions dislocation-boucle dans le plan de base à 350°C, pour un cas où le facteur de Schmid de ce plan était particulièrement élevé (Chapitre III, §I.2.3.). Le type d'interaction observé et la projection stéréographique sont illustrés en Figure IV-9. Les dislocations vis, de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[1\bar{2}10]$, et de forme particulièrement rectiligne, s'ancrent de façon fréquente aux boucles de dislocation. Seules ces interactions de type ancrage sont observées lors de la séquence in-situ.

II.3.2. Caractéristiques des boucles de dislocation

Les conditions de diffraction appliquées lors de l'imagerie des dislocations entraînent l'extinction d'une famille de boucles de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3}[11\bar{2}0]$. Seuls deux vecteurs de Burgers sont donc possibles pour simuler les interactions observées expérimentalement. Après plusieurs essais, le vecteur de Burgers retenu est différent de celui de la dislocation : $\vec{b} = \frac{1}{3}[\bar{2}110]$. Les boucles sont toutes imposées comme étant de nature interstitielle.

Contrairement aux cas précédents, où seules des interactions très ponctuelles étaient simulées, l'objectif de cette simulation est de représenter un comportement général des dislocations basales au sein d'une microstructure composées de plusieurs boucles. Au total, 8 boucles ont été introduites lors

de la simulation à des positions choisies de façon aléatoires, toutes de même vecteur de Burgers, et comprises dans le plan de glissement de la dislocation. Initialement, des boucles de forme carrée ont été choisies et le coefficient de viscosité a été fortement augmenté dans le plan prismatique afin de permettre leur blocage. Cependant, le mouvement des boucles restant important, il a été choisi de travailler avec des boucles de forme octogonale, composée également de brins dans les plans pyramidaux. Il est ainsi possible de bloquer le mouvement de la boucle en insérant un coefficient de viscosité également plus important dans ces plans. Ainsi les valeurs des coefficients de viscosité choisies dans les plans prismatiques et pyramidaux, et qui permettent un réel blocage des boucles, sont de 500 MPa.s. Cette valeur importante est, comme pour les cas précédents, imposée de façon aléatoire afin de mener au blocage des boucles. En aucun cas ces valeurs ne sont considérées comme représentatives des coefficients de viscosité réels des plans de glissement.

Une bonne concordance entre la direction de glissement des dislocations et les traces du plan de glissement obtenues lors des simulations est observée pour une épaisseur de lame mesurée de 100 nm.

II.3.3. Comparaison des modélisations en DD avec le cas expérimental

L'objectif de cette simulation du glissement des dislocations dans le plan de base, n'est pas de reproduire de façon précise un cas observé expérimentalement, mais est de confirmer le comportement général des dislocations, observé tout au long de l'essai de traction *in-situ*, à savoir de nombreux ancrages sur les boucles. Pour cette raison, une séquence d'interaction entre une dislocation et les boucles observées expérimentalement est illustrée en Figure IV-9 (en complément de la Figure III-18), et les résultats de la simulation par Dynamique des Dislocations sont imagés en Figure IV-10.

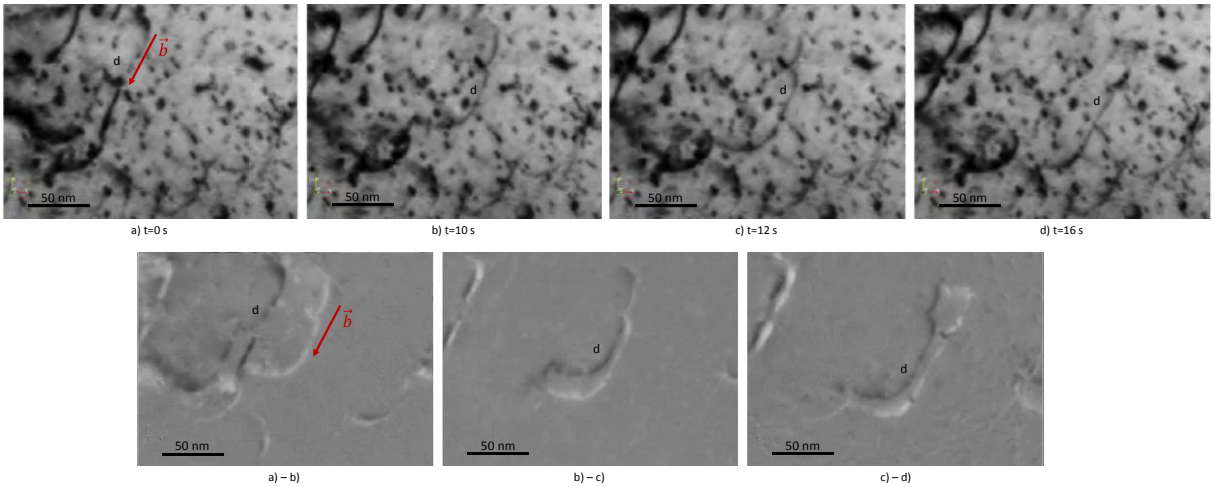
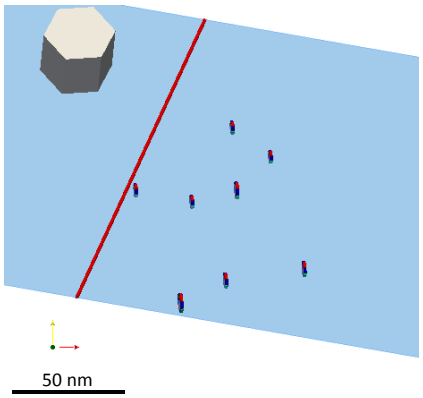


Figure IV-9. Ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base sur les boucles de dislocation.

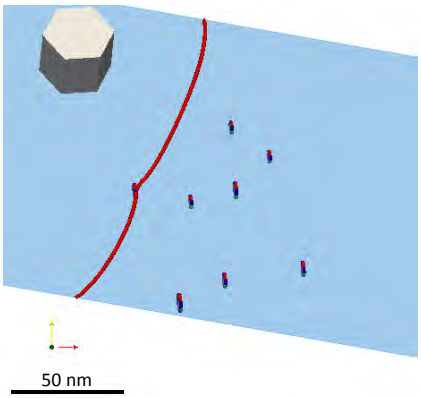
Les simulations par DD montrent une très bonne cohérence avec l'expérience en termes de vitesse de glissement globale et de type d'interaction. En effet, pour des boucles de vecteurs de Burgers différents de celui de la dislocation et de nature interstitielle, la dislocation s'ancre puis se désancre de façon systématique (Figure IV-10 images a) à j)). Cependant, à partir de l'image j), un ancrage très important de la dislocation est observé avec une boucle qui interagit sur sa partie mixte.

On remarque de plus la création d'une jonction entre la boucle et la dislocation (image l)) qui laisse présager une absorption de la boucle le long de la ligne, interaction qui n'est pas observée expérimentalement. Cette différence entre l'expérimental et la DD peut s'expliquer par le caractère du segment de dislocation qui interagit avec la boucle. En effet, lors de l'expérience de traction *in-situ*, les dislocations rectilignes ont un caractère vis, et la majorité des interactions avec les boucles se fait donc avec un segment vis. Au contraire, dans ce cas particulier de la simulation par DD, la dislocation se courbe sous l'effet de la contrainte, et la boucle interagit avec sa partie mixte, ce qui peut expliquer la différence d'interaction observée.

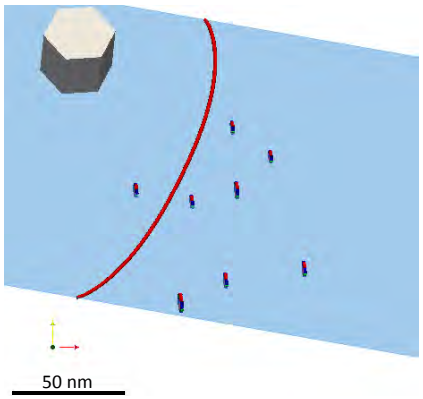
Un coefficient de viscosité dans le plan de base de 1 MPa.s, plus élevé que dans le cas du glissement prismatique et pyramidal, a été introduit dans le cadre de ces calculs. La mesure de la contrainte appliquée s'est de plus révélée difficile expérimentalement, en raison de la forme, plus rectiligne, des dislocations. Ainsi, une estimation de la contrainte a été effectuée en travaillant directement sur la correspondance de la vitesse des dislocations connues expérimentalement et la vitesse de la dislocation modélisée. Une contrainte de 230 MPa est ainsi obtenue. Cette contrainte est plus importante que celle déterminée expérimentalement lors des essais de traction *in-situ* qui sont estimée à 100-150 MPa. Cependant, étant donnée l'incertitude sur le coefficient de viscosité du plan de base, cette valeur de contrainte sera conservée lors des simulations.



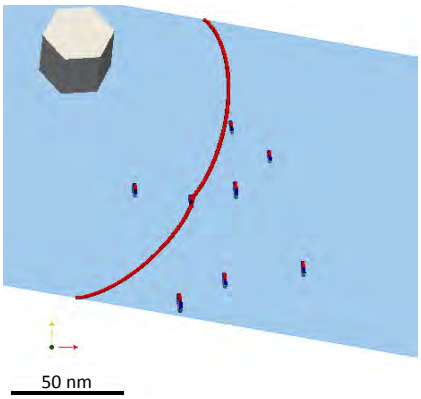
a) t=0 s



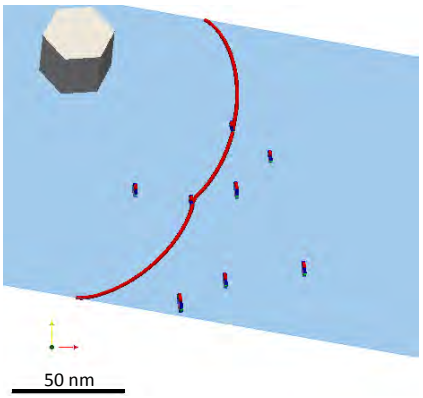
b) t=0,28 s



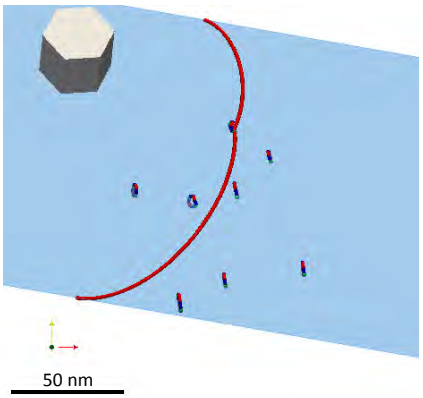
c) t=0,8 s



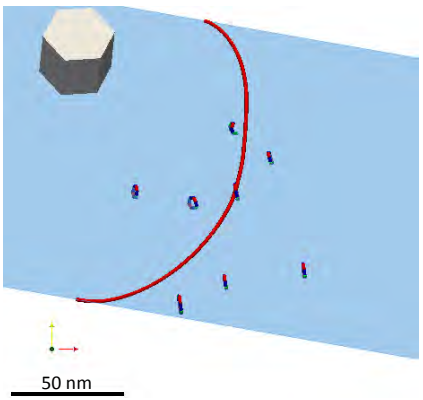
d) t=1,4 s



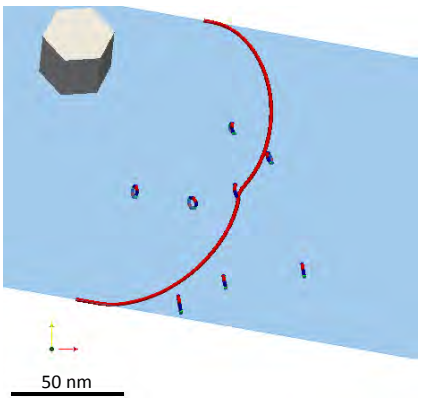
e) t=,18 s



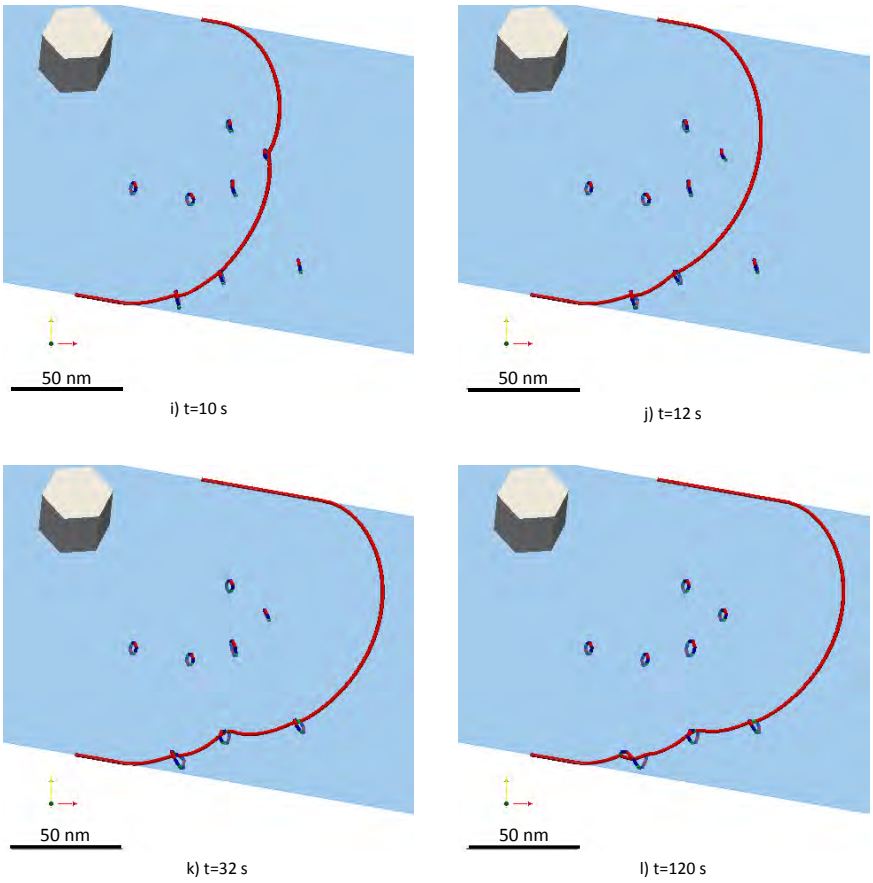
f) t=5,6s



g) t=6,2 s



h) t=8 s



Comparaison expérimental-DD:
Les simulations en DD montrent une très bonne cohérence avec l'expérience en terme de vitesse de glissement globale et de type d'interaction. En effet, pour des boucles de vecteurs de Burgers différent de celui de la dislocation et de nature interstitielle, la dislocation s'ancre puis se désancre de façon systématique (images a) à j)). Cependant, à partir de l'image j), un ancrage très important de la dislocation est observée avec une boucle qui interagit sur sa partie mixte. On remarque de plus la création d'une jonction entre la boucle et la dislocation (image l)) qui laisse présager une absorption de la boucle le long de la ligne, interaction qui n'est pas observée expérimentalement. Cette différence entre l'expérience et la DD peut s'expliquer par le caractère du segment de dislocation qui interagit avec la boucle. En effet, lors de l'expérience de traction in-situ, les dislocations rectilignes ont un caractère vis, et la majorité des interactions avec les boucles se fait donc avec un segment vis. Au contraire, dans ce cas particulier de la simulation par DD, la dislocation se courbe sous l'effet de la contrainte, et la boucle interagit avec sa partie mixte, ce qui peut expliquer la différence d'interaction observée.

Figure IV-10. Modélisation d'ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base avec des boucles de vecteur de Burgers différents (angles d'Euler en radians φ_1=-0,105, ϕ=2,496, φ_2=2,409 et angle de tilt en radians : -0,052).

Synthèse du chapitre

Lors des essais de traction *in-situ*, plusieurs interactions de type ancrage et absorption des boucles ont été observées dans les plans prismatiques, pyramidaux et dans le plan de base. Lors de ces essais, les caractéristiques des boucles constituent des inconnues. Afin de déterminer ces inconnues, la simulation par Dynamique des Dislocations est utilisée.

Trois cas spécifiques ont été modélisés dans le cadre de ce travail de thèse : l'ancrage d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal sur une boucle, l'absorption de deux boucles par une dislocation glissant également dans un plan pyramidal et l'ancrage d'une dislocation glissant dans le plan de base. Une très bonne cohérence a été observée en termes d'interactions entre les simulations par DD et les trois cas expérimentaux. Ces résultats démontrent que malgré les hypothèses appliquées (non prise en compte de l'effet des solutés et des surfaces libres), la simulation par Dynamique des Dislocations est tout à fait viable pour reproduire les cas expérimentaux. Les résultats obtenus apportent un réel enrichissement par rapport aux observations expérimentales et permettent de déterminer les paramètres inconnus à la base de la réaction dislocation-boucle.

Bien que quelques différences concernant la cinétique de glissement aient été observées, les vitesses de glissement des dislocations obtenues lors des simulations par Dynamique des Dislocations sont globalement cohérentes avec l'expérience. Les différences observées peuvent s'expliquer d'une part par les lois de mobilité visqueuses utilisées en DD, qui sont simplifiées par rapport au cas réel. D'autre part, la détermination des coefficients de viscosité des différents plans de glissement n'a pu être effectuée que de façon ponctuelle dans les plans prismatiques. Ainsi, il existe une forte incertitude en ce qui concerne la valeur de ces coefficients dans les plans pyramidaux et dans le plan de base, pouvant également expliquer les quelques différences de cinétique observées. Les simulations réalisées ont cependant permis de valider un ordre de grandeur de ces coefficients de viscosité dans le plan pyramidal, qui est compris entre 0,3 MPa.s et 3 MPa.s. Il serait intéressant, dans un objectif de correspondance expérimental-DD, d'effectuer de nouvelles mesures des coefficients de viscosité afin d'affiner les valeurs obtenues.

Références bibliographiques

[1] B. Devincre, "Étudier les propriétés dynamiques des dislocations pour prédire la déformation plastique des cristaux," *Reflets Phys.*, no. 44–45, pp. 74–78, Jul. 2015.

[2] J. Drouet, "Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation," Université de Toulouse, 2014.

[3] L. P. Kubin, G. Canova, M. Condat, B. Devincre, V. Pontikis, and Y. Bréchet, "Dislocation Microstructures and Plastic Flow: A 3D Simulation," *Solid State Phenom.*, vol. 23–24, pp. 455–472, 1992.

[4] V. V. Bulatov and W. Cai, *Computer simulations of dislocations*. Oxford ; New York: Oxford University Press, 2006.

[5] L. Kubin, *Dislocations, Mesoscale Simulations and Plastic Flow*. Oxford University Press, 2013.

[6] A. Arsenlis *et al.*, "Enabling strain hardening simulations with dislocation dynamics," *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 15, no. 6, pp. 553–595, Sep. 2007.

[7] X. Shi, "Etude par simulations de Dynamique des Dislocations des effets d'irradiation sur la plasticité de la ferrite à haute température.," UPMC, 2014.

[8] W. Cai, A. Arsenlis, C. Weinberger, and V. Bulatov, "A non-singular continuum theory of dislocations," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 54, no. 3, pp. 561–587, Mar. 2006.

[9] U. Ayachit, *The ParaView guide: updated for ParaView version 4.3*, Full color version. Los Alamos: Kitware, 2015.

[10] C. D. Hansen and C. R. Johnson, Eds., *The visualization handbook*. Amsterdam ; Boston: Elsevier-Butterworth Heinemann, 2005.

[11] E. S. Fisher and C. J. Renken, "Single-Crystal Elastic Moduli and the hcp → bcc Transformation in Ti, Zr, and Hf," *Phys. Rev.*, vol. 135, no. 2A, pp. A482–A494, Jul. 1964.

[12] Y. Li and R. B. Thompson, "Relations between elastic constants Cij and texture parameters for hexagonal materials," *J. Appl. Phys.*, vol. 67, no. 5, pp. 2663–2665, Mar. 1990.

[13] J. L. Derep, S. Ibrahim, R. Rouby, and G. Fantozzi, "Deformation behaviour of zircaloy-4 between 77 and 900 K," *Acta Metall.*, vol. 28, no. 5, pp. 607–619, May 1980.

[14] S. Graff, S. Forest, J.-L. Strudel, C. Prioul, and J.-L. Béchade, "Caractérisation et modélisation des phénomènes de vieillissement dans les alliages de zirconium," presented at the Matériaux 2006, Dijon, 2006.

[15] C. Prioul, "Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium. Conséquences sur les propriétés mécaniques," in *Le Zirconium, Journées d'études "Propriétés-Microstructures,"* Cailletaud G., Lemoine P., les éditions de physique, 1996, pp. 25–34.

[16] D. Caillard, M. Rautenberg, and X. Feaugas, "Dislocation mechanisms in a zirconium alloy in the high-temperature regime: An in situ TEM investigation," *Acta Mater.*, vol. 87, pp. 283–292, Apr. 2015.

[17] A. H. Cottrell and B. A. Bilby, "Dislocation Theory of Yielding and Strain Ageing of Iron," *Proc. Phys. Soc. Sect. A*, vol. 62, no. 1, p. 49, 1949.

[18] R. . Picu, "A mechanism for the negative strain-rate sensitivity of dilute solid solutions," *Acta Mater.*, vol. 52, no. 12, pp. 3447–3458, Jul. 2004.

[19] N. Chaari, "Modélisation ab initio de la plasticité dans les métaux hexagonaux : zirconium et titane purs et effet de l'oxygène," 2015.

[20] T. Onchi, H. Kayano, and Y. Higashiguchi, "The inhomogeneous deformation behaviour of neutron irradiated Zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 88, no. 2–3, pp. 226–235, Feb. 1980.

[21] K. Veevers and W. B. Rotsey, "Effect of irradiation on strain ageing in annealed zircaloy-2," *J. Nucl. Mater.*, vol. 27, no. 1, pp. 108–111, Jul. 1968.

[22] P. B. Hirsch, "Point Defect Cluster Hardening," presented at the Proceedings of a Conference on Point Defect Behavior and Diffusional Processes, University of Bristol, 1976.

[23] A. J. E. Foreman and J. V. Sharp, "A mechanism for the sweeping-up of loops by glide dislocations during deformation," *Philos. Mag.*, vol. 19, no. 161, pp. 931–937, May 1969.

Chapitre V. Etude expérimentale des mécanismes du fluage d'irradiation

Objectif

Sous irradiation neutronique, les alliages de zirconium se déforment par fluage d'irradiation, phénomène résultant de l'effet combiné du flux de neutrons et des contraintes appliquées. Deux types de mécanismes théoriques principaux sont proposés pour expliquer le fluage d'irradiation : un mécanisme où la déformation est contrôlée par la montée pure des dislocations (SIPA) et un mécanisme où elle est contrôlée par le glissement des dislocations assisté par la montée (SICG). Au vue du peu de données expérimentales concernant les mécanismes microscopiques du fluage d'irradiation, les questions suivantes restent en suspens :

- Comment évolue la montée pure des dislocations sous irradiation, sans contrainte appliquée ?

- Quel est l'effet sur le mouvement des dislocations si l'on applique de façon simultanée un faisceau d'ions et une contrainte ?

Une analyse expérimentale a été réalisée afin d'apporter des éléments de réponse à ces questions, et sera présentée dans ce chapitre.

Sommaire

I. Contexte et démarche de l'étude 160
II. Protocole expérimental 161
II.1. Essai sans contrainte appliquée 161
II.2. Essais avec contrainte appliquée 164
III. Etude de la montée des dislocations sans contrainte appliquée 167
III.1. Montée des dislocations sous irradiation aux électrons 167
III.2. Montée des dislocations sous irradiation aux ions 170
III.3. Conclusion sur les essais d'irradiation sans contrainte appliquée 171
IV. Mécanismes du fluage d'irradiation 172
IV.1. Etapes de réalisation des essais *in-situ* en température et en contrainte 172
IV.2. Mouvement des dislocations sous irradiation aux ions et sous contrainte 172
IV.3. Discussion 179
Synthèse du Chapitre 184
Références bibliographiques 185

I. Contexte et démarche de l'étude

En conditions nominales au sein des réacteurs, les gaines en alliage de zirconium sont soumises à plusieurs types de déformation sous irradiation, et notamment au fluage sous irradiation, effet résultant de l'action simultanée du flux de neutrons et de la contrainte appliquée. Le fluage sous irradiation peut être divisé en deux composantes : le fluage thermique et le fluage d'irradiation, impliquant des mécanismes de déformation différents mais difficilement distinguables. Plusieurs mécanismes théoriques ont été proposés pour expliquer le fluage d'irradiation (Chapitre I §IV.2) dont les principaux sont le mécanisme SIPA et le mécanisme de glissement contrôlé par la montée des dislocations. Néanmoins, peu de données expérimentales permettent de conclure sur le mécanisme effectif du fluage d'irradiation. Afin d'étudier de manière expérimentale les mécanismes de déformation régissant le fluage d'irradiation, une démarche en deux étapes a été adoptée dans le cadre de cette thèse. Dans un premier temps, une étude a été réalisée sous irradiation aux particules chargées et sans contrainte appliquée, pour une analyse de l'effet direct du flux sur le mouvement des dislocations. Des essais sous irradiation et avec une contrainte appliquée ont été réalisés dans un second temps.

L'étude du comportement macroscopique en fluage d'irradiation du Zircaloy-4 a montré une vitesse de fluage très rapide de l'état détendu par rapport à l'état recristallisé, comme illustré en Figure V-1 [1]. Ces deux états métallurgiques se différencient par la morphologie de leurs grains et par leur densité initiale en dislocations <a> et <c+a>, bien plus importante dans l'état détendu. Si l'on considère un effet limité de la taille des grains sur le fluage d'irradiation des alliages de zirconium [2], la densité initiale en dislocations devrait donc avoir un effet important sur le comportement des alliages de zirconium sous fluage d'irradiation, comme attesté par l'étude bibliographique (Chapitre I §IV.2).

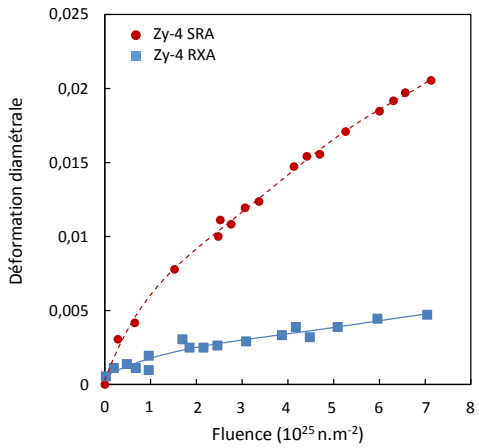


Figure V-1. Essais de pression interne à 350°C et 90 MPa pour du Zy-4 recristallisé et détendu [1].

Dans le cadre de ces travaux, le Zy-4 a été étudié sous sa forme recristallisée afin de faciliter les analyses au MET, difficiles pour des microstructures caractéristiques des alliages détendus qui présentent des grains (5 à 10 µm) et sous grains très fins (environ 100 à 200 nm) et allongés dans la direction de laminage. Cependant, la densité initiale en dislocations dans les alliages de zirconium recristallisés étant très faible, une étape de pré-écrouissage des échantillons est donc nécessaire afin de favoriser l'observation des dislocations au cours des essais. Les différentes étapes de pré-écrouissage du matériau sont présentées à la suite de ce chapitre.

II. Protocole expérimental

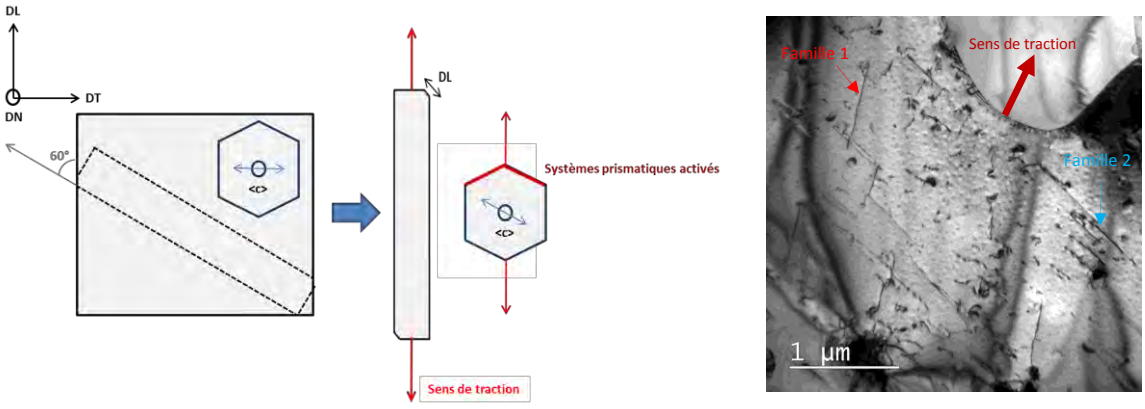
II.1. Essai sans contrainte appliquée

II.1.1. Etape de pré-écrouissage du matériau

II.1.1.1. Echantillons avec une densité initiale en dislocations prismatiques <a>

Des bandes, prélevées dans la tôle de Zy-4 à 60° par rapport à la direction de laminage ont été utilisées afin d'obtenir une densité suffisante en dislocations de vecteur de Burgers <a> dans les plans prismatiques. Ce sens de prélèvement a été choisi dans le cadre d'expériences antérieures [3]. Ces bandes ont ensuite été pré-écrouies à 1% de déformation plastique à une vitesse de 10^{-4} s^{-1} [3]. Ces conditions de traction ont été choisies en se basant sur les travaux de Geyer [4] qui montre une activation du glissement des dislocations dans les plans prismatiques à 1% de déformation plastique lors d'essais réalisés à 20°C et à une vitesse de 2.10^{-4} s^{-1}, pour une sollicitation appliquée dans la direction axiale de tubes en alliage de zirconium. En considérant la texture particulière des tôles de Zy-4 recristallisé, le glissement des dislocations prismatiques sera préférentiellement activé pour deux des trois plans prismatiques, le glissement dans le plan de normale perpendiculaire à l'axe de traction n'étant pas activé (Figure V-2 a)). Des lames minces ont été prélevées dans ces bandes pré-écrouies et les directions de laminage et de traction y sont repérées par deux méplats distincts.

L'analyse de la microstructure obtenue après l'étape de pré-écrouissage montre, comme attendu, la présence de deux familles de dislocations associées aux plans prismatiques dans lesquels le glissement des dislocations a été activé (Figure V-2 b)). Ces dislocations, imagées pour un axe de zone *B* proche de [0001], semblent majoritairement rectilignes et probablement de caractère vis. Une densité moyenne de dislocations de $10^{13}m^{-2}$ est obtenue, contre une densité plus faible à l'état de réception d'environ $10^{11}m^{-2}$.



a) b)

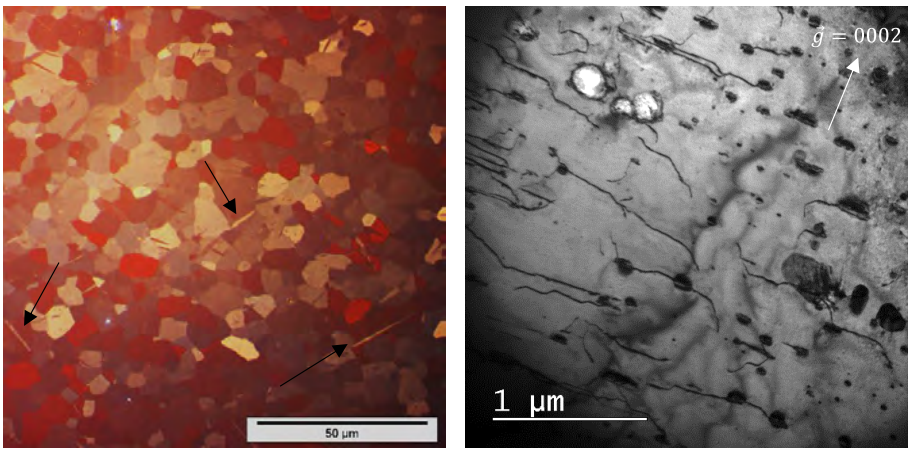
Figure V-2. a) Prélèvement et pré-écrouissage de bandes de Zy-4 recristallisées b) Présence de dislocations prismatiques de vecteur de Burgers <a>.

II.1.1.2. Echantillons avec une densité initiale en dislocations de vecteur de Burgers à composante <c>.

Les dislocations ayant un vecteur de Burgers à composante <c> n'étant initialement pas présentes au sein de la tôle recristallisée, il est également nécessaire de réaliser une étape de pré-écrouissage en sollicitant le matériau dans des orientations bien particulières. En raison de sa cission critique importante, l'activation du glissement pyramidal <c+a> s'avère difficile, notamment dans le cas de la tôle recristallisée où les sens de prélèvement possibles sont restreints. La texture cristallographique du tube TREX permet au contraire des prélèvements dans des orientations variées. Pour rappel, la texture des tubes TREX est principalement caractérisée par des axes <c> orientés selon la direction transverse du tube (DT) et étalés dans le plan défini par la direction radiale et la direction transverse (Chapitre I §I.2.2.2.).

Des éprouvettes de traction ont été prélevées dans le plan défini par la direction axiale DA et la direction transverse DT avec un axe de traction parallèle à DT. L'application d'une contrainte dans cette orientation, perpendiculaire aux directions <a>, entraîne une cission critique nulle des plans prismatiques, ce qui favorise la création de dislocations de vecteur de Burgers <c+a>. Les éprouvettes ont été pré-écrouies à 2% de déformation plastique pour une vitesse appliquée de 3.10^{-4} s^{-1} et une température de 350°C.

L'étude métallographique des éprouvettes montre, à la suite de l'étape de pré-écrouissage, la présence de macles en faible densité à $8.10^{8}m^{-2}$ (Figure V-3 a), à titre d'exemple certaines macles sont indiquées par les flèches noires). L'analyse microstructurale des grains a été effectuée pour un vecteur $\vec{g}$ de type 0002 qui permet de mettre hors contraste les dislocations de vecteur de Burgers <a> et de faciliter ainsi l'observation des dislocations présentant un vecteur de Burgers <c+a>. La présence de longues dislocations légèrement sinueuses ayant un vecteur de Burgers à composante <c> a ainsi été démontrée (Figure V-3 b)).



a) b)

Figure V-3. Etude de la microstructure des éprouvettes prélevées dans le plan DA-DT du tube TREX a) analyse métallographique b) présence de dislocations de vecteur de Burgers <c+a>.

II.1.2. Essais d'irradiation *in-situ*

II.1.2.1. Essais d'irradiation *in-situ* aux électrons

Des essais d'irradiation *in-situ* aux électrons de 1 MeV ont été réalisés au MET-THT du SRMA au CEA de Saclay pour les mêmes conditions que celles décrites au chapitre II. La température d'irradiation appliquée lors de ces essais est comprise entre 400°C et 450°C et les flux appliqués sont compris entre 3.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et $3{,}6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. Seules des lames minces prélevées dans les bandes de tôle de Zy-4 RXA pré-écrouies, et contenant des dislocations de vecteur de Burgers <a> ont pu être utilisées lors de ces essais.

II.1.2.2. Essais d'irradiation *in-situ* aux ions

Les irradiations *in-situ* aux ions ont été réalisées à la plateforme de Jannus au CSNSM d'Orsay. Un implanteur IRMA, permettant d'atteindre des énergies de 190 keV pour les ions mono-chargés et de 570 keV pour les ions deux à trois fois chargés, est directement couplé à un microscope électronique en transmission de type FEI Tecnaï G^2 20 Twin, d'une tension d'accélération de 200 kV, ce qui permet une observation *in-situ* de l'évolution de la microstructure sous irradiation. Un porte objet double-tilt chauffant est utilisé lors de ces expériences. Le faisceau d'ions est incliné d'un angle de 22° dans le microscope par rapport à l'axe horizontal et il est donc nécessaire d'incliner la lame mince d'un angle de -10° à -20° selon l'axe x, afin que la totalité de la surface de la lame soit soumise à l'irradiation (Figure V-4). Une fois ce tilt appliqué, l'angle entre la normale à la lame et le faisceau d'ions reste tout de même d'environ 50°.

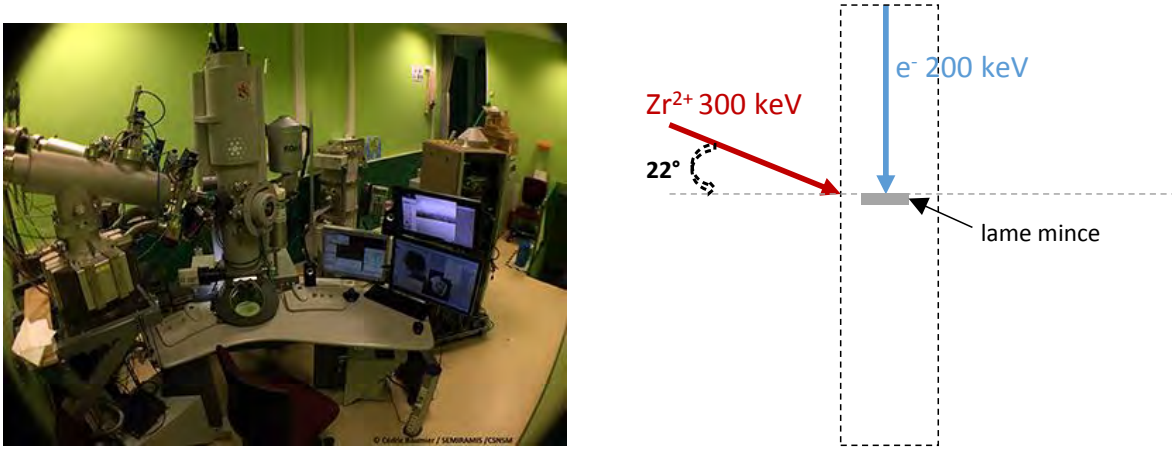


Figure V-4. Couplage de l'implanteur d'ions IRMA avec un MET FEI Tecnaï G^2 20 Twin au CSNSM d'Orsay.

Comme lors des irradiations « conventionnelles », des ions zirconium ont été choisis lors de ces campagnes afin d'éviter l'implantation d'éléments étrangers au sein de la lame mince. Les ions Zr^{2+} de 300 keV ont été utilisés à de faibles flux d'environ 5.10^{14} $ions.m^{-2}.s^{-1}$. Plusieurs campagnes ont été réalisées pour des températures allant de 400°C à 450°C afin de suivre *in-situ* l'évolution des dislocations sous irradiation. L'objectif premier de ces expériences n'était donc pas d'atteindre une dose précise après irradiation, mais de suivre l'évolution des dislocations pré-existantes au cours du temps. A titre d'exemple, la Figure V-5 donne les profils de dommage et d'implantation calculés à l'aide du logiciel *SRIM-2013*, pour une fluence de 8.10^{17} $ions.m^{-2}$ obtenue après environ 27 min d'irradiation. L'angle d'inclinaison de l'échantillon par rapport au faisceau d'électron est également pris en compte

dans ces calculs. On peut d'ailleurs noter qu'une lame d'épaisseur moyenne de 150 nm n'est pas intégralement endommagée par l'irradiation. Les lames prélevées dans les bandes de tôles recristallisées et dans les éprouvettes TREX pré-écrouies ont ainsi été utilisées, permettant l'étude du comportement respectivement des dislocations de vecteur de Burgers <a> et <c+a>.

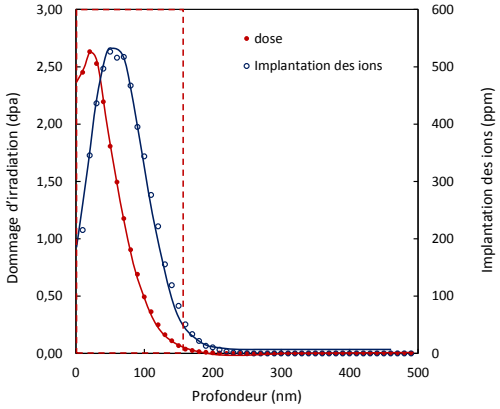


Figure V-5. Simulation par *SRIM* lors d'une irradiation *in-situ* aux ions Zr^{2+} 300 keV à une fluence de 8.10^{17} ions.m^{-2} et pour un angle d'inclinaison de 50°.

En complément à ces irradiations *in-situ* aux ions, des irradiations « conventionnelles » ont été réalisées sur des lames minces contenant des dislocations de vecteurs de Burgers <a> aux conditions données dans le Chapitre II. Une étude post-mortem des dislocations a été réalisée sur ces lames.

II.2. Essais avec contrainte appliquée

Afin d'étudier l'effet d'une contrainte appliquée en température et sous contrainte sur le mouvement des dislocations sous irradiation, des essais d'irradiation *in-situ* ont été réalisés au National Laboratory d'Argonne à l'aide de l'Intermediate Voltage Electron Microscope-Tandem Facility (IVEM). Un implanteur d'ions est directement relié au MET de type Hitachi-9000 fonctionnant à une tension d'accélération de 300 kV. Le faisceau d'ions est incliné à 33° par rapport au faisceau d'électron et la lame mince doit être tiltée d'un angle compris entre -5° et -30° afin de se rapprocher au plus du faisceau d'ions (Figure V-6). Lors des essais l'angle de tilt généralement appliqué était de -10° à -15, ce qui induit un angle entre la normale à la lame et le faisceau proche de 20°. Des ions krypton Kr^{2+} de 1 MeV ont été utilisés pour des irradiations à température ambiante et à haute température (400-450°C) et jusqu'à des fluences de 1.10^{18} ions.m^{-2} à $2{,}7.10^{18}$ ions.m^{-2} pour de faibles flux d'environ 6.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}. Les profils de dommage et d'implantation obtenus pour fluence de 1.10^{18} ions.m^{-2} sont représentés en Figure V-7. Dans le cas de ces essais les échantillons utilisés sont des éprouvettes de traction identiques à celles utilisées pour les essais de traction post-irradiation à température ambiante (Chapitre III).

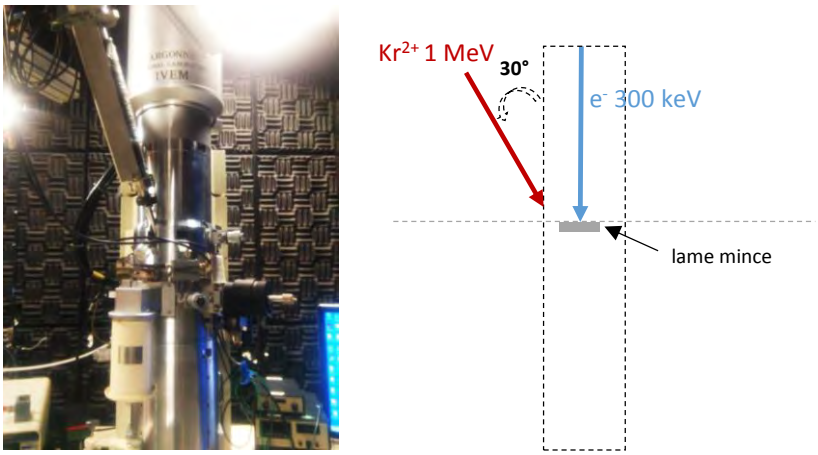


Figure V-6. Couplage entre l'implateur d'ions et un MET Hitachi-9000 à l'IVEM d'Argonne.

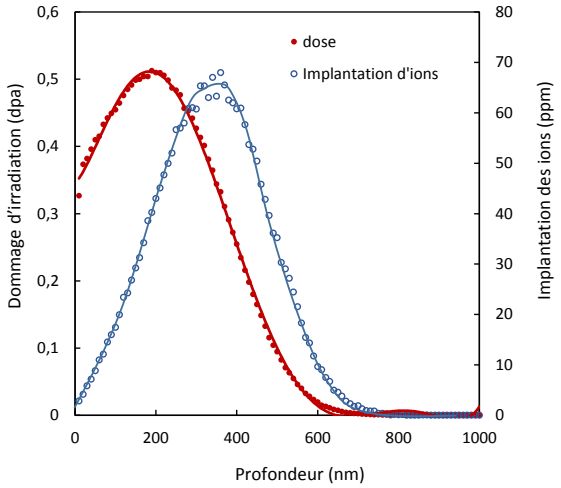


Figure V-7. Simulation par *SRIM* lors d'une irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} 1 MeV à une fluence de 1.10^{18} ions.m^{-2} et pour un angle d'inclinaison de 20°.

Un porte objet chauffant de traction simple tilt, anciennement commercialisé par Gatan, est utilisé et permet d'atteindre des températures comprises entre la température ambiante et 600°C. Il existe cependant une incertitude concernant la température réellement connue par l'échantillon lors des essais de traction à chaud. En effet l'éprouvette de traction est posée sur la résistance chauffante du porte-objet, et, en fonction de la contrainte appliquée, le contact entre l'éprouvette et la résistance sera plus ou moins important, entraînant des changements en température au cours de l'expérience. Une calibration en température a été réalisée par l'équipe de l'IVEM, et a montré que pour un déplacement des mors d'environ 100 µm et une température de consigne de 670°C, la température connue par l'échantillon est de 439°C (Annexe D). De manière générale, le ratio entre la température de l'échantillon et la température de consigne est d'environ 0,5. Dans notre cas, et pour les déformations appliquées lors des essais, les températures connues par l'échantillon sont toujours proches de 400°C à 450°C.

Il est important de noter, que comme pour les essais d'irradiation *in-situ* aux électrons (Chapitre II), ou les essais de traction *in-situ* post-irradiation (Chapitre III), la réalisation des essais d'irradiation *in-situ* en température et avec une contrainte appliquée est délicate et est liée à de nombreux paramètres expérimentaux :

- Tout d'abord l'état de la lame mince obtenue après l'étape d'électropolissage est le premier paramètre à prendre en compte. En effet, les grains doivent être suffisamment minces pour permettre l'observation *in-situ* au MET, et les surfaces doivent être les plus propres possible. L'absence de fissures trop importantes aux abords du trou de la lame mince est également désirée afin d'éviter toute concentration des contraintes en pointe de fissure lors des essais de traction.

- Lors des essais, il est également important de pouvoir orienter le grain afin d'obtenir des conditions de diffraction favorables à l'observation des dislocations et des boucles de dislocation (conditions de deux ondes qui n'éteint pas les objets), tout en utilisant un porte-objet simple tilt. L'obtention des conditions d'imagerie souhaitées est également rendue difficile en raison de l'inclinaison du faisceau d'ions par rapport au faisceau d'électrons qui implique un angle d'inclinaison minimum à appliquer à la lame.

- Lors de l'irradiation *in-situ*, l'apparition des boucles de dislocation peut également altérer l'observation du mouvement des dislocations. En effet en raison de leur taille et densité, un contraste important résulte de leur apparition entraînant des difficultés pour la bonne visualisation des dislocations.

- Enfin, la probabilité d'occurrence des phénomènes recherchés peut être très faible. Il faut donc pouvoir réunir toutes les conditions énumérées dans une zone où le mécanisme souhaité sera observé.

III. Etude de la montée des dislocations sans contrainte appliquée

III.1. Montée des dislocations sous irradiation aux électrons

III.1.1. Montée hélicoïdale des dislocations

Lors des irradiations *in-situ* aux électrons de 1 MeV des lames minces contenant des dislocations de vecteur de Burgers <a>, le comportement des dislocations a pu être suivi au cours de l'irradiation à 400°C et 450°C. Comme illustré en Figure V-8, il est observé, sur les dislocations initialement rectilignes, la formation et la croissance de sinuosités le long des lignes de dislocations, dont l'amplitude augmente avec la dose. Ces sinuosités sont la preuve de la montée hélicoïdale des dislocations <a> sous irradiation, engendrée par la montée des parties coins des dislocations.

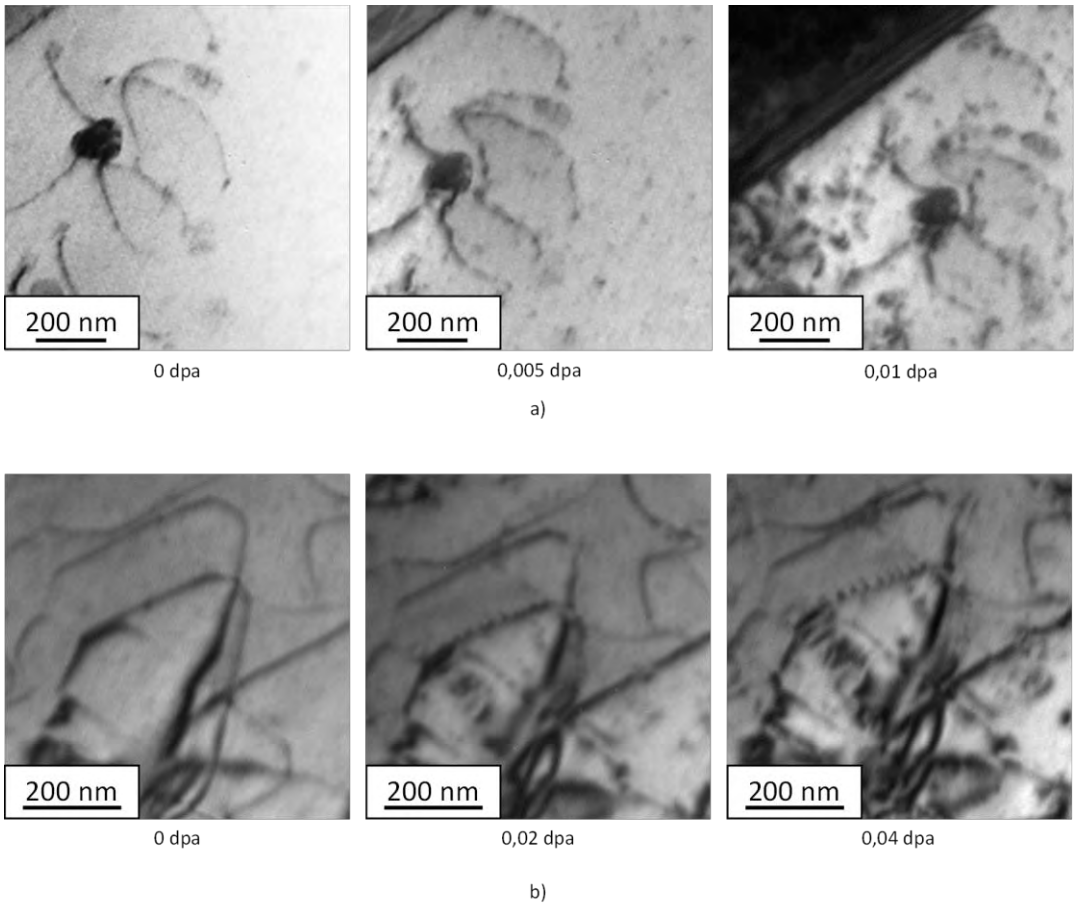


Figure V-8. Montée hélicoïdale des dislocations de vecteur de Burgers <a> sous irradiation aux électrons à a) 400°C et 3,6.10^{21} ions.m^{-2}.s^{-1} et b) 450°C et 6.10^{21} ions.m^{-2}.s^{-1}.

L'évolution de l'amplitude et du pas moyen des hélices a été relevée pour les différentes dislocations à 400°C et 450°C. Bien qu'un même comportement ait été observé pour ces deux températures, seule l'étude réalisée sur la dislocation observée à 450°C est considérée comme valide, les doses atteintes dans les autres cas étant trop faibles pour conclure de façon certaine sur une évolution des dislocations. La Figure V-9 illustre l'évolution de l'amplitude et du pas moyen des hélices observées, pour une dislocation à 400°C et une dislocation à 450°C.

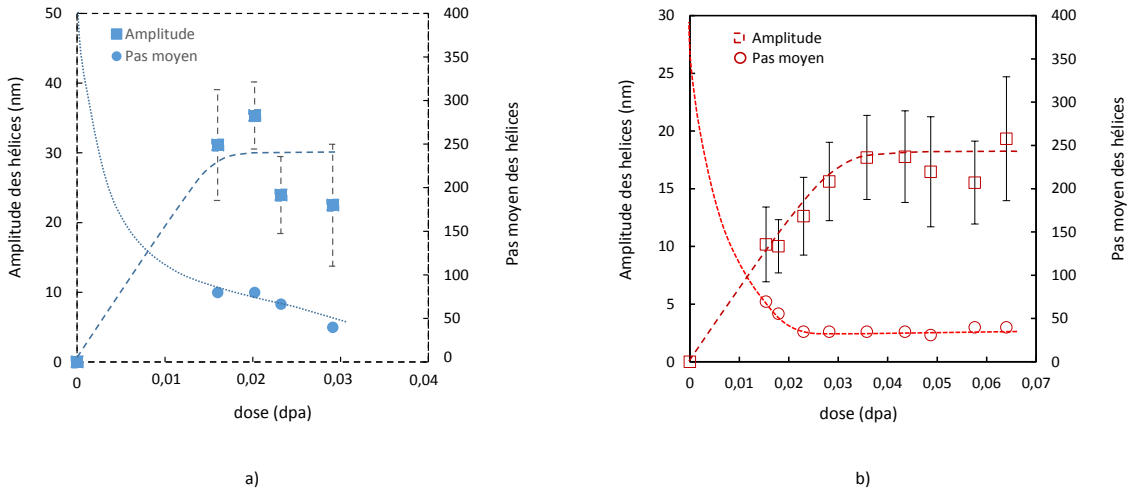


Figure V-9. Evolution de l'amplitude des hélices et du pas moyen de dislocations observées à a) 400°C et b) 450°C sous irradiation aux électrons de 1 MeV.

Une augmentation de l'amplitude des hélices au cours de l'irradiation ainsi qu'une diminution du pas est observée aux deux températures. De plus, lors de l'irradiation à 450°C où les doses obtenues sont plus importantes, il est observé que l'amplitude des hélices et le pas moyen atteignent un plateau dès environ 0,04 dpa pour l'amplitude des hélices et dès 0,03 dpa pour le pas moyen. Ces doses n'étant pas atteintes pour les irradiations réalisées à 400°C, l'effet de saturation n'est pas observé. Il est également important de noter que l'amplitude des hélices est plus importante à 400°C qu'à 450°C pour de mêmes doses, ce qui est incohérent avec les résultats précédents (chapitre II) qui montrent qu'une augmentation de la température entraîne une augmentation du diamètre des boucles. Bien qu'il soit difficile d'interpréter ces résultats, une explication basée sur la présence d'autres puits de la microstructure pourrait expliquer ces différences. En effet, les concentrations de puits de la microstructure (joints de grains, boucles de dislocation) peuvent varier autour des dislocations et donc influer sur les caractéristiques de leur montée hélicoïdale. De plus, les dislocations sont connectées aux surfaces libres de la lame mince, ce qui peut mener à une élimination en surface des défauts de cœur des dislocations et donc influer sur leur montée hélicoïdale.

III.1.2. Discussion sur la montée hélicoïdale des dislocations sous irradiation aux électrons

Bien que la montée hélicoïdale des dislocations ait précédemment été observée sous irradiation [5], [6], aucune étude détaillée de la cinétique de montée n'est actuellement connue. Une comparaison de l'évolution du diamètre moyen des boucles avec l'évolution de l'amplitude des hélices a été réalisée pour la dislocation suivie lors de l'irradiation aux électrons effectuée à 450°C, où un plateau de saturation est atteint. La Figure V-10 démontre qu'au début de l'irradiation, l'amplitude des hélices semble évoluer de la même manière que le diamètre des boucles. Cependant le plateau de saturation est atteint pour des doses faibles de 0,04 dpa, quand le diamètre des boucles continue de croître.

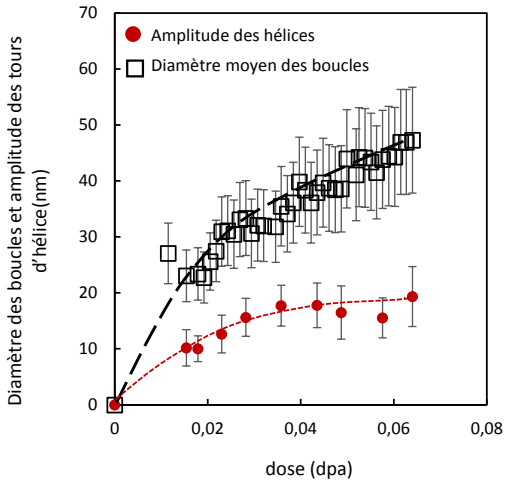


Figure V-10. Evolution de l'amplitude des hélices et du diamètre moyen des boucles lors d'une irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C.

La géométrie des hélices a également été analysée au cours de l'irradiation. L'angle Ψ, angle entre la ligne de dislocation et le vecteur de Burgers de la dislocation [7], a été déterminé à partir du pas des hélices Λ et de leur amplitude D (Figure V-10) : tan(Ψ)= D/(Λ/2). L'angle Ψ augmente au début de l'irradiation, et les hélices atteignent une configuration d'équilibre, avec un angle Ψ compris entre 45° et 50°. Cette observation est en accord avec l'analyse de Friedel [7] et Grihlé [8], qui montrent que du fait de l'interaction répulsive entre les différents brins des hélices, la dislocation atteint, par glissement sur son cylindre, une configuration avec un angle d'équilibre Ψ de 45°.

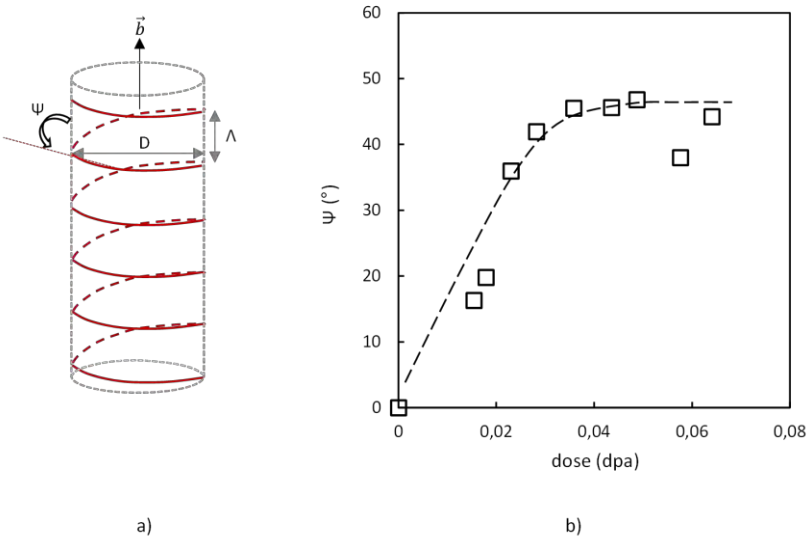
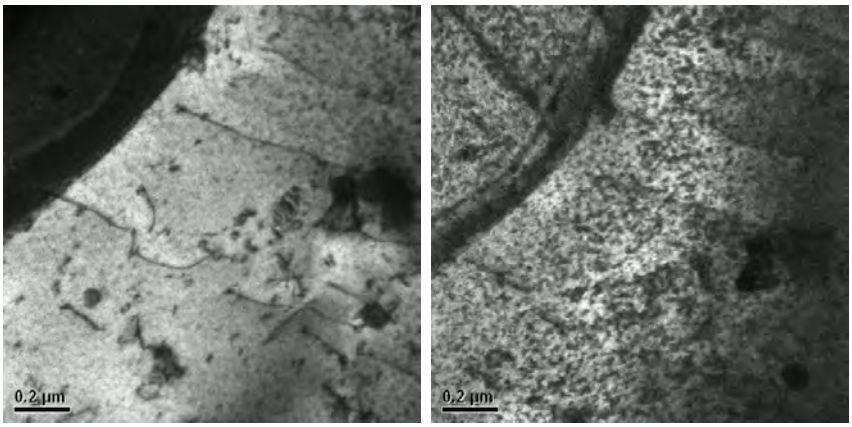


Figure V-11. Méthode de détermination et évolution de l'angle Ψ entre la ligne de dislocation et son vecteur de Burgers lors de la montée hélicoïdale sous irradiation aux électrons de 1 MeV.

III.2. Montée des dislocations sous irradiation aux ions

III.2.1. Montée des dislocations <a>

Des irradiations *in-situ* aux ions Zr^{2+} d'énergie 300 keV ont également été effectuées pour des températures similaires, afin d'observer la montée des dislocations de vecteur de Burgers <a>. Cependant, l'irradiation entraîne l'apparition de black-dots en densité très importante qui rend difficile l'analyse des dislocations (Figure V-12). Dans le laps de temps où les dislocations étaient visibles, aucune preuve de la montée des dislocations <a> n'a cependant été observée. Pour cette raison, les dislocations de vecteur de Burgers <a> ont été étudiées également après des irradiations conventionnelles aux ions Zr^{+} 600 keV à 450°C.



a) b)

Figure V-12. Irradiation *in-situ* aux ions Zr^{2+} 300 keV à 450°C d'une lame contenant des dislocations <a> pour un flux de 5.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1} a) après 0,03 dpa (2 min) b) 0,7 dpa (après 47 min).

L'analyse des dislocations après irradiation aux ions à 450°C et pour une fluence de 24.10^{17} ions.m^{-2} a montré la présence de dislocations <a> de forme très sinueuse (Figure V-13). Aucune trace de glissement n'ayant été identifiée, cette forme particulière des dislocations n'est pas induite par des interactions dislocation-boucle lors du glissement des dislocations. Un phénomène de montée pure hélicoïdale est donc fortement probable pour expliquer la présence de ces dislocations sinueuses au sein de la microstructure.

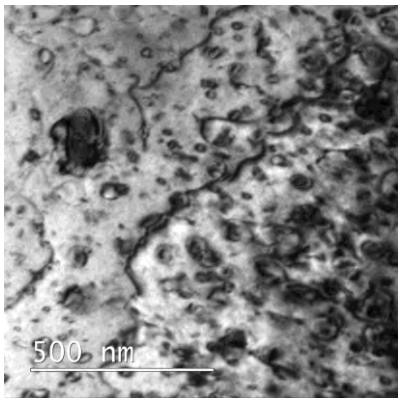
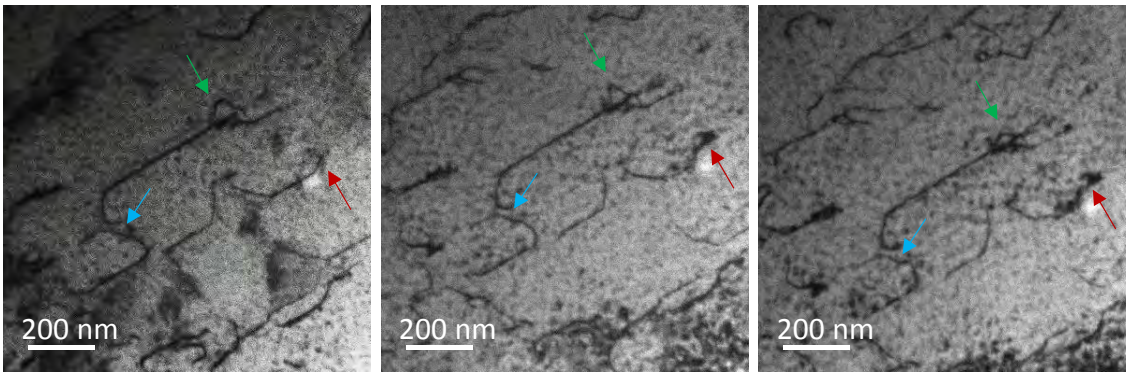


Figure V-13. Dislocation <a> sinueuse observée après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 450°C pour une fluence de 24.10^{17} ions.m^{-2}.

III.2.2. Montée des dislocations <c+a>

La montée des dislocations présentant un vecteur de Burgers <c+a> a pu être étudiée lors d'irradiation *in-situ* aux ions Zr^{2+} 300 keV à 400°C. Les conditions de diffraction optimales pour imager ces dislocations sont obtenues avec un vecteur de diffraction $\vec{g} = 0002$. Lors des irradiations *in-situ* aux ions, l'utilisation de ces conditions de diffraction a également pour avantage de mettre hors contraste les boucles de dislocation <a> ($\vec{g}.\vec{b}$=0), ce qui facilite l'observation de l'évolution des dislocations <c+a> dans le temps.

La Figure V-14 illustre le suivi de certaines dislocations au cours de l'irradiation à 400°C. Le mouvement des dislocations est très lent contrairement à ce qui est observé lors des irradiations aux électrons de 1 MeV. Il est cependant observé localement un changement de la forme initiale des dislocations comme indiqué par les flèches colorées pour trois brins de dislocation. Ce mouvement très lent des dislocations, activé sous l'effet de l'irradiation, montre l'apparition locale de sinuosités, ce qui laisse à penser qu'il pourrait s'agir d'un phénomène de montée sous irradiation aux ions.



0 dpa (0 sec) 0,2 dpa (930 sec) 0,43 dpa (2040 sec)

Figure V-14. Montée des dislocations de vecteur de Burgers <c+a> sous irradiation aux ions Zr^{+} 300 keV à 400°C et pour un flux de $4{,}4.10^{14}$ ions.m^{-2}.s^{-1}.

III.3. Conclusion sur les essais d'irradiation sans contrainte appliquée

Les essais d'irradiation sans contrainte appliquée aux électrons et aux ions ont permis d'étudier l'effet direct de l'irradiation sur le mouvement des dislocations. La présence de sinuosités le long des lignes de dislocation a été observée, et est la preuve d'un mécanisme de montée hélicoïdale. Bien que ce mécanisme ne soit visible de façon précise que lors des essais d'irradiation *in-situ* aux électrons, des preuves indirectes ont également été observées lors des irradiations aux ions. La montée pure des dislocations a donc bien lieu sous irradiation. Il est ainsi tout à fait envisageable de considérer que la montée peut intervenir dans les mécanismes microscopiques du fluage d'irradiation. L'application d'une contrainte lors des essais pourrait donc mener à l'observation de mécanismes de type SIPA, où une montée préférentielle des dislocations serait observée en fonction de leur orientation par rapport à la contrainte, ou de mécanismes de glissement assisté par la montée, où cette dernière aiderait au désancrage des dislocations sur les boucles.

IV. Mécanismes du fluage d'irradiation

IV.1. Etapes de réalisation des essais *in-situ* en température et en contrainte

Afin d'étudier les mécanismes du fluage d'irradiation des essais d'irradiation *in-situ* ont été réalisés à l'IVEM d'Argonne sous contrainte (traction *in-situ*). Afin de réaliser au mieux ces essais, il a fallu mettre en place une méthodologie précise prenant en compte la température à appliquer à l'échantillon et la mise en contrainte de ce dernier.

Lors de la réalisation de ces essais à haute température, la température visée sur l'échantillon était comprise entre 400°C et 450°C. Pour cela, une fois l'éprouvette installée au sein du MET, une température de consigne associée (d'environ 600°C) a été appliquée. Comme expliqué précédemment, la température réellement vue par l'échantillon dépend de son contact avec la résistance chauffante. Il est donc nécessaire d'appliquer une contrainte initiale à l'éprouvette afin de plaquer cette dernière sur la résistance. De plus, dans le cadre de ces essais, le déplacement initial des mors appliqué aux éprouvettes doit également permettre de mettre en contrainte le matériau et d'initier le glissement des dislocations au sein des grains, afin de pouvoir étudier l'effet de l'irradiation sur ces dernières. Une fois l'éprouvette en contact avec la résistance chauffante, une diminution de la température de consigne est observée, une partie de la chaleur apportée s'évacuant par les mors. Un réajustement de la température de la résistance chauffante est donc nécessaire afin d'obtenir la température souhaitée sur l'échantillon. Dès l'activation du glissement des dislocations, soit dès l'observation des premières traces de glissement, la contrainte appliquée est un peu relâchée afin d'atteindre un régime de relaxation des contraintes. Au cours des essais, une contrainte peut être réappliquée pour réactiver le mouvement des dislocations dans les grains observés. Cette action entraine une diminution de la température appliquée de 20 à 40°C en fonction du déplacement des mors appliqué.

Une fois les conditions initiales appliquées, l'essai *in-situ* consiste en l'application de séquences d'irradiation plus ou moins longues afin d'observer l'effet induit sur le mouvement des dislocations.

IV.2. Mouvement des dislocations sous irradiation aux ions et sous contrainte

IV.2.1. Essais à haute température (400-450°C)

Le suivi du mouvement de dislocations lors de séquences d'irradiation aux ions est réalisé *in-situ* à haute température. La Figure V-17 illustre l'une des séquences réalisées. L'analyse du plan de glissement de la dislocation suivie est présentée en Figure V-15. L'inclinaison et les rotations des axes de tilts sont ici prises en compte afin de faire correspondre les images obtenues *in-situ* et la projection stéréographique. Sur toutes les images présentées dans la suite de ce chapitre, l'axe de traction est incliné de 26° par rapport à l'horizontal. Une incertitude demeure sur le plan de glissement de la dislocation. En effet, d'après leur inclinaison, les traces engendrées par le glissement de la dislocation peuvent appartenir au plan prismatique $(\bar{1}100)$ (en vert sur la Figure V-15) ou au plan pyramidal $(01\bar{1}1)$ (en bleu sur la Figure V-15). Ces traces ne sont pas strictement rectilignes et montrent des preuves de glissement dévié, laissant alors penser que le glissement observé est du glissement pyramidal (chapitre III §I.2.2.). Cette supposition est appuyée par la direction du vecteur de Burgers de la dislocation,

indiquée par l'intersection du plan de glissement et du plan où a eu lieu le glissement dévié, qui est cohérente avec le vecteur de Burgers <a>, $\overrightarrow{b_\pi}$, compris dans le plan $(01\bar{1}1)$. En raison de son facteur de Schmid nul, le plan de base n'est ici pas un plan possible pour le glissement dévié de la dislocation. Les deux plans possibles, de même vecteur de Burgers que le plan pyramidal $(01\bar{1}1)$ sont le plan prismatique $(01\bar{1}0)$ de facteur de Schmid de 0,5 et le plan pyramidal $(01\bar{1}\bar{1})$, de facteur de Schmid 0,4.

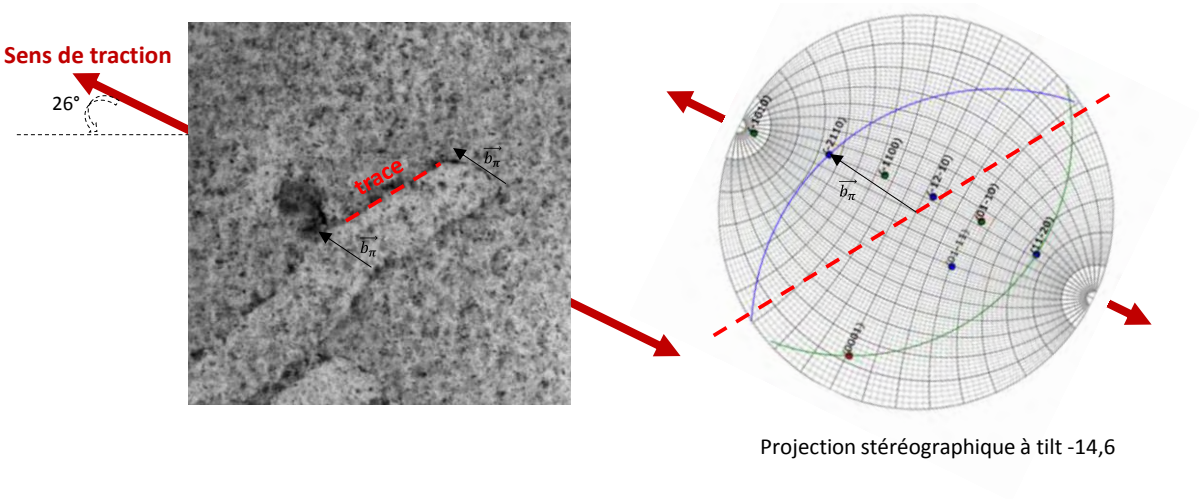


Figure V-15. Détermination du plan de glissement d'une dislocation sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à 400-450°C.

Une série de trois séquences d'irradiation aux ions (B), D) et F)) entrecoupées de périodes de pause (A), C) et E)) est représentée en Figure V-16 sur un graphe donnant la valeur du flux en fonction du temps.

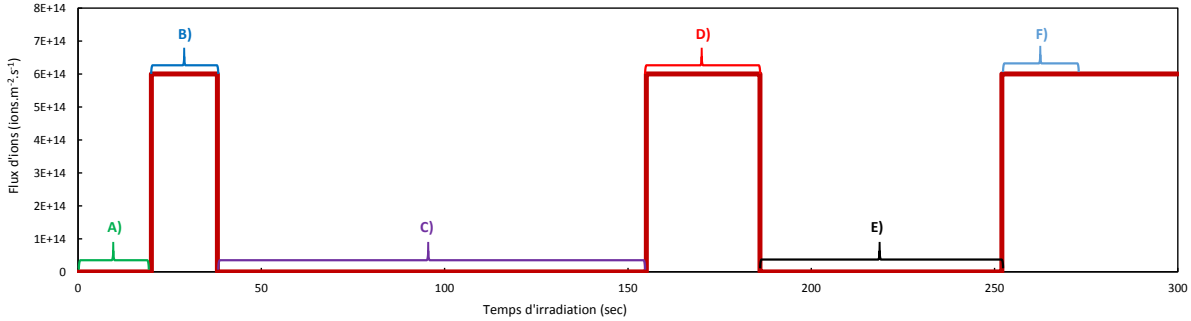


Figure V-16. Etapes de la séquence d'allumage/extinction du faisceau d'ions Kr^{2+} 1 MeV lors d'une expérience à haute température (400-450°C).

Les observations réalisées au cours des différentes étapes sont illustrées en Figure V-17. Une application de contrainte a été réalisée peu de temps avant cette séquence. De plus la microstructure observée a déjà été soumise à une irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV jusqu'à une fluence de $0{,}13.10^{18}$ ions.m^{-2}. L'étape A) de la Figure V-17 illustre la position de la dislocation avant allumage du faisceau d'ions. L'image A).a) montre la dislocation au temps t=0 s, et l'image A).b) après 20 secondes d'attente. La soustraction d'images a)-b) confirme bien que la dislocation est immobile, probablement bloquée par les nombreuses boucles de dislocation présentes au sein de la microstructure. L'étape B) illustre la première séquence d'irradiation. Les images B).a) et B).b) de la Figure V-17 montre une réactivation

du glissement de la dislocation. La dislocation avance de façon saccadée. La vitesse de la dislocation a été estimée dans le plan de l'image. Lors de l'étape d'irradiation la dislocation glisse à vitesse de 16,6 $nm.s^{-1}$. Pour les étapes suivantes, seules les soustractions d'images seront présentées. L'irradiation est stoppée après 18 secondes. L'image C).a) démontre que le glissement de la dislocation continue encore après l'arrêt du faisceau pendant une durée de 49 secondes et à une vitesse plus faible de 8 $nm.s^{-1}$. Cependant après un certain temps, le glissement de la dislocation est de nouveau stoppé, l'avancée étant probablement rendue difficile par la présence des défauts. De plus, les essais se déroulant sous un régime de relaxation de contrainte, il est également possible que cette dernière soit trop faible pour permettre le glissement de la dislocation. Afin de s'assurer de l'arrêt complet de la dislocation, les temps de pause entre deux séquences d'irradiation sont suffisamment longs, avec ici une attente de 117 secondes pour s'assurer de l'arrêt de la dislocation. L'image C)-b) démontre que pendant 17 secondes avant la fin de la pause, aucun mouvement de la dislocation n'est observé. Une seconde séquence d'irradiation est ensuite réalisée, et l'activation du glissement est presque instantanée dès le début de l'irradiation (Figure V-17 image D)-a)). Deux autres étapes de pause et de reprise de l'irradiation sont ensuite réalisées, et confirment le comportement général observé soit un arrêt du glissement de la dislocation après quelques secondes lors de l'extinction de l'irradiation, et une reprise du glissement de la dislocation rapidement après le début de l'irradiation.

Ce comportement a été vérifié pour plusieurs dislocations lors des essais à haute température, de façon quasi-systématique lors des différentes séquences réalisées au cours de la campagne d'essais (phénomène observé pour ~20 dislocations dans une dizaine de grains). Cependant il a été également noté que les dislocations dont le mouvement était affecté par le faisceau d'ions apparaissaient au cours de l'essai au niveau des joints de grains ou des précipités. En effet, les dislocations dont le glissement était observé lors de la mise en tension initiale de l'éprouvette ne semblent pas affectées par le faisceau d'ions et leur glissement restent bloqué par les boucles. Afin d'étudier de façon plus détaillée l'influence de l'irradiation sur ces dislocations, des expériences spécifiques ont été tentées. Après l'application initiale de la tension, permettant l'initiation du glissement de ces dislocations, une séquence d'irradiation était réalisée sur les dislocations mobiles. Ces dernières semblaient alors ancrées par les défauts d'irradiation et leur désancrage assisté par le faisceau d'ions n'était pas observé.

Une étude de l'effet du flux sur le phénomène observé a également été envisagée. Des essais ont été réalisés avec un flux 4 à 5 fois plus élevé. Un mouvement beaucoup plus rapide des dislocations a alors été observé. Cependant, des difficultés expérimentales, notamment liées à l'évolution du contraste sous faisceau d'ions, n'ont pas permis de suivre de façon précise le glissement des dislocations.

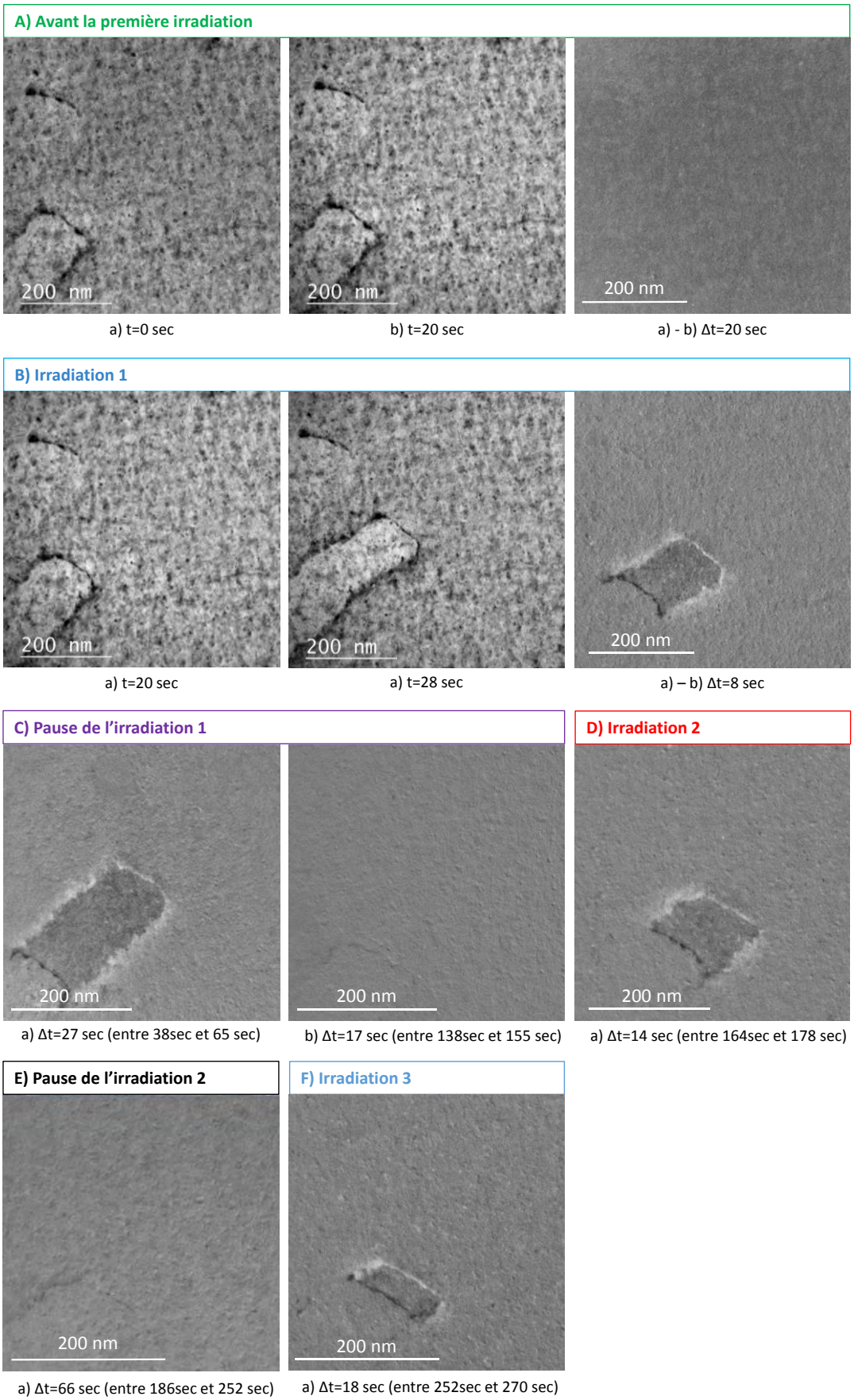


Figure V-17. Mouvement d'une dislocation glissant dans un plan prismatique ou pyramidal sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à 400-450°C et pour un flux de 6.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}.

IV.2.2. Essais à température ambiante

Afin d'étudier l'effet de la température sur le mouvement des dislocations, des essais ont également été réalisés à température ambiante. Lors de ces essais les observations sont similaires à ce qui a été constaté lors des essais à haute température. L'une des séquences observées lors de ces essais est illustrée en Figure V-20. L'orientation du grain associé à ces observations est donnée en Figure V-18. La distance entre traces des dislocations suivies étant faible, ces dernières appartiennent à un plan dont la normale est fortement inclinée par rapport au faisceau d'électron. D'après le report des traces, deux plans sont susceptibles de correspondre au plan de glissement : le plan prismatique $(10\bar{1}0)$ en vert sur la projection stéréographique, ou le plan pyramidal $(\bar{1}011)$ ou en bleu. Au vu de la distance entre traces des dislocations, il est possible que ces deux plans de glissement soient activés, avec des dislocations d_1, d_2 et d_3 dans le plan $(10\bar{1}0)$ et une dislocation d_4 dans le plan $(\bar{1}011)$.

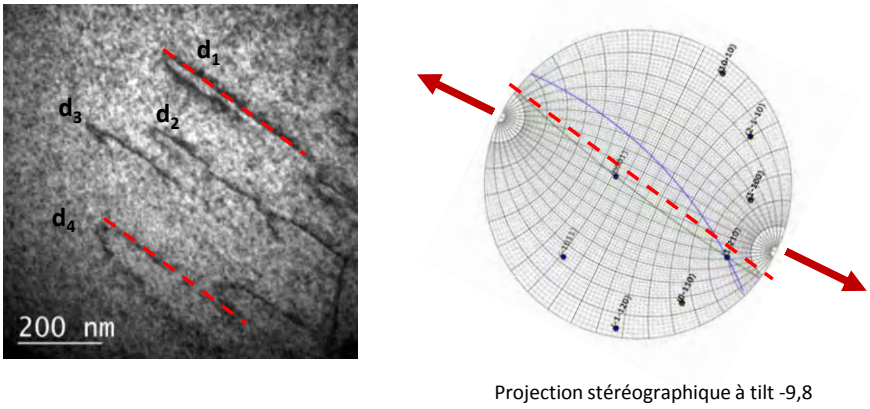


Figure V-18. Détermination du plan de glissement de dislocations sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à température ambiante.

Les différentes séquences d'irradiation sont représentées en Figure V-19. La séquence commence par une phase d'irradiation A), et deux autres séquences d'irradiation sont ensuite réalisées : C) et E). Comme à haute température, des phases de pause entre deux irradiations sont appliquées : B) et D).

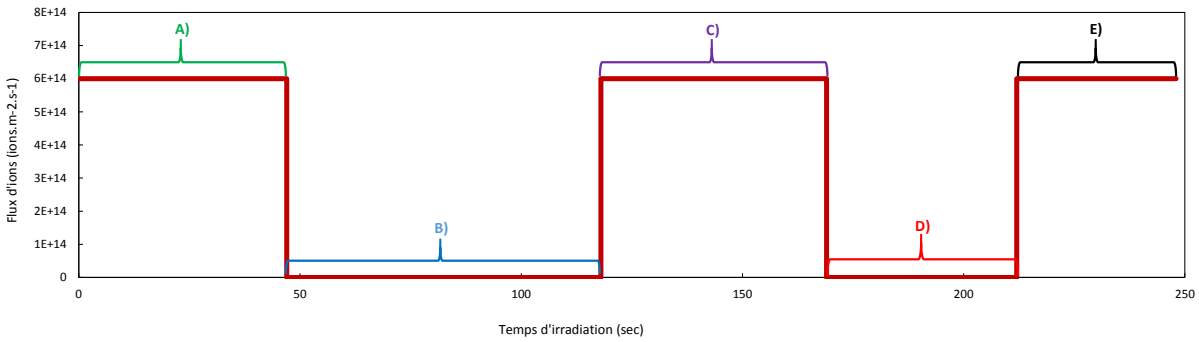


Figure V-19. Etapes de la séquence d'allumage/extinction du faisceau d'ions Kr^{2+} 1 MeV lors d'une expérience à température ambiante.

Les observations réalisées au cours des différentes étapes sont illustrées en Figure V-20. Plusieurs étapes d'irradiation ont été menées avant cette séquence jusqu'à une fluence de $0{,}41.10^{18}$ ions.m^{-2}, et la microstructure présente donc déjà de nombreux défauts. L'illustration de la séquence commence au cours de la première phase d'irradiation A). L'image A).a) montre la position des dislocations après 9 secondes du temps t=0, et l'image A).b) après 47 secondes. La soustraction d'images a)-b) démontre bien un glissement des différentes dislocations au cours de l'irradiation. Les dislocations avancent ici à une vitesse moyenne comprise entre 2 et 4 nm.s^{-1}. Après cette première phase d'irradiation, le faisceau d'ions est coupé pour une durée de 71 secondes. Les images B).a) et B).b) correspondent respectivement au début et à la fin de cette phase de pause. Certaines dislocations, telles que la dislocation notée d_1, continuent de glisser après l'arrêt du faisceau mais sur de faibles distances et pour des vitesses très faibles inférieures à 0,7 nm.s^{-1}. La deuxième phase d'irradiation C) montre bien une réactivation nette du glissement de l'ensemble des dislocations dès le début de l'irradiation et pour une vitesse de moyenne comprise entre 1 et 2 nm.s^{-1}. De même lors de la phase de pause D), le glissement des dislocations est fortement ralenti puis stoppé, et redémarre de façon très nette pour la troisième irradiation (image E).

Le comportement observé est donc fortement similaire à ce qui est observé lors des essais à haute température. Ce comportement a également été noté pour plusieurs dislocations distinctes dans différents grains (pour ~20 dislocations dans 4 grains).

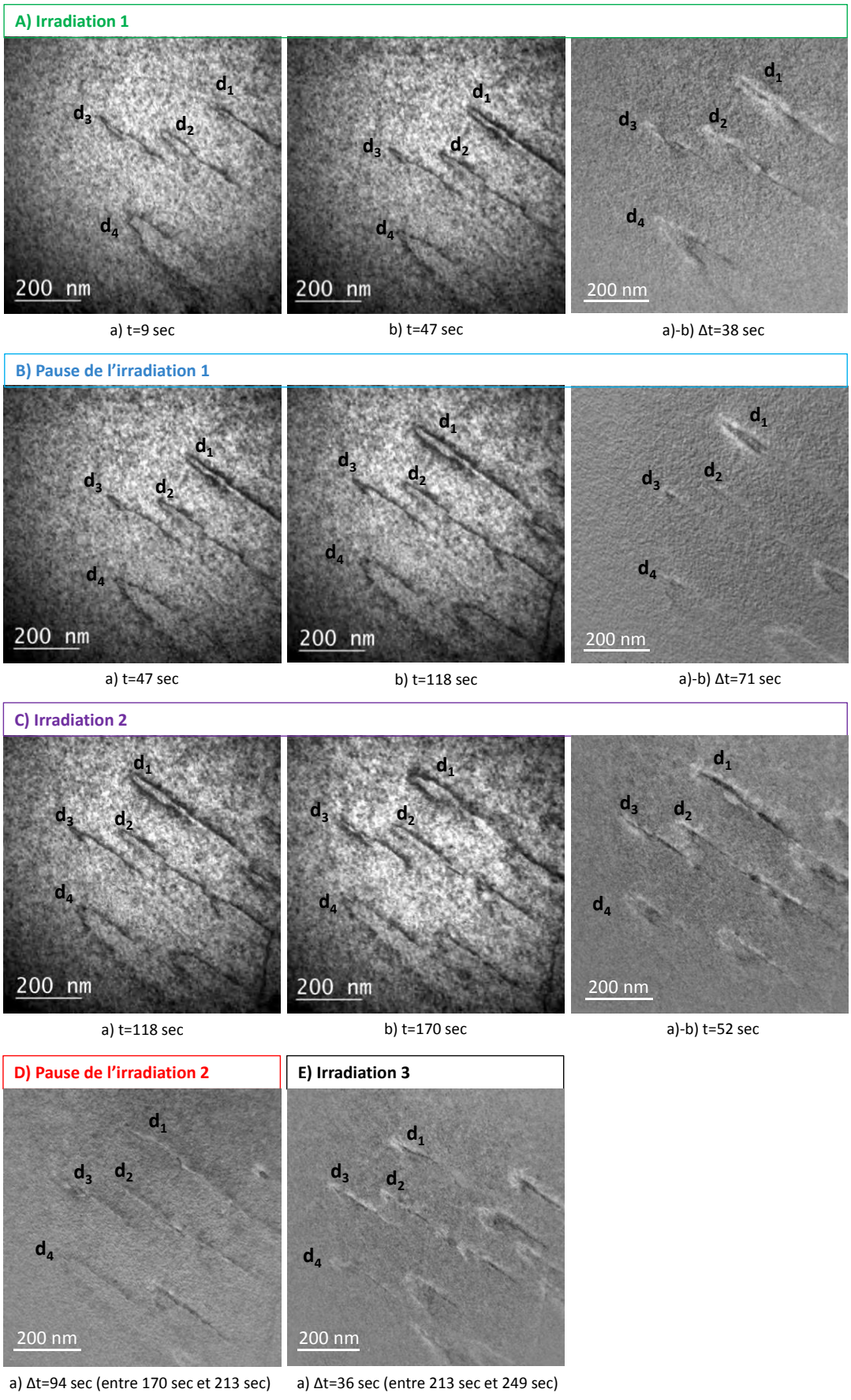


Figure V-20. Mouvement d'une dislocation glissant dans un plan prismatique ou pyramidal sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à température ambiante et pour un flux de 6.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}.

IV.3. Discussion

IV.3.1. Echauffement induit par le faisceau d'ions

Lors des essais *in-situ* la réactivation du glissement des dislocations a été observée lors de l'allumage du faisceau d'ions Kr^{2+} 1 MeV. Il est cependant important de vérifier que ce comportement des dislocations est bien lié à la formation des cascades de déplacements induites par le faisceau d'ions et non pas à un échauffement de la zone irradiée par ce dernier. Pour cela, la puissance déposée par le faisceau d'ions dans la zone observée est calculée par la relation :

$$\Delta E = \varphi.\rho \qquad \textbf{Eq. V-1}$$

avec ΔE l'énergie déposée par le faisceau en $W.m^{-2}$, φ le flux d'ions en $ions.m^{-2}.s^{-1}$ et ρ la perte d'énergie des ions en MeV/ion.

Dans notre cas, la valeur du flux d'ions est d'environ 6.10^{14} $ions.m^{-2}$, et pour une irradiation par des ions Kr^{2+} de 1 MeV d'une lame d'épaisseur 100 nm, *SRIM-2013* donne une valeur de perte d'énergie de 0,4 MeV/ion. La puissance déposée par le faisceau d'ions est donc de 38,5 $W.m^{-2}$. Si l'on considère que toute l'énergie du faisceau d'ions est déposée, soit 1 MeV, la valeur de la puissance déposée est maximisée, et est de 96 $W.m^{-2}$.

En considérant le cas extrême où toute l'énergie déposée est convertie en chaleur, il est possible d'estimer l'échauffement induit par le faisceau par un calcul 1D de résistance thermique. L'éprouvette de traction, considérée comme un rectangle de 11 mm×2,3 mm et d'épaisseur 100 µm, est maintenue à ses extrémités par les mors mobiles (Figure V-21). Ce système étant symétrique, seule la moitié de l'éprouvette est pris en compte, et est considérée comme une poutre libre. Seules les pertes d'énergie par conduction vers les mors sont ici considérées (les pertes par radiation sont négligées). En effet, comme expliqué précédemment, une diminution de la température est observée lors de la mise en contact de l'éprouvette sur le four, en raison de l'évacuation de la chaleur vers les mors. Ces derniers peuvent donc être considérés comme la source froide principale. L'effet du four, pouvant éventuellement permettre une évacuation de la chaleur induite par le faisceau, n'est ici pas considéré. La température maximale est considérée comme condensée à l'extrémité de la poutre (T_0 sur la Figure V-21).

L'éprouvette est divisée en trois sections distinctes comme illustrée en Figure V-21. La section I prend en compte la diffusion thermique au sein de la partie amincie par électropolissage où l'épaisseur est d'environ 100 nm (sur 50 µm). La section II considère le reste de la lame mince où l'épaisseur initiale du polissage mécanique de 100 µm est considérée (sur 1,45 mm). L'équation de la conduction en régime stationnaire a été résolue pour un problème en 1 dimension, et la distribution de la température a une allure parabolique (Figure V-21) :

$$\lambda \frac{d^2T}{dx^2} + q = 0 \qquad \textbf{Eq. V-2}$$

avec λ la conductivité thermique du milieu et q la production de chaleur par unité de volume ($W.m^{-3}$).

Le reste de l'éprouvette est modélisé par la section III, d'épaisseur e=100 µm, et la différence de température entre les deux surfaces isothermes B et C peut s'exprimer par l'équation :

$$T_B - T_C = R.\phi \qquad \textbf{Eq. V-3}$$

et

$$R = L/\lambda S \qquad \textbf{Eq. V-4}$$

avec *R* la résistance thermique, ϕ le flux de chaleur en W, *L* la distance entre les deux surfaces Bet C (4 mm), λ la conductivité thermique du milieu, *S* la section considérée (*e*×2,3 mm).

Le flux de chaleur est défini sur la surface totale irradiée (1,5 mm x 2,3 mm), et pour une puissance puissance maximale déposée de 96 W.m^{-2}, est de 3,3.10^{-4} W.
La résistance thermique est choisie comme la somme de la résistance thermique du zirconium, et de la résistance induite par un effet isolant, due au contact solide-solide pouvant être imparfait entre l'éprouvette et les mors. La conductivité thermique du zirconium est de 19 W.m^{-1}.K^{-1} à 400°C et de 21 W.m^{-1}.K^{-1} à température ambiante [9]. L'effet isolant du contact solide-solide est matérialisé par la présence d'une fine couche de zircone ZrO_2 d'une épaisseur de 1 mm, d'une conductivité thermique d'environ 2 W.m^{-1}.K^{-1} à 400°C et à température ambiante [10].

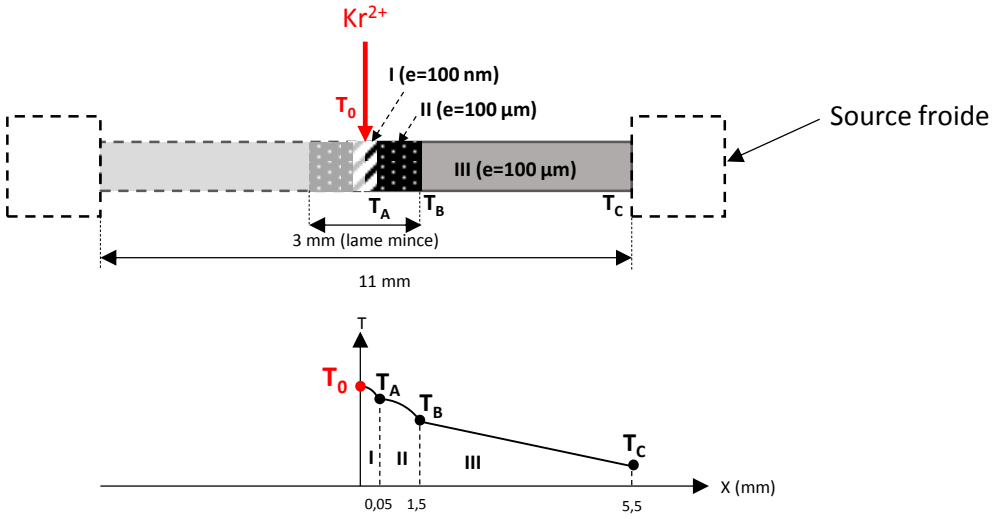


Figure V-21. Modèle 1D de poutre libre pour l'évaluation de la température induite par le faisceau d'ions.

Par cette méthode, l'accroissement de température induit par le faisceau T_0-T_c est trouvé égal à environ 1°C lors des essais réalisés à 400°C et à température ambiante. Ainsi, même dans des conditions où l'échauffement induit par le faisceau est fortement surestimé (et où certaines sources froides telles que le four ne sont pas prises en compte) l'élévation de la température sous faisceau d'ions est négligeable. Les phénomènes observés *in-situ* résultent donc bien de l'effet de l'irradiation aux ions sur le mouvement des dislocations.

IV.3.2. Mécanismes de déformation sous fluage d'irradiation

De nombreux mécanismes théoriques ont été proposés dans la littérature pour expliquer le fluage sous irradiation des alliages de zirconium, et de nombreuses synthèses présentant la totalité de ces mécanismes ont été réalisées [11]–[13]. Parmi ces mécanismes, deux familles principales ressortent : le mécanisme SIPA (déformation contrôlée par la montée), et le mécanisme de glissement des dislocations assisté par la montée.

Les essais d'irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} de 1 MeV ont permis d'étudier expérimentalement les mécanismes microscopiques du fluage d'irradiation pour des cas de contrainte appliquée élevée. Les observations réalisées démontrent que le vecteur de la déformation lors de ces essais est le glissement des dislocations. Ce glissement, lorsqu'il est bloqué par les amas de défauts ponctuels, est réactivé par le faisceau d'ions. Lorsque la séquence d'irradiation est arrêtée, le glissement de la dislocation est de nouveau stoppé. Il semble donc que la contrainte critique de franchissement des défauts soit plus faible sous irradiation que hors irradiation. L'avancée de la dislocation sous irradiation se fait alors par un mécanisme de désancrage assisté par l'irradiation.

Des modélisations en dynamique moléculaire réalisée dans le cas de l'aluminium [14] et dans le cas du tungstène [15], ont montré que la formation d'une cascade au voisinage d'une dislocation pouvait avoir un impact sur son mouvement, et notamment aider à la montée par absorption de défauts ponctuels. Selon Fu et al. [15], l'impact d'une cascade sur le mouvement de la dislocation est dépendant de la position du PKA vis-à-vis de la dislocation. Il est possible d'estimer, par une méthode simplifiée, le rayon *r* autour du point d'ancrage d'une dislocation, pour lequel un PKA aura un effet sur l'ancrage en question. Si l'on considère une dislocation ancrée sur plusieurs boucles (Figure V-22), la vitesse de glissement v de la dislocation peut s'exprimer par :

$$v = d/\Delta t \qquad \textbf{Eq. V-5}$$

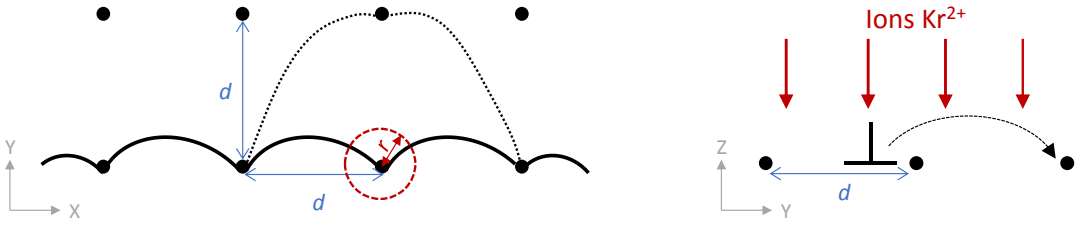
avec d la distance entre points d'ancrage, et le temps Δt est défini comme la somme de la durée entre deux impacts d'ions Δt_{ions} et le temps de diffusion lacunes $\Delta t_{lacunes}$ et des SIAs Δt_{SIAs} :

$$\Delta t = \Delta t_{ions} + \Delta t_{lacunes} + \Delta t_{SIAs} = \frac{1}{\varphi \pi r^2} + \frac{r^2}{D_{lacunes}} + \frac{r^2}{D_{SIAs}} \qquad \textbf{Eq. V-6}$$

avec $D_{lacunes}$ le coefficient de diffusion des lacunes et D_{SIAs} le coefficient de diffusion des interstitiels. Seuls Δt_{ions} et Δt_{SIAs} seront considérés à température ambiante, la mobilité des lacunes étant fortement réduite.

En associant les Eq. V-5 et Eq. V-6, la distance *r* peut s'exprimer par :

$$\varphi\pi.\left(\frac{1}{D_{lacunes}} + \frac{1}{D_{SIAs}}\right) r^4 - \frac{d\varphi\pi}{v} r^2 = 1 \qquad \textbf{Eq. V-7}$$



a) b)

Figure V-22. Schématisation de l'ancrage d'une dislocation sur plusieurs boucles de dislocation a) dans le plan de l'image (XY) b) dans le plan (ZY).

Dans cette approche, les hypothèses simplificatrices suivantes sont donc considérées :
- la dislocation est considérée comme un puit idéal qui attire tous les défauts ponctuels qui se trouvent à la distance r de l'ancrage,
- il suffit d'une seule cascade pour mener au désancrage de la dislocation,
- la distance parcourue par les défauts ponctuels est de r.

La distance entre obstacles d peut s'exprimer en fonction de la densité volumique des boucles N, et en fonction du plan de glissement considéré, comme discuté au Chapitre III (III.1.4.1.). Pour une fluence de 10^{18} ions.m^{-2}, la densité volumique des boucles est mesurée égale à 10^{22} m^{-3}. Les vitesses de glissement des dislocations ont été relevées dans le plan de l'image lors des séquences illustrées en Figure V-17 et Figure V-20 à haute température (400-450°C) et à température ambiante. La même vitesse sera considérée pour les dislocations glissant dans les plans prismatiques et pyramidaux et est de 16,6 nm.s^{-1} à haute température et d'une moyenne de 5 nm.s^{-1} à température ambiante Les valeurs des coefficients de diffusion ont été calculés à partir des estimations faites par Gharbi [16] lors de modélisations en dynamique d'amas d'irradiations aux ions Zr^+ 600 keV. Les coefficients de diffusion obtenus sont, à haute température, $D_{lacunes}$=1,5.10^{-14} m^2.s^{-1} et D_{SIAs}=9,3.10^{-13} m^2.s^{-1}, et à température ambiante, D_{SIAs}=1,8.10^{-15} m^2.s^{-1}.

A haute température, pour les dislocations glissant dans les plans prismatiques et pyramidaux, le rayon *r* est d'environ 12-13 nm. A température ambiante, il est d'environ 7 nm. Il est donc possible de considérer que l'impact d'un ion à quelques nanomètres du point d'ancrage de la dislocation aura un effet sur son mouvement. De plus, en remontant aux temps de diffusion des défauts ponctuels on trouve que, dans ce modèle simplifié, ces derniers sont négligeables face à la durée d'impact entre deux ions Δt_{ions}. En effet, à haute température par exemple, Δt_{SIAs}= 1,5.10^{-4} s, $\Delta t_{lacunes}$=9,5*10^{-3} s et Δt_{ions}= 3 s.

L'impact d'un ion au sein du matériau entraîne également un échauffement thermique local non négligeable. En effet bien que les estimations de l'échauffement induit par le faisceau d'ions aient montré un effet négligeable de ce dernier à l'échelle de la lame mince, à l'échelle de la cascade et de son environnement, la puissance induite par l'interaction entre les ions et les atomes du réseau peut être importante. Cette puissance peut être déterminée grâce à l'équation :

$$\Delta E = \rho/(S.t) \qquad \textbf{Eq. V-8}$$

avec ρ la perte d'énergie des ions en MeV/ions, S la surface d'impact et t le temps de parcours de l'ion à travers la lame pris égale à 1 ps.

La valeur de la puissance déposée localement induite par un ion sur un cercle de rayon de 13 nm est donc de $1{,}2.10^5$ $W.m^{-2}$. Gao et al. [17] estiment la température induite par l'ion autour du centre de la cascade par dynamique moléculaire, pour l'irradiation du zirconium pour un PKA d'une énergie de 20 keV. Pour une température d'irradiation 327°C, il démontre que la température à une distance de 5 nm autour du centre de la cascade est de plus de 1000°C. Il existe donc une agitation thermique locale des atomes très importante dans la cascade. D'après Gao et al. [17], cet échauffement est également plus important à haute température, ce qui peut expliquer la différence de cinétique observée lors des essais : la vitesse de glissement semble plus rapide à haute température qu'à température ambiante, ce qui est probablement lié à un mécanisme de désancrage localement thermiquement activé.

Dollins [18] propose trois mécanismes de désancrage des dislocations, dans le cadre du modèle de fluage d'ancrage-désancrage, basés sur : 1) la montée des dislocations 2) le cisaillement du défaut 3) l'absorption du défaut. Dans le cadre de nos expériences, ces mécanismes peuvent être considérés de façon simultanée. Premièrement, la formation d'une cascade suffisamment proche d'une dislocation peut entraîner localement la montée de cette dernière par absorption des défauts ponctuels et aider au désancrage de la dislocation, comme démontré lors de modélisation en dynamique moléculaire [14], [15]. Si l'ancrage de la dislocation résultait de la formation de jonctions ancrantes lors d'une interaction avec une boucle, une dissolution de ces points d'ancrage est également envisageable par absorption des défauts ponctuels. La formation de cascades au voisinage d'une dislocation peut également affecter son glissement. En effet comme le démontre Fu et al. [15] lors de modélisations en dynamique moléculaire dans du tungstène, les cascades aident au glissement de la dislocation, et peuvent entraîner son désancrage par cisaillement.

Ces deux mécanismes sont donc envisageables pour expliquer les observations réalisées dans le cadre de nos essais. Les résultats obtenus démontrent que dans le cas du fluage d'irradiation sous forte contrainte, la déformation est contrôlée par le glissement des dislocations, et infirment la présence du mécanisme de type SIPA dans ces conditions.

Synthèse du Chapitre

Sous irradiation neutronique, les alliages de zirconium sont soumis au fluage d'irradiation, induit par l'effet simultané du flux de neutrons et de la contrainte appliquée. De nombreux modèles théoriques ont été proposés concernant les mécanismes microscopiques régissant la déformation sous irradiation [11]–[13], [18], [19], mais peu d'études expérimentales ont été réalisées. Des études macroscopiques ont permis de conclure sur le rôle important des dislocations <a> et <c+a> sur ces mécanismes de fluage d'irradiation [1]. Les mécanismes principalement proposés impliquent la montée des dislocations sous irradiation (mécanismes de montée pure ou de glissement assisté par la montée). Des essais d'irradiation *in-situ* ont ainsi été réalisés aux électrons et aux ions, sans et avec contrainte appliquée, afin d'étudier le comportement de ces dislocations sous irradiation.

Les essais d'irradiation *in-situ* aux électrons de 1 MeV, réalisés sans contrainte appliquée pour des températures de 400°C à 450°C, ont montré la montée hélicoïdale des dislocations. Les dislocations <a>, initialement rectilignes, se déforment au cours de l'irradiation et la formation d'hélices est observée. Des preuves indirectes de la montée des dislocations ont également été observées après irradiation aux ions pour les dislocations <a> et pour les dislocations <c+a>.

Des essais d'irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} de 1 MeV ont été réalisés avec application d'une contrainte, pour des températures d'environ 400-450°C et à température ambiante. Ces essais ont montré que la déformation sous fluage d'irradiation dans un régime de fortes contraintes est contrôlée par le glissement des dislocations. Un phénomène de type ancrage-désancrage des dislocations est observé. En effet, hors irradiation, les dislocations s'ancrent sur les boucles présentes au sein de la microstructure, ce qui conduit à un blocage de leur glissement. Lorsque l'irradiation reprend, le mouvement des dislocations par glissement est réactivé démontrant un désancrage assisté par l'irradiation. En se basant sur des travaux de modélisation par dynamique moléculaire [14], [15], deux mécanismes ont été proposés : un premier mécanisme où le désancrage des dislocations se fait par montée locale, par absorption des défauts ponctuels des cascades, et un second mécanisme où les cascades vont aider au glissement des dislocations et entraîner leur désancrage par cisaillement des défauts.

Ces observations ont été effectuées à haute température, mais également à température ambiante. Ce résultat vient d'une part confirmer les observations macroscopiques du fluage d'irradiation, actif également à température ambiante. Le fluage d'irradiation n'est donc pas contrôlé par un mécanisme de diffusion thermique, mais semble lié à l'effet des cascades de déplacements.

Dans le cadre de cette étude, les mécanismes observés sont représentatifs du fluage d'irradiation sous haute contrainte. Il est cependant envisageable de considérer ces mécanismes comme extrapolables au cas du fluage d'irradiation en réacteur, pour des contraintes plus faibles et des durées plus importantes.

Références bibliographiques

[1] A. Soniak, N. L'Hullier, J.-P. Mardon, V. Rebeyrolle, P. Bouffioux, and C. Bernaudat, "Irradiation Creep Behavior of Zr-Base Alloys," in *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*, G. Moan and P. Rudling, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 2002, pp. 837-837–26.

[2] A. R. Causey, F. J. Butcher, and S. A. Donohue, "Measurement of irradiation creep of zirconium alloys using stress relaxation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 101–113, Oct. 1988.

[3] J. Drouet, "Etude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation," Université de Toulouse, 2014.

[4] P. GEYER, "Comportement elasto-viscoplastique de tubes en zircaloy-4 : approche experimentale et modelisation micromecanique," 1999.

[5] S. N. Buckley and S. A. Manthorpe, "Dislocation loop nucleation and growth in zirconium-2.5 wt% niobium alloy during 1 MeV electron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 169–174, May 1980.

[6] M. Griffiths, M. H. Loretto, and R. E. Smallman, "Electron damage in zirconium I," *J. Nucl. Mater.*, vol. 115, no. 2–3, pp. 313–322, Apr. 1983.

[7] J. Friedel, *Dislocations*. Oxford; New York: Pergamon Press; [U.S.A. ed. distributed by Addison-Wesley Pub. Co., Reading, Mass., 1964.

[8] J. Grilhé, "Formes d'équilibre des dislocations hélicoïdales," *J. Phys. Colloq.*, vol. 27, no. C3, pp. C3-183-C3-187, Jul. 1966.

[9] J. K. Fink and L. Leibowitz, "Thermal conductivity of zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 226, no. 1–2, pp. 44–50, Oct. 1995.

[10] J. R. Rumble, D. R. Lide, and T. J. Bruno, *CRC handbook of chemistry and physics: a ready-reference book of chemical and physical data.* 2017.

[11] J. R. Matthews and M. W. Finnis, "Irradiation creep models — an overview," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, Oct. 1988.

[12] D. Franklin, G. Lucas, and A. Bement, Eds., *Creep of Zirconium Alloys in Nuclear Reactors*. ASTM International, 1983.

[13] R. Adamson, F. Garzarolli, and C. Patterson, "In-Reactor Creep of Zirconium Alloys," *ANT Int.*, 2009.

[14] R. E. Voskoboinikov, "Interaction of collision cascades with an isolated edge dislocation in aluminium," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 303, pp. 125–128, May 2013.

[15] B. Q. Fu, S. P. Fitzgerald, Q. Hou, J. Wang, and M. Li, "Effect of collision cascades on dislocations in tungsten: A molecular dynamics study," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 393, pp. 169–173, Feb. 2017.

[16] N. Gharbi, "Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose," 2015.

[17] F. Gao, D. J. Bacon, A. F. Calder, P. E. J. Flewitt, and T. A. Lewis, "Computer simulation study of cascade overlap effects in α-iron," *J. Nucl. Mater.*, vol. 230, no. 1, pp. 47–56, May 1996.

[18] C. C. Dollins, "Irradiation creep associated with dislocation climb," *Radiat. Eff.*, vol. 11, no. 3–4, pp. 123–131, Dec. 1971.

[19] C. Dollins and F. Nichols, "Mechanisms of Irradiation Creep in Zirconium-Base Alloys," in *Zirconium in Nuclear Applications*, J. Schemel and H. Rosenbaum, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1974, pp. 229-229–20.

Conclusion et Perspectives

Ce travail de thèse avait pour objectif d'analyser les mécanismes microscopiques de la déformation viscoplastique en réacteur des alliages de zirconium sous deux types de déformation : la déformation après irradiation, où le flux instantané de neutrons peut être négligé quand la contrainte appliquée est importante, et la déformation sous irradiation, où l'effet du flux et de la contrainte sont étudiés de façon simultanée. Pour cela, trois axes d'étude principaux ont été définis : une analyse des défauts cristallins induits par l'irradiation, une étude de la déformation post-irradiation et une étude du fluage d'irradiation. Les conclusions et perspectives de ce travail de thèse seront détaillées pour chacun de ces axes d'étude.

1. Analyse des boucles de dislocation <a> induites par l'irradiation

A l'échelle microscopique, les mécanismes de la déformation sont affectés par l'apparition sous irradiation de défauts cristallins et notamment de boucles de dislocation <a>. Afin de caractériser ces boucles, des échantillons de Zy-4-RXA ont été irradiés aux électrons de 1 MeV et aux ions Zr^+ 600 keV à 400 et 450°C. L'évolution de la densité volumique des boucles et de leur diamètre moyen a été analysée et l'effet de paramètres tels que la température d'irradiation et le flux a été constaté, comme décrit dans la bibliographie. Une augmentation de la température entraîne une diminution de la densité volumique et une augmentation de leur diamètre moyen, et un effet inverse est observé quand le flux augmente.
Les résultats majeurs de cette partie de l'étude concernent l'analyse de la nature des boucles. Sous irradiation aux électrons, les boucles interstitielles et lacunaires coexistent et la proportion en boucles interstitielles augmente avec la température. Ces résultats complètent les données de la bibliographie où des désaccords subsistent, et confortent le fait que les boucles lacunaires peuvent nucléer malgré l'absence de cascade. Aucune analyse de nature de boucles après irradiation aux ions n'avait jusqu'à présent, été réalisée. Cette étude démontre qu'après irradiation aux ions à 450°C, les boucles ne sont que de nature interstitielle. Les différents résultats ont été expliqués sur la base de la migration des défauts ponctuels et impliquent que la différence de diffusion anisotrope entre les SIAs et les lacunes est faible. Ils attestent également d'une différence de biais d'absorption faible des défauts ponctuels par les boucles.

Ces résultats précis concernant la nature des défauts fournissent les données expérimentales nécessaires pour des simulations en dynamique d'amas. Afin de compléter cette étude, il serait intéressant de réaliser des analyses de nature de boucles à des températures plus faibles, afin de confirmer la diminution de la proportion en boucles interstitielles. De plus, afin de confirmer la faible différence d'anisotropie de diffusion, des analyses pour des grains aux orientations différentes (axe <c> plus ou moins inclinés par rapport à la normale à la lame) mériteraient d'être réalisées.

2. Déformation post-irradiation

Au niveau microscopique les mécanismes de déformation post-irradiation se traduisent par l'interaction des dislocations avec les défauts microstructuraux. En effet, comme le rappelle l'étude bibliographique, les boucles agissent soit comme obstacles au glissement des dislocations, soit sont

annihilées par ces dislocations. Pour une meilleure compréhension de ces mécanismes d'interaction, des essais de traction *in-situ* au MET ont été effectués à température ambiante et pour des températures allant de 350°C à 500°C. Les éprouvettes de Zy-4-RXA ont été pré-irradiées aux ions afin de contenir une densité en boucles intiale. Ces essais ont montré une activation préférentielle du glissement prismatique, notamment à température ambiante, et un glissement pyramidal à haute température, qui s'effectue par de nombreux doubles glissements déviés des dislocations. L'activation du glissement dans le plan de base n'est observée que dans de rares cas, pour des orientations spécifiques. Comme attendu, des interactions de type ancrage et absorption des boucles ont été observées dans les plans prismatiques et pyramidaux. Les interactions d'ancrage entraînent un fort ralentissement du glissement des dislocations, phénomène qui se traduit à l'échelle macroscopique par un durcissement du matériau. L'absorption des boucles se fait, quant à elle, par la création de crans ou de tours d'hélice le long de la ligne de dislocation, qui ancrent également temporairement la dislocation. Les boucles sont ainsi progressivement annihilées, ce qui peut mener à un phénomène de canalisation du glissement. Dans le plan de base, seuls de nombreux ancrages des dislocations vis sur les boucles ont été observés.
L'interaction entre une dislocation et une boucle est dépendante de leurs caractéristiques respectives. Lors des essais de traction, les caractéristiques des boucles (vecteur de Burgers, nature, position) n'ont pu être déterminées. La Dynamique des Dislocations est alors utilisée pour simuler ces interactions. Ces simulations consistent à reproduire des interactions élémentaires observées expérimentalement en faisant varier les caractéristiques de la boucle. Trois cas expérimentaux ont ainsi été simulés et montrent une bonne correspondance entre la Dynamique des Dislocations et l'expérience. Les caractéristiques des boucles ainsi déterminées permettent d'une part d'interpréter les observations expérimentales mais également d'obtenir une meilleure compréhension globale des interactions dislocation-boucle.

En perspective des essais de traction *in-situ*, il serait intéressant de réaliser de nouveaux essais permettant l'activation du glissement dans le plan de base. En effet, ce dernier n'est que rarement activé, et de plus, probablement pour des raisons de conditions d'imagerie, seules des interactions d'ancrages ont été observées. Or, d'après l'étude bibliographique, le phénomène de canalisation induit par le balayage des boucles après irradiation aux neutrons a été visualisé en particulier dans ce plan. Ces nouveaux essais devraient donc permettre d'observer des cas d'absorption de boucles dans le plan de base. Dans le cadre de cette thèse, un essai de traction a été réalisé à température ambiante sur une éprouvette non irradiée, et a permis de réaliser une étude primaire de la cinétique et des mécanismes de glissement des dislocations hors irradiation. Une poursuite de cette étude est à envisagée car elle permettrait de mieux estimer l'effet ancrant des boucles dans le cas du matériau irradié.
Deux des simulations en Dynamique des Dislocations représentent des cas d'interactions élémentaires entre une dislocation et une boucle isolée. La troisième simulation modélise le glissement d'une dislocation dans un environnement composé de plusieurs boucles. La bonne cohérence entre expérience et les simulations en Dynamique des Dislocations permet désormais de simuler avec confiance des systèmes de taille plus conséquente (impliquant de nombreuses boucles), plus représentatifs du comportement mécanique à l'échelle mésoscopique, et ainsi de calculer le durcissement lié à la présence des boucles. D'autre part, en étendant ces simulations à l'étude du comportement de plusieurs dislocations, une meilleure compréhension du phénomène de canalisation du glissement ainsi qu'une identification des lois de plasticité cristalline seront alors rendues possibles.

3. Déformation sous irradiation

Sous irradiation, les alliages de zirconium subissent des déformations par fluage sous irradiation, qui se traduit par l'effet simultané du flux de neutrons et de la contrainte appliquée. Les dislocations jouant un rôle majeur dans les mécanismes microscopiques du fluage d'irradiation, une étude expérimentale de leur mouvement est donc nécessaire. Pour ce faire, des irradiations *in-situ* ont été réalisées dans un premier temps sans contrainte appliquée puis en présence d'une contrainte.
Les essais d'irradiation sans contrainte appliquée ont été réalisés *in-situ* aux électrons de 1 MeV et aux ions Zr^{2+} 300 keV pour des températures allant de 400°C à 450°C. Des échantillons de Zy-4-RXA ont été pré-écrouis pour contenir une densité en dislocations <a> initiale. Ces essais ont permis l'obtention de preuves directes et indirectes de la montée hélicoïdale des dislocations <a> et <c+a> au cours de l'irradiation. La montée hélicoïdale d'une dislocation <a> à 450°C a été quantifiée en termes d'amplitude des hélices et de pas moyen.
Afin d'étudier l'effet d'une contrainte appliquée sur le mouvement des dislocations, des essais de traction *in-situ* sous irradiation aux ions Kr^{2+} de 1 MeV ont ensuite été réalisés à température ambiante et à haute température (400°C à 450°C). Ces essais ont permis d'étudier de façon préliminaire les mécanismes du fluage d'irradiation dans un régime de forte contrainte. Ces essais consistent à réaliser plusieurs séquences d'irradiation sur une même dislocation. Les résultats obtenus démontrent que la déformation est contrôlée par le glissement des dislocations. Un phénomène de désancrage des dislocations assisté par le faisceau d'ions est observé. Le fait que ce mécanisme soit également actif à température ambiante atteste de sa faible activation thermique. Deux mécanismes de désancrage ont alors été proposés, aidé par les cascades de déplacements: un mécanisme de désancrage par montée locale de la dislocation, et un mécanisme de cisaillement de l'ancrage. Dans le cadre de cette étude, les mécanismes observés sont représentatifs du fluage d'irradiation sous haute contrainte. Il est cependant possible que ces mécanismes soient extrapolables au cas du fluage d'irradiation en réacteur, pour des contraintes plus faibles mais des durées plus importantes.

Afin de compléter ces travaux préliminaires, les deux phases de l'étude ; sans contrainte et avec contrainte appliquée ; doivent être poursuivies. Il serait intéressant de compléter les données quantitatives de la montée hélicoïdale des dislocations <a> et <c+a> sous différentes conditions d'irradiation (température et flux), afin d'en déduire un comportement général des dislocations. De plus l'aspect 3D de la montée hélicoïdale pourrait être étudié, afin de démontrer si les dislocations montent par absorption des interstitiels ou des lacunes. Dans le cas des essais avec contrainte appliquée, des hypothèses ont été proposées quant aux mécanismes de désancrage des dislocations assisté par le faisceau. De nouveaux essais sous différentes conditions d'irradiation (température et flux) pourraient permettre de conforter ces hypothèses. Dans un second temps, ces mécanismes pourraient être validés par la réalisation de modélisations en dynamique moléculaire pour une dislocation initialement ancrée soumises aux effets d'une cascade de déplacements.

Les résultats obtenus lors de cette étude permettent d'une part d'obtenir une meilleure connaissance de l'évolution de la microstructure Du Zircaloy-4 sous irradiation aux particules chargées, et d'évaluer l'impact de cette microstructure sur les mécanismes de déformation après et sous irradiation. A terme, il serait possible d'intégrer ces résultats dans des modèles polycristallins permettant la prédiction du comportement en fonctionnement nominal des crayons combustibles.

Table des figures

Chapitre I

Figure I-1. Structure hexagonale compacte (HCP) a) Maille élémentaire de la structure hexagonale compacte b) Plans et directions cristallographiques suivant la notation de Miller-Bravais. 6
Figure I-2. Texture cristallographique des alliages de zirconium a) sous leur forme détendue b) sous leur forme recristallisée [2]. 9
Figure I-3. Figures de pôles du Zy-4 sous la forme de tubes TREX [4]. 9
Figure I-4. Figures de pôles du Zy-4 sous la forme de tôle recristallisée [4]. 10
Figure I-5. Mécanisme de Peierls : glissement de la dislocation d'une vallée de Peierls vers une vallée voisine par la création de doubles décrochements. 11
Figure I-6. Evolution de la cission critique en fonction de la température et de la pureté du matériau dans le cas d'un monocristal de zirconium : concentration en oxygène de 120 ppm pour la pureté la plus élevée et concentration en oxygène de 200 ppm pour le matériau le moins pur [13]. 14
Figure I-7. Montée d'une dislocation coin par émission d'une lacune thermique. 16
Figure I-8. Modèle de fluage par montée pure. 17
Figure I-9. Collision élastique d'un neutron rapide avec un atome du réseau cristallin a) création d'une paire de Frenkel b) formation d'une cascade de déplacements. 18
Figure I-10. Formation de boucles de dislocation a) amas plan lacunaire a') boucle de dislocation lacunaire b) amas plan interstitiel b') boucle de dislocation interstitielle. 21
Figure I-11. Distribution des normales aux plans d'habitats des boucles de dislocation <a> relevées dans du zirconium pur irradié à une fluence de $1{,}4.10^{20}$ $n.cm^{-2}$ et recuit 1h à 490°C [45]. 22
Figure I-12. Distribution en « ailes de papillon » des normales aux plans d'habitat des boucles de dislocation <a> [46]. 22
Figure I-13. Evolution des ellipses des boucles de dislocation <a> en fonction du diamètre des boucles et de leur nature [45]. 23
Figure I-14. Essais d'écrouissage interrompus en pression interne à 350°C sur du Zy-4 recristallisé [67]. 27
Figure I-15. Effet de l'irradiation aux neutrons sur le comportement en traction du Zy-2 recuit [64]. 28
Figure I-16. Mécanisme de canalisation observé dans le plan de base sur des échantillons de Zy-4 pré-irradiés aux neutrons à 280°C et $0{,}6.10^{25}$ $n.m^{-2}$, puis sollicités en traction à 350°C dans le sens transverse [67]. 30
Figure I-17. Contournement du précipité par le mécanisme d'Orowan dans du Cu à température ambiante (300 K) par une dislocation coin, interaction simulée par Dynamique Moléculaire [77]. 31
Figure I-18. Cisaillement d'un SFTs par une dislocation vis puis restauration complète du défaut simulé par dynamique moléculaire [78]. 32
Figure I-19. Absorption partielle d'un SFT par une dislocation coin et création d'un double super-cran [78]. 33
Figure I-20. Annihilation d'un SFT entraînant la formation de super-crans sur les dislocations dans de l'or trempé, les dislocations indiquées par des chiffres sont impliquées dans l'annihilation du SFT [82]. 33
Figure I-21. Formation d'un tour d'hélice le long de la ligne d'une dislocation vis après interaction avec une boucle de Frank dans du nickel [84]. 34
Figure I-22. Interaction entre une dislocation initialement mixte et une boucle de dislocation prismatique à 300 K dans un échantillon de cuivre [86]. 35
Figure I-23. Interaction d'une dislocation avec une boucle dans le plan de base A) de même vecteur de Burgers B) de vecteur de Burgers différents [67]. 36
Figure I-24. Interaction d'une dislocation et d'une boucle dans un plan prismatique C) de même vecteurs de Burgers D) de vecteurs de Burgers différents [67]. 37

Figure I-25. Différence de modes de déformation entre a) une lame mince prélevée dans une éprouvette massive préalablement tractionnée b) une lame mince prélevée dans un échantillon massif puis tractionnée [67]. 39
Figure I-26. Stades de la croissance sous irradiation du Zy-2 recristallisé irradiés aux neutrons pour des températures allant de 277°C à 307°C [88]..... 41
Figure I-27. Les trois stades de la déformation par croissance sous irradiation des alliages de zirconium a-c) recristallisés d) écrouis [29]..... 44
Figure I-28. Mise en hélice d'une dislocation <c+a> dans du zirconium irradié aux électrons [104]. .. 47
Figure I-29. Nucléation d'une hélice lors de la montée d'une dislocation 1) Dislocation avant mise en hélice 2) Position critique de la dislocation 3) Position instable lors d'une sursaturation en défauts ponctuels [9]..... 47
Figure I-30. Etapes de la mise en hélice d'une dislocation par montée [9]. 48
Figure I-31. Montée des dislocations par le mécanisme SIPA: le biais des dislocations est modifié par la contrainte. 48
Figure I-32. Schéma du processus de glissement assisté par la montée (Matthews & Finnis, 1988)... 51

Chapitre II

Figure II-1. Morphologie des grains de la tôle de Zy-4 RXA. 62
Figure II-2. Protocole de préparation des lames minces pour des analyses avant irradiation ou pour irradiation *in-situ* (lame mince non irradiée), et des analyses post-irradiation (lame mince post-irradiation)..... 63
Figure II-3. Microscope électronique en transmission très haute tension (MET-THT) du SRMA au CEA de Saclay. 65
Figure II-4. Accélérateur ARAMIS du CSNSM d'Orsay. 67
Figure II-5. Simulation par *SRIM* du profil de dommage lors d'une irradiation aux ions Zr^+ 600 keV à une fluence de a) 8.10^{17} ions.m^{-2} et b) 24.10^{17} ions.m^{-2}..... 68
Figure II-6. Porte-objet pour les irradiations aux ions a) porte-objet monté sur le support d'irradiation b) encoches pour installation des lames minces. 69
Figure II-7. Calibration de la température de l'échantillon et du montage d'irradiation aux ions en fonction de la température de consigne. 69
Figure II-8. Formation et croissance de boucles de dislocation <a> sous irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C et pour un flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. 71
Figure II-9. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 400 et 450°C et pour un flux de 3 à 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. 72
Figure II-10. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 450°C et pour un flux de $3,6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$. 72
Figure II-11. Evolution de a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles <a> en fonction de la dose lors d'irradiation *in-situ* aux électrons à 450°C et pour des flux de 6.10^{21} $e^-.m^{-2}.s^{-1}$ et de $3,6.10^{22}$ $e^-.m^{-2}.s^{-1}$..... 73
Figure II-12. Microstructure après irradiation aux ions Zr+ 600 keV a) à 400°C et 0,5 dpa b) à 450°C et 0,5 dpa c) à 450°C et 1,4 dpa..... 74
Figure II-13. Distribution du diamètre des boucles après irradiation aux ions Zr+ 600 keV a) effet de la température pour une dose de 0,5 dpa b) effet de la dose pour une température de 450°C. 74
Figure II-14. Vitesse de croissance des boucles en fonction du flux d'électrons dans les alliages de zirconium..... 75
Figure II-15. Evolution du diamètre de boucles spécifiques observées sous irradiation aux électrons de 1 MeV dans deux grains à a) 400°C et b) 450°C. 76
Figure II-16. Comparaison entre a) la densité volumique et b) le diamètre moyen des boucles obtenues après irradiation aux électrons de 1 MeV et aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C et pour un taux de dommage de 1.10^{-4} dpa.s^{-1}. 77

Figure II-17. Détermination du vecteur de Burgers des boucles par la méthode d'extinction après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 450°C et 0,5 dpa. 79
Figure II-18. Méthode de détermination du plan d'habitat d'une boucle de dislocation <a>. 79
Figure II-19. Distribution de la normale des plans d'habitat des boucles après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 400°C et pour une dose de 0,5 dpa. 80
Figure II-20. Distribution des boucles de dislocation vers les plans pyramidaux..... 81
Figure II-21. Effet du signe du vecteur de Bragg sur le contraste des boucles. 83
Figure II-22. Boucle lacunaire en a) contraste interne et b) contraste externe..... 83
Figure II-23. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux ions Zr^+ 600keV à 400°C et 0,5 dpa a) boucles en contraste externe (+$\boldsymbol{g}$) b) boucle en contraste interne (-$\boldsymbol{g}$)..... 84
Figure II-24. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C et 0,03 dpa a) s>0 b) s<0. A tilt nul, λ=14,5°..... 85
Figure II-25. Caractérisation de la nature des boucles de dislocation par la méthode du contraste interne-externe après irradiation aux électrons de 1 MeV à 400°C et 0,04 dpa a) boucles en contraste externe (-$\boldsymbol{g}$) b) boucle en contraste interne (+$\boldsymbol{g}$). A tilt nul, λ=30°. 85

Chapitre III

Figure III-1. Porte objet de traction et éprouvettes de traction *in-situ* a) pour les essais à haute température (longueur 7,5 mm) b) pour les essais à température ambiante (longueur 11,5 mm). 94
Figure III-2. a) sens de prélèvement des éprouvettes de traction *in-situ* dans la tôle recristallisée b) Projection stéréographique théorique donnant l'orientation du grain c) Facteur de Schmid des systèmes de glissement..... 95
Figure III-3. Microstructures obtenues après irradiation aux ions Zr^+ de 600 keV d'éprouvettes de Zy-4 recristallisé a) à 400°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} b) à 450°C et 8.10^{17} ions.m^{-2} c) 450°C à $2,4.10^{18}$ ions.m^{-2}. .. 96
Figure III-4. Méthode de détermination du plan de glissement à tilt nul a)Projection des traces de glissement sur l'écran du MET b) Report de la direction des traces de glissement sur la projection stéréographique. 97
Figure III-5. Méthode de détermination du plan de glissement à un angle de tilt α≠0 a) Projection des traces de glissement sur l'écran du MET b) Report de la direction des traces de glissement sur la projection stéréographique..... 98
Figure III-6. Détermination du type de vecteur de Burgers des dislocations a) $\boldsymbol{g}$=$\mathbf{0111}$ b) $\boldsymbol{g}$=0001. 99
Figure III-7. Identification du plan de glissement par étude de la largeur apparente entre traces en fonction de l'angle de tilt α, essai à température ambiante sur une éprouvette de Zy-4 RXA non irradiée. 101
Figure III-8. Etalement d'une dislocation dans un plan prismatique (a)) et projection sur l'écran du MET (b)). 102
Figure III-9. Cinétique de glissement dans les plans prismatiques lors d'un essai sur éprouvette non irradiée à température ambiante..... 102
Figure III-10. Détermination du coefficient de viscosité dans le plan prismatique à 350°C. La forme d'équilibre de la dislocation en fonction de la contrainte obtenue à l'aide de DISDI est donnée en f). 104
Figure III-11. Evolution de la contrainte de tension de ligne τ_l en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation dans un plan prismatique à 350°C. 104
Figure III-12. Détermination du coefficient de viscosité dans le plan prismatique à 350°C. La forme d'équilibre de la dislocation en fonction de la contrainte obtenue à l'aide de DISDI est donnée en d). 105
Figure III-13. a)-c) Identification du glissement dans le système pyramidal <a> lors d'un essai de traction *in-situ* à température ambiante sur du Zy-4 non irradié d) Evolution de L_α en fonction de $\cos(\theta_\alpha)$... 106

Figure III-14. Preuve de l'activation du glissement pyramidal lors des essais de traction *in-situ* à haute température sur éprouvette pré-irradiée. 107
Figure III-15. Glissement des dislocations dans le plan pyramidal par un mécanisme de double glissement dévié lors d'un essai de traction à 400°C sur une éprouvette de Zy-4 pré-irradiée aux ions. 108
Figure III-16. Evolution de la contrainte de tension de ligne τ_l en fonction de la vitesse de glissement de la dislocation dans un plan pyramidal à 400°C. 109
Figure III-17. Glissement des dislocations dans le plan de base lors d'un essai de traction à 500°C.. 110
Figure III-18. Glissement des dislocations dans le plan de base lors d'un essai de traction à 350°C.. 110
Figure III-19. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation <a> à température ambiante. e) projection stéréographique au tilt d'observation : +5,10°. 113
Figure III-20. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation <a> à température ambiante. e) projection stéréographique au tilt d'observation : -23.4. 114
Figure III-21. Ancrage de dislocations glissant dans un plan prismatique sur une boucle de dislocation à 350°C. 115
Figure III-22. Ancrage d'une dislocation sur une boucle : estimation de la force d'obstacle sur l'image ramené dans le plan de la dislocation a) modèle ne prenant pas en compte le caractère des lignes b) modèle prenant en compte le caractère vis ou coin des lignes. 116
Figure III-23. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal sur une boucle de dislocation <a> à 400°C. 117
Figure III-24. Ancrage d'une dislocation glissant dans le plan de base sur des boucles de dislocation <a> à 350°C. 118
Figure III-25. Absorption de boucle par une dislocation glissant dans un plan prismatique à température ambiante. 122
Figure III-26. Formation d'un tour d'hélice le long d'une dislocation glissant dans un plan prismatique à température ambiante. 123
Figure III-27. Absorption d'une boucle sous la forme d'un tour d'hélice par une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 400°C. 124
Figure III-28. Absorption de deux boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal ou prismatique à 400°C. 125
Figure III-29. Absorption de boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 350°C... 126
Figure III-30. Faible occurrence d'interaction lors du glissement de dislocations dans un plan prismatique à 350°C. 129
Figure III-31. Non interaction entre une dislocation glissant dans un plan pyramidal et deux boucles à 400°C. 129

Chapitre IV

Figure IV-1. Approche multi-échelle de la déformation plastique [2]..... 134
Figure IV-2. Etapes principales du calcul réalisé par le code NUMODIS pour les modélisations en Dynamique des Dislocations. 135
Figure IV-3. Ancrage d'une dislocation glissant dans un plan pyramidal sur une boucle de dislocation <a> à 400°C. 137
Figure IV-4. a) Boîte de simulation en Dynamique des Dislocations b) Vérification de la correspondance des traces après avoir renseigné les données géométriques et cristallographiques. 138
Figure IV-5. Modélisation des interactions obtenues en fonction des différents vecteurs de Burgers de la boucle interstitielle a) cas expérimental b) $\mathbf{b} = \mathbf{13}[\mathbf{1210}]$ (cas retenu) c) $\mathbf{b} = \mathbf{13}[\mathbf{1120}]$ et d) $\mathbf{b} = \mathbf{13}[\mathbf{2110}]$. 141
Figure IV-6. Simulation d'une interaction d'ancrage entre une dislocation glissant dans un plan pyramidal et une boucle de dislocation ayant des vecteurs de Burgers identiques (angles d'Euler en radians à tilt nul : φ_1= 0,994, ϕ=2,548, φ_2=1,937 et angle de tilt : 0,0698). 145

Figure IV-7. Simulation d'une interaction d'absorption de boucles par une dislocation glissant dans un plan pyramidal et de vecteur de Burgers différents (angles d'Euler en radians à tilt +11° : φ_1=2,88, ϕ =0,593 et φ_2=0,942)..... 149
Figure IV-8. Mécanisme d'absorption d'une boucle L par une dislocation G [23] et comparaison avec l'interaction obtenue lors des simuations..... 150
Figure IV-9. Ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base sur les boucles de dislocation. 152
Figure IV-10. Modélisation d'ancrages d'une dislocation glissant dans le plan de base avec des boucles de vecteur de Burgers différents (angles d'Euler en radians φ_1=-0,105, ϕ=2,496, φ_2=2,409 et angle de tilt en radians : -0,052). 155

Chapitre V

Figure V-1. Essais de pression interne à 350°C et 90 MPa pour du Zy-4 recristallisé et détendu [1]. 160
Figure V-2. a) Prélèvement et pré-écrouissage de bandes de Zy-4 recristallisées b) Présence de dislocations prismatiques de vecteur de Burgers <a>. 161
Figure V-3. Etude de la microstructure des éprouvettes prélevées dans le plan DA-DT du tube TREX a) analyse métallographique b) présence de dislocations de vecteur de Burgers <c+a>. 162
Figure V-4. Couplage de l'implanteur d'ions IRMA avec un MET FEI Tecnaï G^2 20 Twin au CSNSM d'Orsay. 163
Figure V-5. Simulation par *SRIM* lors d'une irradiation *in-situ* aux ions Zr^{2+} 300 keV à une fluence de 8.10^{17} ions.m^{-2} et pour un angle d'inclinaison de 50°. 164
Figure V-6. Couplage entre l'implateur d'ions et un MET Hitachi-9000 à l'IVEM d'Argonne..... 165
Figure V-7. Simulation par *SRIM* lors d'une irradiation *in-situ* aux ions Kr^{2+} 1 MeV à une fluence de 1.10^{18} ions.m^{-2} et pour un angle d'inclinaison de 20°..... 165
Figure V-8. Montée hélicoïdale des dislocations de vecteur de Burgers <a> sous irradiation aux électrons à a) 400°C et $3{,}6.10^{21}$ ions.m^{-2}.s^{-1} et b) 450°C et 6.10^{21} ions.m^{-2}.s^{-1}. 167
Figure V-9. Evolution de l'amplitude des hélices et du pas moyen de dislocations observées à a) 400°C et b) 450°C sous irradiation aux électrons de 1 MeV..... 168
Figure V-10. Evolution de l'amplitude des hélices et du diamètre moyen des boucles lors d'une irradiation aux électrons de 1 MeV à 450°C..... 169
Figure V-11. Méthode de détermination et évolution de l'angle Ψ entre la ligne de dislocation et son vecteur de Burgers lors de la montée hélicoïdale sous irradiation aux électrons de 1 MeV..... 169
Figure V-12. Irradiation *in-situ* aux ions Zr^{2+} 300 keV à 450°C d'une lame contenant des dislocations <a> pour un flux de 5.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1} a) après 0,03 dpa (2 min) b) 0,7 dpa (après 47 min)..... 170
Figure V-13. Dislocation <a> sinueuse observée après irradiation aux ions Zr+ 600 keV à 450°C pour une fluence de 24.10^{17} ions.m^{-2}. 170
Figure V-14. Montée des dislocations de vecteur de Burgers <c+a> sous irradiation aux ions Zr^{+} 300 keV à 400°C et pour un flux de $4{,}4.10^{14}$ ions.m^{-2}.s^{-1}. 171
Figure V-15. Détermination du plan de glissement d'une dislocation sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à 400-450°C..... 173
Figure V-16. Etapes de la séquence d'allumage/extinction du faisceau d'ions Kr^{2+} 1 MeV lors d'une expérience à haute température (400-450°C). 173
Figure V-17. Mouvement d'une dislocation glissant dans un plan prismatique ou pyramidal sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à 400-450°C et pour un flux de 6.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}. 175
Figure V-18. Détermination du plan de glissement de dislocations sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à température ambiante. 176
Figure V-19. Etapes de la séquence d'allumage/extinction du faisceau d'ions Kr^{2+} 1 MeV lors d'une expérience à température ambiante. 176
Figure V-20. Mouvement d'une dislocation glissant dans un plan prismatique ou pyramidal sous irradiation aux ions Kr^{2+} 1 MeV à température ambiante et pour un flux de 6.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}..... 178

Figure V-21. Modèle 1D de poutre libre pour l'évaluation de la température induite par le faisceau d'ions. 180
Figure V-22. Schématisation de l'ancrage d'une dislocation sur plusieurs boucles de dislocation a) dans le plan de l'image (XY) b) dans le plan (ZY). 182

Table des tableaux

Chapitre I

Tableau I-1. Composition chimique du Zircaloy-4, Zircaloy-2 et M5 (% massique) 7
Tableau I-2. Systèmes de glissement principaux des métaux à structure hexagonale compacte [2]... 12
Tableau I-3. Bilan des interactions dislocation-boucle observées lors de simulation en dynamique des dislocations en fonction du plan de glissement de la dislocation, de son caractère et du vecteur de Burgers de la boucle et de la dislocation [4]. 38

Chapitre II

Tableau II-1. Campagnes d'irradiation *in-situ* aux électrons de 1 MeV. 66
Tableau II-2. Campagnes d'irradiations conventionnelles aux ions Zr^+ 600 keV..... 68
Tableau II-3. Conditions d'extinction des vecteurs de Burgers..... 78
Tableau II-4. Détermination de la nature de la boucle par la méthode du contraste interne-externe 82

Chapitre III

Tableau III-1. Estimation de la contrainte critique de franchissement d'obstacle et du $\alpha_{mesuré}$ moyenné sur le système de glissement. 120
Tableau III-2. Résumé des interactions dislocation-boucles observées lors des essais de traction *in-situ.* 128

Chapitre IV

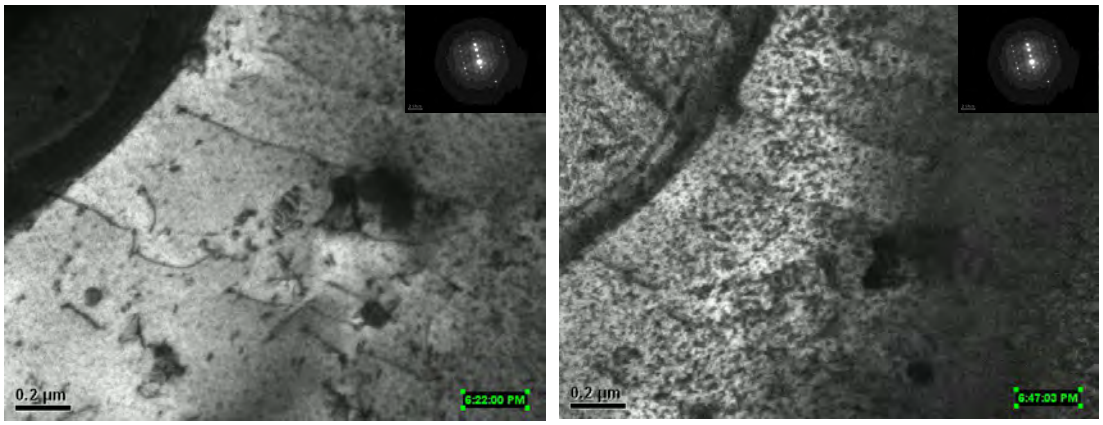
Tableau IV-1. Définition des coefficients élastiques du zirconium à 350°C, moyennés dans le cadre d'un modèle d'élasticité isotrope. 138

Annexes

Annexe A : Irradiation *in-situ* aux ions 198
Annexe B : Analyse de la nature des boucles 201
Annexe C: Cas de modélisation en DD 205
Annexe D : Calibration en température à l'IVEM 206

Annexe A : Irradiation *in-situ* aux ions

Afin d'étudier l'évolution de la microstructure sous irradiation aux ions, des campagnes d'irradiation *in-situ* ont été réalisées au CSNSM d'Orsay à l'aide de l'implanteur IRMA. Lors des premières campagnes d'irradiation, des ions Zr^{2+} d'une énergie de 300 keV ont été utilisés (Tableau-Annexe 1). Des flux d'environ 5.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1} ont été appliqués à des températures d'irradiation de 400°C et 450°C. Lors de ces irradiations, l'apparition de black dots en forte densité est rapidement observée. Cependant leur diamètre semble croitre très lentement alors que la densité continue d'augmenter, comme illustré en Figure-Annexe 1. Le suivi *in-situ* de l'évolution de la densité volumique et du diamètre moyen des boucles est donc rendu difficile. Des essais complémentaires ont été réalisés pour des températures et des flux plus importants. Cependant aucun changement significatif n'est observé.



Microstructure après 2min d'irradiation Microstructure après 47min d'irradiation

Figure-Annexe 1. Microstructure obtenue sous irradiation aux ions Zr^{2+} 300 keV à 450°C.

Certaines lames ont été observées post-mortem, après irradiation aux ions Zr^{2+} de 300 keV à 400 et 450°C. Une forte densité de boucles est observée d'environ $2{,}3.10^{21}$ m^{-3} à 400°C et de $2{,}5.10^{21}$ m^{-3} à 450°C. Le diamètre moyen des boucles est d'environ une quinzaine de nanomètres aux deux températures, et les conditions d'imagerie permettent une meilleure observation que lors des essais *in-situ* (Figure-Annexe 2). Plusieurs analyses de nature des boucles ont été tentées, mais n'ont pas pu aboutir en raison de l'état de surface des lames (oxyde de surface).

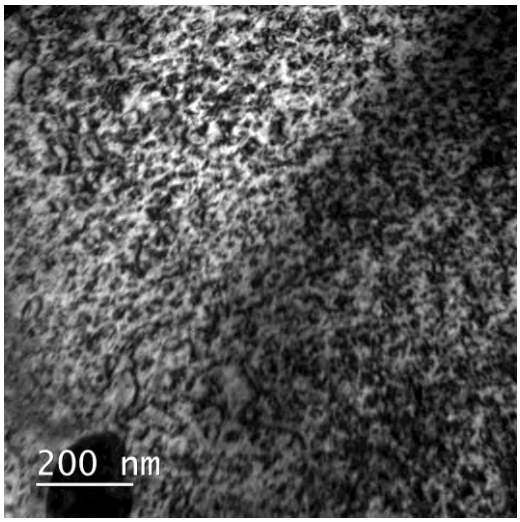
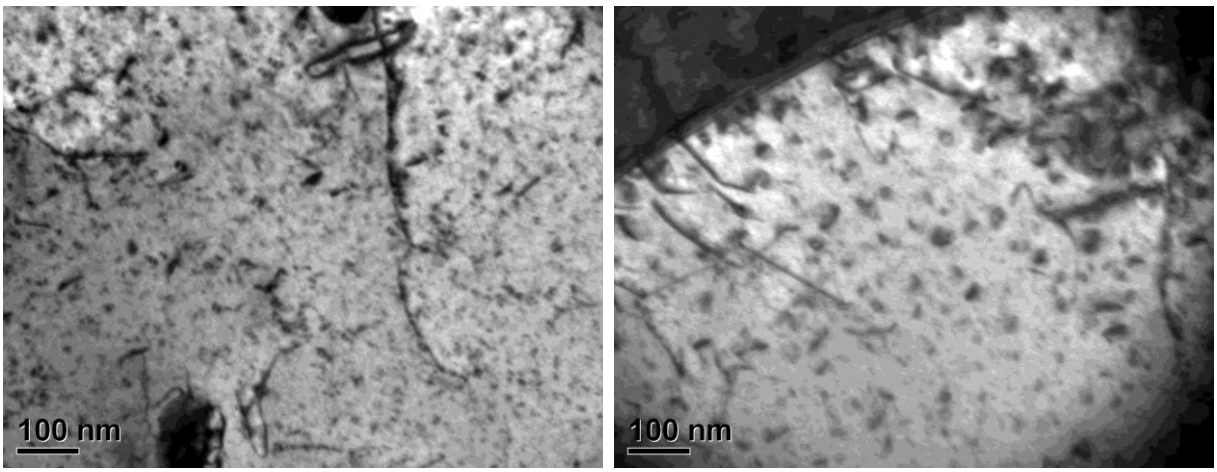


Figure-Annexe 2. Boucle de dislocation observée après irradiation aux ions Zr^{2+} 300 keV à 450°C.

Comme observé précédemment, et en raison de l'inclinaison du faisceau d'ions par rapport à la lame, les irradiations aux ions Zr^{2+} 300 keV n'engendrent pas un dommage dans la totalité de l'épaisseur de la lame mince. Afin de palier à ce problème, des essais complémentaires ont été réalisés avec des ions d'énergie plus importante. Différentes conditions seront testées pour ces irradiations aux ions afin de trouver des conditions optimales pour des essais *in-situ* futurs.

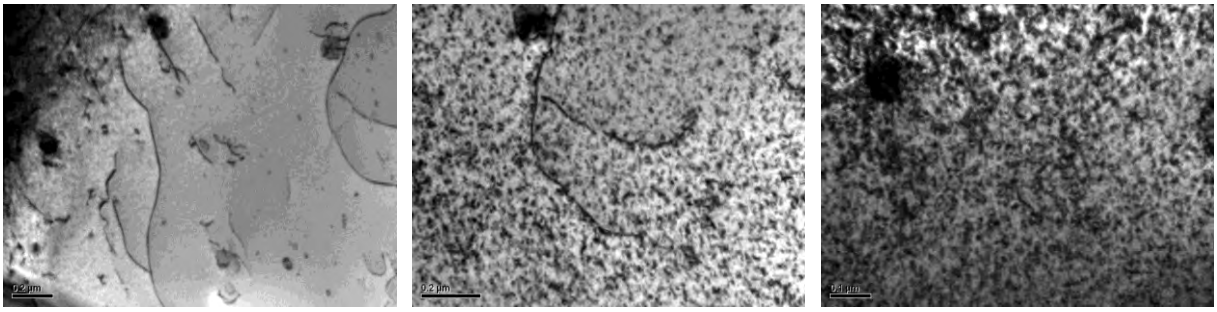
Dans un premier temps les ions Au^{2+} de 4 MeV ont été utilisés pour une température de 450°C et un flux de $1{,}2.10^{15}$ ions.m^{-2}.s^{-1}. L'apparition de black dots en très forte densité rendant très difficile de suivi *in-situ* est également observée. Des irradiations à plus haute température sont alors réalisées à 550°C et pour un flux plus faible de $5{,}2.10^{14}$ ions.m^{-2}.s^{-1}. Les résultats observés sont encourageants, et des boucles de dislocation sont visibles après plusieurs minutes d'irradiation. La croissance des boucles est alors observable. A la fin de l'irradiation ($3{,}8.10^{17}$ ions.m^{-2}) des boucles d'un diamètre de 20 à 40 nm sont observées.



Après 8min6s d'irradiation ($2{,}5{,}10^{17}$ ions.m^{-2}) Après 12min17s d'irradiation ($3{,}8.10^{17}$ ions.m^{-2})

Figure-Annexe 3. Microstructure obtenue sous irradiation aux ions Au^{2+} de 4 Mev à 550°C.

L'utilisation des ions Au^{2+} de 4 MeV entraîne cependant l'ajout d'éléments étrangers au sein de la lame (interstitiels injectés). Plus récemment, de nouvelles irradiations ont donc été réalisées grâce à l'accélérateur ARAMIS, aussi relié au MET, avec des ions zirconium Zr^{+} de 2 MeV. De hautes températures d'irradiation, de 550°C et 650°C, ont également été appliquées pour un flux de d'environ 5.10^{14} ions.m^{-2}.s^{-1}. Ces conditions d'irradiation semblent être les conditions optimales à adopter pour de futures expériences. En effet, comme illustré en Figure-Annexe 4, la croissance des boucles est observée durant l'irradiation de façon nette. Ces conditions d'irradiation pourraient donc permettre de réaliser des suivis *in-situ* de l'évolution des boucles sous irradiation aux ions, mais également d'observer la montée pure des dislocations <a>.



Début de l'irradiation Après 14min04s d'irradiation ($3{,}9.10^{17}$ ions.m^{-2}) Après 29min52s d'irradiation ($8{,}1.10^{13}$ ions.m^{-2})

Figure-Annexe 4. Evolution de la microstructure sous irradiation aux ions Zr^{+} de 2 MeV

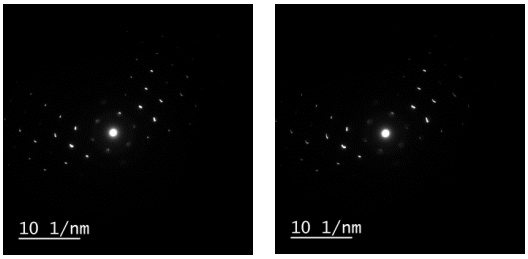
Tableau-Annexe 1. Récapitulatif des essais d'irradiation *in-situ* aux ions.

Date	Implanteur	Ions	Température	Flux (ions.m^{-2}.s^{-1})	Fluence (ions.m^{-2})
20/01/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	400°C	$4{,}9.10^{14}$	$5{,}2.10^{17}$
20/01/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	400°C	$4{,}7.10^{14}$	$4{,}8.10^{17}$
21/01/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	450°C	$5{,}1.10^{14}$	$1{,}1.10^{18}$
22/11/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	450°C	$4{,}8.10^{14}$	$1{,}2.10^{18}$
22/11/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	500°C	4.10^{14}	$1{,}4.10^{18}$
23/11/2016	IRMA	ZR^{2+} 300 keV	450°C	$1{,}4.10^{15}$	8.10^{17}
23/11/2016	ARAMIS	Au^{2+} 4 MeV	450°C	$1{,}2.10^{15}$	$1{,}8.10^{17}$
23/11/2016	ARAMIS	Au^{2+} 4 MeV	550°C	$5{,}2.10^{14}$	$3{,}8.10^{17}$
08/03/2017	ARAMIS	ZR^{+} 2 MeV	550°C	$4{,}2.\ 10^{14}$	$1{,}4.\ 10^{18}$
08/03/2017	ARAMIS	ZR^{+} 2 MeV	550°C	$4{,}6.\ 10^{14}$	$4{,}2.\ 10^{17}$
09/03/2017	ARAMIS	ZR^{+} 2 MeV	650°C	5.10^{14}	$6{,}5.\ 10^{17}$

Annexe B : Analyse de la nature des boucles

- Vérification de la rotation au MET JEOL 2100-

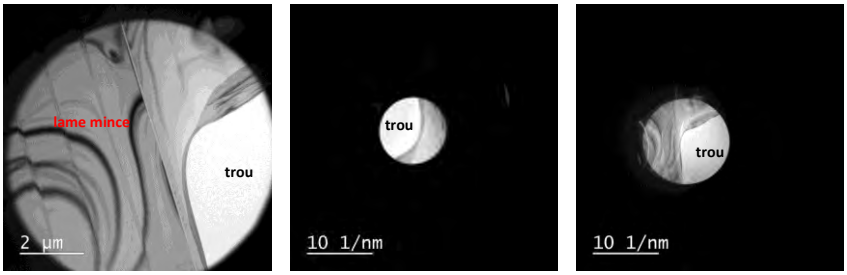
Avant de commencer l'analyse, il est nécessaire de vérifier l'existence d'un angle de rotation entre le mode diffraction et le mode image du MET utilisé. En effet, il existe, pour certains microscopes, une inversion de 180°, difficilement détectable, qui peut fausser l'analyse de la nature des boucles de dislocation. Loretto et Smallman [1] décrivent une première méthode de vérification de cette rotation basée sur une comparaison de l'image et de l'image visible en mode diffraction dans la tâche transmise lorsque l'on se met en « underfocus » (Figure-Annexe 5). Si les deux images sont inversées (ou encore si l'image observée dans la tâche diffractée en « underfocus » est inversée par rapport à celle obtenue en « overfocus ») alors il existe bien une rotation de 180°.



a) b)

Figure-Annexe 5. Cliché de diffraction a) au point b) en « underfocus »(les spots s'éloignent les uns des autres)

Dans notre cas, et comme le démontre la Figure-Annexe 6, il existe bien une rotation de 180° entre la diffraction et l'image.



a) b) c)

Figure-Annexe 6. a) image des bords de la lame mince b) image obtenue en diffraction en « underfocus » c) image obtenue en diffraction en « overfocus ».

Une seconde méthode de vérification est basée sur la détermination de l'axe de la canne du porte-objet. En mode image, il suffit de tirer légèrement sur le porte-objet pour observer la translation de l'image. L'orientation de la canne en mode image est illustrée Figure-Annexe 7. L'axe est incliné de 26° par rapport l'axe vertical. Dans le cas où l'on est en mode diffraction, il est difficile de déterminer l'orientation de l'axe par cette méthode. Pour cela, il faut suivre le mouvement des lignes de Kikuchi, ou d'un axe de zone, lorsque l'on applique un angle de tilt. Le sens de rotation de la canne a préalablement été identifié, en suivant l'inclinaison de la partie externe au MET du porte-objet (Figure-Annexe 7). La figure donne la position d'un axe de zone pour plusieurs angles de tilt. En connaissant le

sens de rotation autour de l'axe x, il est facile d'observer que le sens du porte-objet en mode diffraction est inversé par rapport à celui observé en image, ce qui confirme l'existence d'une rotation de 180° (Figure-Annexe 8).

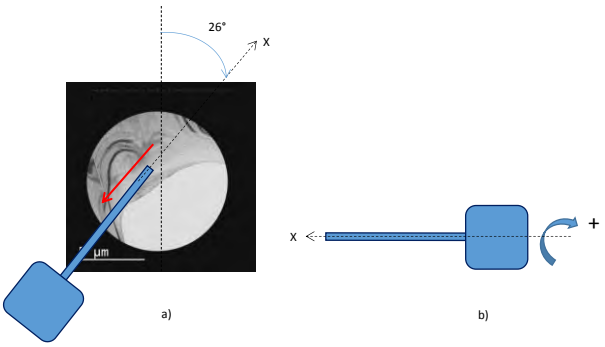


Figure-Annexe 7. a) Orientation de l'axe de la canne en mode image b) sens de rotation autour de l'axe x pour des angles de tilt positifs.

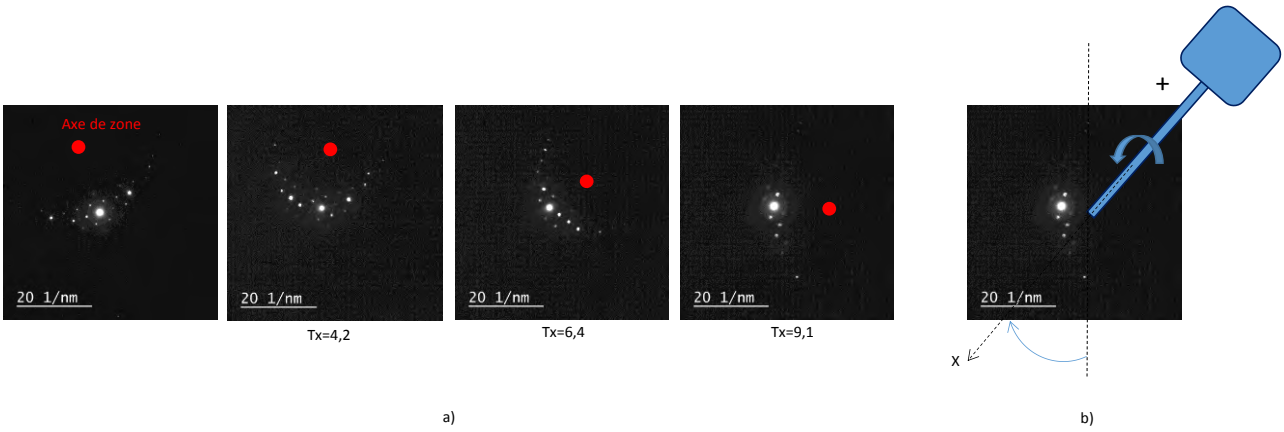


Figure-Annexe 8. a) Mouvement d'un axe de zone pour différents angles de tilt b) orientation de l'axe de la canne en mode diffraction.

- Détermination de la nature des boucles de dislocation –

1) Orientation du grain

Les analyses de nature de boucles du Zy-4 ont été réalisées dans des conditions de diffraction spécifiques, et généralement près d'un axe de zone de type <$11\bar{2}3$>. Afin de faciliter l'obtention de ces conditions, la direction de laminage DL a été repérée sur les lames minces grâce à un méplat, et placée sur le porte-objet parallèlement à l'axe de tilt principal X (axe de la canne).

Pour réaliser l'analyse de nature des boucles, et également déterminer l'orientation du grain où l'analyse est effectuée, il faut pouvoir identifier l'axe de zone <$11\bar{2}3$> utilisé. En effet, il existe une ambiguïté entre deux axes de zone de type <$11\bar{2}3$> qui peuvent donner le même cliché de diffraction. Afin de déterminer avec certitude l'orientation du grain, il est donc conseillé d'identifier deux autres axes de zone, ou l'axe de zone <0001>. L'indentification des axes de zones se fait grâce aux rapports des distances entre les taches diffractées et à leur forme. Les principaux axes de zone des matériaux de structure HCP sont référencées dans différentes abaques. Il est alors possible grâce aux logiciels *CaRIne Crystallography* ou *Stereoproj* de reproduire la projection stéréographique du grain, en

retrouvant l'orientation pour laquelle les axes de zone identifiés sont obtenus aux tilts appliqués. Lorse que les analyses sont réalisées sur le MET JEOL 2100, il faut, tout d'abord, prendre en compte la rotation diffraction-image en appliquant une rotation de 180° au cliché de diffraction. Il faut également veiller à incliner les clichés de diffraction d'un angle de -26°, l'axe X étant incliné de 26° par rapport à la verticale au MET (cet axe est définit vertical sur *CaRIne Crystallography* et *Stereoproj*).

2) Nature des boucles après irradiation aux ions au MET JEOL 2100

La méthode d'analyse de la nature des boucles a été expliquée au Chapitre II de ce manuscrit. Cette analyse se fait dans des conditions de diffraction spécifiques soit proche d'un axe de zone <$11\bar{2}3$> et à l'aide d'un vecteur de diffraction de type <$11\bar{2}2$>. Les différentes étapes de l'analyse sont résumées ci-dessous :

a) Orienter le grain en identifiant les différents axes de zones
b) Réaliser une analyse du plan d'habitat des boucles et de leur vecteur de Burgers (Chapitre II). Ces deux caractéristiques sont importantes à connaître pour la suite de l'analyse de la nature des boucles.
c) Identifier l'orientation du vecteur de diffraction $\vec{g}$ par rapport à la normale aux plans d'habitat $\vec{n}$ des boucles (les plans d'habitats sont proches des plans prismatiques). Dans les conditions de diffraction choisies, le produit scalaire entre $\vec{g}$ et $\vec{n}$ est toujours du même signe pour tous les plans d'habitat possibles.
d) Identifier par le produit scalaire $\vec{g}.\vec{b}$, si les boucles sont dans des orientations « safe » ou « unsafe » pour l'analyse de leur nature. Les conditions choisies assurent que 2/3 des boucles sont dans des conditions dites « safe ». Dans le cas où $\vec{g}.\vec{b}$=±2, les boucles sont en conditions « safe » [2]. Dans le cas ou $\vec{g}.\vec{b}$=±1 il existe une incertitude. Il est alors possible d'identifier les boucles à l'orientation « safe » grâce à leur inclinaison par rapport au vecteur de diffraction. Si l'angle d'inclinaison est supérieur à 30°, les boucles sont dans des conditions « safe ».
e) Observer l'inversion de contraste des boucles en fonction du signe de $\vec{g}$ et/ou en fonction du signe du vecteur de Bragg, déterminé grâce aux lignes de Kikuchi.

Le cas suivant illustre l'analyse de boucles réalisée au MET JEOL 2100, sur une éprouvette irradiée aux ions Zr^{+} 600 keV à 450°C et à une dose de 1,36 dpa. L'orientation du grain associé aux images est donnée grâce au logiciel *Stereoproj.* Tous les clichés de diffraction ont été inclinés de 180° puis de -26°, et les images ont également été inclinées de -26° afin de faire correspondre l'axe de tilt X.

La figure ci-dessous donne l'orientation du vecteur $\vec{g}$ par rapport aux plans prismatiques. Dans le cas où le vecteur « pointe vers en bas à droite », le produit scalaire $\vec{g}.\vec{n}$ est positif. Dans ce cas le vecteur de diffraction est définit comme +$\vec{g}$. Dans le cas inverse, le vecteur sera définit comme -$\vec{g}$.

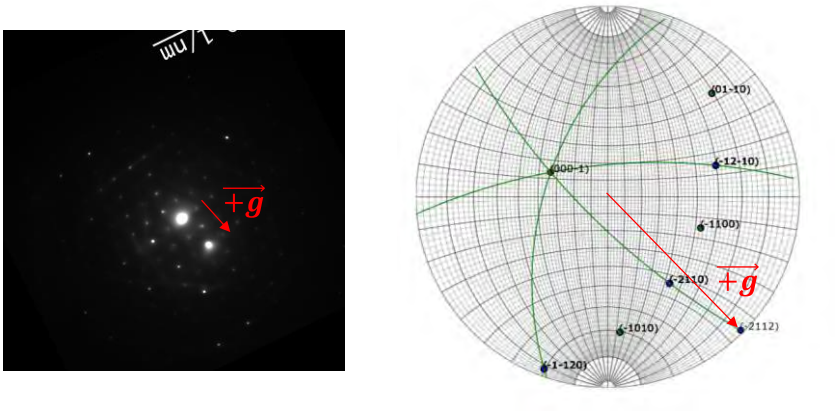


Figure-Annexe 9. Orientation du vecteur de diffraction par rapport aux normales aux plans d'habitat des boucles.

Lorsque $\vec{b}=\frac{1}{3}[\bar{2}110]$, le produit scalaire $\vec{g}.\vec{b}=2$. Les boucles ayant ce vecteur de Burgers sont donc dans des orientations dites « safe ». Lorsque $\vec{b}=\frac{1}{3}[\bar{1}\bar{1}20]$ ou $\vec{b}=\frac{1}{3}[\bar{1}2\bar{1}0]$, $\vec{g}.\vec{b}=\pm1$. Dans ce cas il est nécessaire de vérifier l'inclinaison des boucles par rapport au vecteur de diffraction.

La figure suivante illustre l'analyse de la nature de quelques boucles en condition « safe », avec un angle de Bragg pris comme positif. Les boucles sont en contraste interne pour $+\vec{g}$ et en contraste interne pour $\vec{g}$ ce qui prouve qu'elles sont de nature interstitielle.

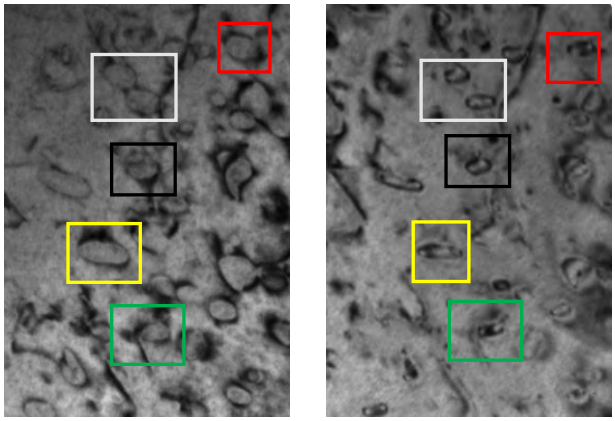


Figure-Annexe 10. Etude de la nature des boucles après irradiations aux ions Zr^+ 600 keV à 450°C et 1,36 dpa.

Afin de confirmer notre méthode, une analyse de la nature de boucles a été effectuée sur un acier austénitique pré-irradié aux ions. Les boucles analysées sont bien de nature interstitielle.

---

[1] M. H. Loretto and R. E. Smallman, *Defect analysis in electron microscopy*. London; New York: Chapman and Hall ; Wiley : Distributed by Halstead Press, 1975.

[2] A. Jostsons, P. M. Kelly, and R. G. Blake, "The nature of dislocation loops in neutron irradiated zirconium," *J. Nucl. Mater.*, vol. 66, no. 3, pp. 236–256, May 1977.

Annexe C: Cas de modélisation en DD

Afin d'améliorer l'accord entre la cinétique des interactions dislocation-boucle entre l'expérience et la modélisation en DD, une solution proposée est d'introduire un coefficient de viscosité qui soit dépendant du caractère vis ou coin de la dislocation. Cette solution a été testée dans le cas de l'ancrage dans le plan pyramidal (Chapitre IV Figure IV.6) où une différence de cinétique. Il a été choisi d'obtenir, par exemple, une cinétique plus proche au début de l'interaction. Pour cela, le coefficient de viscosité des parties vis de la dislocation a donc été augmenté à 0,5 MPa.s, et celui des parties coin est maintenu à 0,3 MPa.s. La cinétique de glissement de la partie inférieure de la dislocation obtenue en DD est plus proche de l'expérimental lors de l'interaction. En effet, la différence de temps entre les états observables sur l'image expérimentale e) et l'image obtenue en modélisation E) n'est plus que de 6,64 s (contre 11,48 s dans le cas où le coefficient de viscosité est identique pour les parties vis et coins).

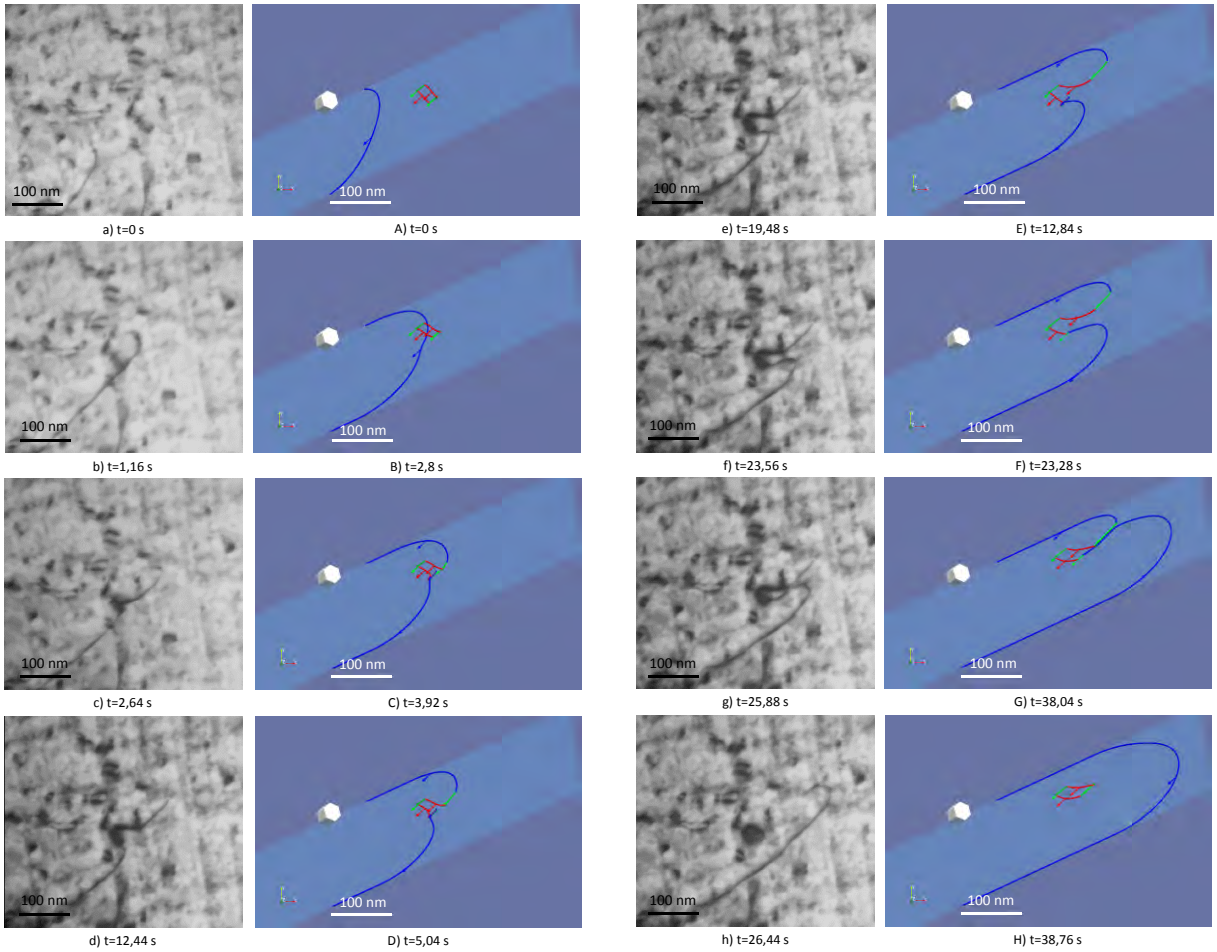


Figure-Annexe 11. Simulation d'une interaction d'ancrage dans un plan pyramidal avec des coefficients de viscosités différents pour les parties coins et vis de la dislocation.

Annexe D : Calibration en température à l'IVEM

La calibration en température a été réalisée par l'équipe de l'IVEM avec deux des éprouvettes de traction non-utilisée lors de notre campagne d'irradiation. Un thermocouple a été placé au centre des éprouvettes. La température de consigne est ensuite variée pour différentes tensions appliquées et la température connue par l'échantillon est relevée.

Tableau-Annexe 2. Calibration en température à l'IVEM d'Argonne

Tension (µm)	T consigne (°C)	T échantillon (°C)	T ré-ajustée de l'échantillon (°C)	T consigne / T ré-ajustée
0	25	31,3	25	1,00
0	42	40,1	33,8	0,80
0	94	65,1	58,8	0,63
0	141	86,9	80,6	0,57
0	202	117,2	110,9	0,55
0	290	152,3	146	0,50
0	392	184,7	178,4	0,46
0	500	213,3	207	0,41
0	594	250,7	244,4	0,41
7	588	257,5	251,2	0,43
10	587	259	252,7	0,43
15	589	267,6	261,3	0,44
15	512	226,8	220,5	0,43
15	428	181,7	175,4	0,41
25	393	191,9	185,6	0,47
25	471	238,1	231,8	0,49
25	554	283,6	277,3	0,50
30	551	287,2	280,9	0,51
30	468	241,5	235,2	0,50
30	391	198,8	192,5	0,49
35	386	196,3	190	0,49
35	465	242,3	236	0,51
35	546	290,4	284,1	0,52
50	534	300,4	294,1	0,55
50	451	248,6	242,3	0,54
50	374	200	193,7	0,52
60	374	199,5	193,2	0,52
60	459	241,6	235,3	0,51
60	534	297,1	290,8	0,54
60	612	355,1	348,8	0,57
60	690	421,3	415	0,60
60	618	360,2	353,9	0,57
60	544	305,9	299,6	0,55
60	458	252,5	246,2	0,54
60	374	205	198,7	0,53
70	380	206,2	199,9	0,53
70	461	253,2	246,9	0,54
70	541	305	298,7	0,55
70	608	361,6	355,3	0,58
70	681	425,6	419,3	0,62
80	678	428,8	422,5	0,62
90	672	436	429,7	0,64
100	670	438,8	432,5	0,65
100	590	384,9	378,6	0,64
100	528	323,8	317,5	0,60
100	455	271,8	265,5	0,58
100	366	219,2	212,9	0,58
120	374	216,7	210,4	0,56

Study of the deformation mechanisms of zirconium alloys after and under irradiation.

Keywords**:** Zirconium alloys; Charged particles irradiation; Transmission electron microscopy; <a> dislocation loops; Dislocation glide; Dislocation climb

Summary: In Pressurized Water Reactors, the neutron flux leads to a change in the mechanical properties of the fuel cladding tubes made of zirconium alloys. Although their macroscopic behavior is well known, the microscopic deformation mechanisms of zirconium alloys still need to be characterized. In order to simulate the neutron irradiation, charged particles irradiations (ion and electron) were carried out at 400°C and 450°C on a zirconium alloy: RXA Zircaloy-4. The experimental analysis of the irradiated microstructure, performed by using a Transmission Electron Microscope (TEM), have shown some crystalline defects: dislocation loops with a <a> Burgers vector. Their evolution (size and density) and their characteristics (nature and habit plane) have been determined and discussed based on the point defects diffusion. The results suggest a weak anisotropy in the self-interstitial diffusion. *In-situ* tensile tests were performed using a TEM, after ion irradiation, in order to activate the dislocation glide and to observe their interaction with the <a> loops. Some of the experimental cases of interaction have been simulate using Dislocation Dynamics for a better understanding of the mechanisms. The simultaneous effect of the stress and of the irradiation on the deformation mechanisms have been then studied. *In-situ* electron and ion irradiations were conducted, with and without an applied stress. Deformation mechanisms involving dislocation climb have thus been demonstrated. Through this study, models based on the identified mechanisms may be suggested, in order to predict the behavior of zirconium alloys in the reactor.