



HAL
open science

Mécanismes de déformation et effets d'irradiation dans les alliages de zirconium. Une étude multi-échelle

Fabien Onimus

► **To cite this version:**

Fabien Onimus. Mécanismes de déformation et effets d'irradiation dans les alliages de zirconium. Une étude multi-échelle. Matériaux. Université Paris Sud (Paris 11) - Université Paris Saclay, 2015. tel-04064539

HAL Id: tel-04064539

<https://hal.science/tel-04064539>

Submitted on 11 Apr 2023

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

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



COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE
ET AUX ÉNERGIES ALTERNATIVES

DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE
DIRECTION DES ACTIVITÉS NUCLÉAIRES DE SACLAY

**MÉCANISMES DE DÉFORMATION ET EFFETS D'IRRADIATION
DANS LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM.
UNE ÉTUDE MULTI-ÉCHELLE**

par
Fabien ONIMUS

CEA SACLAY
DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE
DIRECTION DES ACTIVITÉS NUCLÉAIRES DE SACLAY
DÉPARTEMENT DES MATÉRIAUX POUR LE NUCLÉAIRE
SERVICE DE RECHERCHES MÉTALLURGIQUES
APPLIQUÉES



DIRECTION DES SYSTÈMES
D'INFORMATION

**RAPPORT
CEA-R-6420**

2016

- Rapport CEA-R-6420 -

CEA Saclay
Direction de l'Énergie Nucléaire
Direction des Activités Nucléaires de Saclay
Département des Matériaux pour le Nucléaire
Service de Recherches Métallurgiques Appliquées

MÉCANISMES DE DÉFORMATION ET EFFETS D'IRRADIATION
DANS LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM.
UNE ÉTUDE MULTI-ÉCHELLE

par

Fabien Onimus

- Janvier 2016 -

«Mécanismes de déformation et effets d'irradiation dans les alliages de zirconium. Une étude multi-échelle»

Résumé – Les alliages de zirconium sont utilisés depuis plus de 30 ans dans l'industrie nucléaire comme matériaux de structure de l'assemblage combustible des Réacteurs à Eau Pressurisée. En particulier, les gaines des crayons combustibles, en alliages de zirconium, constituent la première barrière de sécurité vis-à-vis de la dissémination d'éléments radioactifs. La bonne compréhension et prédiction du comportement mécanique de ces matériaux dans différentes situations s'avère donc essentielle. Les travaux, présentés dans ce mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches, portent sur l'étude expérimentale et la simulation numérique, à différentes échelles, des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium non irradiés, après irradiation et également sous irradiation. Le comportement monocristallin du zirconium a été déterminé grâce à une étude expérimentale originale utilisant des éprouvettes contenant des grands grains. Un modèle de plasticité cristalline décrivant ce comportement a été proposé. Un modèle polycristallin permettant de simuler le comportement des alliages de zirconium non irradiés a également été développé. Une étude expérimentale approfondie par Microscopie Electronique en Transmission (MET) a précisé les mécanismes de déformation des alliages de zirconium après irradiation. Le mécanisme de balayage des boucles et de canalisation des dislocations a été particulièrement étudié. Ce phénomène a été simulé par dynamique des dislocations. Les conséquences macroscopiques de ce processus ont été également analysées. Un modèle polycristallin intégrant les spécificités de ce mécanisme a été finalement proposé. Cette démarche a ensuite été étendue au comportement mécanique en fluage thermique post-irradiation. Le recuit des défauts d'irradiation qui se produit lors du fluage a été caractérisé par MET et modélisé par une méthode de dynamique d'amas. Les modes de déformation lors du fluage ont été étudiés et un modèle simple de comportement en fluage a finalement été proposé. Enfin, le mécanisme responsable de l'accélération de croissance qui se produit sous irradiation à forte dose, la nucléation et croissance des boucles <c>, a été particulièrement étudié. L'influence de la prise d'hydrogène ainsi que l'influence d'une contrainte appliquée sur les boucles <c> ont été caractérisées par MET. Ces travaux, qui contribuent déjà à une meilleure compréhension des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium, permettront, à terme, d'améliorer la fiabilité et la performance des assemblages combustibles des réacteurs nucléaires à eau pressurisée.

2015 – Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives – France

«Deformation mechanisms and irradiation effects in zirconium alloys. A multiscale study»

Abstract : Zirconium alloys have been used for more than 30 years in the nuclear industry as structural materials for the fuel assemblies of pressurized water reactors. In particular, the cladding tube, made of zirconium alloys, constitutes the first barrier against the dissemination of radioactive elements. It is therefore essential to have a good understanding and prediction of the mechanical behavior of these materials in various conditions. The work presented in this dissertation deals with an experimental study and numerical simulations, at several length scales, of the deformation mechanisms and the mechanical behavior of zirconium alloys before irradiation, but also after irradiation and under irradiation. The mechanical behavior of zirconium single crystal has been determined, during an original study, using tensile test specimens containing large grains. Based on this study, crystal plasticity constitutive laws have been proposed. A polycrystalline model has also been developed to simulate the behavior of unirradiated zirconium alloys. A thorough Transmission Electron Microscopy (TEM) study has been able to clarify the deformation mechanisms of zirconium alloys occurring after irradiation. The clearing of loops by gliding dislocations leading to the dislocation channeling mechanism has been studied in details. This phenomenon has also been simulated using a dislocation dynamics code. The macroscopic consequences of this process have also been analyzed. A polycrystalline model taking into account the specificity of this mechanism has eventually been proposed. This approach has then been extended to the post-irradiation creep behavior. The recovery of radiation defects during creep tests has been characterized by TEM and modeled using cluster dynamics method. Deformation modes during creep have also been studied and a simple model for the creep behavior has eventually been proposed. Finally, the mechanism responsible for the acceleration of irradiation growth that occurs at high doses, the nucleation and growth of <c> loops, has been particularly studied. The effects of the hydrogen pick up and of an external applied stress on <c> loops have been characterized by TEM. This work, which already contributes to a better understanding of deformation mechanisms and mechanical behavior of zirconium alloys, should improve, in a future prospect, the reliability and performance of pressurized water reactors fuel assemblies.

2015 – Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives – France

Université Paris Sud

Habilitation à Diriger des Recherches

F. Onimus

**Mécanismes de déformation et effets d'irradiation dans les alliages
de zirconium.
Une étude multi-échelle.**

Habilitation soutenue le 22 juin 2015 à Saclay devant le jury composé de :

Mme B. Bacroix	Rapporteur
Mme A.-F. Gourgues	Rapporteur
M. D. Rodney	Rapporteur
Mme C. Berdin	Présidente
M. D. Caillard	Examineur
M. M. Griffiths	Examineur
M. R. Masson	Examineur

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury, Brigitte Bacroix, Anne-Françoise Gourgues, David Rodney, Clotilde Berdin, Daniel Caillard, Malcolm Griffiths et Renaud Masson, qui m'ont fait l'honneur d'accepter de participer à ce jury.

Je souhaiterais ensuite remercier les sept anciens et actuels doctorants : Joël Ribis, Cyril Lebon, Léa Tournadre, Julie Drouet, Nesrine Gharbi, Pierre Lapouge, Marine Gaumé. Le travail qui est décrit dans ce mémoire est en bonne partie le leur.

Je voudrais aussi adresser un remerciement très particulier à mes trois collègues, chefs de laboratoire ou de projets, Jean-Luc Béchade, Didier Gilbon et Chantal Cappelaere, avec qui j'ai beaucoup travaillé et interagi pendant ces dix années. Je tiens aussi à remercier l'ensemble de mes responsables hiérarchiques qui m'ont toujours fait confiance, notamment Pascal Yvon et Philippe Chapelot.

Je suis également redevable aux correspondants techniques d'AREVA et EDF avec qui j'ai travaillé pendant ces dix années : Jean-Paul Mardon, Jean-Marc Cloué, Pol Bouffioux, Antoine Ambard.

Je remercie également mes collègues de l'Université et du CNRS, Xavier Feaugas, Frédéric Momprou, Clément Lemaignan, Yves Bréchet et Thomas Pardoën avec qui j'ai encadré plusieurs thèses. Je souhaite également associer à ces remerciements mes collègues du Département des Matériaux pour le Nucléaire, Laurent Dupuy et Thomas Jourdan, avec qui j'ai co-encadré ces thèses.

J'ai également une pensée pour quelques-uns de mes « mentors », en particulier Claude Prioul qui m'a fait découvrir le monde des dislocations, Philippe Pilvin qui m'a initié à la mécanique des milieux continus, Clément Lemaignan qui m'a transmis le goût de l'enseignement des Matériaux pour le Nucléaire et Malcolm Griffiths dont les articles ont toujours été très éclairants. Je voudrais ici encore citer Jean-Luc Béchade qui m'a accompagné de ses conseils avisés pendant ces dix années et Didier Gilbon dont la rigueur logique a façonné certains de mes projets.

Je remercie les équipes du CSNSM, MIBL, LMS, LSPM, CEMES, LASIE, SIMAP pour leur aide lors de la réalisation de plusieurs expériences. Je remercie également les équipes techniques du SRMA, du SRMP et du SEMI sans qui bon nombre de ces études n'auraient pu être possibles. Au passage, un petit clin d'œil pour mon co-bureau Joël Malaplate. Au-delà, je remercie très chaleureusement mes très nombreux collègues du Département des Matériaux pour le Nucléaire avec qui j'échange et collabore quotidiennement.

Enfin, une dédicace spéciale à Nathalie et à nos trois enfants.

Résumé

Les alliages de zirconium sont utilisés depuis plus de 30 ans dans l'industrie nucléaire comme matériaux de structure de l'assemblage combustible des Réacteurs à Eau Pressurisée. En particulier, les gaines des crayons combustibles, en alliages de zirconium, constituent la première barrière de sécurité vis-à-vis de la dissémination d'éléments radioactifs. La bonne compréhension et prédiction du comportement mécanique de ces matériaux dans différentes situations s'avère donc essentielle. Les travaux, présentés dans ce mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches, portent sur l'étude expérimentale et la simulation numérique, à différentes échelles, des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium non irradiés, après irradiation et également sous irradiation.

Le comportement monocristallin du zirconium a été déterminé grâce à une étude expérimentale originale utilisant des éprouvettes contenant des grands grains. Un modèle de plasticité cristalline décrivant ce comportement a été proposé. Un modèle polycristallin permettant de simuler le comportement des alliages de zirconium non irradiés a également été développé. Une étude expérimentale approfondie par Microscopie Electronique en Transmission (MET) a précisé les mécanismes de déformation des alliages de zirconium après irradiation. Le mécanisme de balayage des boucles et de canalisation des dislocations a été particulièrement étudié. Ce phénomène a été simulé par dynamique des dislocations. Les conséquences macroscopiques de ce processus ont été également analysées. Un modèle polycristallin intégrant les spécificités de ce mécanisme a été finalement proposé. Cette démarche a ensuite été étendue au comportement mécanique en fluage thermique post-irradiation. Le recuit des défauts d'irradiation qui se produit lors du fluage a été caractérisé par MET et modélisé par une méthode de dynamique d'amas. Les modes de déformation lors du fluage ont été étudiés et un modèle simple de comportement en fluage a finalement été proposé. Enfin, le mécanisme responsable de l'accélération de croissance qui se produit sous irradiation à forte dose, la nucléation et croissance des boucles <c>, a été particulièrement étudié. L'influence de la prise d'hydrogène ainsi que l'influence d'une contrainte appliquée sur les boucles <c> ont été caractérisées par MET.

Ces travaux, qui contribuent déjà à une meilleure compréhension des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium, permettront, à terme, d'améliorer la fiabilité et la performance des assemblages combustibles des réacteurs nucléaires à eau pressurisée.

Abstract

Zirconium alloys have been used for more than 30 years in the nuclear industry as structural materials for the fuel assemblies of pressurized water reactors. In particular, the cladding tube, made of zirconium alloys, constitutes the first barrier against the dissemination of radioactive elements. It is therefore essential to have a good understanding and prediction of the mechanical behavior of these materials in various conditions. The work presented in this dissertation deals with an experimental study and numerical simulations, at several length scales, of the deformation mechanisms and the mechanical behavior of zirconium alloys before irradiation, but also after irradiation and under irradiation.

The mechanical behavior of zirconium single crystal has been determined, during an original study, using tensile test specimens containing large grains. Based on this study, crystal plasticity constitutive laws have been proposed. A polycrystalline model has also been developed to simulate the behavior of unirradiated zirconium alloys. A thorough Transmission Electron Microscopy (TEM) study has been able to clarify the deformation mechanisms of zirconium alloys occurring after irradiation. The clearing of loops by gliding dislocations leading to the dislocation channeling mechanism has been studied in details. This phenomenon has also been simulated using a dislocation dynamics code. The macroscopic consequences of this process have also been analyzed. A polycrystalline model taking into account the specificity of this mechanism has eventually been proposed. This approach has then been extended to the post-irradiation creep behavior. The recovery of radiation defects during creep tests has been characterized by TEM and modeled using cluster dynamics method. Deformation modes during creep have also been studied and a simple model for the creep behavior has eventually been proposed. Finally, the mechanism responsible for the acceleration of irradiation growth that occurs at high doses, the nucleation and growth of <c> loops, has been particularly studied. The effects of the hydrogen pick up and of an external applied stress on <c> loops have been characterized by TEM.

This work, which already contributes to a better understanding of deformation mechanisms and mechanical behavior of zirconium alloys, should improve, in a future prospect, the reliability and performance of pressurized water reactors fuel assemblies.

Table des matières

1	Chapitre 1 : Introduction	13
1.1	Les alliages de zirconium dans l'industrie nucléaire.....	13
1.1.1	Description des composants industriels et de leurs fonctions.....	13
1.1.2	Les sollicitations dans un Réacteur à Eau Pressurisée et lors de l'aval du cycle	17
1.1.3	Choix des matériaux : fonctions / propriétés	20
1.2	Recherche et développement sur les alliages de zirconium.....	22
1.3	La démarche multi-échelle	25
1.3.1	Les différentes échelles caractéristiques du matériau et les phénomènes associés....	25
1.3.2	Une reconstruction difficile	29
2	Chapitre 2 : Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr non irradiés	31
2.1	Contribution à l'étude du comportement monocristallin du zirconium non irradié.....	31
2.1.1	Introduction.....	31
2.1.2	Matériau de l'étude et méthodes mises en œuvre.....	33
2.1.3	Principaux résultats expérimentaux.....	36
2.1.4	Identification d'une loi de comportement et validation par calculs éléments finis	42
2.1.5	Conclusions et perspectives	45
2.2	Contribution à la modélisation du comportement des alliages de zirconium non irradiés ...	46
2.2.1	Analyse du comportement mécanique macroscopique	46
2.2.2	Interprétation du comportement en termes de mécanismes microscopiques	47
2.2.3	Proposition d'un modèle macroscopique empirique.....	49
2.2.4	Proposition d'un modèle polycristallin.....	51
2.2.5	Conclusions et perspectives	54
3	Chapitre 3 : Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr irradiés	57
3.1	Eléments de base concernant les effets de l'irradiation dans les alliages de zirconium.....	57
3.2	Déformation plastique post-irradiation.....	60
3.2.1	Etude des mécanismes de déformation à l'échelle du grain	62
3.2.2	Etude expérimentale et simulation numérique des mécanismes élémentaires d'interaction entre dislocation et défauts d'irradiation.....	67
3.2.3	Etude du comportement mécanique du matériau polycristallin irradié.....	75
3.2.4	Confrontation avec les observations MET et interprétation en termes de mécanismes de déformation.....	76
3.2.5	Modélisation macroscopique empirique du comportement après irradiation	79
3.2.6	Modélisation polycristalline du comportement des alliages de Zr irradiés	80

3.2.7	Conclusions et perspectives	86
3.3	Etude expérimentale et modélisation du comportement des alliages de zirconium irradiés après recuits, lors du fluage ou après fluage	88
3.3.1	Caractérisation de l'évolution des défauts d'irradiation lors de recuits	88
3.3.2	Mécanismes de recuit des boucles créées par l'irradiation	93
3.3.3	Simulation du recuit des défauts d'irradiation par dynamique d'amas.....	95
3.3.4	Etude expérimentale des mécanismes de fluage thermique après irradiation	99
3.3.5	Modèle de comportement en fluage thermique	103
3.3.6	Comportement en traction à température ambiante après essais de fluage post-irradiation.....	105
3.3.7	Conclusions et perspectives	107
4	Chapitre 4 : Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr sous irradiation .	109
4.1	Eléments de base concernant la déformation sous irradiation.....	109
4.1.1	Croissance sous irradiation.....	109
4.1.2	Fluage sous irradiation	111
4.2	Accélération de croissance, influence de l'hydrogène	113
4.2.1	Influence des conditions d'irradiation sur les boucles <c>	113
4.2.2	Influence de l'hydrogène sur les boucles <c>	119
4.3	Couplage entre croissance et contrainte appliquée.....	123
4.4	Premières tentatives d'étude expérimentale des mécanismes de fluage d'irradiation.....	127
4.5	Vers une modélisation multi-échelle de la déformation sous irradiation des alliages de Zr	128
4.6	Conclusions et perspectives.....	130
5	Chapitre 5 : La difficile remontée des échelles pour déduire le comportement mécanique des matériaux	133
5.1	Réduction et « reconstruction »	133
5.2	La méthode en physique du solide	134
5.3	Les difficultés de la reconstruction	135
5.4	Le recours à la simulation numérique	136
5.5	L'exemple des études menées sur les alliages de zirconium.....	136
5.6	Réflexion sur la « méthode »	137
6	Conclusion générale et perspectives.....	141
7	Annexes : Modèles développés ou adaptés.....	147
8	Références.....	169

Préambule

Ce mémoire décrit mes activités de recherche depuis la fin de ma thèse qui a été soutenue en décembre 2003. Celles-ci se sont déroulées au Service de Recherches Métallurgiques Appliquées (SRMA) du CEA-Saclay où j'ai occupé la fonction d'Ingénieur-Chercheur de janvier 2004 à maintenant. Préalablement, j'avais effectué ma thèse, également au SRMA, en collaboration avec le laboratoire MSSMAT de l'Ecole Centrale Paris sous la direction de P. Pilvin, C. Prioul et J.L. Béchade. Ce travail de thèse, intitulé « Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique du Comportement des Alliages de Zirconium Irradiés » (Onimus, 2004) s'inscrivait dans la continuité de travaux antérieurs, en particulier ceux de Geyer (1999) et Régnard et al. (2002), qui m'ont fortement inspiré pour mes études.

A l'issue de ma thèse, mon travail a principalement consisté à poursuivre ces recherches concernant les mécanismes de déformation et le comportement mécanique des alliages de zirconium irradiés. Certains résultats issus de mon travail de thèse sont donc rappelés dans ce mémoire. La démarche a été également étendue, dans le cadre de la thèse de J. Ribis (Ribis, 2008) (co-encadrement avec J.L. Béchade et C. Lemaignan), au cas du comportement en fluage thermique post-irradiation. Cette étude s'est ensuite poursuivie jusqu'à maintenant. Dans le cadre du poste occupé alors, j'étais également responsable d'analyses de diffraction des rayons X menées sur des matériaux variés dans le cadre de problématiques multiples. Quelques-unes de ces expériences, associées à des analyses approfondies, ont donné lieu à des publications. Ces travaux ne sont pas présentés ici. Par la suite je me suis concentré, de nouveau, sur les alliages de zirconium, les mécanismes de déformation et les effets de l'irradiation. C'est ainsi que je me suis intéressé au comportement monocristallin du zirconium, non irradié, dans le cadre de la thèse de C. Lebon (Lebon, 2012) (co-encadrement avec

L. Dupuy et X. Feugas). Puis, une étude en fort partenariat avec AREVA a été engagée concernant le comportement sous irradiation à forte dose d'irradiation des alliages de zirconium, dans le cadre de la thèse de L. Tournadre (Tournadre, 2013) (co-encadrement avec X. Feugas) puis de N. Gharbi (co-encadrement avec T. Jourdan et X. Feugas). Parallèlement à ces différents projets, l'étude des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium irradiés a été poursuivie. Une partie de ces travaux, centrée sur l'étude des mécanismes de déformation à l'échelle microscopique, après irradiation et sous irradiation, s'est poursuivie par la thèse de J. Drouet (co-encadrement avec L. Dupuy et F. Mompiau). Cette étude se prolonge maintenant par la thèse de M. Gaumé (co-encadrement avec L. Dupuy et F. Mompiau). Enfin, la thèse de P. Lapouge (co-encadrement avec Y. Bréchet et T. Pardoën) a été engagée, parallèlement à ces projets sur le zirconium, afin d'étudier les mécanismes de déformation sous irradiation du cuivre. Les différentes composantes de ces études sont décrites de façon synthétique dans la Figure 1.

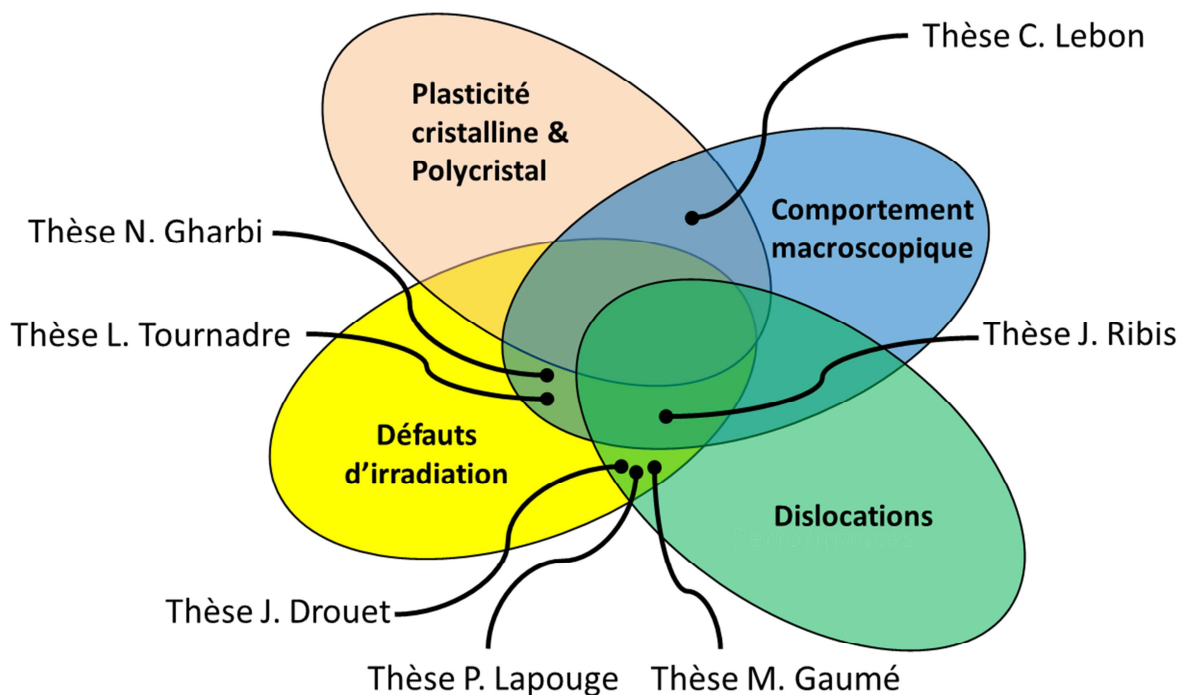


Figure 1 : Tableau décrivant les différentes composantes constituant chacune des thèses encadrées.

Dans le cadre de ces travaux, des caractérisations expérimentales à plusieurs échelles ont été réalisées (Microscopie Electronique en Transmission, in situ ou non, Microscopie Optique, micro-extensométrie, Microscopie Electronique à Balayage, essais mécaniques macroscopiques) avec comme outil principal la Microscopie Electronique en Transmission. Afin d'étudier l'influence des

effets d'irradiation, les techniques d'irradiation par particules chargées ont été également utilisées, en complément des échantillons irradiés en réacteur nucléaire.

En parallèle de ce travail expérimental, mon souci a toujours été de mettre, dans la mesure du possible, des simulations numériques en regard des résultats expérimentaux. C'est ainsi que j'ai pu utiliser, parfois avec l'aide de collègues plus numériciens, des modèles de comportement macroscopique à variables internes, des modèles polycristallins, des simulations par éléments finis en plasticité cristalline, un modèle de dynamique d'amas, un modèle de dynamique des dislocations. La simulation numérique est en général considérée comme une fin en soi permettant des prédictions et des extrapolations plus fiables que des modèles empiriques limités à leur domaine d'identification. Dans les études que j'ai conduites, la simulation numérique n'est pas seulement une fin, mais est également un moyen d'accéder à une meilleure compréhension des phénomènes, au même titre que les méthodes expérimentales. Ainsi, en cherchant à mieux quantifier, par des équations, les phénomènes observés, la compréhension peut être affinée. En effet, les résultats numériques amènent de nouvelles réflexions et de nouvelles idées qui à leur tour peuvent donner lieu à de nouvelles expériences.

Dans la démarche que j'ai décidée de mettre en œuvre, qui ressemble souvent à une véritable enquête, j'ai fait le choix de me focaliser sur des matériaux particuliers, les alliages de zirconium, sollicités dans différentes conditions. L'originalité de la démarche mise en place est de constamment associer l'analyse des mécanismes de déformation à l'échelle des défauts cristallins (dislocations, défauts d'irradiation...) et l'étude du comportement mécanique macroscopique et cela sans oublier les échelles intermédiaires comme l'échelle polycristalline.

Par cette approche, je me suis familiarisé, avec grand plaisir, avec une variété de concepts et d'outils qui restent souvent l'apanage soit des mécaniciens, soit des physiciens. Ce travail est donc, par essence, comme souvent en Science des Matériaux, pluridisciplinaire, et associe la physique des dislocations, la plasticité cristalline, la mécanique des matériaux hétérogènes et enfin les effets de l'irradiation. Ainsi, grâce à ces études, j'ai la chance de me trouver à la croisée de différentes cultures et ainsi de collaborer avec de nombreux collègues académiques du CNRS et des Universités ainsi qu'avec de nombreux collègues du Département des Matériaux pour le Nucléaire de la Direction de l'Énergie Nucléaire du CEA. En effet, dans le cadre des projets CEA qui structurent notre R&D, j'ai régulièrement des échanges scientifiques avec, par exemple, des collègues qui effectuent des simulations *ab initio* et également d'autres collègues qui conduisent des essais mécaniques, dans les laboratoires « chauds », sur matériaux irradiés en réacteur nucléaire.

Le type de recherche que j'ai conduit est une recherche essentiellement appliquée. En effet, un matériau d'intérêt industriel est étudié, en général dans le cadre d'un partenariat avec AREVA et EDF. Ce type de recherche induit certaines contraintes, en particulier pour ce qui concerne la communication des résultats obtenus. En effet, les enjeux commerciaux, notamment, que représentent ces matériaux, associé au coût très élevé de certaines expérimentations, imposent de ne pas rendre public l'ensemble des résultats. Par ailleurs, faire la démonstration que le comportement des matériaux vendus et utilisés est bien compris et bien maîtrisé est aussi très important pour nos partenaires industriels. Ainsi, pour certaines études que j'ai pu mener, la publication a été encouragée. Pour d'autres études, en revanche la publication des résultats s'est avérée particulièrement difficile. Les résultats sont néanmoins toujours diffusés aux partenaires industriels sous la forme de Notes CEA. J'ai ainsi pu rédiger ou participer à la rédaction de 50 Notes CEA ces 10 dernières années. Certains de ces travaux n'ayant pas été rendus publics, ils n'apparaissent pas dans ce mémoire.

Ces études menées en fort partenariat avec des industriels du nucléaire, AREVA et EDF, sont particulièrement riches. En effet, les industriels identifient des besoins autour d'une problématique (conditions de sollicitations, historique thermomécanique...), puis c'est aux ingénieurs-chercheurs du CEA de traduire ces besoins en étude scientifique en proposant un programme d'expériences et de modélisations. Cette démarche impose de bien connaître et bien comprendre les diverses sollicitations qui s'appliquent aux matériaux dans les différentes situations rencontrées, et également d'être à l'écoute des industriels pour proposer des études qui répondent effectivement à leurs attentes. Ainsi, fréquemment, de nouvelles questions peuvent apparaître permettant de renouveler les études scientifiques menées. A chaque problématique est associé un projet CEA. Dans le cadre de ces projets des réunions d'avancement fréquentes sont organisées. Des Jalons et des Livrables sont définis avec nos partenaires. J'ai ainsi moi-même piloté plusieurs projets ces dix dernières années, projets dont la gestion peut parfois constituer un travail à part entière. Cette organisation en projets a structuré ma démarche de R&D.

De plus, depuis 2008 j'enseigne les effets d'irradiation dans les matériaux métalliques, en particulier dans les alliages de zirconium, notamment à l'INSTN (Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires). Ces enseignements représentent 20 à 30 heures par an de cours magistraux que je dispense en formation initiale (Master 2) et en formation continue. J'ai ainsi été nommé Maître de Conférences de l'INSTN depuis 2010. J'ai pu apprécier, au cours de ces enseignements, de quelle façon mes projets de recherches alimentaient, par des exemples concrets, mes cours mais également comment mes enseignements m'ont amené à développer certains thèmes de recherche. Cette

activité d'enseignement complète ainsi ma démarche de transmission de la connaissance que je mène au quotidien dans mon travail d'encadrement de stages et de thèses au CEA.

Dans un souci de cohérence et également pour des raisons de confidentialité industrielle, une part de mes travaux n'est pas présentée dans ce manuscrit. De plus, dans mon activité d'Ingénieur-Chercheur au CEA une fonction de support, d'animation et d'organisation de la R&D m'est demandée, et cela en plus de mes enseignements. Ce mémoire ne décrit donc qu'environ 80% de mon activité au CEA.

Ce mémoire, présenté en vue de l'obtention d'une Habilitation à Diriger des Recherches, débute par un premier Chapitre introductif décrivant le contexte industriel ainsi que la problématique scientifique générale et la démarche mise en place dans cette étude. Dans un second Chapitre l'étude du comportement et des mécanismes de déformation des alliages de zirconium est décrite. Dans le troisième Chapitre, le cœur de mon travail de recherche est présenté. Celui-ci concerne l'étude du comportement mécanique et des mécanismes de déformation des alliages de zirconium après irradiation. Le quatrième Chapitre se concentre sur le comportement sous irradiation des alliages de zirconium ainsi que les mécanismes de déformation associés. Enfin, dans un dernier Chapitre une réflexion, ou prise de recul, concernant la démarche de « multi-échelle » en Science des Matériaux est esquissée. Une conclusion générale résume ensuite les acquis principaux de ces études et des perspectives sont proposées sous forme d'un programme de recherche. Cinq annexes présentent finalement les différents modèles développés ou adaptés tout au long de ce travail.

Chapitre 1

Introduction

1.1 Les alliages de zirconium dans l'industrie nucléaire

1.1.1 Description des composants industriels et de leurs fonctions

Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire comme matériaux de structure du cœur des réacteurs nucléaires à eau. En effet leur transparence aux neutrons thermiques et leur bonne résistance à la corrosion par l'eau en font un matériau de choix pour cette application.

Dans le monde environ 400 réacteurs électronucléaires à eau¹ sont en fonctionnement et tous utilisent les alliages de zirconium comme matériau de structure du cœur (cas des réacteurs notés PHWR² et LWGR³) ou de l'assemblage combustible (cas des réacteurs notés PWR⁴ et BWR⁵). Les réacteurs nucléaires EPR⁶, dits de troisième génération, actuellement en construction, utiliseront également les alliages de zirconium. Compte tenu de l'impératif de sûreté requis pour ces réacteurs ainsi que de l'enjeu économique associé à leur exploitation, il est essentiel de maîtriser parfaitement le comportement et le vieillissement des matériaux du cœur du réacteur lors de leur utilisation.

Dans le cas des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP ou PWR) (Figure 2), dont est exclusivement constitué le parc électronucléaire français (58 réacteurs), les alliages de zirconium sont utilisés pour les grilles, les tubes guides et les gaines des crayons de l'assemblage combustible (Figure 3).

¹ 418 réacteurs nucléaires à eau légère ou eau lourde en fonctionnement en 2011

² Pressurized Heavy Water Reactor, dont CANDU

³ Light Water Graphite Reactor, dont RBMK

⁴ Pressurized Water Reactor dont REP et VVER

⁵ Boiling Water Reactor ou Réacteur à eau bouillante (REB)

⁶ Evolutionary Pressurized Reactor

Dans les Réacteurs à Eau Pressurisée de 1300 MW électriques le cœur est constitué de 193 assemblages (Guillet et Guérin, 2008). Ceux-ci se présentent sous forme d'un faisceau carré de 17 tubes de côté. Les assemblages sont longs de 4.80 m. Les 24 tubes guides sont soudés aux grilles et les 264 crayons de l'assemblage sont maintenus par friction par des bossettes et des ressorts (en inconel soudés par points sur les languettes des grilles dans le cas des assemblages AREVA nommés AFA-2G et AFA-3G). Les tubes guides sont solidaires des embouts inférieurs et supérieurs. Au centre de l'assemblage un emplacement est réservé pour accueillir un tube d'instrumentation.

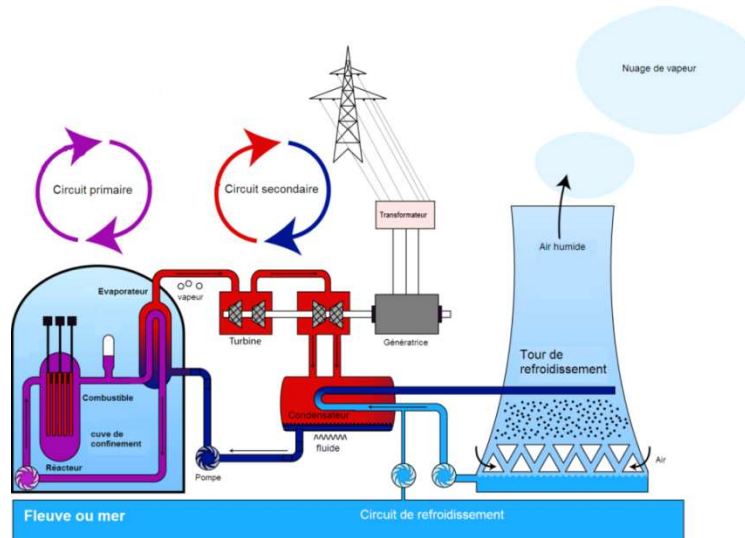


Figure 2 : Principe de fonctionnement d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée.

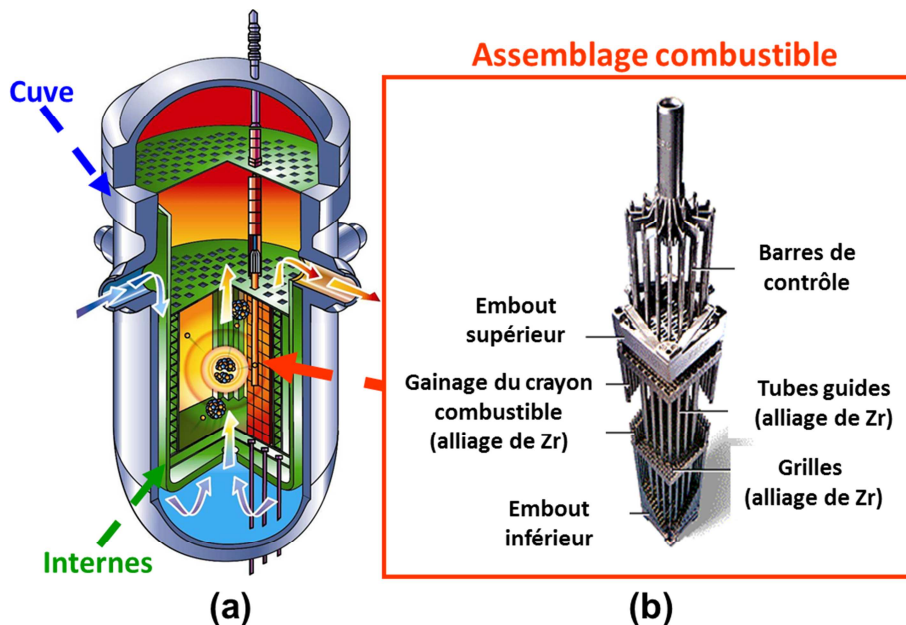


Figure 3 : a) Schéma de principe du cœur du réacteur nucléaire illustrant les trois composants principaux : la cuve, les structures internes et les assemblages combustibles. b) Description d'un assemblage combustible.

Le crayon combustible (Figure 4) est quant à lui constitué d'une gaine, en alliage de zirconium, d'un diamètre extérieur de 9.5 mm et d'une épaisseur de 0.57 mm, qui contient un empilement de pastilles d'oxyde d'uranium (ou bien en MOX). Le crayon mesure 4.50 mètres de long. Des bouchons sont soudés aux extrémités du tube. En partie haute du crayon, un ressort en acier inoxydable maintient la colonne fissile et permet aux gaz de fission de s'échapper dans ce volume libre (plenum). Le crayon est préalablement pressurisé par de l'hélium à 33 bars (cette valeur évoluant selon la conception de l'assemblage) à température ambiante.

La **fonction** essentielle de la gaine est de confiner le combustible nucléaire et les produits de fission, tout en garantissant un bon transfert thermique de la chaleur produite dans la pastille vers le caloporteur (Figure 4). En effet, dans l'analyse de sûreté, la gaine constitue la première barrière, le circuit primaire et le bâtiment réacteur étant respectivement la deuxième barrière et la troisième barrière. Il est donc essentiel de garantir l'intégrité de la gaine dans toutes les conditions de fonctionnement.

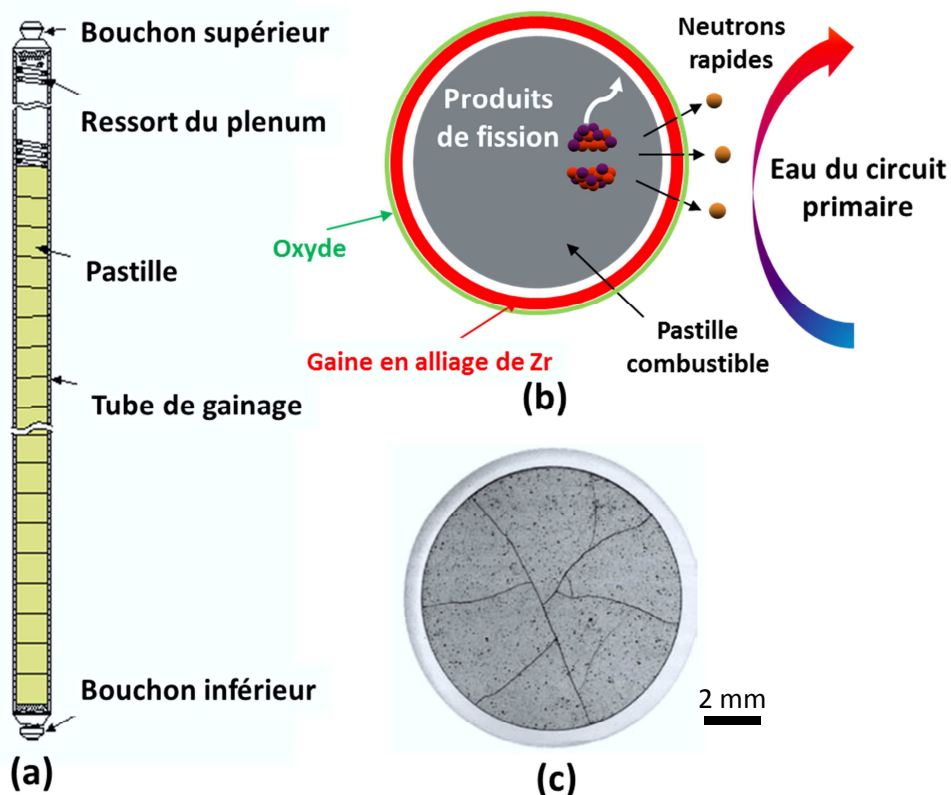


Figure 4 : a) Schéma de principe décrivant un crayon combustible. b) Sollicitations principales s'appliquant sur le crayon. c) Vue en coupe d'un crayon combustible (Guillet et Guérin, 2008).

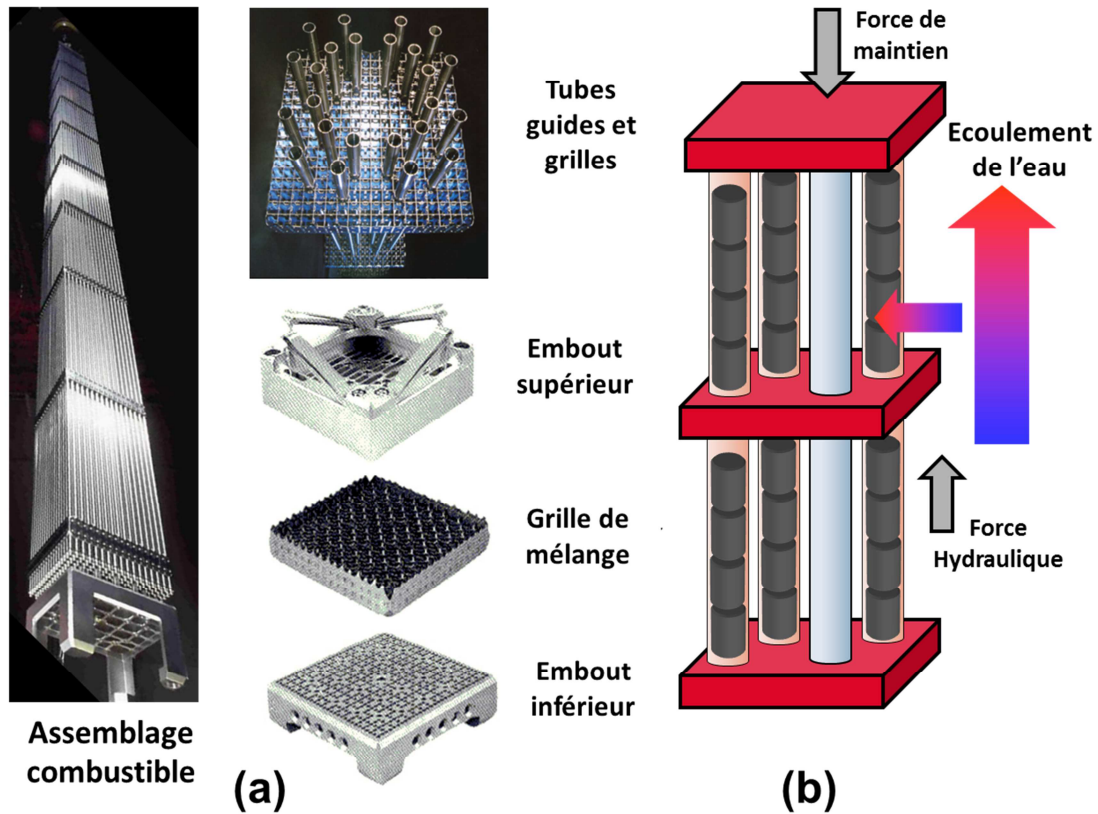


Figure 5 : a) Illustration d'un assemblage combustible (crayons, tubes guides, grilles et embouts). b) Sollicitations principales s'appliquant sur un assemblage combustible.

Pour ce qui concerne les autres éléments de structure de l'assemblage combustible (tubes guides et grilles), leur **fonction** est de maintenir les crayons combustibles et de garantir la géométrie de l'assemblage (Figure 5). De plus, les grilles ont une fonction thermo-hydraulique car elles permettent un meilleur échange thermique entre la gaine et l'eau en établissant un régime turbulent. Les tubes guides, quant à eux, ont pour **fonction** de guider la descente des barres de contrôle qui permettent le pilotage de la réactivité dans le cœur du réacteur en absorbant les neutrons thermiques (Figure 6).

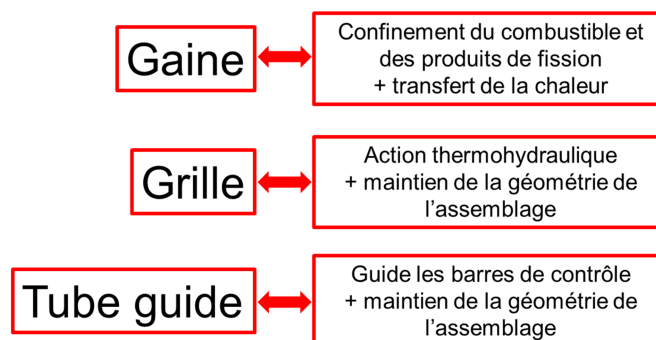


Figure 6 : Fonctions des différents composants de l'assemblage combustible en alliages de zirconium.

1.1.2 Les sollicitations dans un Réacteur à Eau Pressurisée et lors de l'aval du cycle

La durée de séjour des assemblages combustibles dans le cœur du réacteur est au minimum de trois années et peut aller jusqu'à près de cinq années⁷. Lors de ce séjour, en conditions normales de fonctionnement, les alliages de zirconium sont soumis à des sollicitations multiples et particulièrement agressives.

En premier lieu, l'eau du circuit primaire, qui est à une température de l'ordre de 320°C (température d'entrée de 296°C et de sortie de 330°C) et qui présente une composition chimique complexe induit une oxydation des alliages de zirconium. Cette oxydation est accentuée par les processus de radiolyse de l'eau qui se produisent sous irradiation. Une couche d'oxyde est alors formée sur la face externe de la gaine du crayon combustible, couche qui agit comme barrière thermique pour le transfert de la chaleur de la pastille combustible vers l'eau du circuit primaire. De plus lors de cette oxydation, une partie des atomes d'hydrogène, issus de la réduction des molécules d'eau, pénètre dans la gaine (ainsi que dans les tubes guides et grilles). Si la teneur en atomes d'hydrogène dépasse la limite de solubilité, ceux-ci précipitent sous forme d'hydrures de zirconium qui sont particulièrement fragilisants pour le matériau. La limite de solubilité étant très basse à température ambiante, ce phénomène est accentué lors de l'arrêt du réacteur ou bien après utilisation de l'assemblage combustible, lors du transport ou de l'entreposage. Une légère oxydation par l'oxyde d'uranium en face interne de la gaine se produit également. La gaine peut aussi subir l'agression chimique des produits de fission, en particulier l'iode, qui est particulièrement fragilisant dans certaines conditions de sollicitations. Ces phénomènes de création de couche d'oxyde et de prise d'hydrogène peuvent limiter la durée d'utilisation de l'assemblage combustible. Il est donc essentiel de bien les maîtriser et dans la mesure du possible, de les limiter.

La gaine peut également subir un phénomène d'usure au contact des grilles par les vibrations induites par le flux hydraulique. Des débris présents dans le circuit primaire peuvent aussi endommager les gaines et conduire à leur rupture (Guillet et Guérin, 2008).

Ces différents aspects ne seront pas abordés dans la suite du document. Les études décrites dans ce manuscrit se focalisent sur les couplages entre chargements thermo-mécaniques et effets d'irradiation en fonctionnement normal. Ces sollicitations sont décrites ci-dessous.

En fonctionnement, les alliages de zirconium subissent le fort flux de neutrons rapides issus des réactions de fission nucléaire qui se produisent dans le combustible. Ces neutrons rapides endommagent la structure cristalline du matériau en déplaçant les atomes de leur site cristallin. Ces

⁷ Les gestions de cœur classiques consistent en 4 cycles REP de 12 mois ou bien 3 cycles de 18 mois (soit 4 à 4 ans et demi d'utilisation).

phénomènes conduisent notamment à une dégradation significative des propriétés mécaniques du matériau (durcissement et perte de ductilité macroscopique) mais également à la déformation sous irradiation du matériau comme les phénomènes de croissance et de fluage d'irradiation. Une mesure classique du niveau d'endommagement des matériaux est le nombre de « dpa », ou déplacements par atome. Durant une année de fonctionnement chaque atome de la gaine est déplacé entre 2 et 3 fois de son site cristallin⁸ !

Du point de vue thermo-mécanique, la température moyenne de la gaine est de 350°C et celle-ci est soumise à la pression externe de l'eau du circuit primaire qui est de 155 bar. La pressurisation interne d'hélium (33 bar à température ambiante soit 70 bar à 350°C) ne compensant pas la pression externe de l'eau, la gaine subit d'abord un fluage d'irradiation par pression externe qui conduit à une diminution de son diamètre. Dans le même temps la pastille gonfle sous irradiation. Ces deux processus conduisent à un rattrapage progressif du jeu initial entre la pastille et la gaine. A partir de ce moment, qui se produit environ après deux cycles d'irradiation en réacteur (soit environ deux ans de fonctionnement), la pastille impose à la gaine sa déformation (Contact Mécanique Pastille – Gaine) (Figure 7). L'historique de chargement sur la gaine peut alors devenir assez complexe, le taux de biaxialité étant lié au gonflement de la pastille (Guillet et Guérin, 2008 ; Michel et al., 2008 ; Michel et al., 2012).

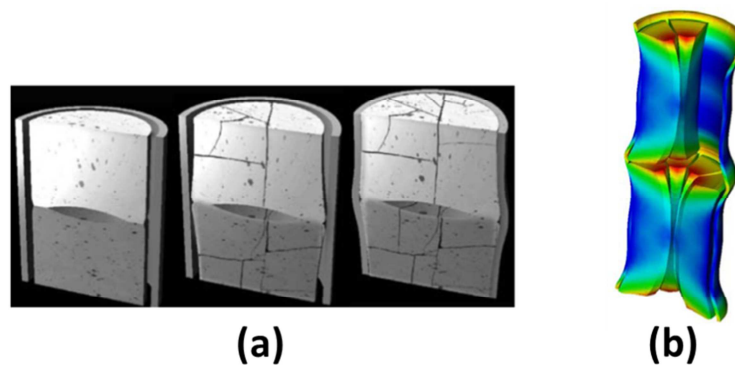


Figure 7 : a) Evolution du jeu pastille-gaine de 0 à 2 cycles REP. b) Représentation de la déformation des pastilles et de la gaine lors d'un transitoire de puissance sévère (Michel et al., 2012).

De plus, afin d'adapter la production d'électricité de la centrale nucléaire à la demande et également à la production d'énergie renouvelable souvent versatile, il est particulièrement intéressant de pouvoir faire varier de façon souple la puissance du réacteur. Mais ces rampes de puissance conduisent à une mise en forme de « diabolo » des pastilles, ce qui induit de fortes contraintes

⁸ Un cycle REP de 12 mois correspond à un taux de combustion d'environ 12 GWj/t, à une fluence des neutrons rapides ($E > 1$ MeV) d'environ 1.7×10^{25} n/m² et à un endommagement d'environ 2.7 dpa (le facteur de conversion entre fluence et dpa varie de 6.0×10^{24} n/m²/dpa à 6.9×10^{24} n/m²/dpa selon la méthode de calcul).

mécaniques aux inter-pastilles (Interaction Pastille–Gaine). Ces fortes contraintes, associées à l'agression par l'iode, peuvent induire des ruptures de gaines lors de rampes de puissance sévères.

Afin de garantir l'intégrité de la gaine et prédire sa déformation lors de ces diverses sollicitations, il est essentiel de connaître et prédire l'évolution des propriétés mécaniques des alliages de zirconium sous irradiation.

L'assemblage combustible et en particulier les tubes guides subissent, quant à eux, une force hydraulique verticale (Figure 5) vers le haut due à la circulation très rapide (4 m/s) de l'eau à travers les grilles notamment. La circulation transversale de l'eau dans le cœur du Réacteur à Eau Pressurisée induit également des forces transverses. En réaction à l'effort vertical, les ressorts de l'embout supérieur appliquent une force verticale vers le bas. Du fait de la déformation par croissance sous irradiation des tubes guides et des sollicitations complexes induites par la déformation des crayons qui eux-mêmes s'allongent du fait de la croissance et de la sollicitation induite par la colonne de pastilles, l'assemblage combustible se déforme dans le réacteur en s'allongeant. Un flambement complexe peut également apparaître. Ce flambement peut conduire à une introduction ralentie des barres de contrôle et également à une manutention difficile des assemblages combustibles qui peuvent s'accrocher les uns aux autres. Les grilles de mélange se déforment également en réacteur conduisant à une diminution des jeux entre les assemblages rendant aussi plus difficile la manutention. La bonne caractérisation et prédiction de la déformation de l'assemblage en réacteur s'avère donc être un élément important de la performance de celui-ci.

Après utilisation, les assemblages combustibles sont d'abord entreposés pendant deux années dans la piscine qui jouxte le bâtiment réacteur. Lorsque la puissance résiduelle du combustible a suffisamment décru, l'assemblage combustible peut être transporté, à sec, dans un emballage, ou conteneur dédié, jusqu'à un site d'entreposage ou de retraitement (Figure 8) (Poinssot, 2002).

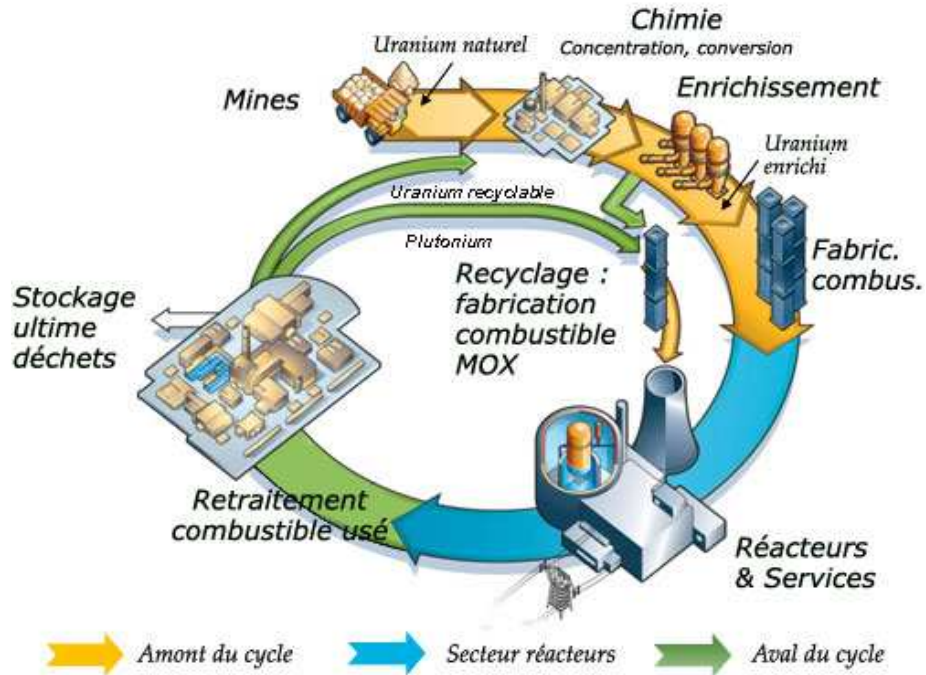


Figure 8 : Infographie tirée du site www.laradioactivite.com.

Lors de ce transport à sec, la puissance résiduelle du combustible peut conduire à une augmentation importante de la température de la gaine (jusqu'à 420°C) qui n'est alors plus refroidie par l'eau. L'augmentation de la température mène à une augmentation de la pression des gaz de fission contenus dans le crayon induisant ainsi un fluage de la gaine par pression interne. Afin de garantir le confinement du combustible et des gaz de fission pendant le transport, il est nécessaire de prédire et limiter la déformation de la gaine dans ces conditions. De plus, après transport, l'assemblage combustible peut être entreposé en eau, dans des piscines dédiées. Lors de la manutention de l'assemblage, par exemple pour un conditionnement ultérieur, les matériaux peuvent subir diverses sollicitations mécaniques. Là encore la bonne connaissance, compréhension et prédiction du comportement du matériau, successif à l'irradiation puis au transport, sont importantes.

1.1.3 Choix des matériaux : fonctions / propriétés

Pour les tous premiers assemblages combustibles les **fonctions** demandées au gainage du combustible ont pu être remplies en choisissant comme matériau de structure un acier inoxydable (Pickman, 1994). Cependant, il est vite apparu qu'un gain économique significatif pouvait être réalisé en utilisant d'autres matériaux capturant moins les neutrons thermiques. C'est l'Amiral Rickover qui, en 1949, décida d'utiliser les alliages de zirconium dans les réacteurs à eau pressurisée pour la propulsion navale (Lustman, 1979). En effet, ces alliages présentent une très faible section efficace

de capture des neutrons thermiques ($\sigma_{Zr}=0.0079$) en comparaison de celles des éléments constituant les aciers austénitiques ($\sigma_{Fe}=0.216$, $\sigma_{Ni}=0.404$, $\sigma_{Cr}=0.260$). En diminuant ainsi la section efficace de capture des neutrons thermiques des matériaux utilisés dans le cœur du réacteur, il est possible d'entretenir les réactions en chaîne de fission nucléaire en enrichissant seulement modérément le combustible (teneur isotopique en uranium 235 comprise entre 3% et 5%). Cet enrichissement constitue en effet une part importante du coût du combustible. Une **propriété** importante demandée aux matériaux de structure de l'assemblage combustible est donc cette transparence aux neutrons thermiques. C'est principalement cette **propriété** qui a conduit au choix de ces matériaux pour cette **fonction**. La relation fonctions/propriétés, constitue en effet le principe général gouvernant la sélection des matériaux (Bensaude-Vincent, 1998).

Les autres **propriétés** requises sont une bonne conductivité thermique, une bonne résistance à la corrosion ainsi que des caractéristiques mécaniques satisfaisantes et cela même lorsque le matériau est irradié. L'optimisation de la composition chimique, de l'état métallurgique, et de la microstructure en général (précipités, taille et forme des grains, densité de dislocations), des alliages de zirconium ont permis d'augmenter encore les performances de ces matériaux.

Tableau 1 : Composition chimique des alliages M5TM et Zy-4 (en teneur massique).

	O	Sn	Nb	Cr	Fe	S	Zr	
M5TM	1100 à 1700 ppm	-	~1%	-	~400 ppm	10 à 35 ppm	Bal.	(Mardon et al., 2000 ; Garat et al., 2013 ; Mardon et al., 2010)
Zy-4	1000 à 1400 ppm	1.2% à 1.7%	-	0.07% à 0.13%	0.18% à 0.24%	-	Bal.	Norme ASTM

Ainsi, l'alliage Zircaloy-4 était jusqu'à présent principalement utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée. La composition chimique de cet alliage est donnée dans le Tableau 1. Il était utilisé dans un état métallurgique détendu (traitement thermique final de deux heures à 470°C) pour les gaines et dans un état métallurgique recristallisé (traitement thermique final de deux heures à 580°C) pour les tubes guides et les grilles. Des efforts importants de R&D ont permis ces 20 dernières années à AREVA, en partenariat avec le CEA, d'aboutir à un alliage de zirconium, l'alliage M5TM, présentant une résistance à la corrosion accrue dans les conditions de fonctionnement des Réacteurs à Eau Pressurisée. Cet alliage contient du niobium (Tableau 1) et est utilisé dans l'état métallurgique recristallisé exclusivement. Grâce à ce nouveau matériau, l'épaisseur de la couche d'oxyde est réduite, permettant un meilleur transfert thermique entre la pastille et le caloporteur. De plus, la prise d'hydrogène dans la gaine est également réduite. Par ailleurs, les alliages de zirconium dans

l'état métallurgique recristallisé présentent une déformation sous irradiation plus faible. Ces améliorations ont ainsi permis d'optimiser les **performances** (c'est-à-dire l'efficacité pour les applications visées) des alliages de zirconium dans leurs conditions d'utilisation et ainsi notamment d'augmenter la durée d'utilisation des assemblages combustibles (taux de combustion) et donc la performance de l'ensemble de l'assemblage combustible tout en garantissant la sûreté du réacteur (Figure 9).

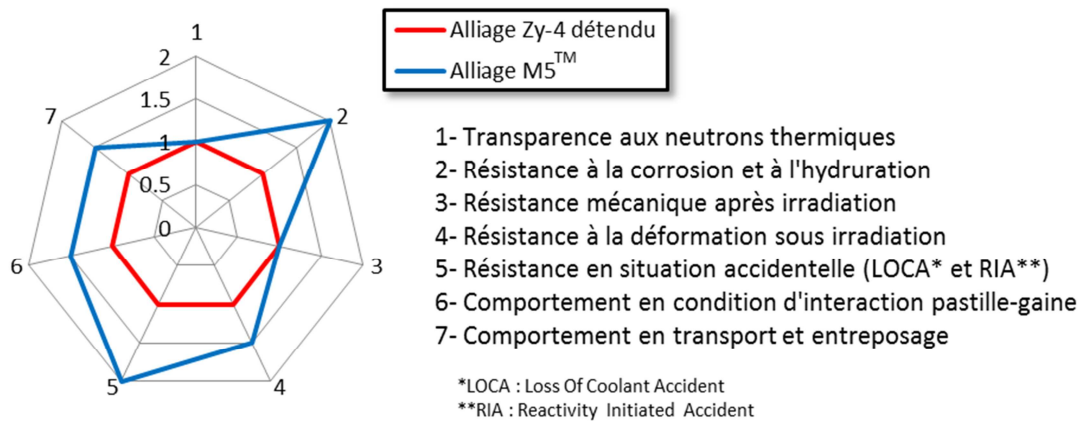


Figure 9 : Diagramme de principe comparant les performances de deux alliages de zirconium pour une utilisation comme gainage REP. Les valeurs, indicatives, sont données en unité arbitraire.

1.2 Recherche et développement sur les alliages de zirconium

Les alliages de zirconium sont soumis, dans le réacteur, à des sollicitations complexes dans un environnement particulièrement agressif. Afin de garantir la sûreté dans toutes les situations, tout en améliorant la performance de l'assemblage combustible, de nombreuses recherches sont menées à travers le monde et en particulier en France dans différentes entreprises ou organismes (CEA, EDF, AREVA, CNRS, IRSN), Universités ou Ecoles d'Ingénieurs.

Les études de Recherche et Développement menées sur les alliages de zirconium concernent principalement : l'élaboration et la mise en forme, le fonctionnement nominal du réacteur, les situations accidentelles, qui ne sont pas abordées ici, et enfin l'aval du cycle du combustible, lorsque l'assemblage combustible utilisé est transporté et entreposé.

Les études de R&D qui concernent les conditions normales de fonctionnement et de l'aval du cycle du combustible, ont pour principaux objectifs :

- i) l'amélioration de la sûreté et de la performance du combustible lors de changements de puissance (suivi de réseau), notamment afin d'adapter de façon flexible la production d'électricité nucléaire à la demande ou à la production d'électricité renouvelable. Dans ces conditions l'irradiation se produit en continu mais les sollicitations dues aux pastilles sont rapides et les contraintes atteintes sont élevées. Le comportement du matériau peut donc être considéré identique à celui du matériau **après irradiation**, hors du réacteur.
- ii) l'amélioration de la sûreté du combustible lorsque l'assemblage combustible utilisé est transporté et entreposé. Dans ces conditions, le matériau subit un fluage thermique **après irradiation**.
- iii) l'amélioration de la sûreté et de la performance du combustible grâce à l'augmentation du taux de combustion. Un des moyens d'augmenter le taux de combustion de l'assemblage combustible, tout en garantissant la sûreté, est de repousser les marges, notamment celles qui concernent la déformation en réacteur, grâce à une meilleure caractérisation et prédiction de la déformation anisotrope des alliages de zirconium **sous irradiation**.

Afin d'atteindre ces objectifs des essais mécaniques sont réalisés d'une part sur le matériau **non irradié**, à l'état de réception, afin de caractériser précisément son comportement. Ensuite, des essais mécaniques sont réalisés, **après irradiation**, sur des matériaux irradiés en réacteurs expérimentaux ou bien en réacteur de puissance. Des essais sont menés jusqu'à des fortes contraintes (traction, écrouissage en pression interne, écrouissage-relaxation en pression interne, fluage en pression interne forte contrainte) simulant ainsi des sollicitations de type interaction pastille-gaine (Figure 10). D'autres essais sont menés à des faibles niveaux de contrainte, en fluage thermique **après irradiation**, simulant ainsi les sollicitations rencontrées lors du transport de l'assemblage combustible. Enfin, des expériences de déformation **sous irradiation**, sans contrainte ou sous faible contrainte, sont réalisées en réacteurs expérimentaux (croissance et fluage d'irradiation, relaxation sous irradiation) afin de mieux connaître et ainsi prédire la déformation des alliages de zirconium en réacteur.

En plus de ces caractérisations expérimentales macroscopiques, des modèles de comportement empiriques, ou phénoménologiques, sont développés. Ces modèles opérationnels ont vocation à être introduits dans des codes de calculs de structure basés sur la méthode des éléments finis. Ces modèles permettent ainsi aux partenaires industriels, AREVA et EDF, de réaliser des calculs sur des structures représentatives d'un crayon combustible ou bien d'un assemblage.

Cette démarche de R&D macroscopique et empirique, absolument essentielle, est menée au CEA en étroite collaboration avec EDF et AREVA. Parallèlement à cette démarche, une approche dite « micromécanique », « multi-échelle », ou bien encore « physique », est également conduite notamment au CEA (Figure 10). Celle-ci a pour principal objectif le développement de modèles de comportement plus prédictifs que les modèles empiriques, limités à leur domaine d'identification, en s'appuyant sur la connaissance de la microstructure et des mécanismes physiques responsables de la déformation des matériaux. Mais, au-delà du développement de ces modèles, c'est surtout une meilleure compréhension du comportement et de l'évolution des propriétés que cherche à atteindre cette démarche.

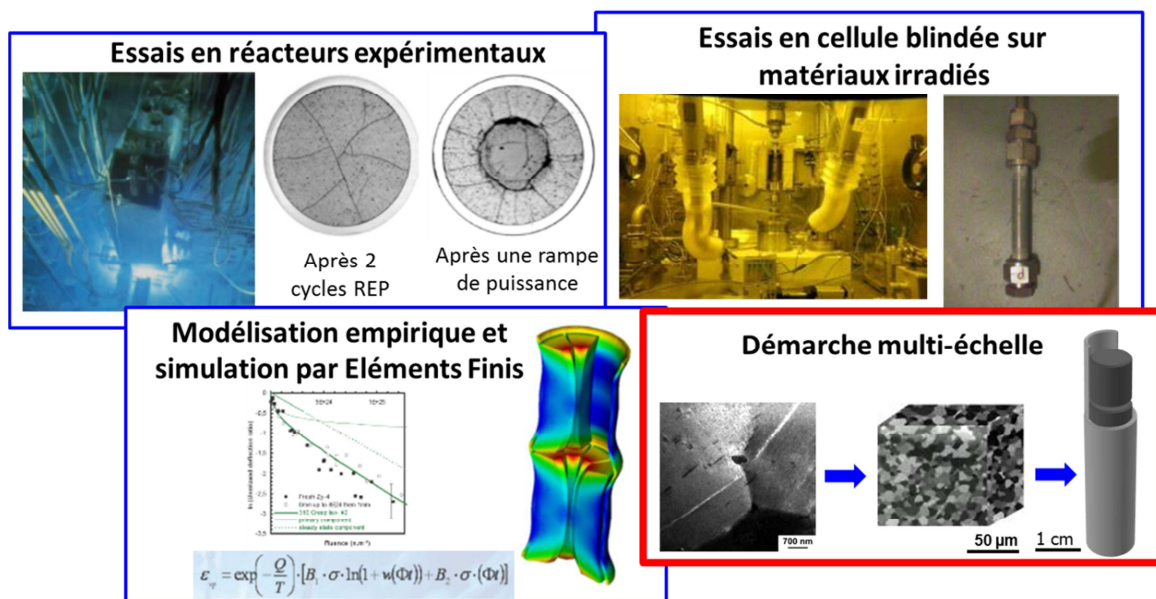


Figure 10 : Positionnement de la démarche multi-échelle dans les études menées sur le gainage combustible.

En effet, la Science des Matériaux se fonde sur la relation qui existe entre les propriétés d'un matériau et sa microstructure (Bensaude-Vincent, 1998). La microstructure du matériau est héritée des procédés d'élaboration et de mise en forme. La chaîne causale procédés-microstructure-propriétés-performances peut alors se représenter sous la forme de la Figure 11 (Olson, 2000), ou bien sous la forme d'un tétraèdre où apparaissent ces quatre composantes sur chacun des sommets (François et al., 1995; Cahn, 2001).

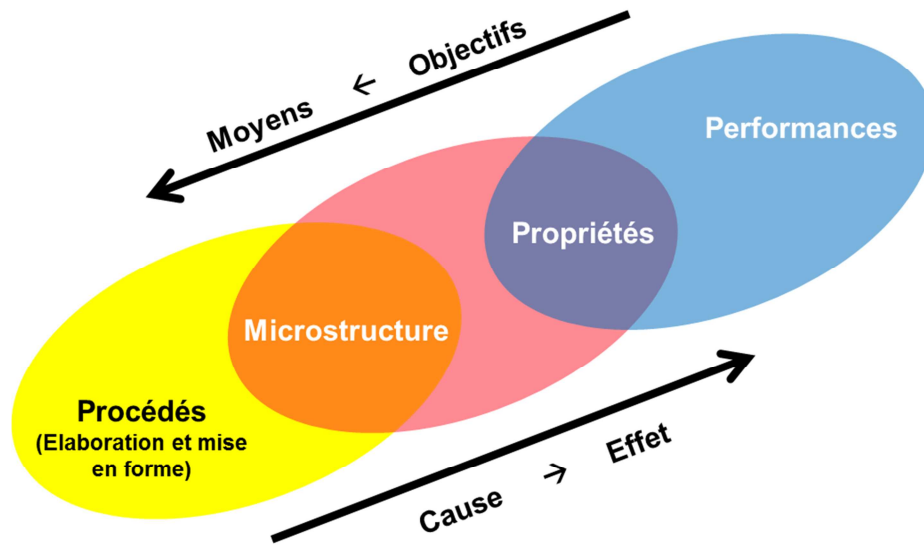


Figure 11 : Paradigme des quatre composantes de la Science et Ingénierie des Matériaux. D'après G.B. Olson (2000).

Dans la suite du chapitre introductif, le principe de la démarche multi-échelle sera présenté. La microstructure et les mécanismes physiques seront brièvement décrits à cette occasion. Ensuite, dans les trois chapitres suivants, ma contribution à l'étude multi-échelle du comportement des alliages de zirconium **non irradiés**, **après irradiation** puis **sous irradiation** sera successivement présentée. Enfin, dans une dernière partie, une prise de recul par rapport à la démarche entreprise sera proposée.

1.3 La démarche multi-échelle

1.3.1 Les différentes échelles caractéristiques du matériau et les phénomènes associés

Les alliages de zirconium sont des matériaux métalliques utilisés pour les applications en Réacteurs à Eau Pressurisée sous la forme de polycristaux monophasés de zirconium- α . Le comportement d'un volume élémentaire (représentatif) de ce matériau est donc le résultat de la déformation de l'ensemble des grains du polycristal et de leurs interactions mutuelles. Les grains sont en général soit de forme équiaxe (de taille de 5 à 10 μm) dans le cas des alliages dans l'état métallurgique recristallisé (Figure 12a) ou bien de forme allongée suivant la direction de laminage (de longueur 15 μm et de largeur 2 μm) dans le cas des alliages dans l'état détendu (Figure 12b). De plus ces matériaux sont texturés, c'est-à-dire que l'orientation cristallographique des grains n'est pas aléatoire par rapport aux directions macroscopiques du procédé de mise en forme (Figure 12c). Cette texture cristallographique influence donc également le comportement macroscopique du matériau.

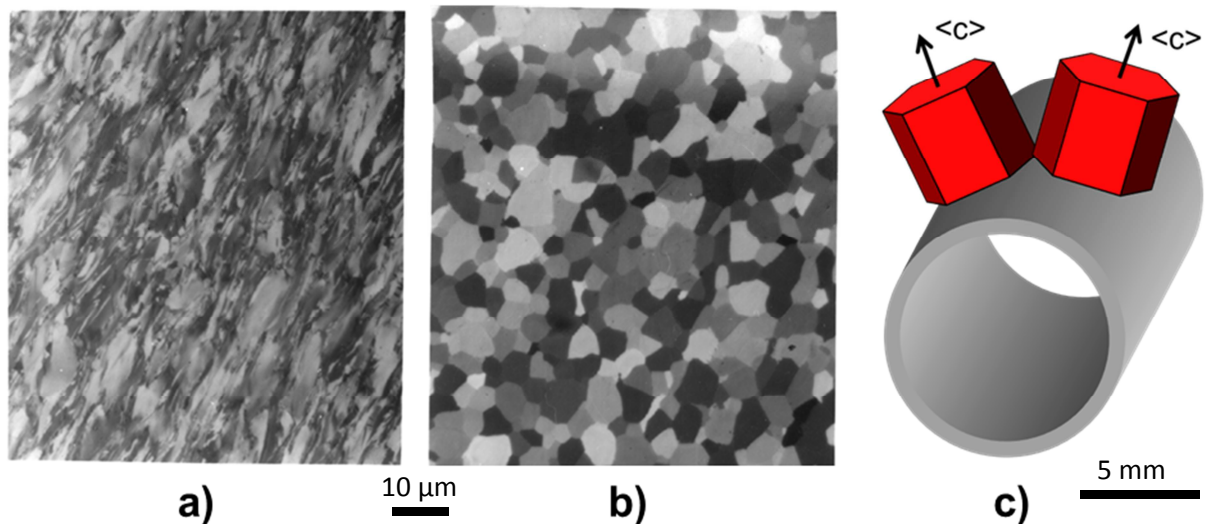


Figure 12 : Microstructures typique d'un alliage de zirconium dans l'état a) détendu, b) recristallisé. c) Représentation schématique de la texture cristallographique des tubes de gaines (ici détendus).

Chacun des grains cristallins de zirconium- α présente une structure cristallographique hexagonale compacte (de paramètre de maille $a=3.232 \text{ \AA}$ et $c/a=1.593$ à 25°C) (Figure 13a). Cette structure se caractérise par un faible nombre de systèmes de glissement faciles, les systèmes prismatiques $\langle a \rangle$, et plusieurs autres familles de systèmes de glissement durs : glissement basal $\langle a \rangle$, pyramidal $\langle a \rangle$ et pyramidal $\langle c+a \rangle$ (Figure 13b). Ce dernier système est particulièrement difficile à activer mais est très important car il est le seul à permettre l'accommodation de la déformation plastique suivant l'axe $\langle c \rangle$ de la structure hexagonale compacte. Le maclage, qui permet également d'accommoder la déformation suivant l'axe $\langle c \rangle$, peut aussi s'activer dans certaines conditions de sollicitation. Ce faible nombre de systèmes de glissement faciles, qui de surcroît n'accommodent que la déformation suivant la direction $\langle a \rangle$, conduit à un comportement plastique du monocristal très anisotrope.

Du fait de cette forte anisotropie de comportement, certains grains bien orientés du polycristal se déforment « plastiquement », alors que d'autres, mal orientés, restent élastiques. Des incompatibilités de déformation apparaissent alors, incompatibilités qui se traduisent par l'apparition de contraintes internes dans ce matériau hétérogène. Comme on le verra dans la suite de ce manuscrit, en particulier dans les Chapitres 2 et 3, ces contraintes internes jouent un rôle important sur le comportement mécanique du matériau polycristallin. Il est donc très important d'intégrer cet aspect dans l'analyse du comportement mécanique ainsi que dans sa modélisation.

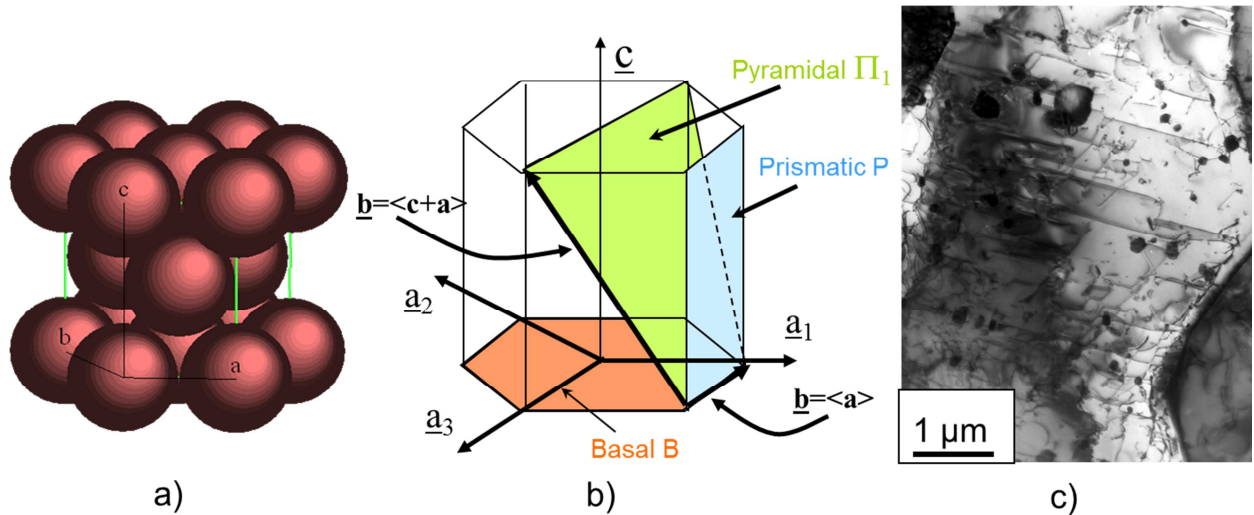


Figure 13 : a) Structure hexagonale compacte. b) Principaux systèmes de glissement de la structure hexagonale compacte. c) Microstructure typique de dislocations après glissement dans les plans prismatiques.

L'anisotropie de comportement plastique du monocristal associée à la texture marquée confère au matériau polycristallin un comportement anisotrope. La texture typique d'une tôle ou d'une gaine dans l'état métallurgique recristallisé est caractérisée par des grains orientés majoritairement avec des axes $\langle c \rangle$ dans le plan défini par la direction transverse (ou circumférentielle) et la direction normale (ou radiale). Le maximum de densité de pôles $\{0002\}$ est en général incliné entre 15° et 30° de la direction normale (Figure 12c). La déformation suivant la direction normale est donc très difficile, alors qu'une déformation suivant la direction transverse ou axiale est plus facile.

Le comportement de chaque grain est le résultat du cisaillement plastique suivant les différents systèmes de glissement du cristal. Ce cisaillement plastique est lui-même le résultat du glissement des dislocations dans ces plans (Figure 13c). Le comportement de chaque grain est donc le produit du mouvement des dislocations et de leurs interactions avec les différents objets de la microstructure tels que les joints de grains, les précipités et les autres dislocations. Dans les alliages de zirconium Zircaloy-4 et M5TM, les précipités se présentent respectivement sous la forme de phases de Laves (précipités de $\text{Zr}(\text{Fe},\text{Cr})_2$) de diamètre de l'ordre de 200 nm, et de précipités de β -niobium de 50 nm de diamètre. De plus, dans les alliages contenant du niobium, apparaissent également des précipités nanométriques de β -niobium qui précipitent de façon accélérée sous irradiation. Ceux-ci peuvent également avoir un rôle sur le mouvement des dislocations après irradiation. Ce point sera évoqué dans le Chapitre 3.

Lors de la déformation plastique, les dislocations se multiplient et interagissent entre elles suivant différents mécanismes selon leurs vecteurs de Burgers respectifs ainsi que l'orientation de leur ligne.

Ce phénomène induit un écrouissage intra-granulaire (phénomène qui sera évoqué au Chapitre 2) qui est le résultat du comportement collectif des dislocations. Lors de l'irradiation, d'autres défauts cristallins sont créés, les boucles de dislocations, qui interagissent également avec les dislocations suivant différents mécanismes. Ces interactions peuvent affecter l'activation des différents systèmes de glissement (comme on le verra au Chapitre 3). Ces défauts d'irradiation peuvent aussi évoluer lors de traitements thermiques, par exemple pendant un essai de fluage thermique (Chapitre 3) induisant des couplages entre la déformation et l'évolution de la microstructure d'irradiation lors de sollicitations post-irradiation.

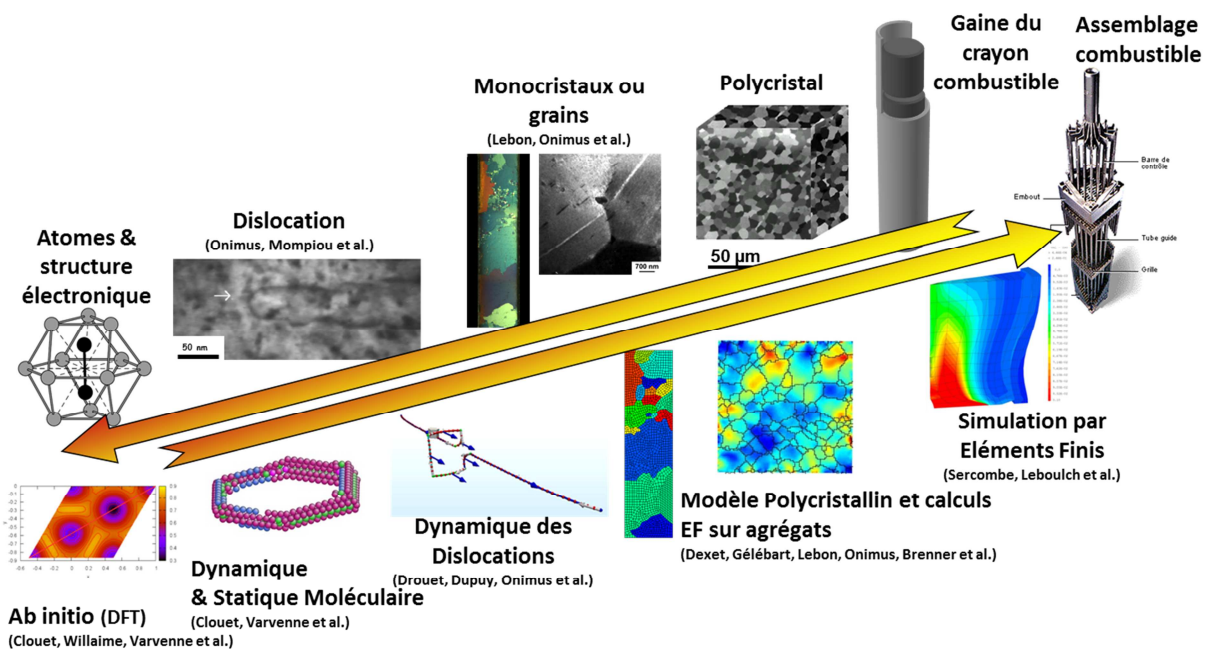


Figure 14 : Représentation schématique de la démarche d'analyse et de synthèse du programme réductionniste appliquée aux alliages de zirconium.

Le mouvement des dislocations est également piloté par leur structure de cœur. Il est généralement considéré que la structure du cœur des dislocations vis de vecteur de Burgers $\langle a \rangle$ glissant dans les plans prismatiques est non planaire, expliquant la faible mobilité de ces dislocations qui, à l'instar des dislocations dans le fer cubique centré, se déplacent par nucléation de doubles décrochements permettant le franchissement des vallées de Peierls. Ceci expliquerait la différence de mobilité entre les dislocations vis et les dislocations coin. Ce phénomène semble être accentué par la présence d'atomes solutés et en particulier l'oxygène, le zirconium pur ne présentant pas cette caractéristique (Clouet, 2012). Cet élément d'alliage confère en effet aux alliages de zirconium une bonne résistance mécanique. Par ailleurs cet élément est responsable d'un phénomène de vieillissement dynamique qui se produit dans certaines gammes de températures et de vitesses de sollicitation (Prioul, 1995).

L'étain également en solution solide dans le matériau contribue à augmenter sa résistance en fluage. D'autres éléments très minoritaires comme le soufre (Ferrer, 2000 ; Mardon et al., 2000) ou l'hydrogène (Domain et al., 2004) affectent également la mobilité des dislocations dans les alliages de zirconium. La structure du cœur des dislocations dans le zirconium- α est le résultat de sa structure électronique spécifique (Clouet, 2012). Les modifications de cette structure de cœur par les éléments d'alliage expliquent les modifications des propriétés mécaniques observées.

Cette structure imbriquée du matériau se complexifie encore lorsque l'on s'intéresse au comportement mécanique **sous irradiation** des alliages de zirconium. Comme précédemment le caractère polycristallin et texturé du matériau joue un rôle essentiel sur le comportement macroscopique du matériau. Mais c'est à l'échelle du grain que les mécanismes mis en jeu sont encore plus complexes. En effet, de fortes concentrations de défauts ponctuels (lacunes et auto-interstitiels) sont créés par l'irradiation, lors des cascades de déplacements d'atomes suite aux collisions induites par les neutrons rapides. Ces défauts ponctuels diffusent dans le matériau cristallin, se recombinent, s'agglomèrent ou s'éliminent sur les différents puits présents dans le matériau (surfaces, joints de grains, dislocations, ...). Ces flux de défauts ponctuels sont couplés et peuvent également être affectés par la présence de solutés. La déformation sous irradiation (croissance et fluage d'irradiation) du matériau est le résultat de la diffusion des défauts ponctuels, de leur agglomération, par exemple sous forme de boucles à composante $\langle c \rangle$, et de leur effet sur la montée des dislocations. Le glissement des dislocations peut être également assisté par la montée, elle-même favorisée par la diffusion des défauts ponctuels. Ces aspects seront abordés au Chapitre 4.

1.3.2 Une reconstruction difficile

Le comportement mécanique du matériau d'intérêt industriel est donc le résultat de multiples processus souvent couplés qui se produisent à différentes échelles. Cette structure imbriquée, ou hiérarchique, associée à la multiplicité des mécanismes possibles en compétition ainsi qu'aux effets d'éléments d'alliage, rendent particulièrement difficile la déduction du comportement macroscopique à partir du comportement des constituants élémentaires du matériau.

Afin de parvenir à réaliser cette remontée des échelles, différents outils de simulation numérique, adaptés à chaque échelle d'espace (et de temps), ont été développés. A l'échelle de la structure électronique de quelques centaines d'atomes, des simulations ab initio basées sur des calculs de mécanique quantique, comme la théorie de la fonctionnelle densité, peuvent être conduits. A

l'échelle d'un cristal constitué de quelques millions d'atomes des simulations (dynamique et statique moléculaire) utilisant des potentiels d'interaction interatomique empiriques peuvent également être réalisés. Ensuite, à une échelle supérieure dite mésoscopique, le comportement collectif des dislocations peut être simulé par des outils de dynamique discrète des dislocations (Chapitre 3). Les évolutions de la microstructure sous irradiation peuvent être également simulées à cette échelle mésoscopique grâce à la technique de la Dynamique d'Amas (Chapitre 3 et 4). Enfin, pour déterminer le comportement du polycristal à partir de la connaissance du comportement des grains, des méthodes d'homogénéisation sont utilisées. Des méthodes en champ moyen ou en champ complet existent. Les modèles polycristallins, en champ moyen, seront décrits brièvement dans le manuscrit (Chapitre 2 et 3).

Malgré tous ces outils numériques, disponibles ou en cours de développement, il apparaît que cette remontée des échelles reste très difficile à réaliser de façon pratique compte tenu de la complexité des phénomènes, imbriqués, qui se produisent dans le matériau réel d'intérêt industriel.

C'est pourtant l'enjeu de la démarche que nous tentons de mettre en œuvre. Cet enjeu rejoint un des grands défis de la Science du XXI^e siècle. Entre la connaissance de l'infiniment grand (galaxies, univers...) et de l'infiniment petit (particules élémentaires, unification des interactions...), la connaissance de la matière quotidienne, à échelle humaine, reste un domaine de recherche très actif. En effet, malgré la connaissance très poussée des éléments les plus élémentaires constituant la matière (étape d'analyse de la démarche réductionniste) la compréhension et la prédiction des propriétés de la matière ordinaire est encore bien incomplète (étape de synthèse ou de reconstruction de la démarche réductionniste) (Jensen, 2001 ; Lévy-Leblond, 2004 ; Aspect et al., 2004).

Il est d'ailleurs possible de s'interroger sur les raisons précises qui font que cette reconstruction est si difficile dans le domaine de la plasticité des métaux et alliages en particulier. Y a-t-il des raisons fondamentales qui rendent cette démarche si difficile ? Existe-t-il une méthode qui permettrait néanmoins de parvenir à cette remontée des échelles ? Comment dans la pratique procède-t-on pour contourner ces difficultés ? L'étude menée sur les alliages de zirconium peut constituer une illustration de cette démarche de remontée des échelles, ou de reconstruction. On tentera donc dans une dernière partie du mémoire de s'appuyer sur cet exemple pour illustrer et discuter d'une part les difficultés de la reconstruction en Science des Matériaux mais également les stratégies pour parvenir à cette reconstruction.

Chapitre 2

Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr non irradiés

Publications associées :

Onimus (2004), Onimus et al. (2006), Onimus & Béchade (2009), Lebon (2012).

2.1 Contribution à l'étude du comportement monocristallin du zirconium non irradié

2.1.1 Introduction

Les mécanismes de déformation des alliages de zirconium non irradiés ont été étudiés dès les années 60. Ces travaux sont notamment décrits dans d'anciennes revues bibliographiques (Douglass, 1971; Tenckhoff, 1988). En France, le comportement et les mécanismes de déformation des alliages de zirconium commerciaux polycristallins non irradiés ont notamment été étudiés du point de vue expérimental dans le cadre de nombreuses thèses. Citons en particulier celles de Pujol (1994), Crépin (1995), Ferrer (2000), Geyer (1999), Rupa (2000), Dexet (2006), Graff (2006) et Rautenberg (2012). Seule une petite partie des nombreux et excellents résultats obtenus lors de ces études ont donné lieu à des publications. Il est donc souvent nécessaire de se référer aux manuscrits de thèse eux-mêmes pour une étude bibliographique complète.

Malgré ces nombreux travaux sur les alliages commerciaux, les études expérimentales approfondies réalisées sur monocristaux de zirconium restent rares. En effet, il s'avère particulièrement délicat d'élaborer des monocristaux de zirconium, notamment du fait de la température de transition allotropique $\alpha \rightarrow \beta$ relativement basse (860°C). Seuls Akhtar et Tegsoonian (1971), Soo et Higgins

(1968) et Mills et Craig (1968) donnent quelques résultats obtenus sur des monocristaux de zirconium. Ces travaux sont synthétisés dans les ouvrages de Caillard et Martin (2003) ou de Kubin (2013). A ces études on peut aussi ajouter les quelques résultats obtenus par Crépin et al. publiés dans (Monnet, 2004 ; Poty, 2011).

Il est bien établi, depuis les années 60, que les cristaux de zirconium- α , de structure cristallographique hexagonale compacte, se déforment par glissement facile suivant les plans prismatiques de première espèce et dans la direction de glissement $\langle a \rangle$ (Tenckhoff, 1988). Afin d'accommoder la déformation suivant l'axe $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale d'autres modes de déformation sont nécessaires comme le maillage ou le glissement pyramidal $\langle c+a \rangle$. Ces modes de déformation sont toujours très durs conférant ainsi une forte anisotropie au comportement plastique du monocristal de zirconium. Il est en général admis que d'autres systèmes de glissement durs comme le système basal $\langle a \rangle$ et le système pyramidal $\langle a \rangle$ peuvent également s'activer (Figure 15). On notera néanmoins qu'il n'y a pas de consensus clairement établi quant aux conditions d'activation de ces deux derniers systèmes. Par exemple, d'après Akhtar (1973) le glissement basal ne s'active qu'à très haute température ($T > 850$ K). Ou bien encore, certains auteurs (Xu et al., 2007) ne prennent pas en compte l'activation du glissement pyramidal $\langle a \rangle$ dans leurs modèles. L'activation de ce système a néanmoins été récemment identifiée en fluage à 400°C (Rautenberg, 2012).

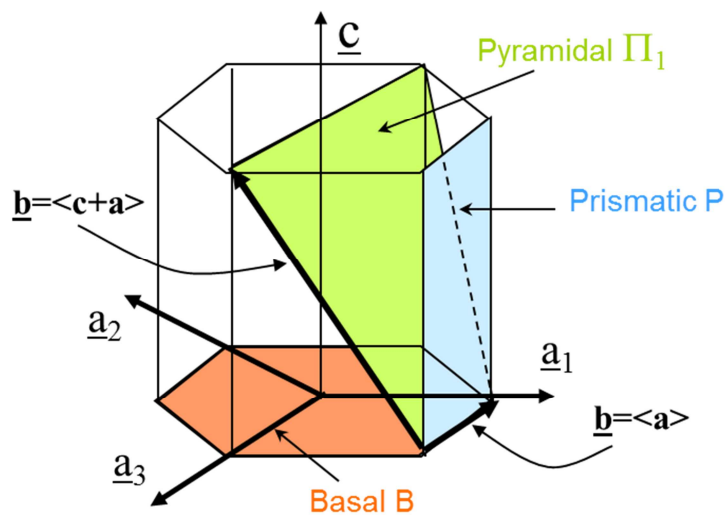


Figure 15 : Systèmes de glissement de la structure hexagonale compacte.

Lors des études de monocristaux de zirconium citées précédemment, seul le glissement prismatique a été caractérisé en détail. En particulier, la cission critique de ce système est connue précisément en fonction de la teneur en oxygène et en fonction de la température (Soo et Higgins, 1968 ; Mills et Craig, 1968). Des compléments concernant l'écroutissage et la sensibilité à la vitesse (volume

d'activation) de ce système semblent néanmoins encore nécessaires. Concernant les autres systèmes de glissement, il existe très peu de données expérimentales. Seuls quelques résultats sont donnés concernant le système basal par Akhtar (1973). Aucune donnée expérimentale, issue de travaux sur monocristaux, ne semble disponible concernant le système pyramidal $\langle a \rangle$ ou $\langle c+a \rangle$, ni concernant l'écroissage latent, c'est-à-dire l'interaction entre les différents systèmes de glissement.

Par ailleurs, aucune loi de comportement cristalline n'a été déterminée expérimentalement, sur la base de courbes de comportement monocristalline. En effet, les lois de plasticité cristalline généralement utilisées pour les alliages de zirconium sont inspirées des lois proposées pour les métaux CFC et les paramètres de ces lois sont identifiés par méthode inverse sur le comportement du matériau polycristallin (Geyer, 1999 ; Brenner, 2002).

Dans l'objectif de disposer d'une modélisation multi-échelle du comportement des alliages de zirconium il apparaît pourtant nécessaire d'avoir une bonne connaissance du comportement monocristallin du zirconium, permettant ainsi d'établir des lois de comportement de plasticité cristalline qui pourront être utilisées dans des modèles d'homogénéisation en champ moyen (modèle auto-cohérent) ou en champ complet (éléments finis, transformée de Fourier rapide).

C'est pour cette raison que nous avons engagé dès septembre 2007 une étude expérimentale du comportement monocristallin du zirconium (Lescoat, 2008 ; Haquin, 2008 ; Lebon, 2012). Cette étude entendait tirer parti de l'existence de quelques plaquettes de zirconium pur contenant des grains millimétriques de zirconium- α qui avaient pu être élaborées lors d'une précédente étude (Bacroix et al., 2006). De nouvelles plaquettes ont néanmoins dû être élaborées dans le cadre de notre projet. L'objectif de ce travail était de constituer une base de données expérimentales, à température ambiante, sur ce matériau comme les cissions critiques pour le système prismatique, l'écroissage, l'activation des systèmes de glissement et les volumes d'activation. Des essais mécaniques ont été réalisés sur des éprouvettes multi-cristallines contenant des grands grains de zirconium- α et en utilisant la méthode de corrélation d'images. Une loi de comportement monocristalline pour le zirconium a été proposée en se basant sur les résultats d'essais mécaniques. Cette loi a été finalement validée par des simulations par éléments finis sur les éprouvettes complètes. C'est cette étude qui est résumée dans la première partie de ce Chapitre.

2.1.2 Matériau de l'étude et méthodes mises en œuvre

Le matériau de l'étude est du zirconium de grade «Van Arkel», matériau obtenu selon le procédé électrochimique Van Arkel-de Boer (aussi appelé « crystal bar process » ou « iodide process »). Sa particularité réside au niveau de sa haute pureté en éléments interstitiels. Le matériau ne contient en effet que 100 ppm (massique) d'oxygène, ce qui constitue le plus haut niveau de pureté, pour cet

élément, accessible par des méthodes de purification électro-chimiques. Le matériau ne contient que 500 ppm de fer, ce qui constitue également un bon niveau de pureté pour cet élément. Les autres éléments sont présents en très faible teneur dans ce matériau (C : 80 ppm, H : 33 ppm, N : 7 ppm) seul le hafnium, élément substitutionnel, est présent à une teneur élevée, de 2.2%, dans ce matériau. En effet, le hafnium est naturellement présent dans le minerai de zirconium. Le hafnium est en principe systématiquement séparé du zirconium, pour les applications nucléaires, car celui-ci présente une section efficace de capture des neutrons thermiques élevée. Ce matériau a déjà été utilisé lors de précédentes études (Graff, 2006). Il a pu alors être démontré que le hafnium n'avait pas d'influence significative sur le comportement du matériau, en particulier vis-à-vis du vieillissement dynamique.

Afin d'obtenir des grains de zirconium- α les plus grands possibles, pour ensuite prélever des éprouvettes de traction, la méthode de l'écroissage critique a été mise en œuvre (Chaubet, 2000 ; Bacroix, 2006). L'échantillon final recristallisé se présente sous la forme d'une plaquette contenant quelques grains dont la taille peut atteindre 2 à 3 mm. Dans ces plaquettes, de petites éprouvettes ont été usinées de façon très précise, par électro-érosion, en repérant préalablement (sur une face de la plaquette) la position des grands grains (Figure 16).

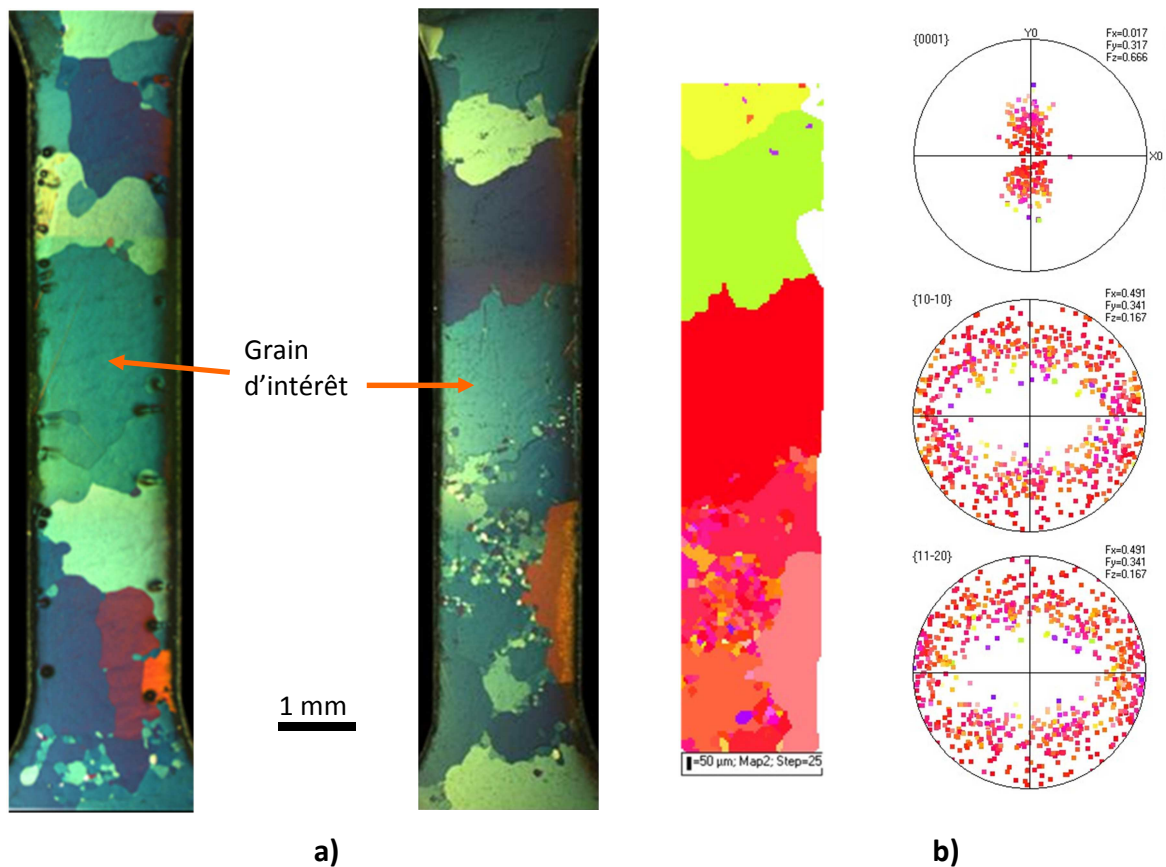


Figure 16 : a) Observations au microscope optique (lumière polarisée) des faces 1 (à droite) et 2 (à gauche). b) Cartographie EBSD (à gauche) et figure de pôles (à droite).

Ainsi, pour quelques éprouvettes, un grand grain est contenu dans la longueur utile, au moins lorsqu'une des deux faces est observée. Malheureusement, du fait de la forme tridimensionnelle des grains dans l'épaisseur, les grands grains ne débouchaient pas systématiquement sur l'autre face des éprouvettes. Sept éprouvettes de ce type ont été caractérisées en détail dans le cadre des stages de Lescoat (2008), de Haquin (2008) puis surtout de la thèse de Lebon (2012). Une analyse approfondie, réalisée a posteriori, montre que finalement seules deux parmi les sept éprouvettes donnent des résultats cohérents et que pour ces deux éprouvettes les grains traversent bien toute l'épaisseur de l'éprouvette. Dans la suite, seuls les résultats obtenus pour ces deux éprouvettes seront présentés. Grâce à ces deux éprouvettes dont un grand grain, situé au niveau de sa longueur utile, traverse effectivement, localement, toute la section de l'éprouvette, il est possible de déduire le comportement monocristallin. En effet, la contrainte s'appliquant dans le grain considéré est connue avec précision par la mesure de la force s'appliquant sur l'éprouvette. La déformation locale du grain considéré doit, quant à elle, être déterminée par une méthode de micro-extensométrie à l'échelle locale. C'est la méthode de corrélation d'images numériques qui est utilisée ici. Dans un premier temps des essais ont été réalisés à température ambiante sur une micromachine de traction dans un MEB, au LSPM/Univ. Paris XIII-CNRS avec l'aide de R. Chiron (figure 17), les éprouvettes étant préalablement recouvertes de microgrilles d'or. Ce dispositif permet de déterminer précisément les champs de déformations par corrélation d'images. Cependant, la surface observable même à faible grandissement par le MEB est limitée, ce qui nécessite d'enregistrer plusieurs images pour couvrir l'ensemble de la longueur utile de l'éprouvette. De plus, compte tenu de la durée d'acquisition des images, ce dispositif implique d'interrompre l'essai pour observer l'éprouvette à différents stades de la déformation (au début, au milieu et à la fin). La déformation locale du grain n'est donc pas connue en continu tout au long de l'essai.

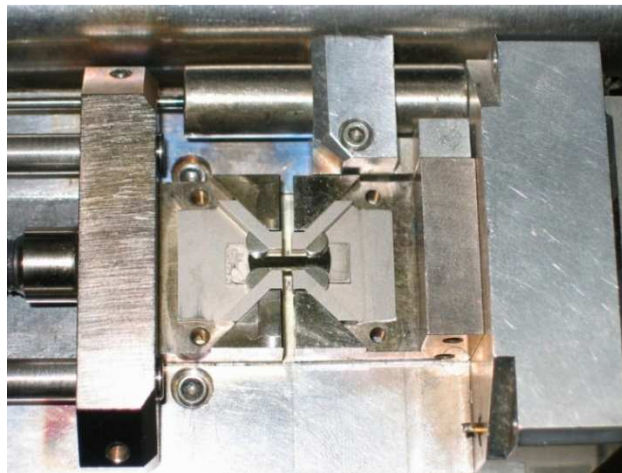
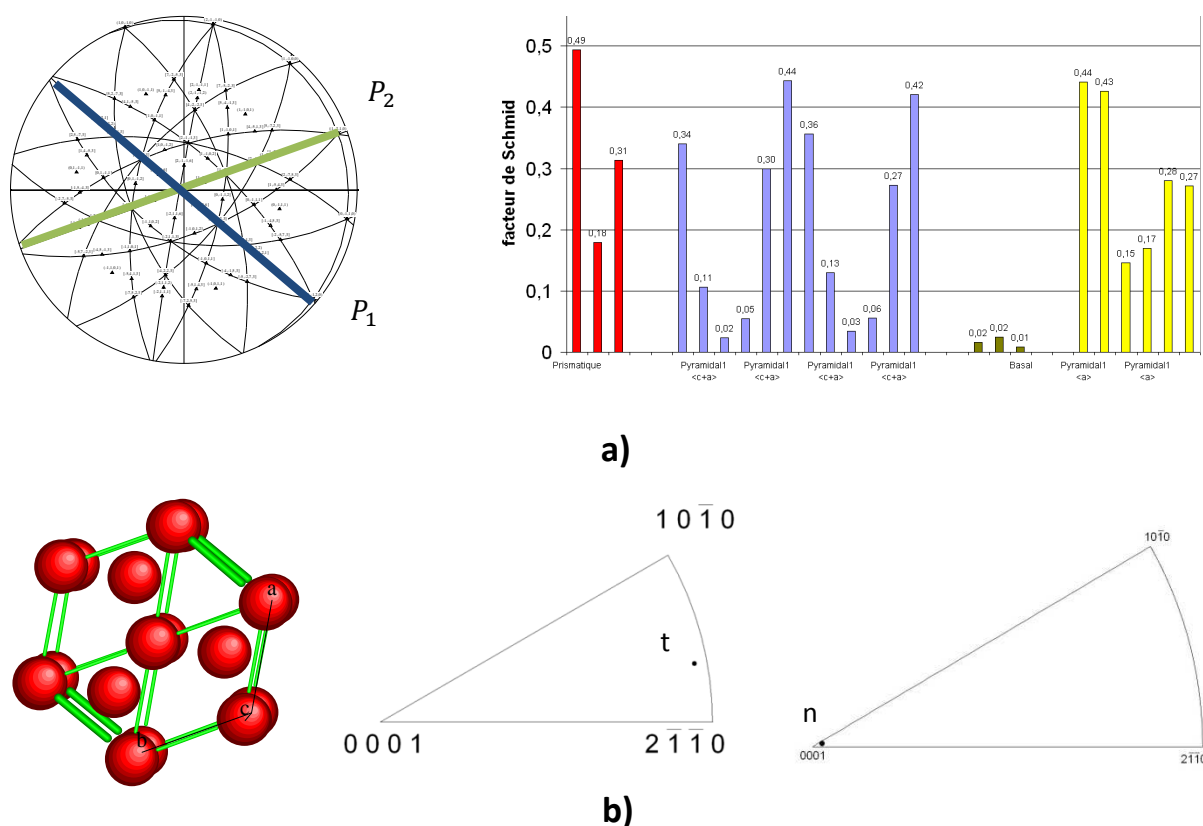


Figure 17 - Photographie de la micromachine de traction dans l'enceinte MEB.

Afin de pallier ces différentes limitations, des essais ont été réalisés, toujours à température ambiante, selon une deuxième méthode. Celle-ci consiste à dégrader la résolution spatiale des champs de déformation en recouvrant nos éprouvettes d'un mouchetis de peinture, moins précis que la micro-grille d'or. Les éprouvettes sont ensuite déformées par une machine de traction couplée à un appareil photo numérique, au LMS/Ecole Polytechnique avec l'aide de E. Héripéré. Cet appareil photo numérique enregistre des images de la longueur totale de l'éprouvette tout au long de l'essai. Nous obtenons ainsi le champ de déformation à chaque pas de temps mais avec une résolution spatiale moins bonne que pour la première méthode. Il s'avère que malheureusement, les cinq éprouvettes étudiées avec cette seconde méthode donnent des résultats qui ne sont pas cohérents entre eux. De plus, en considérant de façon détaillée la géométrie des grains, il s'avère que ceux-ci ne traversent pas la section des éprouvettes. Seule une des éprouvettes testées par cette méthode semble être favorable, mais des erreurs très élevées ont été constatées lors des dépouillements. Cette éprouvette ne peut donc pas non plus être considérée comme valide. En conséquence, il apparaît *a posteriori*, et à regret, que seules les deux éprouvettes testées selon la première méthode peuvent réellement être exploitées. La seconde méthode semblait pourtant être la mieux adaptée aux besoins de cette étude.

2.1.3 Principaux résultats expérimentaux

Préalablement à la réalisation des essais mécaniques, des observations en microscopie optique en lumière polarisée ont été réalisées sur les deux faces des éprouvettes. Des analyses EBSD ont également été réalisées sur l'une des faces des éprouvettes étudiées (notées A1 et A3 dans (Lescoat, 2008 ; Haquin, 2008 ; Lebon, 2012)). A partir de l'analyse EBSD, les trois angles d'Euler du grain d'intérêt sont déduits. Les facteurs de Schmid des différents systèmes de glissement sont ensuite calculés grâce à un programme Matlab spécialement développé (Figure 18(a)). Par ailleurs la projection stéréographique du grain est tracée grâce au logiciel CaRine Crystallography. Des figures de pôles inverses donnant la direction de traction et la direction normale à l'éprouvette dans le repère du cristal pour chacune des éprouvettes étudiées sont finalement tracées (Figure 18(b)).



Sur ces deux éprouvettes, des micro-grilles d'or ont été déposées. Quatre gros plots d'or ont été également déposés aux extrémités de la longueur utile.

Comme décrit précédemment, l'acquisition des images MEB de la surface des éprouvettes, même à faible grandissement, nécessite d'enregistrer plusieurs images pour couvrir l'ensemble de la longueur utile. De plus, compte tenu de la durée d'acquisition des images, ce dispositif implique d'interrompre l'essai pour observer l'éprouvette à différents stades de la déformation (au début, au milieu et à la fin, pour l'éprouvette A1, et seulement au début et à la fin pour l'éprouvette A3). A partir de ces différentes images numériques de la longueur utile de l'éprouvette à différents stades de la déformation, il est possible d'en déduire le champ de déplacements en utilisant le logiciel de corrélation d'images CorrelManuV, développé au LMS/Ecole Polytechnique (Gélébart, 2004 ; Bornert, 2009). A partir de ce champ de déplacements, les champs de déformation plastique dans le plan de l'éprouvette (ϵ_{11}^{exp} , ϵ_{12}^{exp} et ϵ_{22}^{exp}) sont déduits. Grâce à une procédure spécifique réalisée grâce au logiciel MatLab, les champs de déformation plastique de l'ensemble de l'éprouvette sont reconstitués. Le champ de déformation plastique axial (ϵ_{22}^{exp}) obtenu pour l'éprouvette A1 est

présenté sur la Figure 19. Une hétérogénéité de déformation significative peut être constatée sur cette cartographie.

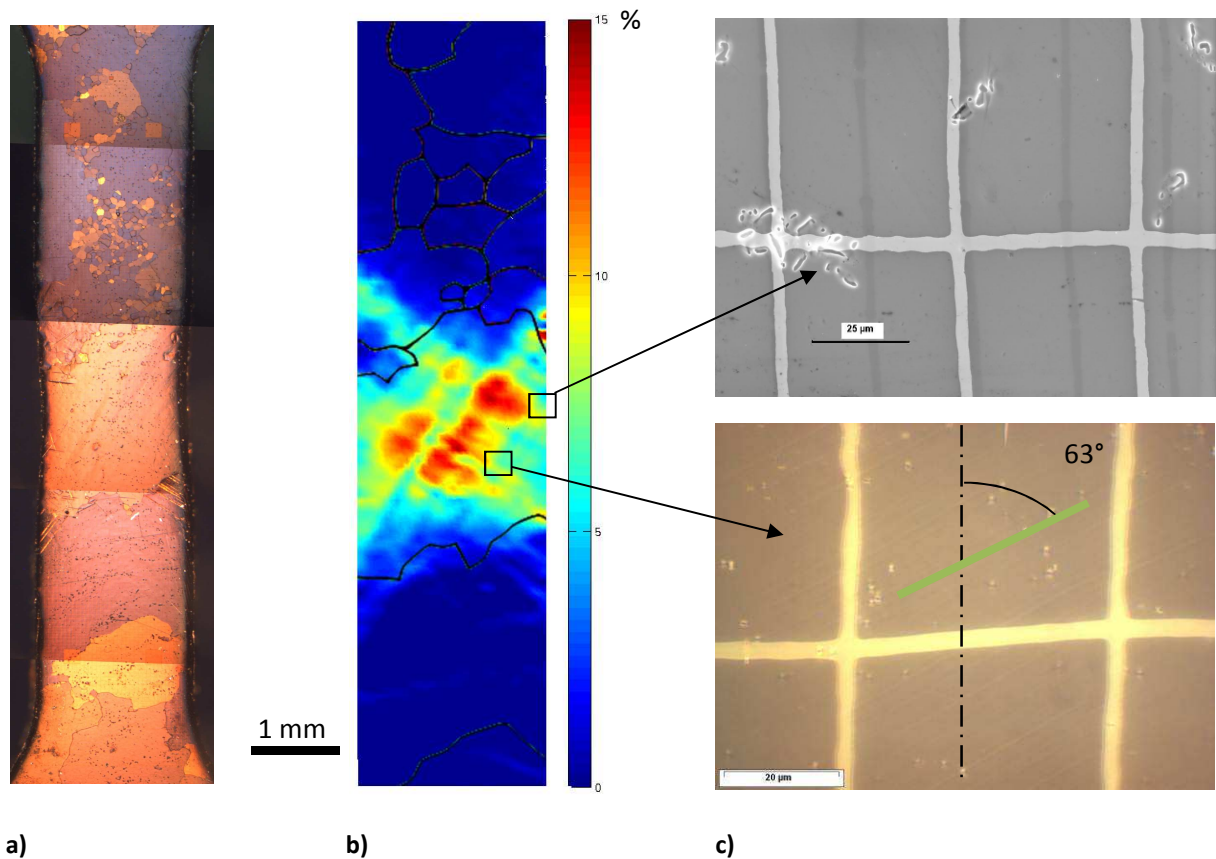


Figure 19 : a) Observation par microscopie optique de l'éprouvette après déformation. b) Cartographie de ϵ_{22}^p de l'éprouvette. c) Activation des systèmes de glissement du grain d'intérêt.

La déformation plastique moyenne sur l'ensemble de la longueur utile, selon chacune des composantes, peut être évaluée à partir de ces cartographies. De plus, grâce aux plots d'or déposés aux extrémités de la longueur utile, la déformation globale des éprouvettes a pu être mesurée par MEB. En utilisant cette mesure, il a été possible de réaliser une « calibration » reliant la déformation plastique mesurée grâce au déplacement de la traverse et la déformation plastique effective de l'éprouvette (mesurée par corrélation d'images), permettant ainsi de reconstruire la courbe contrainte-déformation de la longueur utile de l'éprouvette (Figure 20). Mieux, en calculant la valeur moyenne de la déformation plastique du seul grain d'intérêt, grâce à un code MatLab spécialement développé pour traiter les cartographies de déformation, la courbe contrainte-déformation du grain est déduite. Le rattrapage d'un jeu initial ainsi que la raideur de la machine sont également corrigés sur cette courbe.

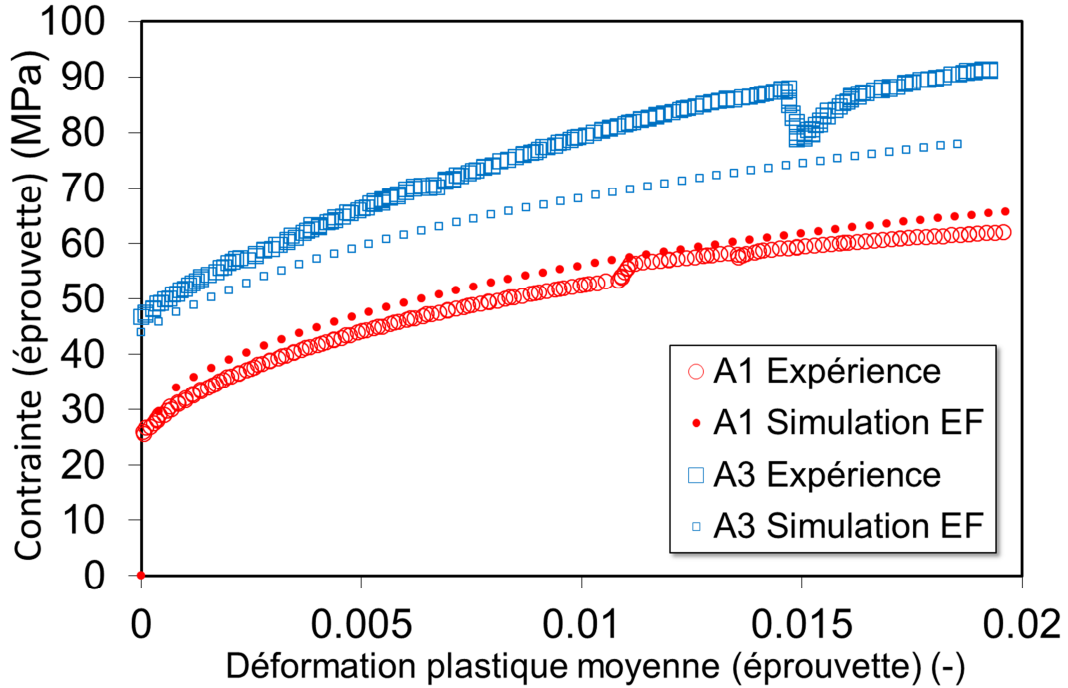


Figure 20 - Courbe contrainte-déformation plastique de l'éprouvette A1 et de l'éprouvette A3. Comparaison avec les simulations par éléments finis.

A l'issue des essais, la surface du grain d'intérêt est analysée par microscopie optique et par MEB. Des traces de glissement en surface sont observées sur les grains d'intérêt des deux éprouvettes. L'orientation de ces traces sur la surface du grain est ensuite analysée grâce à la projection stéréographique préalablement tracée. Pour les deux grains étudiés, les traces observées correspondent à des plans prismatiques. Ce résultat est confirmé par la caractérisation des traces de glissement des cinq autres grands grains présents dans les autres éprouvettes caractérisées lors de cette étude. Dans plusieurs cas, l'activation de deux systèmes prismatiques est notée. Les systèmes activés correspondent systématiquement à ceux dont les facteurs de Schmid sont maximum. L'activation d'autres systèmes de glissement n'a pas été observée. Du maclage a néanmoins été constaté dans des grains mal orientés pour le glissement prismatique.

Dans un second temps, il a été possible grâce à la connaissance des systèmes de glissement effectivement activés dans les grains d'intérêt, d'exploiter de façon plus approfondie les champs de déformation mesurés par corrélation d'images. En effet, expérimentalement trois composantes du tenseur de déformation dans le plan de l'éprouvette (ϵ_{11}^{exp} , ϵ_{12}^{exp} , ϵ_{22}^{exp}) sont déterminés. La composante diagonale hors plan ϵ_{33}^{exp} est déduite de l'équation (2.1) dite de conservation du volume pour la déformation plastique.

$$\epsilon_{33}^{exp} = -(\epsilon_{11}^{exp} + \epsilon_{22}^{exp}) \quad (2.1)$$

La forme du tenseur des déformations plastiques expérimentales est donnée par l'équation 2.2.

$$\underline{\underline{\epsilon}}^{\text{exp}} = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^{\text{exp}} & \epsilon_{12}^{\text{exp}} & ? \\ \epsilon_{12}^{\text{exp}} & \epsilon_{22}^{\text{exp}} & ? \\ ? & ? & \epsilon_{33}^{\text{exp}} \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

Ce tenseur des déformations plastiques est le résultat de la combinaison des cisaillements suivant les différents systèmes de glissement activés. Il devrait être donc possible, en principe, de déduire de ce tenseur de déformation les cisaillements plastiques de chacun des systèmes activés. Puisque quatre composantes du tenseur sont accessibles expérimentalement (en introduisant la relation de conservation du volume) seules quatre équations sont disponibles et donc seules quatre valeurs de cisaillements peuvent être déterminées par résolution du système linéaire. Conformément aux observations des traces de glissement, il est considéré que seuls les deux systèmes prismatiques principaux contribuent à la déformation. Il y a donc deux inconnues pour quatre équations. Le système linéaire est alors résolu par une méthode des moindres carrés (algorithme implémenté dans Matlab).

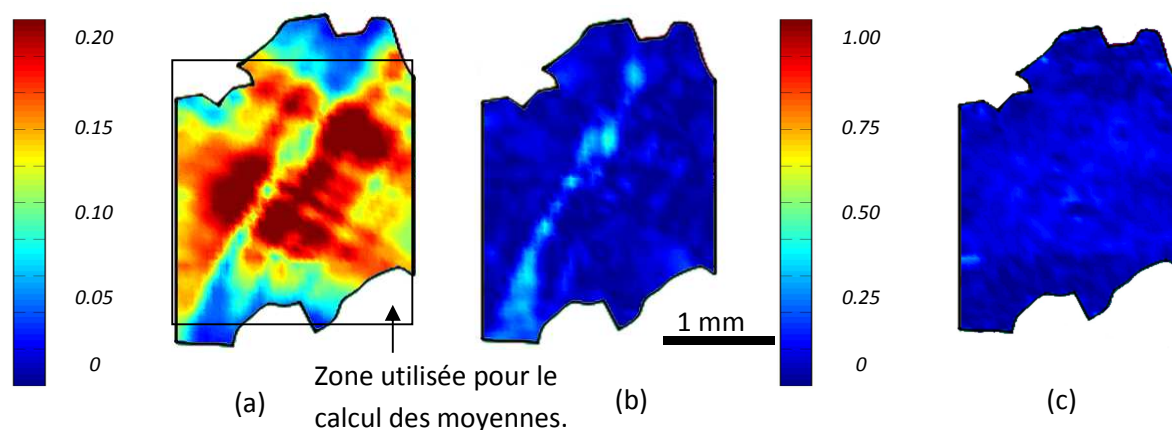
$$\underline{\underline{\epsilon}}^{\text{exp}} = \gamma_1 \cdot \underline{\underline{\mu}}_1 + \gamma_2 \cdot \underline{\underline{\mu}}_2 \quad \text{avec } \underline{\underline{\mu}} = \underline{\underline{n}} \otimes \underline{\underline{m}} \quad (2.3)$$

où γ_1 et γ_2 caractérisent le cisaillement selon les deux systèmes de glissement (inconnues à déterminer), $\underline{\underline{\mu}}_1$ et $\underline{\underline{\mu}}_2$ sont les tenseurs d'orientation des deux systèmes et $\underline{\underline{\epsilon}}^{\text{exp}}$ est le tenseur des déformations expérimentales (équation 2.2) dont les quatre composantes $\epsilon_{11}^{\text{exp}}$, $\epsilon_{12}^{\text{exp}}$, $\epsilon_{22}^{\text{exp}}$ et $\epsilon_{33}^{\text{exp}}$ sont connues.

A l'issue de la résolution, la valeur $\underline{\underline{\epsilon}}^{\text{calc}}$ est recalculée ($\underline{\underline{\epsilon}}^{\text{calc}} = \gamma_1 \cdot \underline{\underline{\mu}}_1 + \gamma_2 \cdot \underline{\underline{\mu}}_2$ avec les cisaillements γ_1 et γ_2 déterminés par moindres carrés). Il est ainsi possible de calculer une erreur, E_r , pour chaque point de la cartographie (équation (2.4)).

$$E_r = \frac{\sqrt{(\epsilon_{11}^{\text{calc}} - \epsilon_{11}^{\text{exp}})^2 + (\epsilon_{22}^{\text{calc}} - \epsilon_{22}^{\text{exp}})^2 + (\epsilon_{12}^{\text{calc}} - \epsilon_{12}^{\text{exp}})^2}}{\sqrt{\epsilon_{11}^{\text{exp}2} + \epsilon_{22}^{\text{exp}2} + \epsilon_{12}^{\text{exp}2}}} \quad (2.4)$$

La cartographie d'erreur obtenue pour l'éprouvette A1 est donnée sur la Figure 21(c). La méthode est d'une grande fiabilité, l'erreur étant toujours inférieure à 10% dans le grain d'intérêt. Grâce à cette méthode, il est donc possible de quantifier l'activation des différents systèmes de glissement lors des essais de traction.



a)

Figure 21 : a) Taux de cisaillement du système principal et b) du système secondaire du grain d'intérêt. c) Erreur sur l'analyse du cisaillement du grain d'intérêt.

De ce point de vue, l'éprouvette A1 apparaît particulièrement intéressante. En effet, seul un grain se déforme, le comportement mécanique de cette éprouvette peut donc en principe être assimilé à celui d'un monocristal de zirconium. De plus, le grain de l'éprouvette A1 se déforme essentiellement en glissement simple. Ainsi, connaissant l'orientation du grain, il est possible de déduire le facteur de Schmid du système activé et donc de tracer l'évolution de la cission résolue sur ce système en fonction du cisaillement déterminé à partir des champs de déformation. La courbe de comportement monocristalline est alors reconstruite (Figure 22) et comparée à une courbe donnée par Akhtar et Tegtsounian (1971). Un excellent accord est obtenu entre la courbe monocristalline déduite et celle disponible dans la littérature. La valeur de la cission critique, calculée ici de 14 MPa, est proche de celles trouvées dans la littérature de 15 MPa par Akhtar et Tegtsounian (1971) et de 25 MPa par (Soo et Higgins, 1968). Sur la Figure 22 a également été représentée la courbe de comportement monocristalline de l'éprouvette A3 déduite par la même méthode. Un accord satisfaisant entre ces deux courbes monocristallines est obtenu.

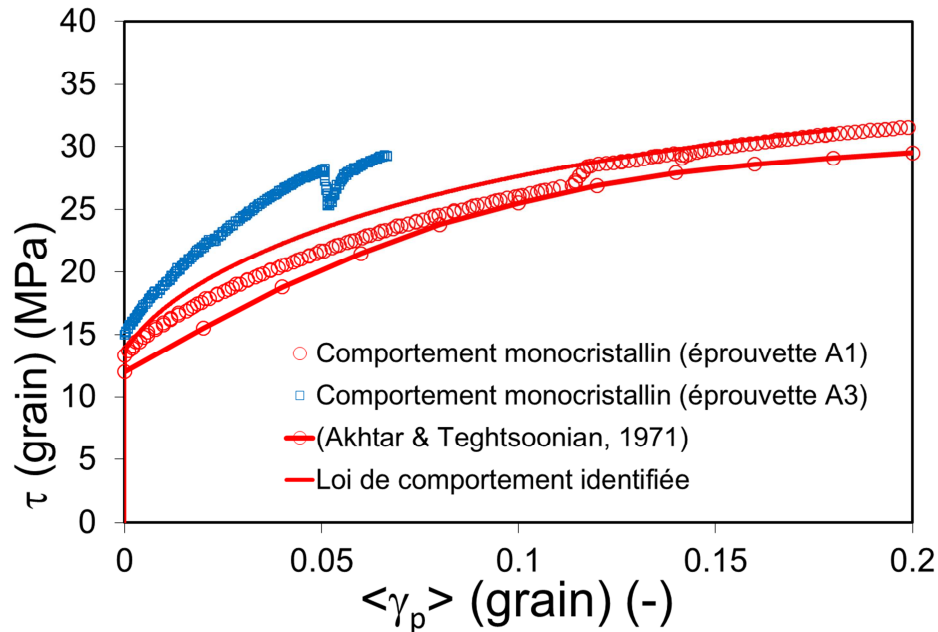


Figure 22 - Courbe cission/cisaillement plastique des grands grains des éprouvettes A1 et A3 ($\dot{\gamma} = 5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$).

2.1.4 Identification d'une loi de comportement et validation par calculs éléments finis

Sur la base de cette courbe de comportement du monocristal de zirconium- α une loi de comportement monocristalline simplifiée, analogue à celles développées pour les métaux Cubiques Faces Centrées (CFC) et appliquée aux alliages de zirconium par Geyer (1999), a été identifiée. La loi d'écoulement est du type exponentiel thermiquement activée, prenant en compte un volume d'activation et une contrainte seuil qui augmente quand la densité de dislocations augmente. La loi d'évolution de la densité de dislocations prend en compte un terme de multiplication ainsi qu'un terme d'annihilation des dislocations. De plus, seul l'auto-écrouissage est pris en compte, l'écrouissage latent étant négligé dans un premier temps. Dans cette première approche, seuls les systèmes prismatiques sont laissés libres de s'activer. Un bon accord entre la simulation et l'expérience est obtenu à l'issue de l'identification (Figure 22). Les équations de la loi de comportement monocristalline ainsi que les paramètres identifiés sont détaillées dans l'Annexe 1.

Afin de valider cette loi de comportement monocristalline, les essais de traction sur les éprouvettes multi-cristallines complètes ont été simulés par la méthode des éléments finis. La loi cristalline identifiée a été implémentée dans le code éléments finis en modifiant une loi initialement introduite par L. Vincent (2011). Celle-ci reste valable pour des grands niveaux de déformation.

La géométrie des grains a ensuite été introduite, initialement avec l'aide de L. Gélébart (2004). En se basant sur les observations en microscopie optique en lumière polarisée, les contours des grains sont

échantillonnés par segments permettant ainsi de définir la structure de l'éprouvette en 2D. Les surfaces des grains sont ensuite extrudées selon l'épaisseur (z) d'une quantité correspondant à l'épaisseur de l'éprouvette (Figure 23).

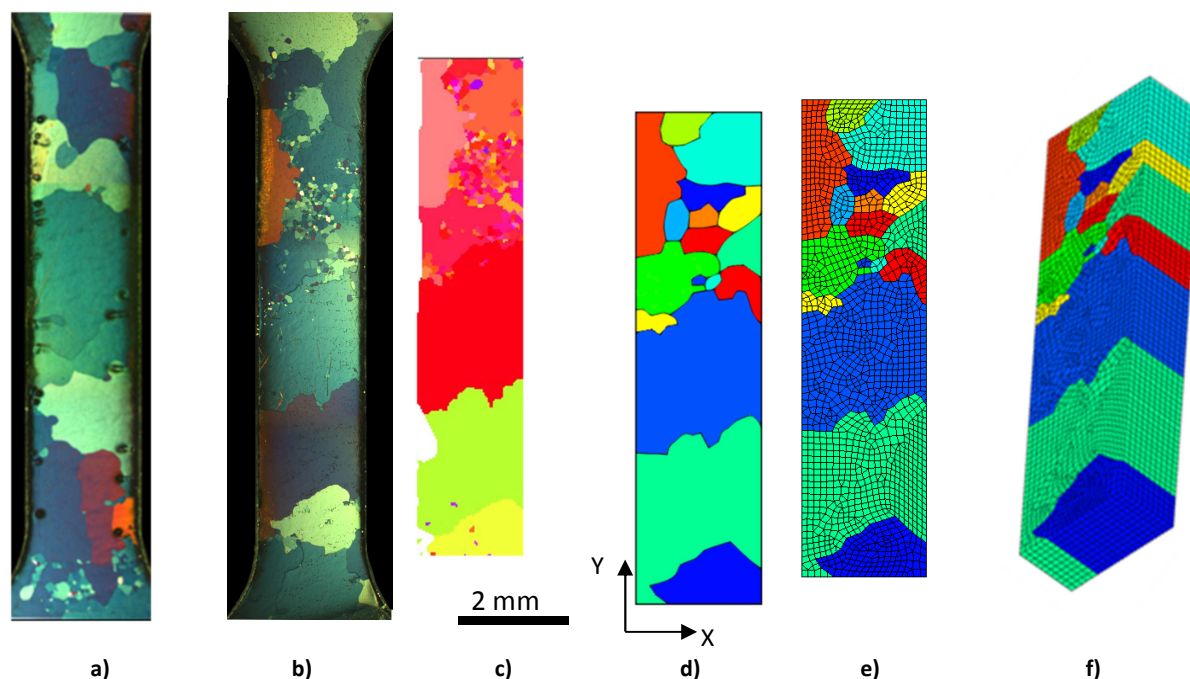


Figure 23 – De la microscopie optique au maillage 3D (éprouvette A1). A) Face arrière, b) face avant d'intérêt, c) analyse EBSD, d) définition des grains, e) maillage 2D des grains, f) extrusion pour la structure 3D.

Les conditions aux limites choisies sont particulières car elles cherchent à reproduire au mieux l'essai de traction uniaxiale. Lors de l'essai, l'éprouvette est contrainte à s'allonger selon l'axe de traction, aucune rotation ou décalage de l'éprouvette n'est autorisé. Par ailleurs, les grains se déformant de façon anisotrope par cisaillement suivant différents plans, les déplacements dans les directions transverses à la direction de traction ne doivent pas être contraints. Sur la Figure 24, les conditions limites suivant l'axe de traction (y) sont présentées. Sur la surface gauche, les déplacements suivant y sont bloqués alors que sur la surface droite, un déplacement est appliqué de manière à obtenir 2% de déformation macroscopique avec une vitesse de déformation de $10^{-4} s^{-1}$.

Les déplacements transverses (suivant x) sont bloqués sur les segments en pointillés tandis que les déplacements suivant z sont bloqués sur les segments en gras (Figure 24). Tous les autres bords sont libres.

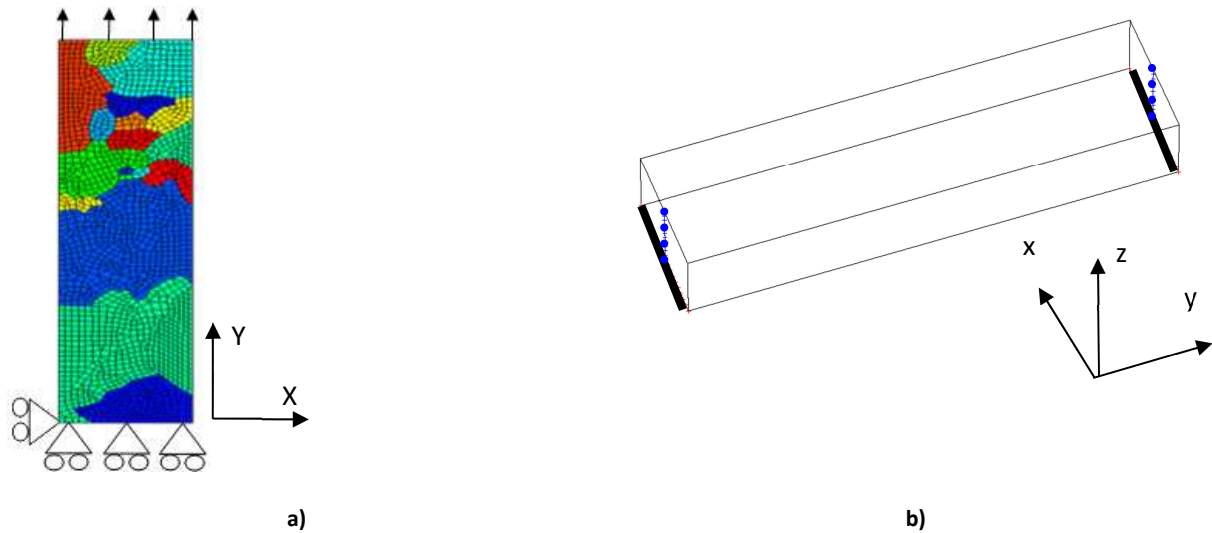


Figure 24 : a) Schéma 2D des conditions limites. b) Schéma 3D des conditions limites.

Les courbes contraintes-déformation simulées par le calcul éléments finis sont présentées sur la Figure 19 et comparées aux résultats expérimentaux pour les deux éprouvettes A1 et A3. Un très bon accord peut être constaté, en particulier pour l'éprouvette A1. De façon remarquable, un bon accord est également constaté pour l'éprouvette A3, ce qui valide ainsi la loi de comportement développée. Le champ de déformation simulé par le calcul éléments finis pour l'éprouvette A1 est également présenté sur la Figure 25 et comparé au champ de déformation plastique expérimental. Un bon accord qualitatif entre le champ de déformation simulé et le champ de déformation expérimental peut être noté. Néanmoins, il est intéressant de constater que le champ simulé est plus homogène que le champ de déformation expérimental. L'hétérogénéité de la déformation est en effet difficilement reproductible par calculs éléments finis (conventionnels) à cette échelle, la plasticité étant un phénomène très local associé au glissement des dislocations.

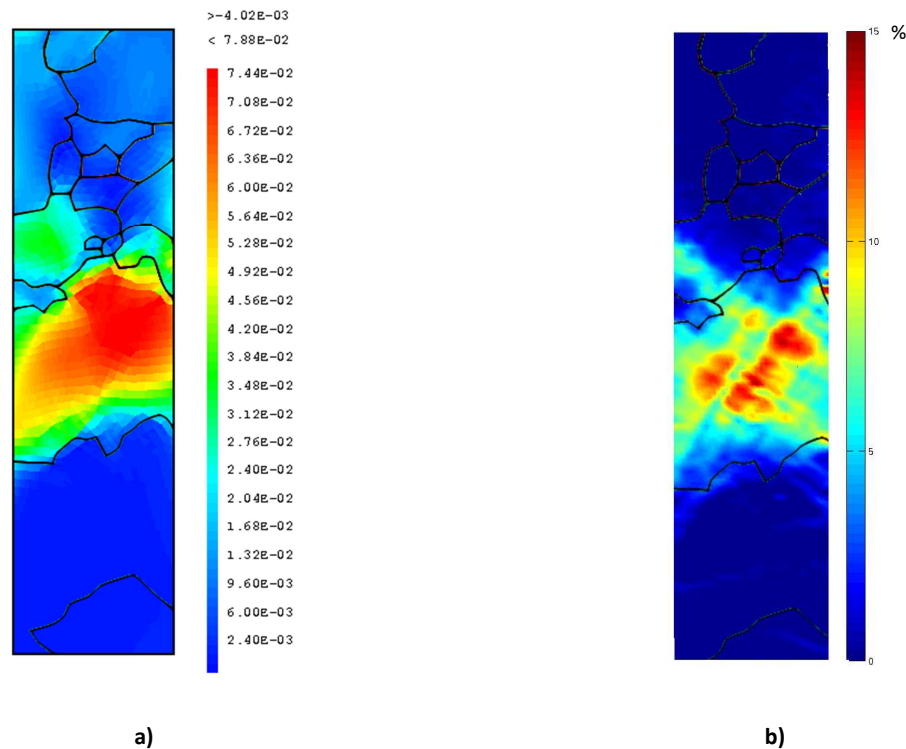


Figure 25 : a) Déformation totale suivant l'axe de traction de l'éprouvette A1 obtenue par le calcul aux éléments finis. B) Déformation plastique suivant l'axe de traction de l'éprouvette A1 déterminée par corrélation d'image.

2.1.5 Conclusions et perspectives

Cette étude a ainsi permis de caractériser le comportement monocristallin du zirconium- α et de proposer une loi de comportement cristalline qui a pu être validée par des calculs éléments finis sur des éprouvettes multi-cristallines complètes.

Plusieurs perspectives se dégagent de ce travail, la principale étant de disposer d'autres éprouvettes contenant un grain qui traverse effectivement toute la section. Ceci pourrait être obtenu en réussissant à élaborer des échantillons contenant des grains de plus grande dimension, de l'ordre de 5 mm. Ou bien, des éprouvettes plus fines pourraient être usinées, mais dans ce cas une machine d'essais adaptée est nécessaire. Une caractérisation plus approfondie de l'érouissage et de la sensibilité à la vitesse pourrait alors être réalisée. D'autre part, il serait particulièrement intéressant d'étudier l'influence de la température et de la teneur en oxygène sur le glissement prismatique. Une caractérisation des autres systèmes de glissement devrait également être conduite.

Par ailleurs, il serait très intéressant de mener une étude approfondie par traction in situ en MET des processus de glissement des dislocations dans ce zirconium pur. Cette étude expérimentale pourrait être comparée à de récentes simulations ab initio (Clouet, 2012; Chaari, 2014) des structures de cœur des dislocations vis dans le zirconium.

2.2 Contribution à la modélisation du comportement des alliages de zirconium non irradiés

A l'échelle macroscopique le comportement mécanique des alliages de zirconium non irradiés a été étudié de façon extensive de 20°C à 400°C en traction, en fluage et en relaxation par de nombreux auteurs, notamment en France dans le cadre de nombreuses thèses de doctorat. Citons là encore les excellents travaux de Robinet (1995), Pujol (1994), Crépin (1995), Ferrer (2000), Geyer (1999), Rupa (2000), Brenner (2001), Dexet (2006), Graff (2006), Grosjean (2009) et Rautenberg (2012a, 2012b). De plus, de nombreuses données non publiées existent bien sûr aussi au CEA comme à EDF et AREVA.

Notre étude concernant le comportement macroscopique des alliages de zirconium non irradiés avait principalement pour but d'établir un point de comparaison avec le comportement des matériaux une fois irradiés. C'est donc avec cet objectif principal que nous avons caractérisé et modélisé le comportement des alliages de zirconium recristallisés non irradiés (Onimus et al., 2006 ; Onimus & Béchade, 2009).

2.2.1 Analyse du comportement mécanique macroscopique

La caractérisation du comportement mécanique des alliages de zirconium est souvent réalisée sur des tubes sollicités en pression interne. En effet cette sollicitation se rapproche des sollicitations rencontrées par la gaine en réacteur. La température d'essai de 350°C est également souvent privilégiée car cette température correspond à la température moyenne de la gaine (un peu plus chaud en haut du crayon et un peu plus froid en bas). C'est donc sur ces conditions de sollicitation que nous nous sommes concentrés dans cette étude du matériau non irradié.

Le taux d'érouissage et la sensibilité à la vitesse ont dans un premier temps été caractérisés lors d'essais réalisés à différentes vitesses de déformation. L'analyse de la sensibilité à la vitesse, via le calcul du coefficient de Norton, a permis de confirmer qu'à 350°C la sensibilité à la vitesse est très faible pour ce matériau, en accord avec les anciens travaux de Derep (1980).

De plus, lors de ces essais, les étapes de décharge ont été également enregistrées et analysées. En poursuivant une méthode proposée par plusieurs auteurs (Dickson et al., 1984 ; Feugas, 2003), nous avons pu décomposer la contrainte d'écoulement en différentes composantes : la contrainte isotrope visqueuse, la contrainte isotrope athermique et enfin la contrainte cinématique ou interne (X). Pour une meilleure précision sur les mesures des différentes composantes de la contrainte d'écoulement il est préférable de réaliser des essais de traction-compression mais, il est possible, dans une certaine mesure, d'exploiter les essais de charge-décharge afin d'en déduire les contraintes cinématique et isotrope. Cette analyse a permis de confirmer, comme cela avait déjà été constaté

par Geyer (1999), que la contrainte isotrope restait relativement faible dans les alliages de zirconium recristallisés à 350°C et celle-ci évolue peu. En revanche, nous avons confirmé que la contrainte cinématique était comparativement élevée et augmente significativement lors de l'écoulement (Onimus et al., 2006). Ainsi l'écoulement macroscopique est essentiellement porté par l'écoulement cinématique.

Ensuite, le comportement en relaxation a été étudié. Lors de ces essais une sollicitation d'écoulement en pression interne est conduite jusqu'à une déformation donnée puis la déformation est maintenue constante et l'évolution de la contrainte en fonction du temps est enregistrée. Grâce à ces essais, nous avons confirmé que lors de la relaxation, la viscosité apparente était beaucoup plus élevée que lors des phases d'écoulement. Ce phénomène a été attribué à la restauration statique de la contrainte interne lors de la phase de relaxation.

2.2.2 Interprétation du comportement en termes de mécanismes microscopiques

L'analyse en termes de coefficient de Norton d'essais réalisés à différentes vitesses a mis en évidence une très faible sensibilité à la vitesse à 350°C. Ce creux de sensibilité à la vitesse souvent constaté dans la littérature (Derep, 1980 ; Prioul, 1995) est attribué au phénomène de vieillissement dynamique. Ce phénomène serait lui-même le résultat de l'interaction entre dislocations et atomes d'oxygène en solution solide dans l'alliage de zirconium.

L'analyse en termes de contrainte isotrope et cinématique est, de manière générale, très riche car elle permet d'interroger les mécanismes sous-jacents à l'œuvre lors de la déformation plastique du matériau (Feaugas, 2003). En effet, la composante isotrope de la contrainte d'écoulement est attribuée à la résistance due aux obstacles qui génèrent des champs de contrainte à courte distance qui s'opposent au glissement des dislocations. Le champ de contrainte s'exerçant à courte distance, le mouvement des dislocations est affecté de la même façon dans une direction de glissement ou bien dans la direction opposée. Ces obstacles à courte distance sont, dans le cas des alliages de zirconium recristallisés, les vallées de Peierls que les dislocations vis doivent franchir ou bien les dislocations de la forêt. Le franchissement des vallées de Peierls est thermiquement activé alors que le franchissement des dislocations de la forêt est athermique.

La composante cinématique est, quant à elle, attribuée aux obstacles générant un champ de contrainte à longue distance. Ce champ de contrainte à longue distance conduit à une dissymétrie dans le glissement de la dislocation, le rendant facile dans un sens et difficile dans le sens opposé. Dans le cas des alliages de zirconium recristallisés déformés jusqu'à des niveaux inférieurs à 10%, les obstacles à longue distance sont les joints de grains. En effet, ceux-ci sont à l'interface entre deux grains d'orientations différentes. Si les deux grains se déforment différemment, des incompatibilités

de déformation apparaissent qui se traduisent par des champs de déformation élastique et donc des champs de contrainte de part et d'autre du joint de grain. En particulier, dans les alliages de zirconium, du fait de la forte anisotropie plastique de la structure hexagonale compacte, certains grains mal orientés pour le glissement prismatique ne peuvent se déformer plastiquement et restent élastiques alors que d'autres, au contraire bien orientés, se déforment facilement. Ceci induit de fortes incompatibilités de déformation (Tenckhoff, 1988) qui se traduisent par de fortes contraintes internes inter-granulaires (Figure 26).

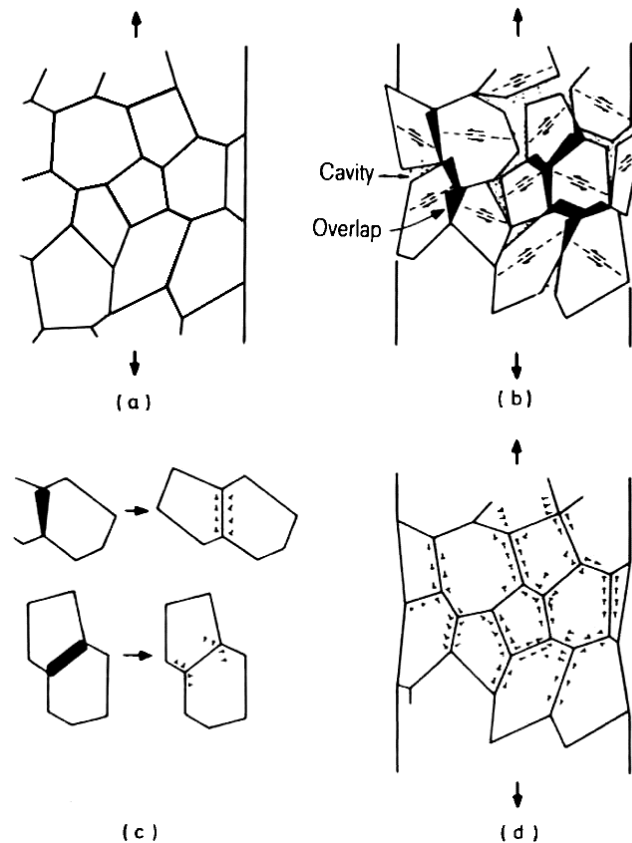


Figure 26 : Modèle de déformation d'un matériau polycristallin. Si chaque grain se déforme de façon identique, des recouvrements et des cavités devraient se développer (b). Ceux-ci peuvent néanmoins être accommodés par l'introduction de dislocations (Tenckhoff, 1988).

Un effet composite entre les grains bien orientés pour le glissement prismatique (grains mous) et les grains mal orientés pour le glissement prismatique (grains durs) apparaît alors qui se traduit par un effet Bauschinger lorsque le matériau est sollicité en traction-compression. De façon plus générale cet effet composite se traduit à l'échelle macroscopique par un écrouissage cinématique élevé.

La forte viscosité apparente mesurée lors des phases de relaxation a été clairement attribuée à la restauration statique de la contrainte cinématique. Ce phénomène, pour l'heure mal compris, trouve sans doute son origine à l'échelle microscopique dans un lent réarrangement des dislocations à

courte distance. La cinétique de ce phénomène serait alors différente de celle constatée lors des essais de tractions plus rapides.

Cette étude du comportement des alliages de zirconium non irradiés confirme l'importance de l'écroissage cinématique associé aux interactions entre les grains. Pour ces matériaux, il n'est donc pas possible d'oublier cette échelle intermédiaire et expliquer le comportement macroscopique uniquement en termes de mouvement et d'interactions entre dislocations. Il est impératif d'intégrer l'échelle polycristalline dans l'analyse du comportement mécanique.

2.2.3 Proposition d'un modèle macroscopique empirique

Afin de disposer d'une description cohérente de tous ces phénomènes macroscopiques, sans pour autant aller, dans un premier temps, jusqu'à la prise en compte des phénomènes à l'échelle microscopique, nous avons proposé un modèle de comportement à variables internes du type de ceux développés par Chaboche (2008) et décrits dans l'ouvrage de référence de Lemaitre et Chaboche (1990). C'est ce type de modèle que nous avons adapté aux alliages de zirconium recristallisés. Ces modèles prennent en compte à la fois l'écroissage cinématique ainsi que l'écroissage isotrope grâce à des variables internes qui évoluent lors de la simulation de l'essai mécanique.

Un comportement isotrope avec une loi d'écoulement de type Norton a été choisi. Celle-ci prend en compte l'écroissage cinématique dont l'évolution suit une loi classique de type Armstrong-Frederick. Un terme de restauration statique de l'écroissage cinématique a aussi été introduit dans le modèle. Celui-ci permet de reproduire la restauration de la contrainte interne lors des phases de relaxation. De façon cohérente avec l'analyse du comportement macroscopique, la contrainte isotrope a été choisie constante (absence d'écroissage isotrope). Tout l'écroissage macroscopique est donc porté par l'écroissage cinématique, dans cette première approche simple. Les détails du modèle proposé sont donnés dans l'Annexe 2. L'intégration numérique et l'identification de ce modèle sont réalisées grâce au logiciel SiDolo développé par P. Pilvin (2003) et décrit par Andrade-Campos et al. (2007). Les résultats des simulations sont comparés aux essais expérimentaux obtenus sur matériau non irradié sur la Figure 27.

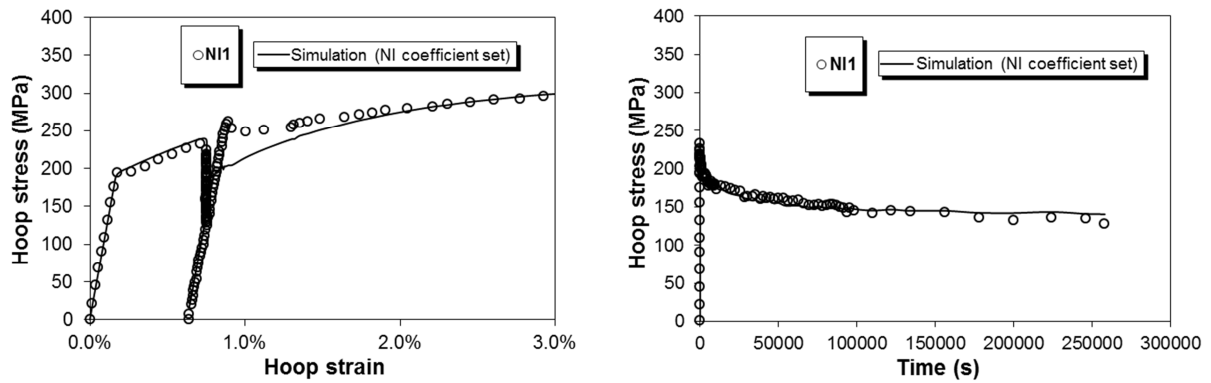


Figure 27 : a) Simulation d’essais en pression interne d’érouissage relaxation suivi d’un essai d’érouissage et comparaison avec les données expérimentales. b) Simulation de la relaxation et comparaison avec les données expérimentales.

Le comportement élasto-visco-plastique du matériau est très bien reproduit par ce modèle. En particulier, la faible sensibilité à la vitesse en érouissage ainsi que la relaxation significative de la contrainte lors des phases de relaxation sont bien décrits. Grâce à ce modèle il est également possible de tracer l’évolution des différentes composantes de la contrainte d’écoulement lors de l’essai (Figure 28). Ceci permet de vérifier, grâce à cette formulation cohérente du comportement du matériau, que lors de la relaxation la contrainte interne cinématique qui se relaxe progressivement, la contrainte isotrope visqueuse, quant à elle, se relaxant très rapidement dès le début de la relaxation.

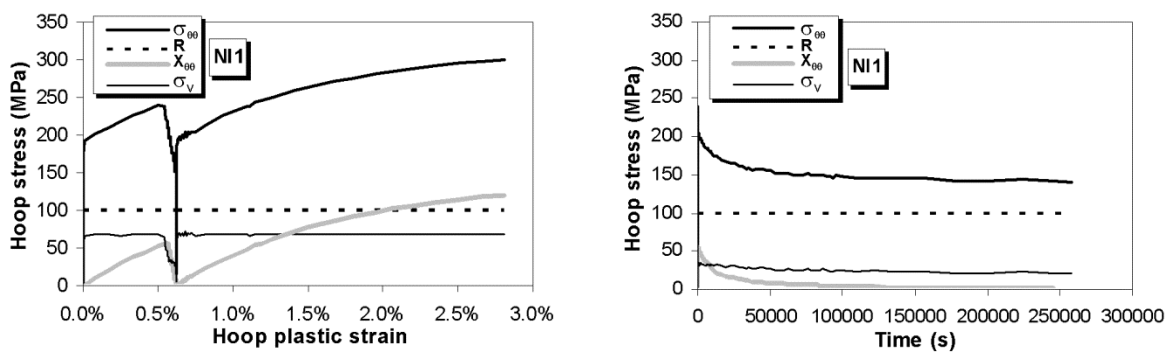


Figure 28 : Simulations des différentes composantes de la contrainte d’écoulement lors des essais d’érouissage-relaxation.

Ce modèle a l’avantage d’être particulièrement simple et de se baser sur relativement peu de paramètres ajustables. En revanche, son caractère purement empirique le limite à son domaine d’identification.

2.2.4 Proposition d'un modèle polycristallin

Afin d'avoir une démarche plus prédictive intégrant le maximum d'informations sur la microstructure et les mécanismes de déformation, des modèles polycristallins en champ moyen peuvent être utilisés. Ces modèles s'appuient sur la théorie de l'homogénéisation des matériaux hétérogènes. Dans le cas des polycristaux les modèles adaptés sont les modèles dits auto-cohérents. Ceux-ci permettent de déduire le comportement du polycristal à partir de la connaissance du comportement des constituants élémentaires, c'est-à-dire les grains du polycristal. Selon l'approche en champ moyen, le détail de la géométrie de l'agrégat de grains n'est pas pris en compte. Tous les grains de même orientation sont considérés comme appartenant à la même phase cristalline caractérisée par ses trois angles d'Euler ainsi que sa fraction volumique. Selon cette approche en champ moyen, chaque phase cristallographique est successivement considérée comme une inclusion dans une matrice constituée de toutes les orientations cristallographiques (milieu homogène équivalent) soumise à des conditions aux limites homogènes. La vitesse de déformation du polycristal correspond à la moyenne des vitesses de déformation de toutes les phases cristallographiques du polycristal (Figure 29).

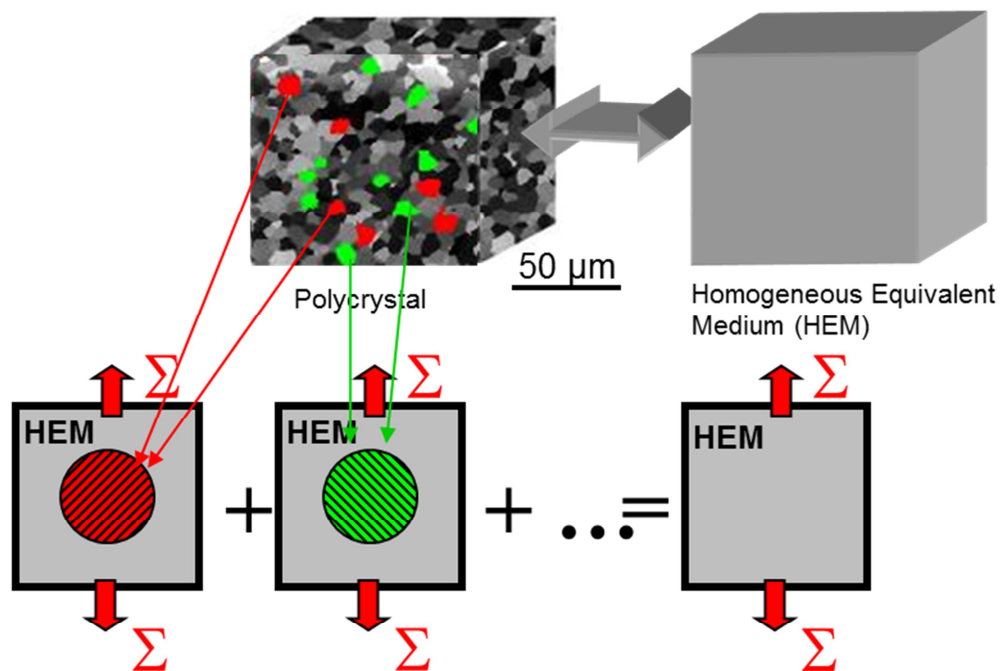


Figure 29 : Schéma décrivant le principe du modèle polycristallin auto-cohérent en champ moyen.

La vitesse de déformation de chacune des phases peut être déduite par la connaissance de la loi de comportement intra-granulaire et de la connaissance de la contrainte locale qui s'applique à chaque phase cristallographique. Dans le cas d'un comportement linéaire, la contrainte locale peut être déduite en résolvant le problème de l'inclusion d'Eshelby (relation de localisation entre la contrainte

macroscopique et la contrainte locale) si le comportement de la matrice environnante est connu. Or c'est ce comportement qui constitue justement l'inconnue du problème. Il est donc en principe nécessaire de procéder de façon itérative pour déduire, après convergence, le comportement du milieu homogène équivalent (approche auto-cohérente). Lorsque le comportement n'est pas linéaire, de nombreuses approches différentes ont été proposées afin de linéariser le comportement du matériau et ainsi se ramener au problème connu d'Eshelby (Bornert et al, 2000 ; Brenner et al., 2002b).

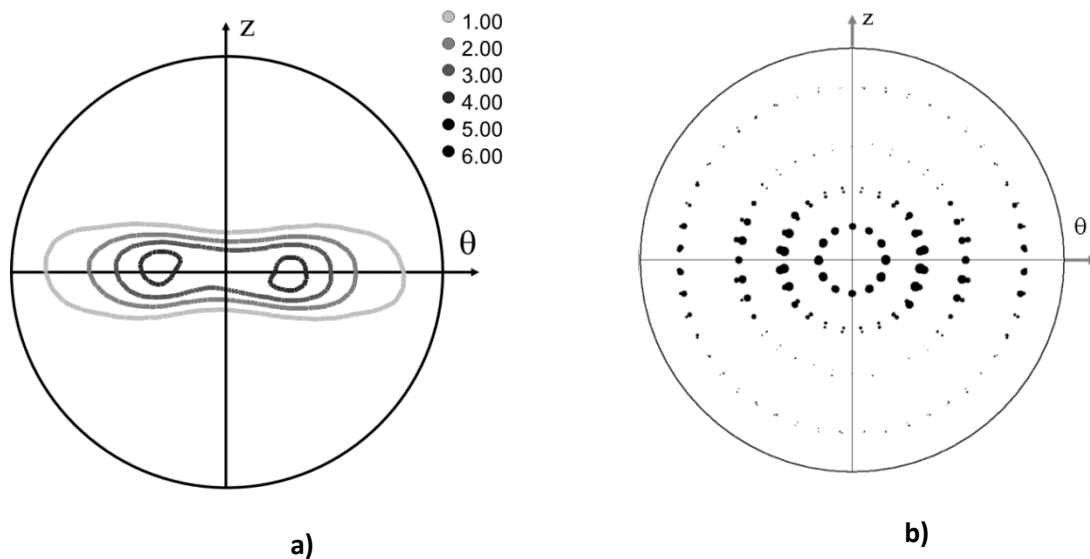


Figure 30 : a) Figure de pôles {0002} expérimentale, b) figure de pôle discrétisée utilisée pour la simulation numérique.

Dans le cas simple d'un comportement élasto-plastique, pour un comportement intragranulaire élastique isotrope (donc homogène) et pour une texture isotrope, Berveiller et Zaoui (1979) ont déduit à partir de cette formulation complexe, un modèle rigoureux et simple, basé sur une linéarisation sécante du comportement du matériau. Pour une sollicitation radiale monotone, les auteurs ont montré qu'il existait une relation explicite entre la contrainte locale dans la phase cristallographique considérée et la contrainte macroscopique. Afin de pouvoir utiliser ce type de modèle pour des sollicitations cycliques, tout en conservant l'avantage d'une relation de localisation explicite, Cailletaud (1992) et Pilvin (1994) ont postulé une relation de localisation explicite de nature heuristique (c'est-à-dire adoptée provisoirement, comme guide, sans prétendre à sa vérité absolue) en introduisant une nouvelle variable interne tensorielle, dite variable « en bêta », qui évolue de façon non linéaire avec la déformation locale de la phase cristalline. L'évolution de cette variable interne n'est pas connue a priori, les coefficients caractéristiques de son évolution doivent être identifiés par ailleurs. Le détail des équations du modèle est présenté dans l'Annexe 3.

Ce modèle polycristallin « semi-empirique » n'a pas de justification du point de vue de la théorie de l'homogénéisation, et ne présente pas en tant que tel un caractère auto-cohérent. Néanmoins, les

auteurs ont proposé d'ajuster l'évolution de la variable « en bêta » sur la réponse mécanique locale du modèle de Berveiller et Zaoui qui est lui auto-cohérent. Les auteurs ont également proposé une extrapolation pragmatique du modèle aux matériaux de texture anisotrope, ce qui est le cas des alliages de zirconium. Le modèle de Berveiller et Zaoui étant limité aux comportements élasto-plastiques, nous nous sommes également limités à ce type de comportement pour le modèle de Cailletaud et Pilvin en adoptant une loi d'écoulement quasi-élastoplastique (c'est-à-dire élasto-visco-plastique mais avec une très faible sensibilité à la vitesse).

Poursuivant la démarche initiée par Geyer et Pilvin (Geyer, 1999) nous avons utilisé ce modèle en simplifiant significativement l'approche afin de limiter le nombre de paramètres ajustables, en particulier dans le cas du matériau non irradié, l'objectif étant toujours d'établir un point de référence pour prendre en compte, dans un second temps, l'influence de l'irradiation. Les lois intra-granulaires adoptées ici sont donc particulièrement simples. Il est notamment choisi, dans une première approche, de ne pas prendre en compte d'écrouissage intra-granulaire, afin de limiter le nombre de paramètres ajustables. Le comportement intra-granulaire est donc plastique parfait.

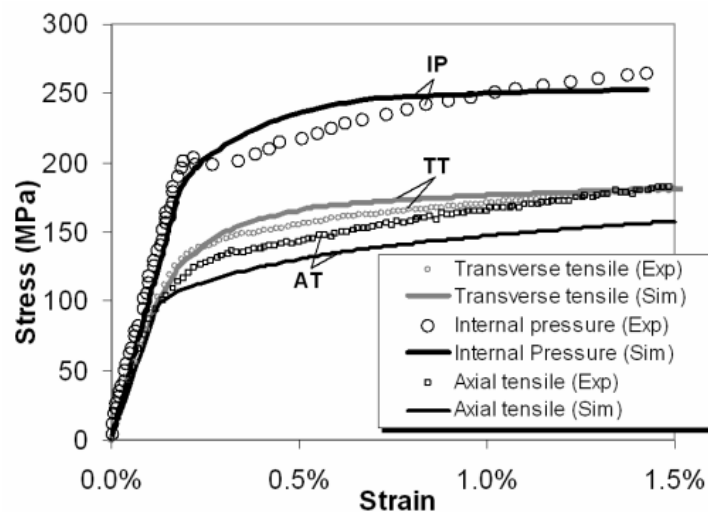


Figure 31 : Matériau non irradié. a) Simulations des essais de traction axiale (AT), pression interne (IP) et de traction sens travers (TT).

Malgré le faible nombre de paramètres ajustables, un accord satisfaisant est obtenu entre la simulation et les essais monotones, réalisés à 350°C, en traction axiale, pression interne et traction circumférentielle pure. Le modèle ainsi identifié a été utilisé pour simuler des essais de fatigue oligo-cyclique en traction-compression disponibles dans la littérature (Wisner et al., 1994). Ces essais ont été réalisés à 350°C sur des éprouvettes de Zircaloy-2 recristallisé non irradié prélevées suivant la direction transverse d'une tôle épaisse. Le modèle reproduit de façon très satisfaisante le

comportement cyclique en traction-compression. On note que la quasi-absence d'écrouissage cyclique est bien reproduite et que, d'autre part, l'effet Bauschinger est également bien reproduit pour ces essais, alors que le modèle n'avait été identifié que sur le comportement monotone du matériau. Cette comparaison valide donc le modèle à l'échelle macroscopique.

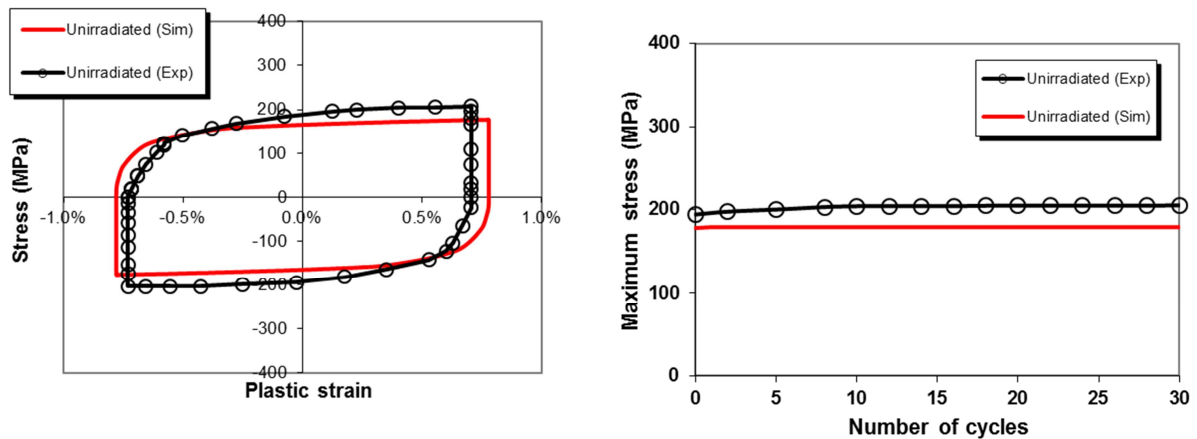


Figure 32 : Simulation d'essais de traction-compression suivant la direction transverse à 350°C et comparaison avec les résultats expérimentaux donnés dans (Wisner et al., 1994).

Puisque dans le modèle les différents systèmes de glissement et les différentes orientations cristallographiques caractéristiques de la texture sont prises en compte, il est également possible d'avoir accès à certaines données microscopiques qui peuvent être comparées aux résultats des observations MET. Ainsi, les activités des différents systèmes de glissement moyennées sur l'ensemble du polycristal ont été calculées. Alors qu'il a été établi que c'est principalement le système prismatique qui est activé lors de ce type d'essai (Geyer, 1999), le modèle prédit l'activation significative de systèmes secondaires. L'activation du système basal, en particulier, pour la sollicitation de pression interne est surestimée par le modèle. Ce constat pourrait notamment être attribué aux défauts inhérents au modèle de Berveiller-Zaoui sur lequel est ajusté le modèle de Cailletaud-Pilvin.

2.2.5 Conclusions et perspectives

Afin d'établir un point de comparaison avec le matériau irradié, une analyse du comportement mécanique a été menée. Un modèle macroscopique empirique cohérent avec cette analyse a été développé. Afin d'aller au-delà de cette approche empirique, un modèle polycristallin, basé sur les mécanismes de déformation, a été développé. Celui-ci permet de reproduire de façon très satisfaisante le comportement du matériau.

Concernant cette deuxième partie de l'étude et de la modélisation du comportement des alliages de zirconium non irradiés il est possible de dégager plusieurs perspectives.

En premier lieu, des essais de changement de trajet de chargement ont récemment été réalisés à 350°C au SRMA. Ceux-ci permettront une meilleure identification du modèle polycristallin. Un faible écrouissage isotrope intra-granulaire doit notamment être pris en compte pour améliorer le modèle. Le modèle polycristallin pourra également être utilisé en introduisant la loi de comportement monocristalline identifiée lors de l'étude du comportement monocristallin du zirconium pur.

Par ailleurs il serait pertinent d'utiliser d'autres types de modèles d'homogénéisation comme ceux de Brenner (2001, 2002a) afin de s'affranchir du caractère semi-empirique du modèle de Cailletaud-Pilvin. Des simulations utilisant des calculs en champ complet, par exemple par la méthode de la transformée de Fourier Rapide ou bien la méthode des éléments finis, pourraient également être très intéressantes.

Il faut également noter que, mise à part l'étude détaillée de Geyer (1999) et Rautenberg (2012a), il n'existe que très peu d'analyses précises de l'activation des systèmes de glissement en fonction de la sollicitation. Une étude MET quantitative approfondie après essais mécaniques en fonction de l'orientation des grains serait particulièrement intéressante à comparer aux prédictions du modèle. Des comparaisons avec d'autres techniques expérimentales, comme la diffraction des rayons X ou des neutrons (Letouzé et al., 2002; Xu et al., 2007), seraient également pertinentes.

Chapitre 3

Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr irradiés

Publications associées :

Onimus (2004), Onimus et al. (2004), Onimus et al. (2005), Onimus et al. (2006), Ribis (2008), Ribis et al. (2008), Onimus & Béchade (2009), Ribis et al. (2010), Bourdilliau et al. (2010), Onimus & Béchade (2012), Onimus et al. (2012), Onimus et al. (2013a), Drouet et al. (2013), Drouet (2014), Drouet et al. (2015)

Dans ce chapitre est décrit le cœur de ma thématique de recherche qui concerne l'étude et la modélisation du comportement mécanique et des mécanismes de déformation des alliages de zirconium irradiés. Dans une première partie, les principaux effets de l'irradiation sur la microstructure et le comportement mécanique seront décrits brièvement en s'appuyant sur un article de synthèse publié dans un ouvrage encyclopédique (Onimus & Béchade, 2012). Ensuite, dans une seconde partie, l'étude et la modélisation multi-échelle du comportement mécanique et des mécanismes de déformation lors de sollicitations d'écrouissage ou d'écrouissage-relaxation seront présentées. Enfin, dans une dernière partie, l'étude et la modélisation multi-échelle du comportement et des mécanismes de déformation en fluage post-irradiation seront exposées.

3.1 Eléments de base concernant les effets de l'irradiation dans les alliages de zirconium

Les alliages de zirconium utilisés comme matériau de structure et de gainage dans les réacteurs à eau pressurisée sont soumis à un fort flux de neutrons rapides ($E > 1$ MeV) issus des réactions de fission nucléaire qui se déroulent dans les pastilles d'oxyde d'uranium. Ces neutrons rapides, lors de leur

traversée de la gaine, rentrent en collision avec des atomes de zirconium et les déplacent par collision élastique. En moyenne environ 220 atomes de zirconium sont déplacés dans la cascade de déplacements créée par un neutron rapide (Figure 33).

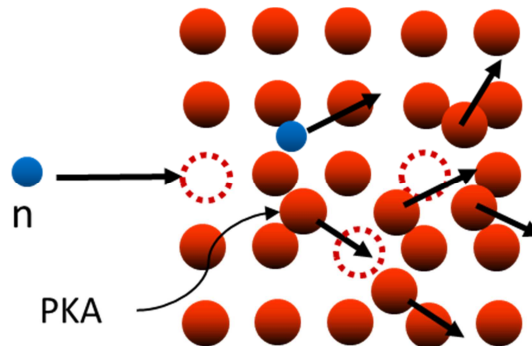


Figure 33 : Schéma de principe décrivant une cascade de déplacements dans un cristal créée par un neutron rapide.

En considérant un flux de neutrons rapides de $5.0 \times 10^{17} \text{ n.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) on peut montrer que chaque atome est déplacé en moyenne dans le matériau 2.3 fois par an ! Lorsqu'un atome est déplacé de son site cristallin il laisse un site vacant, une lacune, et celui-ci s'insère plus loin entre les autres atomes du cristal créant un atome auto-interstitiel. Ces deux défauts ponctuels formés simultanément sont appelés paire de Frenkel. Au sein de chaque cascade se produisent des recombinaisons des défauts ponctuels conduisant à la survie de seulement 20% des paires de Frenkel créées par rapport au nombre d'atomes déplacés dans la cascade. Cette étape de formation puis de relaxation de la cascade dure quelques dizaines de picosecondes. Sur des échelles de temps plus longues, les défauts ponctuels évoluent par diffusion au sein du matériau. Lors de leur diffusion dans le matériau, les défauts ponctuels réagissent avec d'autres défauts selon trois processus principaux. Lorsqu'un auto-interstitiel rencontre une lacune ces deux défauts se recombinent reconstituant ainsi le cristal parfait. Les lacunes, ou les auto-interstitiels, peuvent aussi s'agglomérer formant des amas. Ces amas peuvent être sous la forme de disques de défauts ponctuels, ils forment alors des boucles de dislocations (Figure 34). Les lacunes peuvent aussi s'agglomérer sous forme de cavités tridimensionnelles, mais dans le zirconium et ses alliages, ces cavités ne sont pas observées. Enfin, les défauts ponctuels, lors de leur diffusion à travers le matériau, peuvent rencontrer d'autres éléments de la microstructure comme la surface, des joints de grains ou bien des dislocations. Ces éléments de la microstructure agissent alors comme puits pour les défauts ponctuels, c'est-à-dire que les défauts ponctuels disparaissent à leur rencontre.

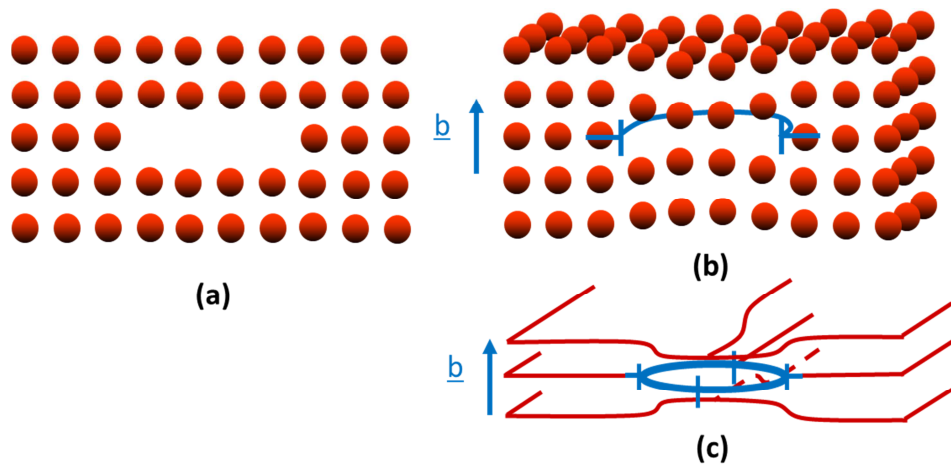


Figure 34 : Schéma de principe expliquant la création d'une boucle lacunaire par agglomération de lacunes. a) Amas plan de lacunes, b) boucle de dislocation visualisée dans un réseau cristallin, c) représentation continue d'une boucle de dislocation.

Les principaux amas de défauts ponctuels présents dans les alliages de zirconium sont les boucles de dislocation $\langle a \rangle$. Celles-ci sont des disques de lacunes ou d'interstitiels, elles sont situées dans les plans prismatiques et elles présentent un vecteur de Burgers du type $\langle a \rangle$ (Figure 35). Elles apparaissent dès les faibles doses (10^{24} n.m^{-2} ($E > 1 \text{ MeV}$)). Elles sont généralement petites (5 à 30 nm de diamètre selon la température d'irradiation et sont présentes en forte densité (de l'ordre de 10^{22} m^{-3}), en particulier dans les conditions d'irradiation caractéristiques des réacteurs nucléaires. Du fait de leur très grande densité, ce sont ces défauts d'irradiation qui sont majoritairement responsables des modifications du comportement mécanique de ces matériaux.

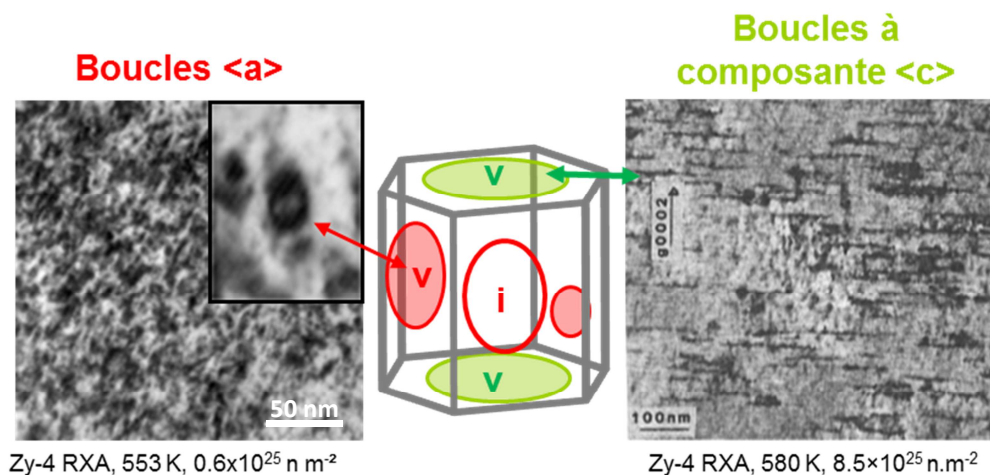


Figure 35 : Boucles $\langle a \rangle$ et boucles à composante $\langle c \rangle$ observées dans l'alliage Zy-4 recristallisé lors d'irradiation en réacteur nucléaire.

A plus forte dose ($5 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$)) apparaît un nouveau type de défauts d'irradiation : les boucles à composante $\langle c \rangle$. Ces boucles sont exclusivement lacunaires et sont contenues dans le plan

de base (Figure 35). Leur vecteur de Burgers est du type $\frac{1}{6}\langle 20\bar{2}3 \rangle$. Ces boucles sont de grande taille (diamètre de l'ordre de 150 nm) et sont présentes en faible densité (de l'ordre de 10^{20} m^{-3}). Elles ne semblent pas avoir d'influence significative sur le comportement mécanique post-irradiation. Ces défauts jouent néanmoins un grand rôle sur la déformation sous irradiation. Ce dernier phénomène sera décrit en détail dans le Chapitre 4.

En plus de la création de défauts cristallins, l'irradiation peut modifier la distribution des espèces chimiques dans le matériau. En effet, les précipités de phases de Laves, de stœchiométrie $\text{Zr}(\text{Fe},\text{Cr})_2$, contenus dans le Zircaloy-4 sont amorphisés sous irradiation, et une part du fer contenu dans ces précipités est rejetée dans la matrice de zirconium. L'évolution sous irradiation des précipités de phase de Laves est un des phénomènes qui expliquerait la perte de résistance à la corrosion après irradiation de l'alliage Zy-4.

Dans les alliages de zirconium contenant du niobium, comme le M5TM, un autre phénomène original se produit sous irradiation. En effet, on constate qu'en plus des précipités de β -niobium présents à l'état natif, une grande densité de nano-précipités de β -niobium apparaît sous irradiation. Ce phénomène s'explique par la présence de niobium en solution solide, à l'état de réception, à une teneur supérieure à la limite de solubilité. Sous irradiation, la présence d'une sursaturation de lacunes permet une diffusion facilitée des atomes de niobium permettant ainsi la précipitation du niobium accélérée par l'irradiation. Cette grande densité de nano-précipités de niobium ne semble pas avoir d'effet majeur sur les propriétés mécaniques post-irradiation. Il est néanmoins possible que ces précipités jouent un certain rôle dans le comportement en fluage post irradiation, comme cela sera discuté dans la dernière partie de ce Chapitre.

3.2 Déformation plastique post-irradiation

Une des principales conséquences macroscopiques de l'irradiation neutronique est le durcissement du matériau qui s'accompagne d'une perte de ductilité macroscopique (Figure 36). Pour des essais de pression interne réalisés à 350°C, la limite d'élasticité du matériau est de l'ordre de 200 MPa et augmente jusqu'à 500 MPa après irradiation. A température ambiante, des essais de traction sur anneaux montrent que la limite d'élasticité augmente de 450 MPa à plus de 700 MPa.

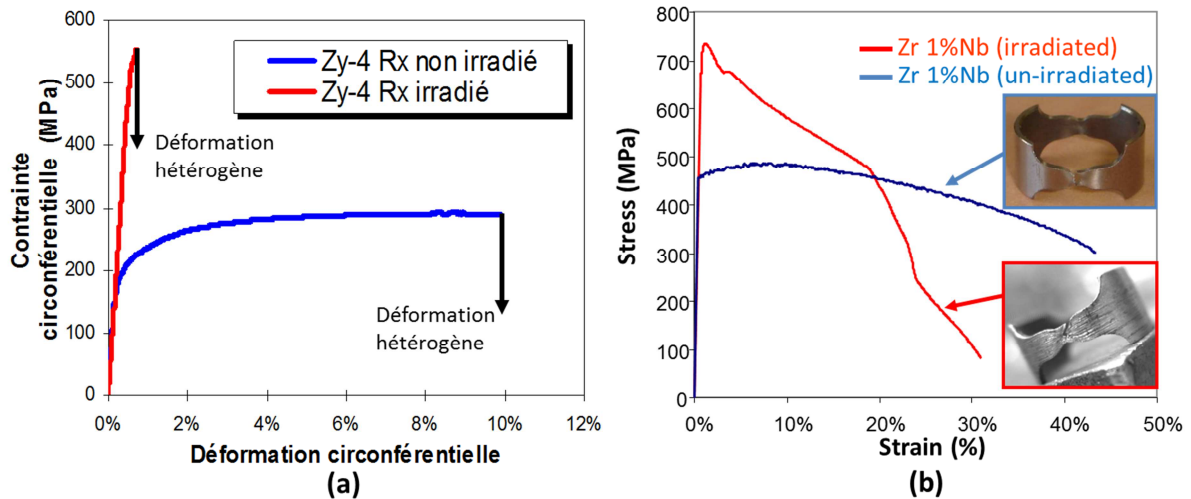


Figure 36 : a) Essais de pression interne à 350°C sur Zy-4 recristallisé non irradié et irradié. b) Essais de traction sur anneaux à température ambiante sur M5™ non irradié et irradié.

Le durcissement d'irradiation est directement corrélé à l'apparition de la grande densité de boucles <a> qui agissent comme obstacles au glissement des dislocations. Néanmoins, pour une contrainte appliquée suffisante, les dislocations peuvent franchir les boucles en les balayant ou en les incorporant à leur ligne. Ce phénomène conduit à un balayage des boucles par les dislocations. Les obstacles au glissement ayant été détruits dans cette fine bande du grain, les dislocations suivantes vont y glisser préférentiellement conduisant ainsi à un phénomène de canalisation des dislocations. C'est ce mécanisme microscopique adoucissant, produisant une localisation de la déformation plastique à l'échelle du grain, qui est responsable de la faible capacité d'écrouissage du matériau à l'échelle macroscopique. Cette faible capacité d'écrouissage conduit à une localisation précoce de la déformation à l'échelle de l'éprouvette. En effet, l'allongement réparti (plastique) des alliages de zirconium recristallisés est proche de 10% avant irradiation et diminue jusqu'à une valeur inférieure à 0.5% après irradiation, le faciès de rupture restant néanmoins ductile.

Dans certaines situations en réacteur, notamment lors de l'interaction pastille – gaine, des contraintes élevées et des vitesses de déformation typiques d'essais de traction (10^{-6} à 10^{-3} s^{-1}), peuvent apparaître au niveau de la gaine. Afin de garantir la tenue mécanique de la gaine dans ces circonstances, il est important de bien connaître, comprendre et modéliser, de façon la plus prédictive possible, le comportement mécanique et les mécanismes de déformation des alliages de zirconium irradiés.

3.2.1 Etude des mécanismes de déformation à l'échelle du grain

Afin de mieux connaître les mécanismes de déformation actifs après irradiation, une étude détaillée par microscopie électronique en transmission, de la microstructure après essais mécaniques sur des alliages de zirconium recristallisés irradiés a été engagée dès l'année 2000 au CEA-Saclay (Onimus, 2004 ; Onimus et al., 2004 ; Onimus et al., 2005). Cette étude prenait la suite d'une étude menée au CEA-Grenoble dans les années 90 (Régnard et al., 2002 ; Fregonese et al., 2000). Plusieurs types d'essais mécaniques ont été conduits lors de cette étude : des essais de traction sens travers, des essais de pression interne et des essais de traction axiale. A l'issue des essais mécaniques, des lames minces ont été prélevées loin de la zone de striction (en traction) ou d'éclatement (en pression interne). Dans cette zone la déformation était homogène. L'homogénéité de la déformation avait d'ailleurs pu être vérifiée de façon très précise dans le cas des éprouvettes de pression interne, par profilométrie laser. Les observations MET de ces lames minces ont révélé la présence de bandes claires, ou canaux, au sein des grains du matériau (Figure 37). Ces bandes claires correspondent à des zones où les défauts d'irradiation ont été balayés par les dislocations. En dehors de ces bandes, le contraste paraît gris, même dans des conditions parfaites d'imagerie des défauts cristallins (conditions de deux ondes) du fait de la très grande densité de boucles dont les contrastes se superposent dans l'épaisseur de la lame. Dans la bande claire les boucles ont été balayées, on retrouve alors le contraste clair caractéristique d'un grain de zirconium sans défaut cristallin (Figure 38).

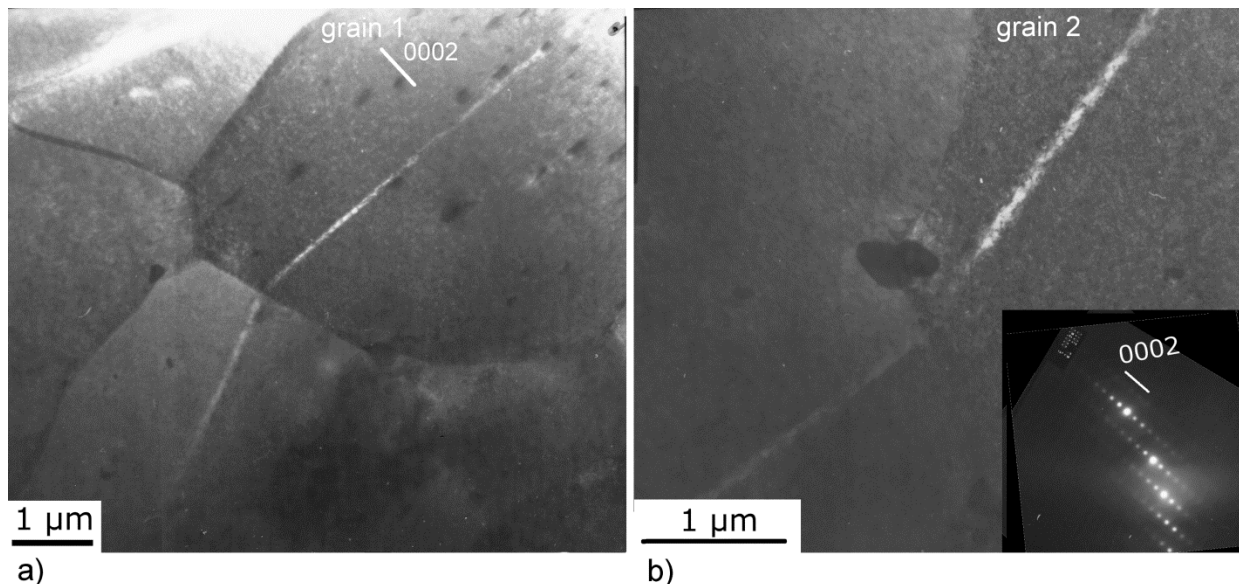


Figure 37 : Observation par MET de bandes claires, ou canaux de dislocations, après un essai de traction sens travers réalisé à 350°C sur une éprouvette en Zy-4 recristallisé. a) Propagation du canal d'un grain à un autre. b) Autre observation d'un canal se propageant de grain à grain.

Notre étude a consisté à systématiquement orienter les grains de façon à observer ces canaux dans les meilleures conditions, c'est-à-dire lorsque le plan du canal contient le faisceau d'électrons. Ceci a permis de déterminer le plan de glissement des dislocations. Simultanément l'orientation du grain étudié par rapport à la sollicitation mécanique était soigneusement déterminée, en relevant les trois angles d'Euler correspondant à chacun des grains. La présence ou non de ces canaux dans différents plans a ainsi pu être corrélée aux facteurs de Schmid des systèmes de glissement concernés (Onimus et al., 2004).

Nous avons notamment pu mettre en évidence que pour des sollicitations de traction sens travers et pression interne à 350°C, menées sur des tôles ou des gaines texturées en alliages de zirconium recristallisés, seuls des canaux correspondant au plan basal étaient observés. La présence ou non de ces canaux est très bien corrélée au facteur de Schmid (maximum) du système basal. En effet dans la très grande majorité des grains présentant un facteur de Schmid (maximum) du système basal supérieur à 0.3, des canaux basaux étaient présents. Dans les grains étudiés aucun canal correspondant aux plans prismatiques n'a été observé alors même que les facteurs de Schmid de ces systèmes étaient élevés, témoignant ainsi de la difficulté à activer ce système de glissement après irradiation.

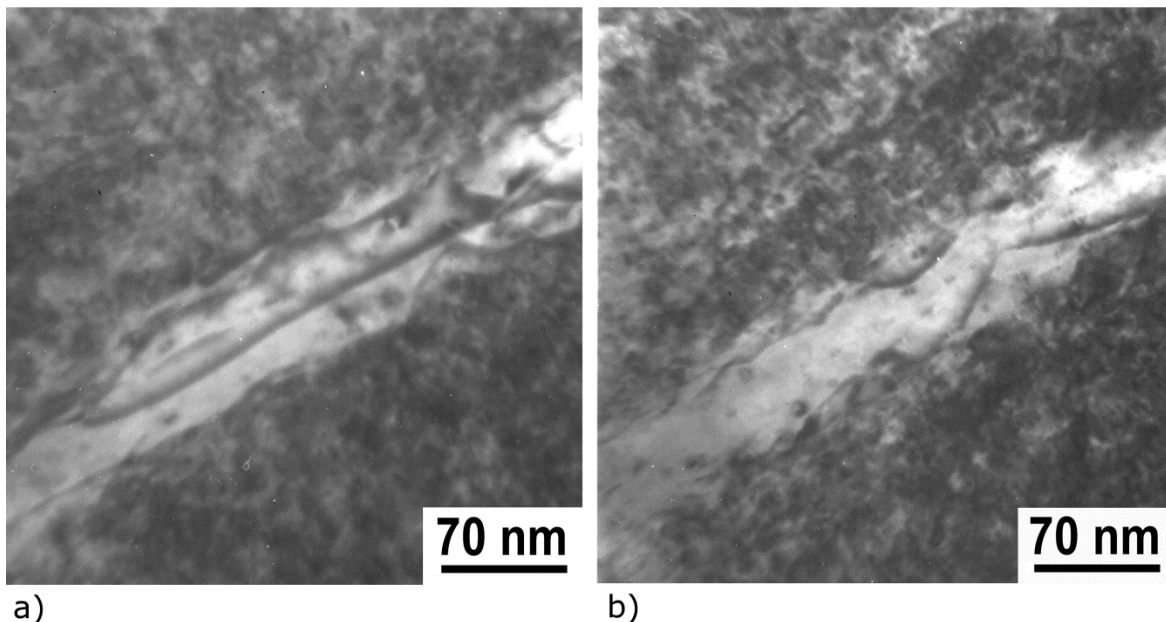


Figure 38 : Observation MET à fort grandissement de la microstructure à l'intérieur d'un canal. a) et b) Observation de dislocations sur les bords du canal et de quelques boucles restantes.

L'apparition exclusive du système de glissement basal est surprenante puisque lorsque le matériau n'est pas irradié, c'est le système prismatique qui s'active préférentiellement. Nous reviendrons sur l'origine probable de cette modification de système de glissement facile dans la suite du Chapitre.

A ce stade il est apparu particulièrement intéressant d'observer une lame mince prélevée dans une éprouvette sollicitée en traction axiale. En effet, compte tenu de la forte texture du matériau, pour cette sollicitation les facteurs de Schmid du glissement basal sont quasiment nuls dans la très grande majorité des grains. Le système de glissement basal ne devrait donc pas pouvoir s'activer. Néanmoins, à l'échelle macroscopique, le matériau se déforme bien pour des contraintes inférieures à 500 MPa. Ce niveau de contrainte est seulement faiblement supérieur à la contrainte maximum observée en traction sens travers, qui est de l'ordre de 450 MPa. Un autre mécanisme d'accommodation plastique est donc actif en traction axiale dès ce niveau de contrainte. En effet, l'observation des lames prélevées dans l'éprouvette sollicitée en traction axiale à 350°C a révélé la présence de canaux dans les plans prismatiques et pyramidaux. Ces canaux apparaissent moins larges et moins bien balayés que les canaux dans le plan de base. Ils sont également plus difficiles à former que les canaux dans le plan basal, car ceux-ci n'apparaissent pas pour des essais de traction en sens travers et de pression interne alors même que ces systèmes de glissement sont bien orientés.

Afin d'avoir une compréhension plus complète des systèmes de glissement activés après irradiation, nous avons ensuite systématiquement étudié la présence ou l'absence de dislocations $\langle c+a \rangle$ simultanément à l'étude de la présence des canaux dans le plan de base pour des essais de pression interne et de traction en sens travers (Onimus et al., 2013a). Ceci peut être réalisé en observant le grain étudié soit avec un vecteur de diffraction parallèle à l'axe $\langle c \rangle$ ($g=0002$) puis non parallèle à l'axe $\langle c \rangle$ ($g \neq 0002$) tout en conservant le faisceau d'électrons contenu dans le plan basal. Malgré des facteurs de Schmid élevés, sur 18 grains étudiés, seuls 2 contenaient des dislocations $\langle c+a \rangle$ démontrant ainsi que ce système présente une cission critique toujours bien supérieure à celle du glissement basal et cela même après irradiation.

Un autre phénomène particulièrement intéressant, qui a également pu être mis en évidence lors de ces différentes études, est la propagation des canaux de grains à grains (Figure 37). En effet, en observant les lames minces obtenues à partir d'une éprouvette de traction en sens travers (DT) prélevée dans le plan DN-DT d'une tôle épaisse, des canaux jointifs de grains à grains ont pu être observés. En revanche, lorsque l'éprouvette de traction en sens travers était prélevée dans le plan DL-DT, les canaux n'étaient jamais jointifs de grains à grains (Figure 39).

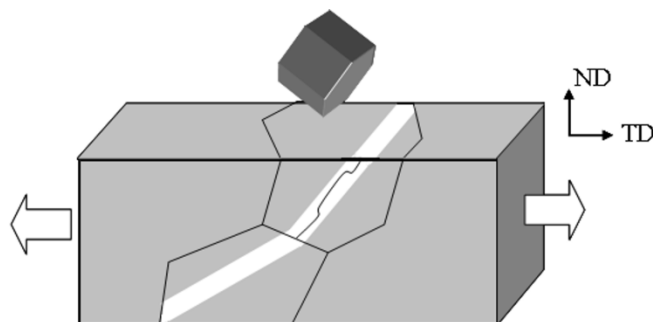


Figure 39 : Schéma de principe décrivant la propagation des canaux de grain à grain.

Ce phénomène a été interprété comme la preuve que la concentration de contrainte qui apparaît lorsque le canal entre en contact avec un joint de grain, peut conduire à l'apparition d'un nouveau canal dans le grain adjacent et cela notamment si la désorientation entre les deux grains n'est pas trop importante. Or il se trouve que justement, puisque les alliages de zirconium étudiés sont fortement texturés, de nombreux grains présentent une orientation similaire, ce qui favorise la propagation des canaux de grain à grain. Nous reviendrons sur ce phénomène lorsque seront décrit les mécanismes à l'échelle du polycristal.

Dans le cadre d'une autre étude (Bourdilliau et al., 2010), nous avons eu l'opportunité de réaliser des essais de traction à température ambiante sur des échantillons en forme d'anneaux prélevés dans des tubes de gaine en alliages de zirconium recristallisés irradiés et non irradiés. Les essais réalisés sur matériau irradié ont été interrompus juste avant l'allongement réparti maximal. Des lames minces ont été prélevées dans ces différentes éprouvettes permettant l'observation de la microstructure après déformation.

Dans les lames prélevées dans les éprouvettes non irradiées les observations MET ont mis en évidence la présence d'une répartition homogène de longues dislocations contenues dans les plans prismatiques (Figure 40). En revanche, après irradiation, les observations MET ont montré la présence de canaux dans les plans de base mais également dans les plans prismatiques (Figure 41).

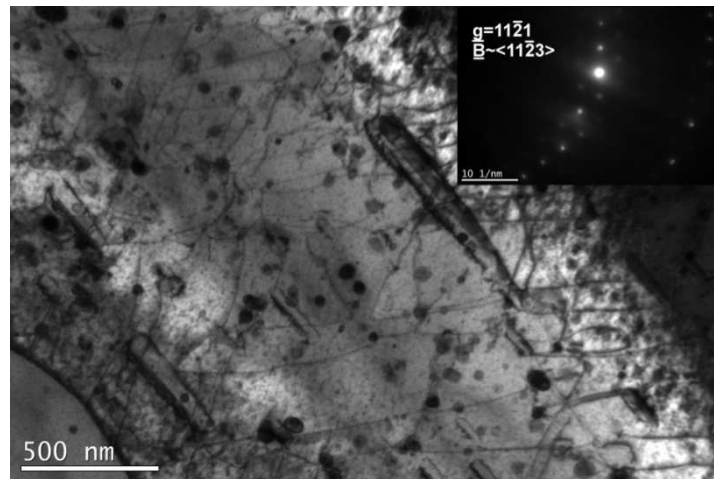


Figure 40 : Systèmes de glissement prismatiques activés lors d'un essai de traction sur anneau à température ambiante sur M5 non irradié (pré-hydruré à 80 ppm massique, déformation plastique de 1.2%).

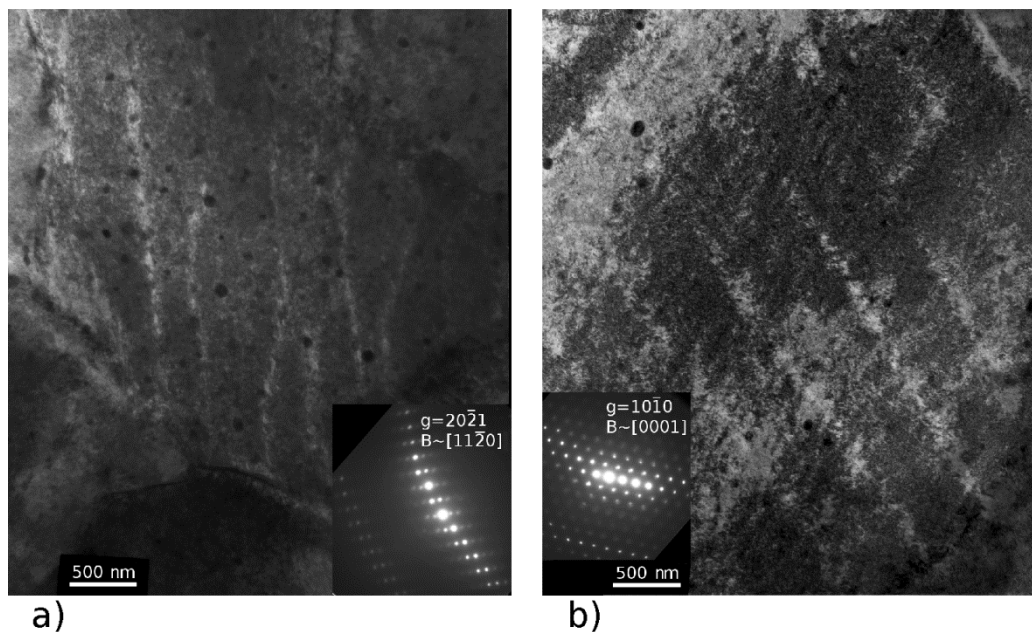


Figure 41 : Observations par MET de canaux dans l'alliage M5TM irradié en réacteur nucléaire après essais de traction sur anneaux à température ambiante. a) canaux observés dans le plan basal, b) canaux observés dans le plan prismatique.

Les canaux prismatiques, qui paraissent partiellement balayés, sont très rectilignes alors que les canaux basaux, plus clairs, présentent des déviations dans un plan pyramidal (Figure 41(a)). Sur les quelques grains observés lors de cette étude, l'analyse en termes de facteurs de Schmid montre là encore que le glissement basal s'active pour un facteur de Schmid élevé, supérieur à 0.4, mais ne s'active pas pour des valeurs inférieures de facteurs de Schmid. De la même façon, le système prismatique ne s'active que pour des valeurs de Schmid proches de 0.4. Le fait que le système prismatique semble s'activer avec la même facilité que le glissement basal à température ambiante,

contrairement à ce qui se produit à 350°C où le glissement basal est bien plus facile, pourrait s'expliquer par une évolution différente avec la température des cissions critiques de ces deux modes de glissement couplée au durcissement d'irradiation qui affecte différemment les deux systèmes de glissement.

3.2.2 Etude expérimentale et simulation numérique des mécanismes élémentaires d'interaction entre dislocation et défauts d'irradiation

Afin de mieux comprendre le phénomène de canalisation des dislocations par balayage des boucles <a>, ainsi que l'origine du changement de système de glissement facile, une première analyse, dite théorique, a été mise en œuvre (Onimus et al., 2004 ; Onimus et al., 2012). En effet, le mouvement des dislocations et leur interaction avec d'autres dislocations ou boucles de dislocation obéit à certaines règles imposées par la géométrie des dislocations elles-mêmes (vecteur de Burgers, plan de glissement) ainsi qu'aux forces qui régissent leurs interactions (tension de ligne, interaction élastique à longue distance). Il est donc possible, dans une certaine mesure, d'estimer de façon théorique et analytique la façon dont interagissent les dislocations et les boucles.

Du fait de la symétrie d'ordre trois autour de l'axe <c>, le plan de base est très particulier par rapport aux autres plans de glissement de la structure hexagonale compacte. En effet, les trois vecteurs de Burgers <a> appartiennent à ce plan. En conséquence, lorsqu'une dislocation de vecteur de Burgers \underline{a}_1 glissant dans le plan de base rencontre une boucle de vecteur de Burgers \underline{a}_2 , il peut se créer une jonction attractive dont le vecteur de Burgers est $-\underline{a}_3 = \underline{a}_1 + \underline{a}_2$, conduisant ainsi une diminution de l'énergie du système ($a_3^2 < a_1^2 + a_2^2$). Puisque le vecteur de Burgers de cette jonction est contenu dans le plan de base, cette jonction, dite glissile, peut glisser dans le plan de base, entraînée par la dislocation (Figure 42). De plus, la boucle, qui est contrainte à glisser selon son cylindre de glissement qui est lui-même parallèle au plan basal, peut être entraînée par la dislocation et ainsi être balayée.

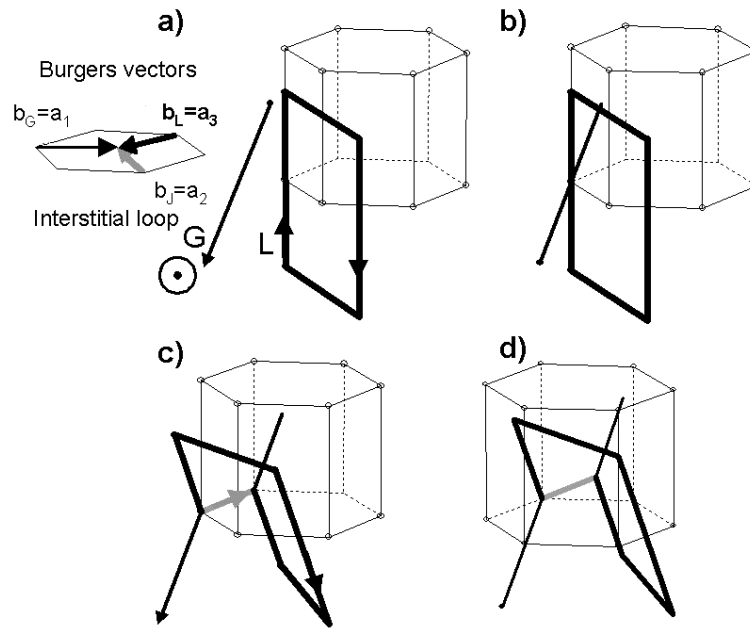


Figure 42 : Analyse théorique décrivant une interaction entre une dislocation coin (G) représentée en ligne noire fine glissant dans un plan basal et une boucle interstitielle (L), représentée en ligne noire épaisse, de vecteur de Burgers différent de la dislocation. La jonction (J) représentée en ligne épaisse gris claire présente un vecteur de Burgers qui correspond au troisième vecteur $\langle a \rangle$ de la structure hexagonale compacte. a) avant l'interaction, b) contact entre la dislocation et la boucle, c) création de la jonction, d) glissement de la boucle et de la jonction entraînées par la dislocation.

En revanche, lorsque la dislocation de vecteur de Burgers \underline{a}_1 glisse dans le plan prismatique, la jonction attractive, qui peut éventuellement se former, possède un vecteur de Burgers $-\underline{a}_3 = \underline{a}_1 + \underline{a}_2$ qui n'est pas contenu dans le plan de glissement de la dislocation. La jonction est alors dite sessile et agit comme obstacle au glissement de la dislocation expliquant le durcissement plus important pour le système prismatique ainsi que le balayage partiel dans les canaux (Onimus et al., 2004 ; Onimus et al., 2012).

Afin de valider cette interprétation, une étude expérimentale originale a été entreprise dès 2002 qui s'est poursuivie en 2006, puis s'est traduite en 2011 par le lancement d'une nouvelle thèse (Drouet, 2014) afin d'étudier plus en détail ce sujet. Cette étude expérimentale a consisté à irradier avec des ions zirconium une très fine épaisseur, de l'ordre de 300 nm, d'une petite éprouvette en alliage de zirconium recristallisé. Un dispositif spécial a été conçu à cet effet. La surface irradiée est ensuite protégée par un vernis. La lame est finalement percée par polissage électrolytique en face arrière puis le vernis est retiré. La lame est alors déformée dans un microscope électronique en transmission, sur un porte-objet de traction in situ chauffant. Ces expériences de traction in situ en MET ont eu lieu tout d'abord au SIMAP à Grenoble, avec l'aide de L. Guetaz puis de B. Doisneau-Cottignies, puis enfin au CEMES à Toulouse, avec l'aide de F. Mompiau, dans le cadre de la thèse de J. Drouet (Drouet, 2014).

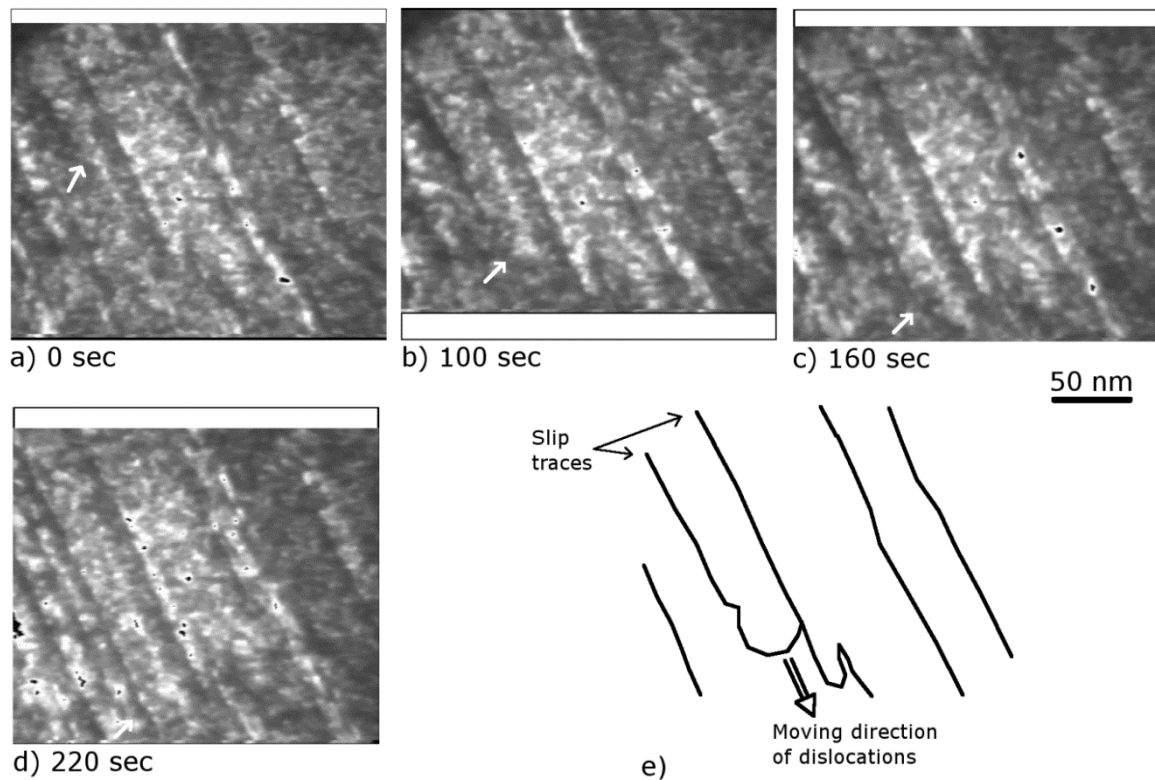


Figure 43 : Balayage des défauts d’irradiation par une dislocation glissant dans un plan prismatique.

Lors d’une première étude (Onimus et al., 2012), des essais de traction ont été conduits à une température de 350°C sur des échantillons de Zy-4 recristallisés irradiés à une température de 270°C (la température de consigne de la résistance chauffante étant de 350°C) jusqu’à une dose de 1.3 dpa (en moyenne dans la lame mince de 150 nm d’épaisseur). Grâce à de telles conditions d’irradiation, les grains se trouvaient remplis de petites boucles <a>. Le phénomène de balayage des boucles par le glissement de dislocations dans les plans prismatiques a ainsi pu être observé in situ lors de la traction dans le microscope électronique en transmission (Figure 43) et également après déformation (Figure 44).

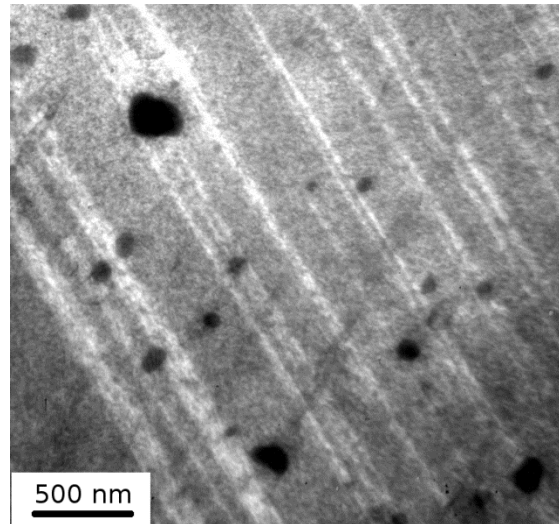


Figure 44 : Observation après traction in situ de bandes balayées par le glissement de dislocations dans les plans prismatiques.

Ensuite, une irradiation a été réalisée à une température plus élevée de 340°C (la température de consigne de la résistance chauffante étant de 500°C) jusqu'à une dose de 0.3 dpa. Cette irradiation a alors conduit à une microstructure composée de plus grandes boucles, d'environ 15 nm de diamètre en faible densité ($1.2 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$) et majoritairement de nature lacunaire. Les éprouvettes ont ensuite été tractionnées à 350°C dans un microscope électronique en transmission. Lors de cette seconde campagne expérimentale, des interactions individuelles de dislocations glissant dans un plan prismatique avec des boucles ont pu être clairement mises en évidence. Il a en particulier été possible d'observer l'incorporation d'une boucle dans une dislocation (Figure 45) ainsi que, dans un autre cas, l'ancrage d'une dislocation par une boucle. De plus après les essais, les parties vis des dislocations apparaissaient particulièrement sinueuses. Cette observation serait la conséquence de l'incorporation des boucles sous la forme de tours d'hélice dans les dislocations vis.

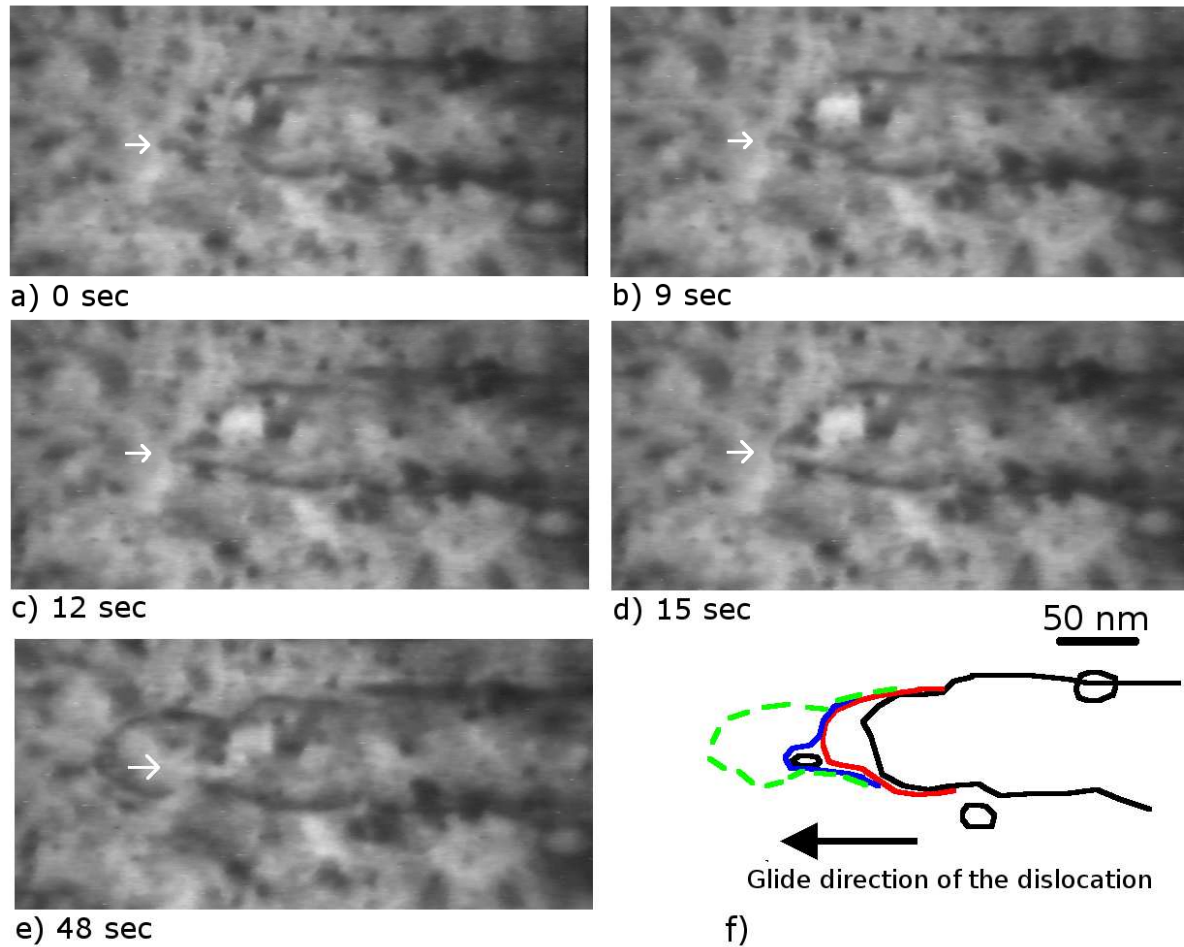


Figure 45 : Observation par MET lors d'une traction in situ d'une interaction entre une dislocation glissant dans un plan prismatique et une boucle.

Depuis 2010, plusieurs campagnes de traction in situ ont eu lieu au CEMES (Toulouse). Les irradiations ont toujours été conduites jusqu'à une dose faible (8×10^{17} ions/m² soit 0.5 dpa en moyenne dans l'épaisseur de la lame mince) et à une température de 340°C (la température de consigne de la résistance chauffante étant de 500°C) et les essais ont été majoritairement conduits entre 450°C et 500°C. A cette température, c'est principalement le glissement pyramidal $\langle a \rangle$ qui a été observé lors de nos expériences. L'incorporation de boucles sous la forme de super-crans ou de tours d'hélice a alors pu être clairement mise en évidence (Figure 46) (Drouet, 2014 ; Drouet et al., 2015).

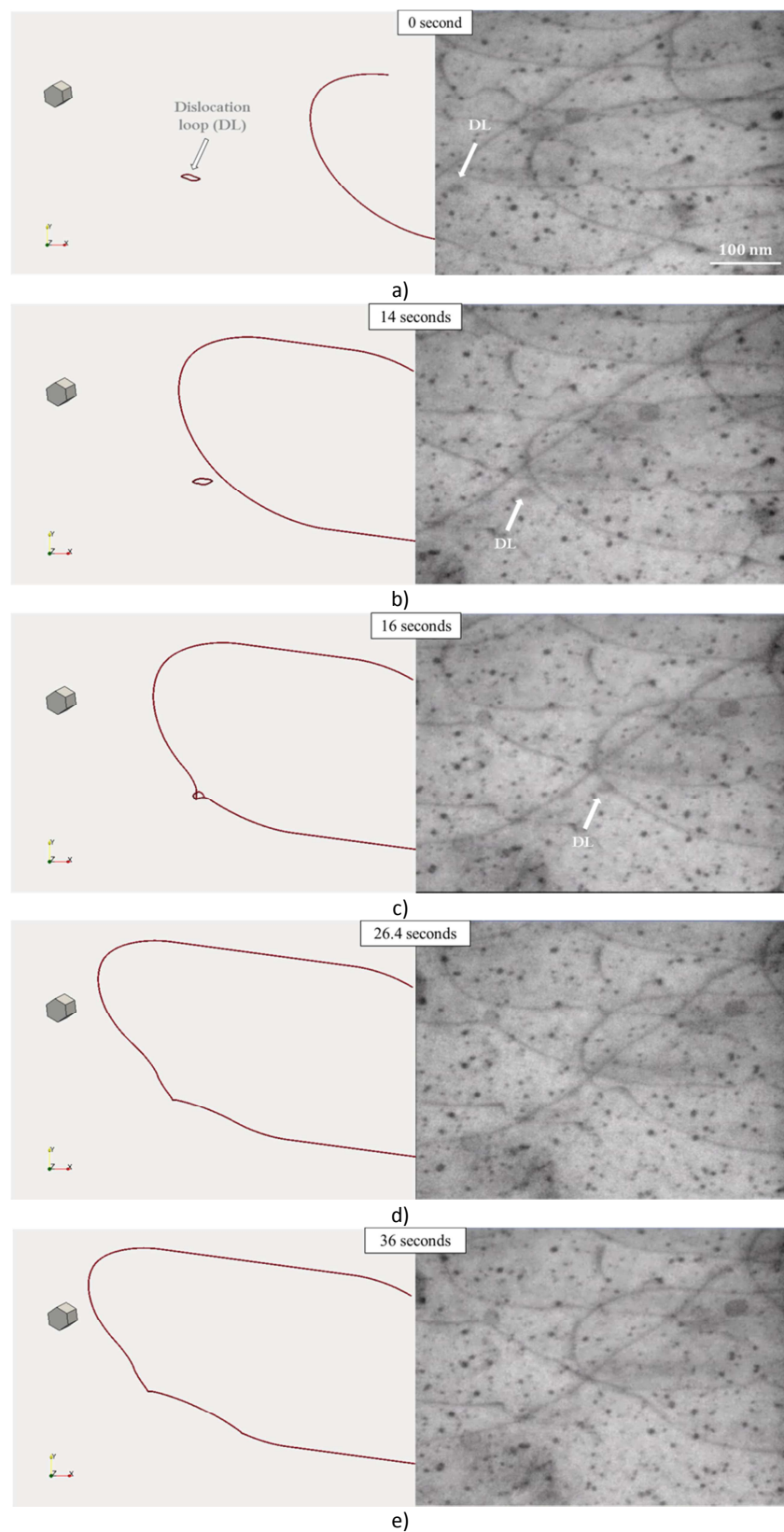


Figure 46 : Interaction entre une dislocation glissant dans un plan pyramidal à 450°C et une boucle. A droite, observation par MET lors de la traction in situ. A gauche, simulation par dynamique des dislocations.

Afin de mieux interpréter les expériences de traction in situ en MET et également de permettre une simulation multi-échelle prédictive des mécanismes de déformation, de l'échelle la plus élémentaire jusqu'au comportement macroscopique, il est apparu particulièrement intéressant d'utiliser la méthode de dynamique discrète des dislocations pour simuler les interactions entre dislocations et boucles.

Grâce à l'aide de L. Dupuy (SRMA/CEA), développeur principal du code de dynamique des dislocations NUMODIS (Numerical Modelling of Dislocations), en collaboration avec le CNRS de Thiais et de Grenoble, nous avons pu dès 2010 réaliser des premiers calculs d'interactions entre dislocations et défauts d'irradiation dans les alliages de zirconium. Ce code présente des similarités avec le code ParaDiS (Parallel Dislocation Simulator) développé aux Etats-Unis à Lawrence Livermore National Laboratory et à Stanford University. Il est basé sur une discrétisation de la ligne de la dislocation en une succession de petits segments interconnectés (Lebon, 2012). A chaque intersection des segments un nœud est défini. C'est le mouvement de ces nœuds qui est calculé par le code. Ceux-ci disposent de degrés de liberté qui dépendent des vecteurs de Burgers et plans de glissement des dislocations concernées. Ce type de code, bien que significativement plus complexe que les codes classiques dits vis-coin-mixte, s'avère particulièrement bien adapté pour simuler les interactions entre dislocations et défauts d'irradiation. Plus de détails sur le principe du code sont donnés par Lebon (2012) et Drouet (2014).

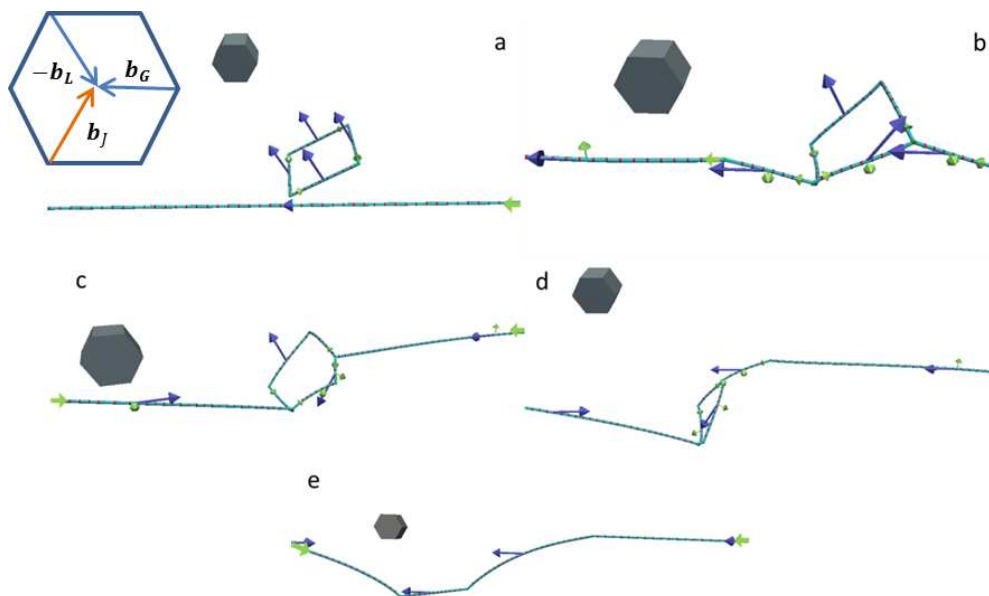


Figure 47 : Simulation par dynamique des dislocations de l'interaction entre une dislocation vis glissant dans un plan prismatique et une boucle de vecteurs de Burgers différents.

Ce code de dynamique des dislocations a été utilisé pour étudier les différences entre une dislocation $\langle a \rangle$ glissant dans le plan basal et interagissant avec une boucle $\langle a \rangle$ et une dislocation $\langle a \rangle$ glissant dans un plan prismatic et interagissant avec une boucle $\langle a \rangle$ (Drouet, 2014 ; Drouet et al., 2014). De façon systématique, les différentes interactions possibles ont été calculées en changeant le caractère de la dislocation de vecteur de Burgers \underline{a}_1 , vis ou coin, le plan de glissement de la dislocation, plan basal (Figure 48) ou plan prismatic (Figure 47), et le vecteur de Burgers de la boucle, \underline{a}_1 ou \underline{a}_3 .

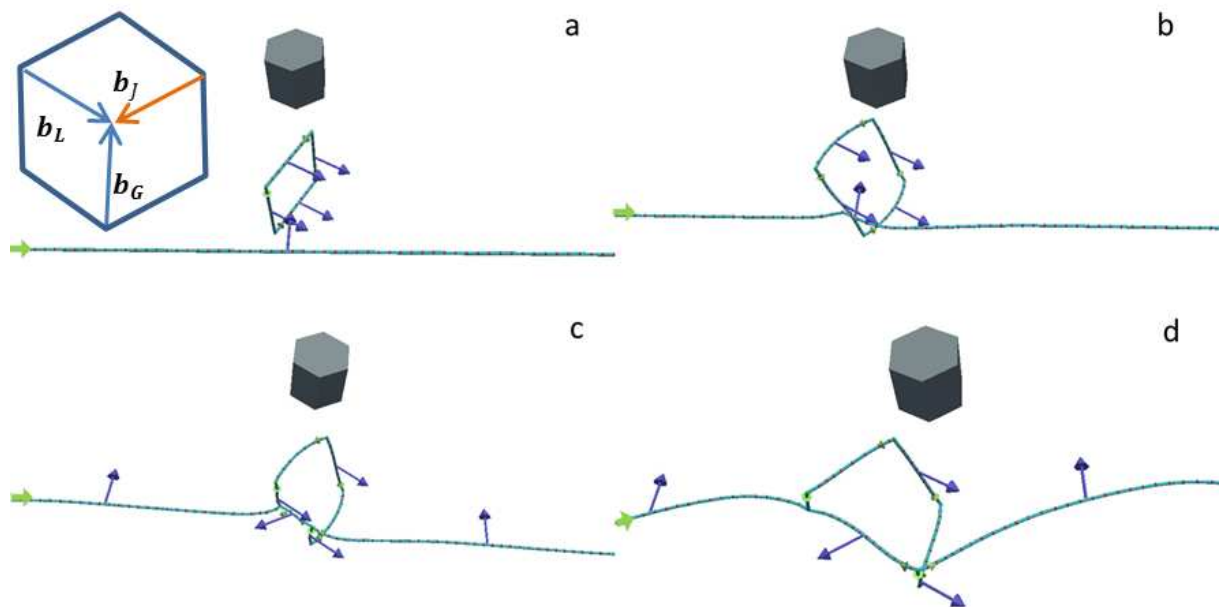


Figure 48 : Simulation par dynamique des dislocations de l'interaction entre une dislocation vis glissant dans le plan basal et une boucle de vecteurs de Burgers différents.

Cette étude numérique a permis de montrer que lorsqu'une dislocation coin glissant dans le plan basal ou prismatic interagit avec une boucle de vecteur identique ou différent, la boucle est incorporée à la dislocation sous la forme d'un double super-cran dans le cas du glissement prismatic ou bien la boucle est entraînée sur son cylindre dans le cas du glissement basal. Les dislocations coins ne sont donc pas bloquées par les boucles. Les boucles sont alors balayées facilement quel que soit le système de glissement considéré.

En revanche, lorsque la dislocation est vis, si les vecteurs de Burgers de la boucle et de la dislocation sont identiques, un tour d'hélice est formé sur la dislocation qui ancre alors fortement celle-ci. Si les vecteurs de Burgers de la boucle et de la dislocation sont différents, la boucle est emportée sur son cylindre lorsque la dislocation glisse dans le plan basal (Figure 48) alors qu'elle est ancrée par un tour

d'hélice lorsque la dislocation glisse dans le plan prismatique (Figure 47). Un dénombrement précis des différentes configurations possibles et de leurs conséquences sur le mouvement de la dislocation montre que le balayage facile des boucles par les dislocations se produit dans cinq cas sur six pour le glissement basal mais se produit seulement dans trois cas sur six pour le glissement prismatique. Ceci expliquerait que les canaux soient plus faciles à former dans le plan basal que dans le plan prismatique.

Des simulations ont permis de mieux quantifier les résistances des différentes interactions (contrainte critique de franchissement de la boucle). Celles-ci sont qualitativement en accord avec les résultats obtenus par Dynamique Moléculaire (Serra & Bacon, 2013). Par ailleurs, d'autres simulations ont récemment été réalisées dans le but de se rapprocher le plus possible d'un des cas observés expérimentalement, impliquant le glissement $\langle a \rangle$ dans le plan pyramidal, lors des essais de traction in situ en MET (Drouet, 2014). Un accord assez remarquable est obtenu entre les simulations par dynamique des dislocations et les observations par MET lors de la traction in situ (Figure 46).

3.2.3 Etude du comportement mécanique du matériau polycristallin irradié

En parallèle à l'étude microscopique, une étude expérimentale approfondie a également été menée à l'échelle macroscopique. Cette étude a consisté à analyser le plus finement possible, en prenant la suite de la démarche initiée par Feugas (1999, 2003) et Geyer (1999), le comportement mécanique du matériau irradié. Les objectifs de cette démarche sont, d'une part de mieux connaître le comportement mécanique, mais aussi d'obtenir des informations sur les mécanismes microscopiques effectivement à l'œuvre. En effet, comme cela a déjà été souligné dans le Chapitre 2, il est possible, en analysant finement la sensibilité à la vitesse du matériau, ou bien en décomposant la contrainte d'écoulement en une partie isotrope et cinématique, d'obtenir des informations sur les mécanismes microscopiques. L'intérêt de cette démarche est également de considérer le matériau dans sa globalité, avec toute sa complexité, en particulier en prenant en compte sa nature polycristalline. Ainsi, en confrontant les observations MET et le comportement macroscopique, l'échelle intermédiaire, à laquelle les grains interagissent entre eux, apparaît comme une composante essentielle du comportement du matériau. C'est donc en poursuivant cette démarche que nous avons abordé l'étude du comportement mécanique des alliages de zirconium recristallisés irradiés.

La base d'essais mécaniques étudiée était constituée d'essais réalisés en pression interne à 350°C (Onimus et al., 2006). Les mesures de déformation et de pression réalisées sur ces essais sont très

précises et autorisent donc une analyse fine, même à des niveaux de déformation très faibles, du comportement mécanique. Les résultats principaux de cette analyse sont rappelés ci-dessous.

- i) Tout d'abord l'analyse du comportement mécanique a montré que le matériau était fortement durci par l'irradiation.
- ii) Ensuite, l'étude de l'érouissage a montré qu'après irradiation le taux d'érouissage était très élevé en début d'écoulement plastique mais diminuait rapidement avec la déformation plastique (ou la contrainte) jusqu'à atteindre des valeurs presque nulles pour une déformation plastique très faible. En revanche, lorsque le matériau n'est pas irradié, le taux d'érouissage est faible dès le début de l'écoulement plastique et diminue lentement avec la déformation plastique (ou la contrainte) jusqu'à atteindre des valeurs faibles, mais pour des niveaux de déformation plastique bien plus élevés. Cette perte de capacité d'érouissage avec l'irradiation explique la localisation précoce de la déformation à l'échelle de l'éprouvette qui apparaît lorsque le taux d'érouissage est presque nul (ou égal à la contrainte selon le critère de Considère).
- iii) L'essai de charge-décharge conduit sur le matériau irradié est également très instructif car il permet d'évaluer l'importance de la contrainte cinématique par rapport à la contrainte isotrope dans les alliages de zirconium irradiés. Puisqu'à la fin de la décharge, aucune non linéarité n'est mise en évidence, on peut en déduire que la contrainte cinématique reste inférieure à la contrainte isotrope. Ainsi, on obtient une borne supérieure pour la contrainte cinématique.
- iv) D'autre part, l'analyse des phases d'érouissage, à différentes vitesses de déformation, en terme de sensibilité à la vitesse (ou de coefficient de Norton) montre qu'après irradiation le matériau présente une sensibilité à la vitesse plus élevée qu'avant irradiation. L'analyse de la sensibilité à la vitesse lors des phases de relaxation montre également une sensibilité à la vitesse accrue par l'irradiation.

3.2.4 Confrontation avec les observations MET et interprétation en termes de mécanismes de déformation

Tout d'abord le durcissement d'irradiation observé s'explique par l'ancrage des dislocations sur les boucles créées sous irradiation qui agissent comme des obstacles au glissement des dislocations. Une déformation plastique apparaît néanmoins, pour une contrainte appliquée suffisante. C'est vraisemblablement dès ce stade qu'apparaissent les premiers canaux dans les grains du matériau, comme l'atteste les observations de lames minces prélevées avant l'allongement uniforme. Durant

cette première phase, la contrainte d'écoulement augmente rapidement (taux d'érouissage élevé), permettant ainsi une déformation homogène du matériau.

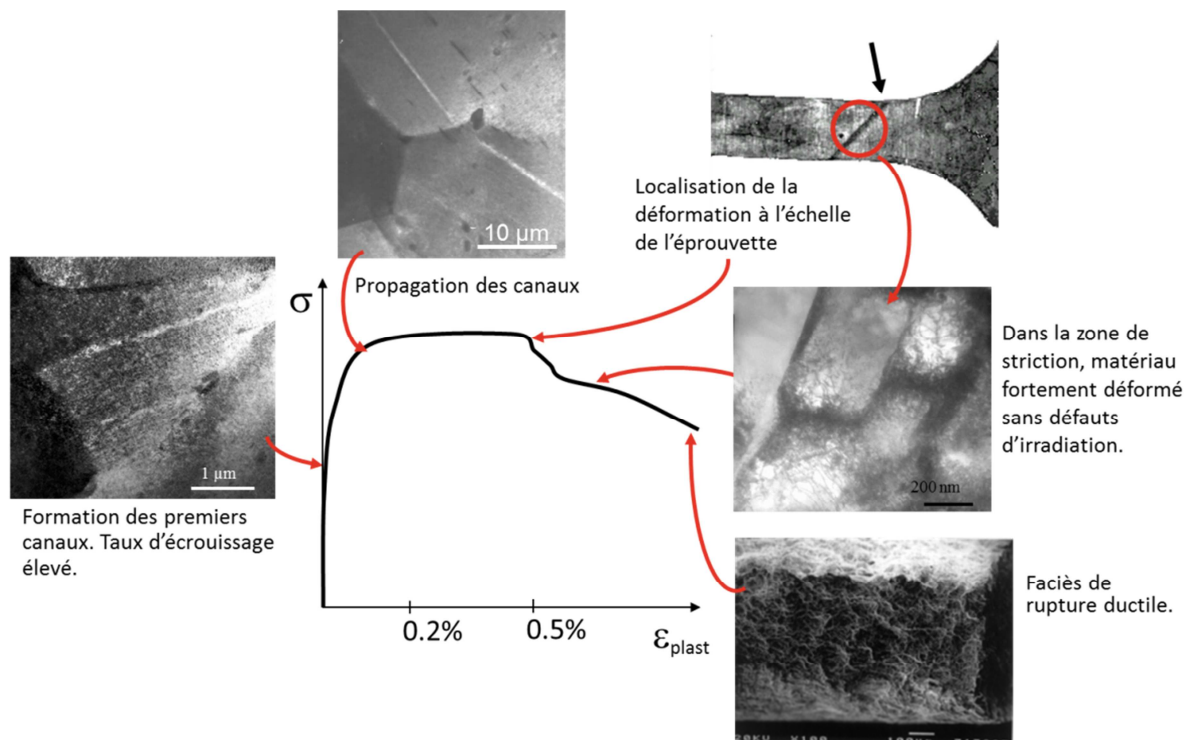


Figure 49 : Schéma illustrant les différents stades de développement des canaux au cours de la déformation

Il est d'ailleurs remarquable que la contrainte d'écoulement continue d'augmenter alors que des canaux ont déjà été observés dans le matériau à ce stade. En effet, à l'échelle locale, dans les canaux, il est considéré qu'il se produit un adoucissement du fait du balayage progressif des obstacles au glissement des dislocations. Afin d'expliquer ce phénomène, il a été proposé que la localisation de la déformation qui se produit dans les canaux, induise des incompatibilités de déformation entre le canal et les autres grains adjacents ce qui induit des contraintes internes en retour, ou « back stress ». Ces contraintes internes qui apparaissent à l'échelle du polycristal se traduiraient ainsi par un érouissage cinématique accentué lorsque le matériau est irradié, érouissage cinématique qui viendrait compenser, au moins un temps, l'adoucissement qui se produit au sein des canaux.

Alors que la contrainte d'écoulement augmente, de nouveaux canaux se forment rapidement. Lorsque les contraintes internes, d'incompatibilité de déformation, deviennent trop élevées les canaux se propagent de grain à grain. Ce phénomène permet une accommodation plastique de ces incompatibilités de déformation. A ce stade le taux d'érouissage chute rapidement. Ce phénomène de propagation de grain à grain est d'ailleurs accentué par la forte texture du matériau, la

désorientation entre canaux dans le plan de base étant relativement faible. Lorsque le taux d'écroissage devient trop faible, une localisation de la déformation se produit à l'échelle de l'éprouvette. La contrainte maximum et l'allongement uniforme sont alors atteints.

A partir de ce stade la déformation reste localisée dans une zone limitée de l'éprouvette. Des observations de lames minces prélevées dans la zone de striction ont démontré qu'il se produisait alors un balayage quasi-complet des défauts d'irradiation par les dislocations, la microstructure étant alors très semblable à celle d'un matériau non irradié très fortement déformé. La déformation plastique dans la zone de striction est d'ailleurs très élevée, comme en témoigne par exemple les images de tubes irradiés éclatés ou bien les images des anneaux déformés à température ambiante (Figure 36). Les facies de rupture restent d'ailleurs ductiles à cupules (Figure 49).

Cette analyse pointe l'importance de l'écroissage cinématique dans le comportement des alliages de zirconium recristallisés irradiés. L'essai de charge-décharge réalisé montre cependant que la composante « isotrope » de la contrainte d'écoulement reste supérieure à la composante « cinématique » de la contrainte d'écoulement. Ceci s'explique par le fait que le matériau reste fortement durci par les boucles (obstacles à courte distance) qui agissent sur la composante isotrope de la contrainte d'écoulement, à l'instar des dislocations de la forêt. La composante cinématique, bien que probablement élevée, reste donc néanmoins inférieure à la composante isotrope. D'autres types d'essais s'avèrent donc nécessaires pour quantifier cette composante cinématique de la contrainte d'écoulement.

Lors des phases de relaxation, une relaxation importante de la contrainte a été constatée s'accompagnant également d'une sensibilité à la vitesse accrue par l'irradiation. Ce phénomène pourrait en partie s'expliquer par la relaxation importante des contraintes internes inter-granulaires, comme dans le cas du matériau non irradié. Celles-ci étant plus élevées après irradiation, leur relaxation est donc aussi plus élevée.

3.2.5 Modélisation macroscopique empirique du comportement après irradiation

Afin de s'assurer de la cohérence de l'analyse du comportement mécanique décrite précédemment, à l'échelle macroscopique, un modèle simple, de type de ceux proposés par Chaboche (2008), a été développé pour simuler le comportement des alliages de zirconium recristallisés irradiés (Onimus et al., 2006). Les lois de comportement du matériau irradié sont choisies identiques à celles du matériau non irradié. Seul un terme de restauration statique de la contrainte isotrope a été ajouté. Les détails du modèle proposé sont donnés dans l'Annexe 2. Comme précédemment, l'intégration numérique et l'identification de ce modèle est réalisée grâce au logiciel SiDolo développé par P. Pilvin (Andrade-Campos et al., 2007). Les simulations sont comparées aux résultats expérimentaux sur la Figure 50. Sur la Figure 50 le comportement du matériau non irradié et irradié ont été superposés. On constate un excellent accord entre l'ensemble des essais et le modèle développé. Ce modèle permet ainsi de présenter une vision cohérente, et quantitative, de l'effet de l'irradiation sur le comportement mécanique des alliages de zirconium.

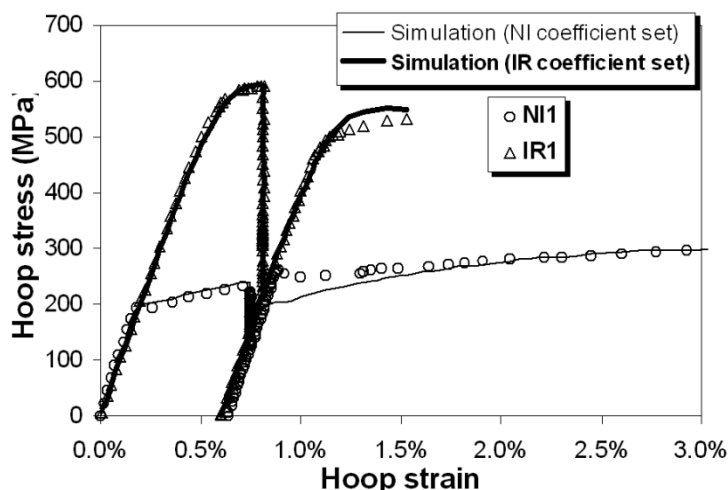


Figure 50 : Courbe contrainte circonférentielle-déformation circonférentielle d'essais de pression interne réalisés à 350°C sur des éprouvettes en alliage M5™ non irradiée (NI1) et irradiée (IR1). Les essais simulés avec le modèle macroscopique empirique sont comparés aux résultats expérimentaux.

En plus de donner une vision cohérente du comportement, ce modèle permet de recalculer les différentes composantes de la contrainte d'écoulement qui ne sont généralement pas accessibles lors d'essais conventionnels. Ainsi les composantes cinématique, isotrope athermique et isotrope visqueuse sont calculées et tracées sur la Figure 51. On vérifie notamment que l'irradiation a pour effet d'augmenter la composante isotrope de la contrainte d'écoulement. Cette augmentation correspond au durcissement par les boucles de dislocation qui sont des obstacles à courte distance et qui agissent donc sur la composante isotrope de la contrainte d'écoulement. La composante

cinématique simulée par le modèle est également plus élevée, conformément à l'analyse du comportement mécanique en termes de mécanismes de déformation.

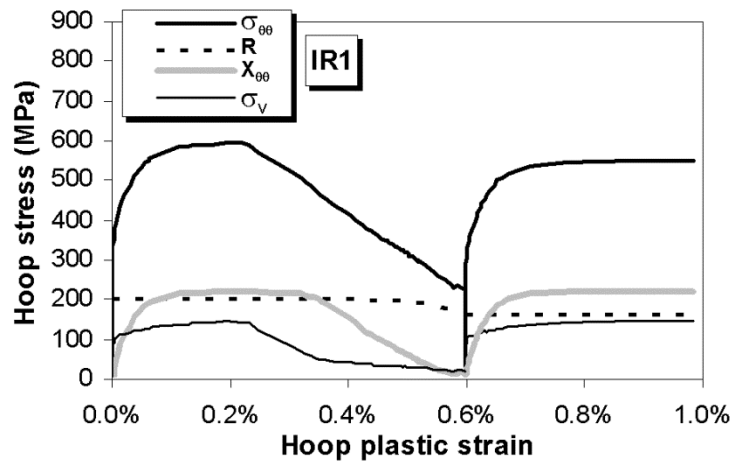


Figure 51 : Evolution des différentes composantes de la contrainte d'écoulement avec la déformation simulées grâce au modèle macroscopique.

3.2.6 Modélisation polycristalline du comportement des alliages de Zr irradiés

Le modèle décrit précédemment, bien qu'inspiré de l'analyse du comportement mécanique confrontée aux observations MET, reste de nature purement empirique. Le caractère polycristallin du matériau n'y est pas pris en compte, ni les modifications d'activation des systèmes de glissement. De plus, les lois adoptées ne font pas apparaître clairement par quel biais l'irradiation affecte les propriétés mécaniques. Il est en effet difficile avec ce type de modèle d'établir les liens entre propriétés et microstructure qui permettent de comprendre l'origine des modifications de comportement. De par son caractère purement empirique, il semble délicat d'utiliser ce modèle en dehors de son domaine d'identification.

Afin de disposer d'un modèle de comportement mécanique plus prédictif, mais également de mieux comprendre l'origine des modifications de comportement avec l'irradiation, un modèle polycristallin, adapté au comportement du matériau irradié, a été développé. Une première version avait été proposée (Onimus, 2003 ; Onimus et al., 2005) mais celle-ci souffrait de plusieurs faiblesses. Une nouvelle version a été développée en 2009 (Onimus & Béchade, 2009) qui s'appuie sur une procédure de changement d'échelle plus classique et des lois intra-granulaires relativement simples. Là encore la simplicité de l'approche a été privilégiée, afin de limiter le nombre de paramètres ajustables et ainsi rendre le modèle plus robuste.

Le modèle polycristallin développé, présenté en détail dans l'Annexe 3, s'appuie sur la démarche de Cailletaud (1992) et Pilvin (1994), déjà décrite brièvement au Chapitre 2. Une relation de localisation explicite est postulée. Les paramètres de cette relation de localisation sont ajustés à l'échelle microscopique sur des simulations réalisées avec le modèle de Berveiller-Zaoui qui est lui auto-cohérent. Le comportement adopté est quasi-élastoplastique, afin de rester dans le cadre d'application du modèle de Berveiller-Zaoui (1979). Seules les lois de comportement intra-granulaires sont modifiées afin de prendre en compte les effets de l'irradiation.

Le durcissement induit par l'irradiation est pris en compte par l'augmentation des cissions critiques des différents systèmes de glissement. Pour le glissement basal, le durcissement a été pris en compte par l'introduction explicite de la densité de boucles $\langle a \rangle$ qui agissent comme obstacles au glissement des dislocations. Selon le modèle de durcissement par barrières dispersées, le durcissement dû aux boucles s'exprime sous la forme donnée par l'équation 3.1.

$$\tau_B^c = \tau_B^{c0} + \alpha_B \mu b \sqrt{\rho_l} \quad \text{avec} \quad \rho_l = Nd \quad (3.1)$$

Puisque seule la canalisation dans le plan basal a été observée lors des sollicitations de pression interne et de traction sens travers à 350°C, il a été choisi de ne considérer le balayage des boucles que selon les systèmes basaux. Les trois systèmes basaux peuvent contribuer au balayage des boucles dans le canal, la densité de boucles diminue donc selon l'équation 3.2.

$$\frac{d\rho_l}{dt} = -k_B \rho_l \left[\sum_{s \in B} |\dot{\gamma}_s| \right] \quad (3.2)$$

avec $\rho_l = Nd$, $\rho_l(0) = N_0 d$, $k_B = H/b$, $N_0 = 5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et $d = 10 \text{ nm}$.

Pour les autres systèmes de glissement, un comportement plastique parfait, sans écrouissage ni adoucissement a été considéré. En effet, bien qu'aucun canal n'ait été observé selon ces autres systèmes pour les sollicitations de traction sens travers et de pression interne, il n'est pas exclu que ces systèmes s'activent faiblement, afin d'accommoder les contraintes élevées dans certains grains mal orientés pour le glissement basal. Les cissions critiques de ces systèmes doivent néanmoins rester élevées afin que les activités simulées des systèmes soient cohérentes avec les observations expérimentales. Le durcissement d'irradiation pour les autres systèmes de glissement est donc pris sous la forme donnée par l'équation 3.3.

$$\tau_s^c = \tau_s^{c0} + \Delta \tau_s^c, \quad \text{avec} \quad \Delta \tau_s^c \text{ étant constant pour } s \neq B \quad (3.3)$$

En ce qui concerne la loi d'écoulement, celle-ci est modifiée afin de prendre en compte un terme d'écrouissage cinématique intra-granulaire (Eq. 3.4).

$$\dot{\gamma}_s = \left\langle \frac{|\tau_s - x_s| - \tau_s^c}{K} \right\rangle^n \text{sign}(\tau_s - x_s) \quad (3.4)$$

Ce terme d'écoulement cinématique intra-granulaire revêt un caractère semi-empirique. En effet, celui-ci permet de prendre en compte les contraintes internes en retour, ou « back stress », générées par les fortes incompatibilités de déformation résultant de la localisation de la déformation au sein des grains (Figure 52).

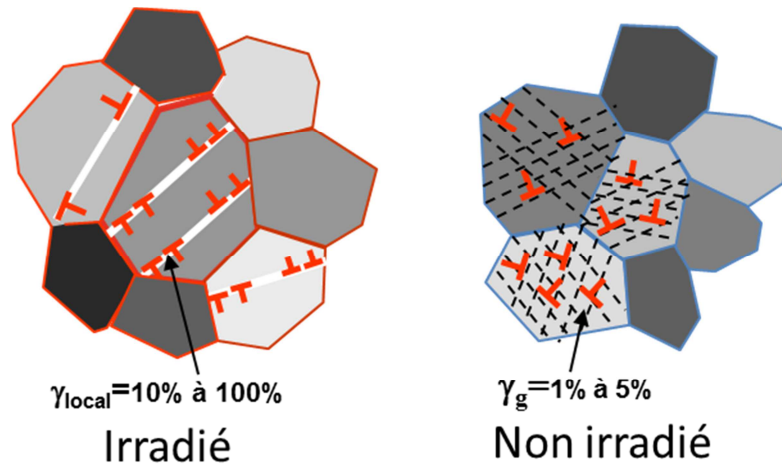


Figure 52 : Représentation schématique des différences entre les mécanismes de déformation se produisant dans le matériau irradié et le matériau non irradié.

L'écoulement cinématique intra-granulaire suit une loi d'évolution classique telle que celles proposées par Meric et Cailletaud (1991a, 1991b).

$$x_s = 0 \quad \text{pour les systèmes de glissement non basaux } (s \neq B)$$

$$\text{et } \dot{x}_s = C_B \dot{\gamma}_s - D_B x_s |\dot{\gamma}_s| \quad \text{pour les systèmes de glissement basaux } (s \in B), \quad (3.5)$$

avec $x_s(t=0) = 0$.

Des essais monotones de traction en sens travers et de pression interne ont tout d'abord été simulés. Après identification des paramètres, un bon accord est obtenu à l'échelle macroscopique (Figure 53).

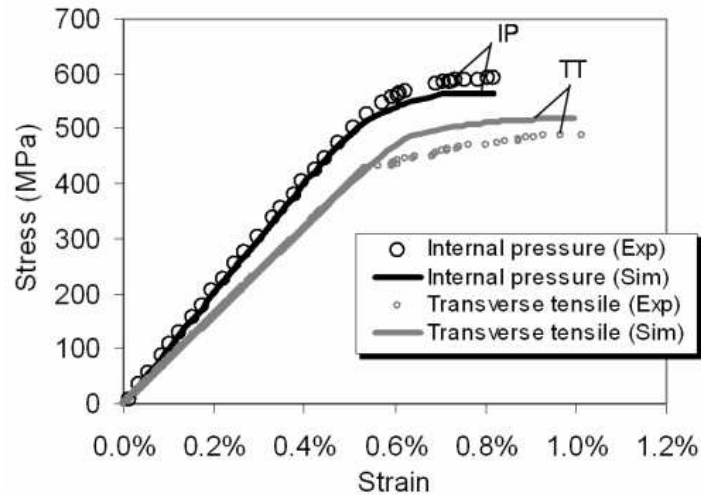


Figure 53 : Matériau irradié. a) Simulations des essais de pression interne (IP) et de traction sens travers (TT), b) comparaison des courbes contrainte-déformation pour quatre grains de référence.

Le modèle identifié a été ensuite utilisé pour simuler des essais de fatigue oligo-cyclique en traction-compression disponibles dans la littérature (Wisner et al., 1994). Ces essais ont été réalisés à 350°C sur des éprouvettes de Zircaloy-2 recristallisé non irradié et irradié prélevées suivant la direction transverse d'une tôle épaisse. Lors de ces essais un fort effet Bauschinger a pu être noté après irradiation (Figure 54(a)). De plus les auteurs ont constaté l'apparition d'un adoucissement cyclique après irradiation (Figure 54(b)). Cet adoucissement cyclique avait d'ailleurs été attribué par les auteurs eux-mêmes au phénomène de balayage des boucles et de canalisation des dislocations. La simulation de ces essais cycliques à l'aide du modèle polycristallin identifié sur des essais monotones permet de très bien reproduire le fort effet Bauschinger observé. De plus, comme un adoucissement intra-granulaire a été introduit explicitement dans le modèle, du fait du balayage des boucles lorsque le glissement basal est activé, le modèle reproduit également l'adoucissement cyclique constaté à l'échelle macroscopique. L'évolution linéaire tracée sur la courbe expérimentale a été interpolée à partir des valeurs de la contrainte maximale au premier cycle et au 35^{ème} cycle, les points expérimentaux intermédiaires n'étant pas connus pour le matériau irradié. L'adéquation satisfaisante entre la simulation de ces essais et les résultats expérimentaux valide donc le modèle à l'échelle macroscopique (Onimus & Béchade, 2009, Onimus et al., 2013a).

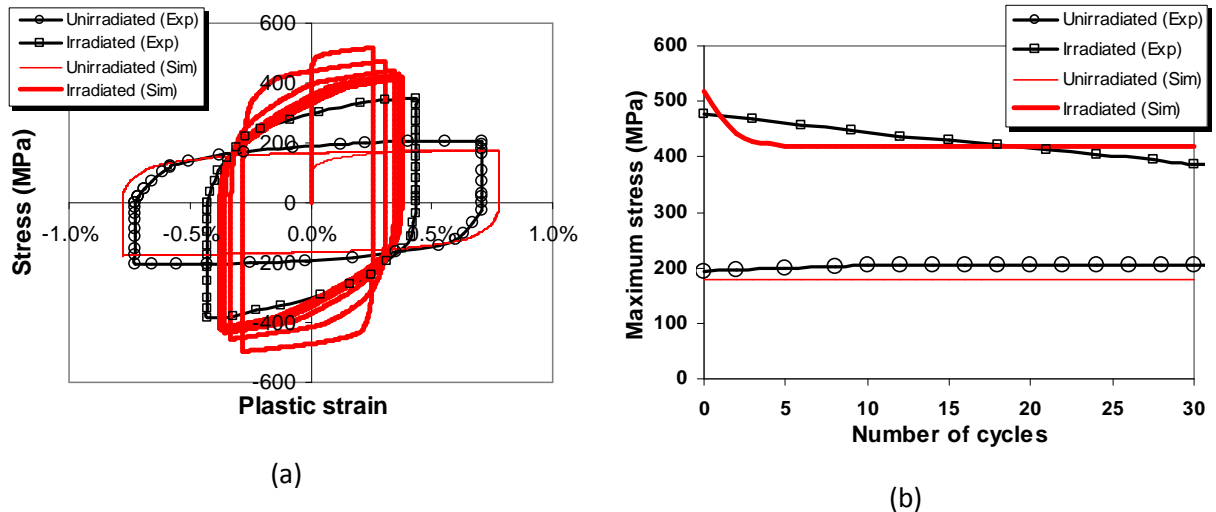


Figure 54 : Comparaison entre simulation et expérience des essais de traction compression cyclique. (a) Courbe contrainte-déformation plastique, (b) évolution de la contrainte maximum en fonction du nombre de cycles. Les résultats expérimentaux sont déduits de l'article de Wisner et al. (1994).

Puisque dans le modèle les différents systèmes de glissement et les différentes orientations cristallographiques caractéristiques de la texture sont prises en compte, il est également possible d'avoir accès à un certain nombre de données microscopiques qui peuvent être comparées aux résultats des observations MET. Ainsi, les activités des différents systèmes de glissement moyennées sur l'ensemble du polycristal ont tout d'abord été calculées. Celles-ci sont conformes aux observations MET. En effet, dans tous les cas c'est le glissement basal qui est majoritairement activé dans ces simulations. Mais les simulations donnent accès à des données microscopiques encore plus précises que les activités globales des différents systèmes. En effet, pour chaque grain observé en MET les trois angles d'Euler, caractéristiques de l'orientation du grain, sont connus. Ainsi en introduisant dans la simulation, grâce à une procédure adaptée, l'orientation de ces grains, les vitesses de cisaillement de chaque système de glissement de chacun de ces grains peut être connue et comparées aux observations MET. Une sélection des observations MET réalisées a permis d'identifier 71 cas d'activation ou de non activation du glissement basal, prismatique ou bien pyramidal $\langle c+a \rangle$. L'analyse des simulations montre que le modèle prédit correctement l'activation des systèmes de glissement dans 64 cas sur les 71 cas considérés. En somme, le modèle prédit correctement l'activation des systèmes de glissement dans plus de 90% des cas ! Ceci montre que le modèle, en plus d'être validé à l'échelle macroscopique est également validé à l'échelle microscopique (Onimus et al., 2013a).

Afin d'aller encore plus loin vers une meilleure compréhension et prédiction du comportement mécanique et des mécanismes de déformation des alliages de zirconium irradiés, de nouveaux essais

originaux ont été proposés. Grâce à l'utilisation d'une machine d'essais dite « biaxée », c'est-à-dire permettant le contrôle de l'état de biaxialité en modifiant séparément la pression interne et la force axiale imposée sur un tube, des essais de changement de trajet de chargement peuvent être réalisés. Une machine de ce type étant disponible en cellule blindée, ces essais originaux ont pu être récemment réalisés sur des alliages de zirconium irradiés en alternant successivement des essais de pression interne et des essais de traction axiale. Ceux-ci mettent notamment en évidence un adoucissement cyclique prononcé pour la sollicitation de pression interne, confirmant ainsi l'interprétation du comportement mécanique proposée ainsi que le modèle développé.

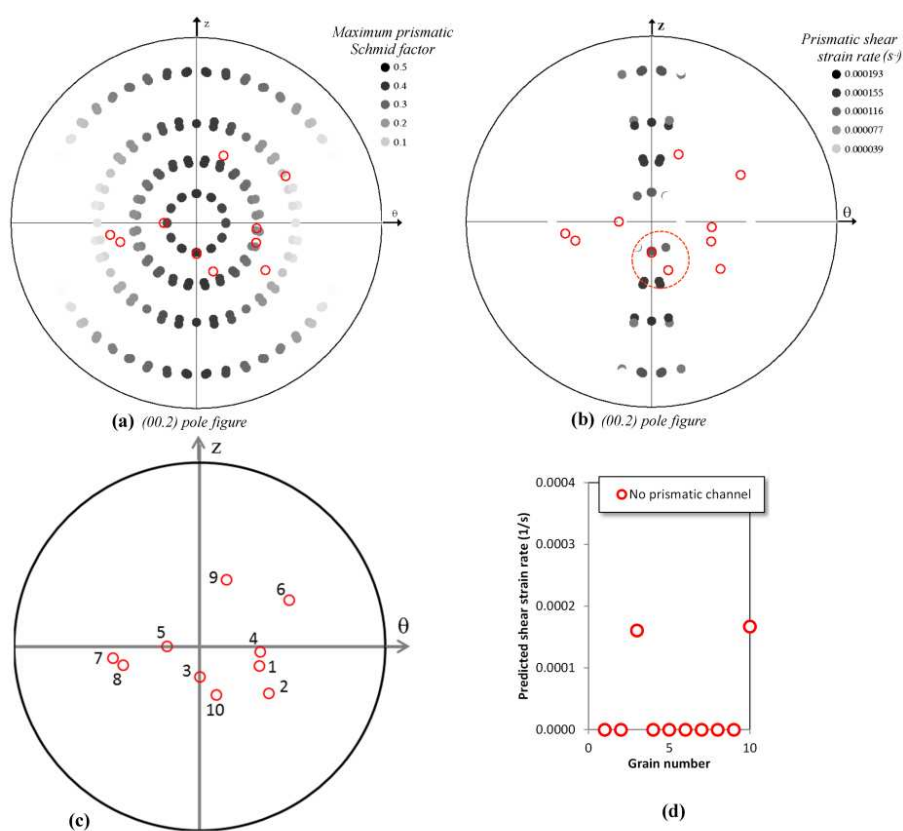


Figure 55 : (a) Facteur de Schmid maximum du système prismatique. (b) et (d) vitesse de cisaillement du système prismatique. (c) Grains étudiés dans l'échantillon 1 indiqués sur la figure de pôles (0002) avec leur numéro. L'absence de canal est indiquée par un cercle vide. Les désaccords entre modèle et expérience sont indiqués par un large cercle pointillé.

La mise en évidence de l'importance de l'érouissage cinématique sur le comportement des alliages de zirconium irradiés suggère aux industriels du nucléaire de préférer l'utilisation de modèles de comportement, opérationnels, prenant en compte l'érouissage cinématique plutôt que des modèles ne considérant qu'un érouissage isotrope.

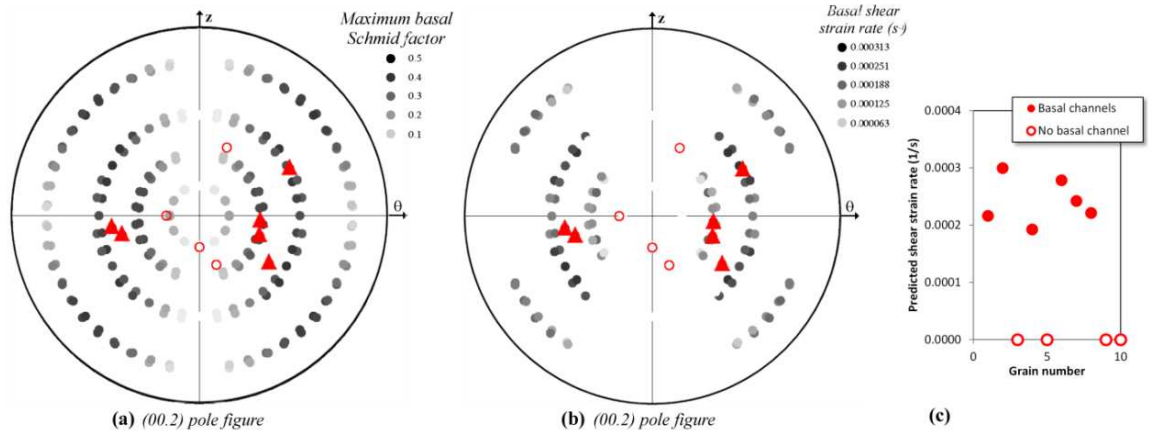


Figure 56 : Echantillon 1. (a) Facteur de Schmid basal maximum. (b) et (c) vitesse de cisaillement du système basal. La présence de canaux basaux est indiquée par des triangles remplis. L'absence de canal basal est indiquée par des cercles vides.

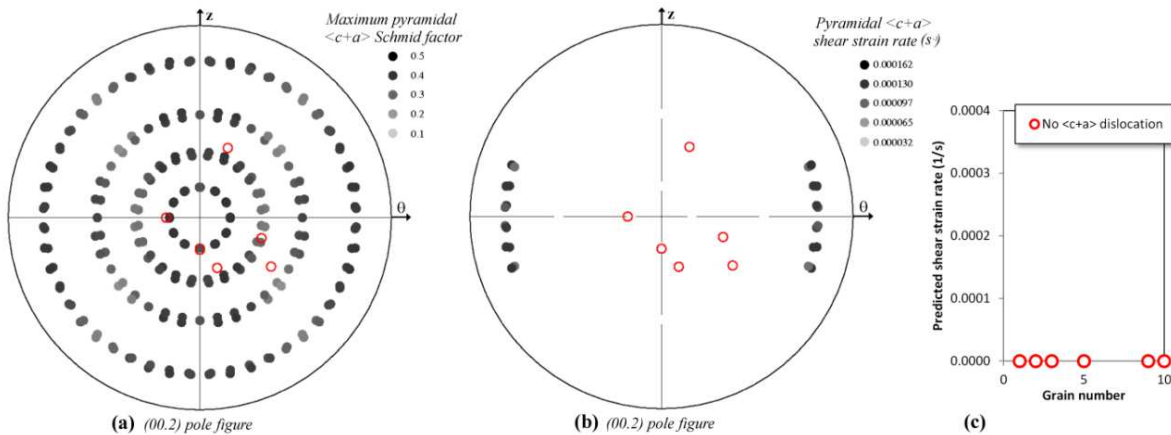


Figure 57 : Echantillon 1. (a) Facteur de Schmid pyramidal $\langle c+a \rangle$ maximum. (b) et (c) vitesse de cisaillement du système pyramidal $\langle c+a \rangle$. L'absence de dislocation $\langle c+a \rangle$ est indiquée par des cercles vides.

3.2.7 Conclusions et perspectives

Sans revenir sur les nombreux acquis de cette longue étude, on note que des avancées majeures ont pu être réalisées dans la compréhension et la modélisation du comportement des alliages de zirconium irradiés. En particulier, le mécanisme de déformation par canalisation des dislocations est maintenant bien compris et caractérisé. Ses conséquences sur le comportement macroscopique sont également mieux comprises. Une modélisation physique du comportement du matériau polycristallin a de plus été développée et la bonne prédiction de différents phénomènes à la fois à l'échelle macroscopique comme à l'échelle microscopique permet d'extrapoler les prédictions de ce modèle hors de sa base d'identification avec une certaine confiance. Malgré tous ces acquis, de nombreuses perspectives se dégagent encore.

Des études complémentaires du mécanisme de canalisation des dislocations pourraient encore être réalisées, notamment en étudiant des échantillons irradiés par des protons (Fournier et al., 2009). En effet, dans ce cas l'épaisseur irradiée correspond à six grains ce qui permet l'étude des mécanismes de déformation en s'affranchissant, dans une certaine mesure, de l'influence de la partie non irradiée du matériau. Dans ce but, un montage spécifique a été développé, dans le cadre de ces projets, en s'inspirant du montage de l'Université du Michigan (USA) utilisant de l'indium liquide permettant de garantir un bon contrôle de la température des échantillons. Ce montage devrait être prochainement disponible.

A l'échelle des interactions élémentaires entre dislocations et boucles, de nombreuses expériences de traction *in situ* en MET sont encore à réaliser, notamment sur des microstructures contenant de plus grandes boucles.

A l'échelle macroscopique, de nouveaux essais de changement de trajet sur matériau irradié aux neutrons devraient être réalisés, afin de mieux quantifier la part de l'écroissage cinématique dans le comportement des alliages de zirconium recristallisés irradiés.

Du point de vue de la modélisation multi-échelle, il est très important de poursuivre les simulations par dynamique des dislocations des interactions élémentaires entre dislocations et boucles en comparant systématiquement celles-ci aux simulations numériques de dynamique moléculaire disponible dans la littérature ainsi qu'à de nouveaux résultats expérimentaux de traction *in situ* en MET. Ces comparaisons valident en effet la compréhension des mécanismes élémentaires et valident également l'outil de simulation. Ainsi, grâce à cet outil validé, il sera possible de réaliser des simulations de dynamique des dislocations, à grande échelle, d'un grain contenant une grande densité de boucles et ainsi simuler la formation d'un canal pour, *in fine*, en déduire la loi de comportement du grain individuel. Cette loi pourrait alors être introduite dans un modèle polycristallin, ou bien en champ complet, permettant d'en déduire le comportement du matériau irradié.

Du point de vue de la modélisation polycristalline, malgré les très bons résultats obtenus avec le modèle, des améliorations sont encore possibles, en particulier pour ce qui concerne la simulation des essais de traction axiale. Par ailleurs, il serait nécessaire d'utiliser une autre approche que la méthode de Cailletaud-Pilvin qui n'est pas réellement fondée du point de vue théorique. Un modèle du type de celui proposé par Brenner (2001) serait sans doute plus adapté. Par ailleurs des simulations en champ complet pourraient aussi être menées (Gélébart & Mondon-Cancel, 2013).

3.3 Etude expérimentale et modélisation du comportement des alliages de zirconium irradiés après recuits, lors du fluage ou après fluage

Comme cela a été décrit dans le chapitre introductif, après utilisation, l'assemblage combustible est transporté jusqu'à un site de retraitement ou d'entreposage. Lors de cette phase de transport la gaine du crayon combustible atteint des températures relativement élevées, jusqu'à 420°C. L'étape de transport peut, dans certaines situations incidentelles, durer plusieurs mois. Le matériau subit donc un traitement thermique lors de cette étape de transport, traitement thermique qui a des conséquences sur sa microstructure et donc sur ses propriétés mécaniques.

De plus, du fait de cette augmentation de température, la pression des gaz de fission augmente dans le crayon conduisant au fluage de la gaine par pression interne. L'augmentation de diamètre de la gaine lors de cette étape de transport doit rester limitée afin de garantir la non-dissémination d'éléments radioactifs à l'intérieur de l'emballage du combustible utilisé. Afin de comprendre et prédire l'évolution des propriétés ainsi que la déformation de fluage lors du transport ou de l'entreposage à sec de l'assemblage combustible, une étude expérimentale et une démarche de modélisation multi-échelle a été entreprise dans le cadre de la thèse de J. Ribis dès 2004 (Ribis, 2008).

3.3.1 Caractérisation de l'évolution des défauts d'irradiation lors de recuits

Dans un premier temps, différents traitements thermiques ont été conduits de 350°C à 450°C, pendant des durées allant de 50 à 960 heures, sur des morceaux de gaines en alliage M5TM irradiées en réacteur. Après traitements thermiques des essais de micro-dureté (Figure 58) ont été réalisés sur de petits tronçons de gaine (Ribis, 2008 ; Ribis et al., 2008 ; Ribis et al., 2010 ; Bourdilliau et al., 2010).

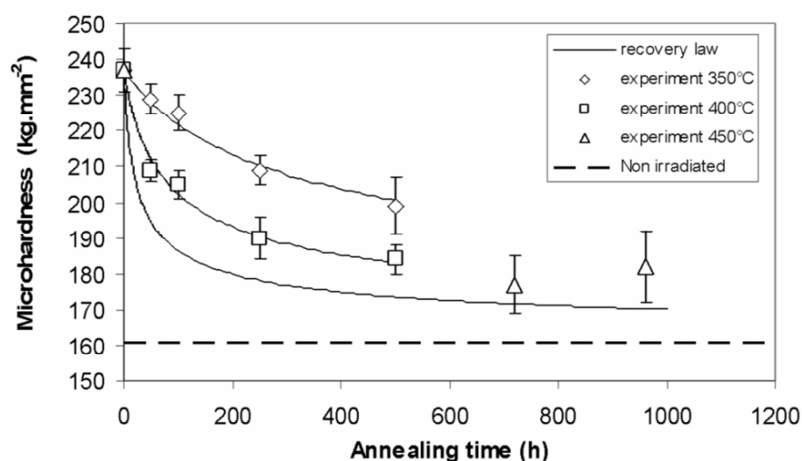


Figure 58 : Restauration de la microdureté lors de traitements thermiques réalisés sur des tronçons de gaines en M5TM irradié. La loi empirique ajustée est également comparée aux résultats expérimentaux.

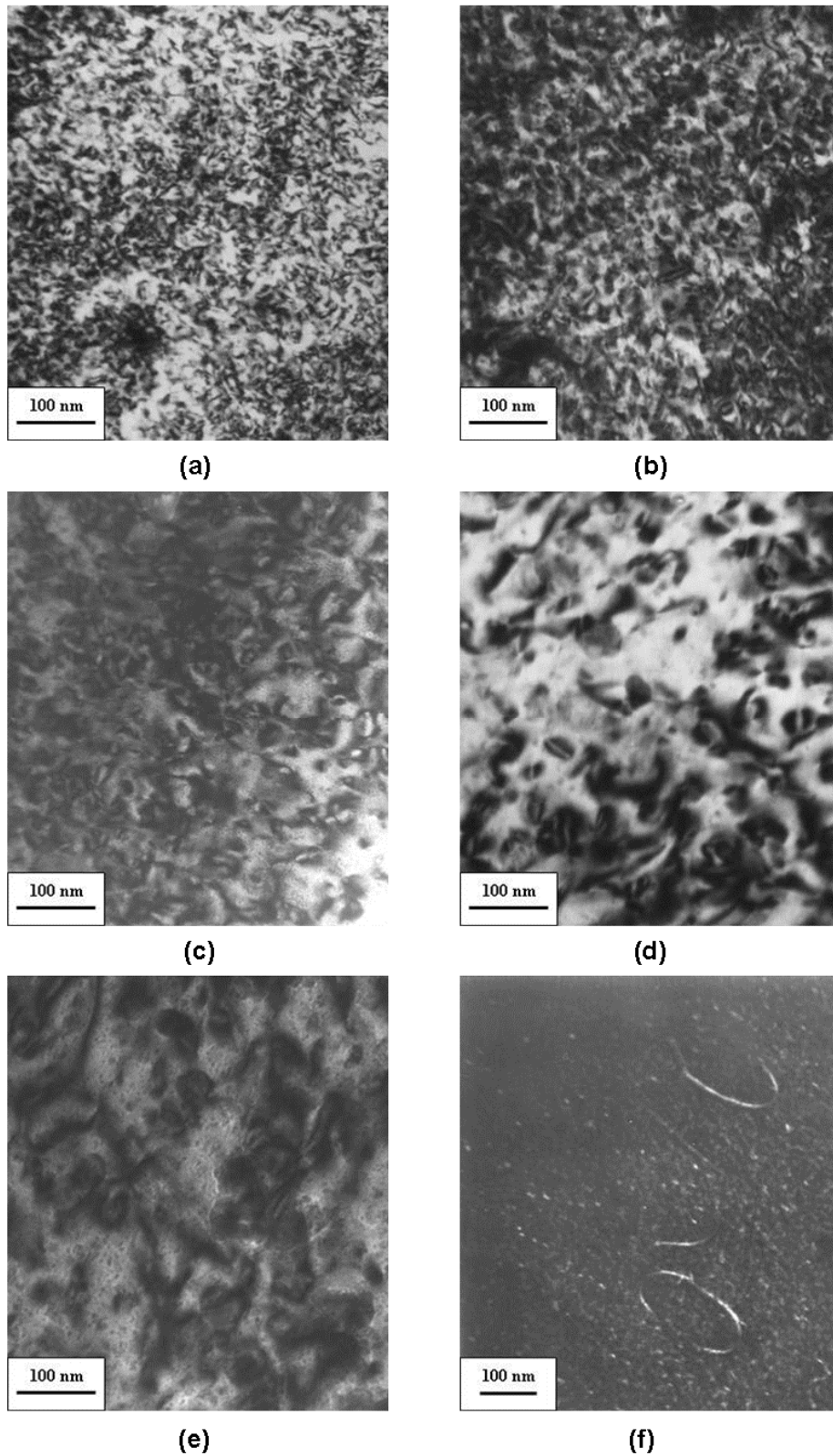


Figure 59 : Evolution de la microstructure de défauts d'irradiation lors de traitements thermiques. (a) brut d'irradiation, (b) 250 h à 350°C, (c) 500°C à 350°C, (d) 250 h à 400°C, (e) 500 h à 400°C, (f) 960 h à 450°C.

De plus des lames minces ont été prélevées, dans ces tronçons après recuits, afin de caractériser la microstructure de défauts d'irradiation après traitements thermiques par microscopie électronique en transmission.

Les essais de micro-dureté ont montré une restauration significative du durcissement d'irradiation (Figure 58). La cinétique de restauration de la dureté a été caractérisée en ajustant une loi empirique (Dollins, 1972) sur les données expérimentales. La fraction de dureté restaurée est définie selon l'équation 3.6, la fraction de durcissement d'irradiation restante étant donc égale à $1-f$.

$$f = \frac{H_{AsIrr} - H(t)}{H_{AsIrr} - H_{UnIrr}} \quad (3.6)$$

La loi d'évolution de la fraction de dureté restaurée est donnée par l'équation 3.7.

$$\frac{df}{dt} = k(1-f)^n \quad \text{avec} \quad k = k_0 \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right) \quad (3.7)$$

Dans le cas de l'alliage M5TM, les coefficients de la loi de restauration identifiée sont $n=3.1$, $k_0=3.8 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$, and $Q=1.075 \text{ eV}$.

Il est intéressant de noter que bien que la loi identifiée converge, par construction, vers la valeur de la dureté du M5TM non irradié, les résultats expérimentaux ne semblent pas converger vers cette valeur. La dureté semble en effet rester toujours supérieure à la dureté du M5TM non irradié.

Parallèlement, les observations MET (Figure 59) conduites ont permis de mettre en évidence que lors des traitements thermiques la densité de boucles (N) diminue et dans le même temps, le diamètre moyen des boucles ($\langle d \rangle$) augmente (Figure 60). La distribution cumulée de taille de boucles montre également un décalage progressif de la distribution vers les grandes tailles (Figure 60).

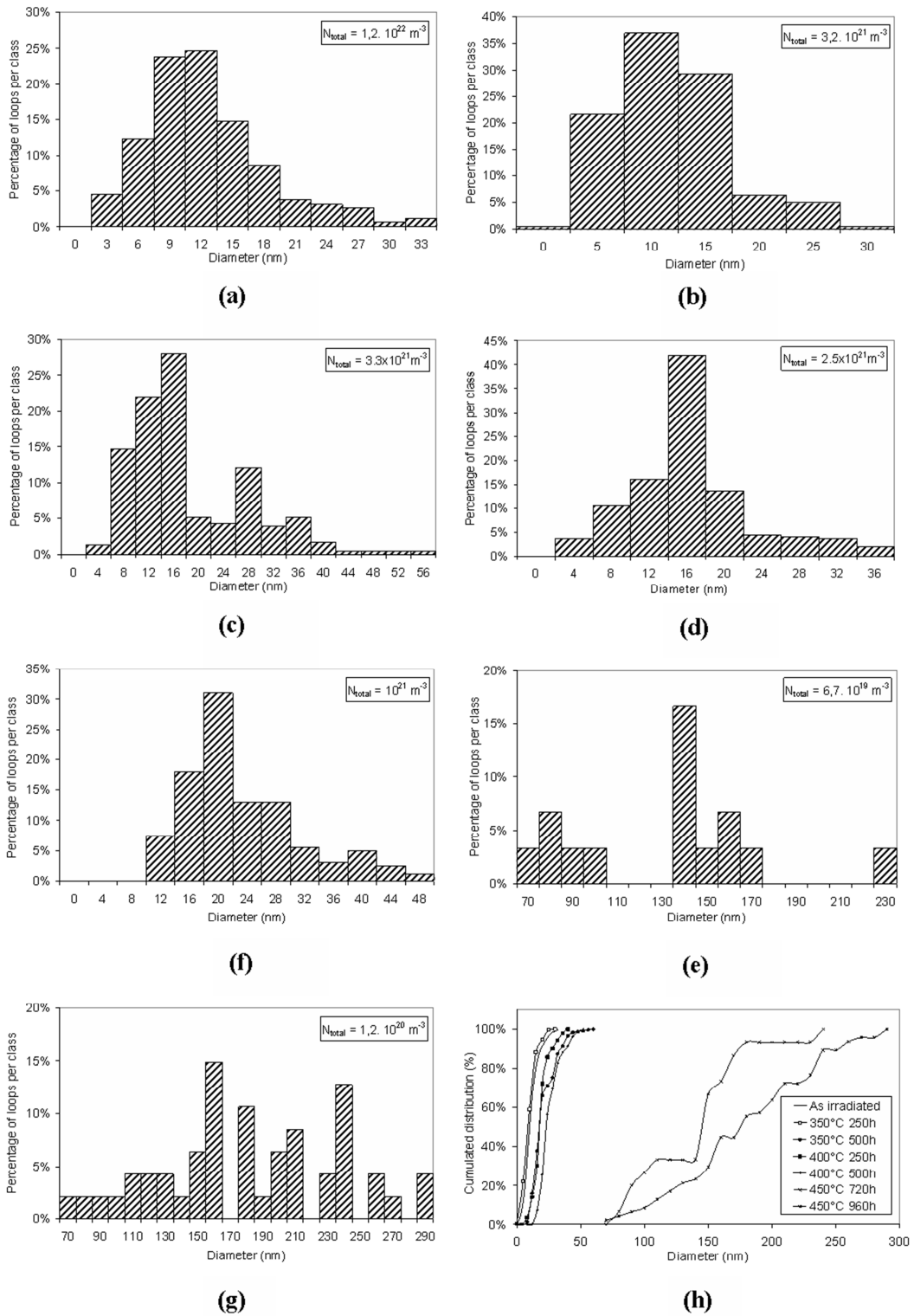


Figure 60 : Histogramme de distributions de taille de boucles au cours des recuits. (a) brut d'irradiation, (b) 250 h à 350°C, (c) 500 h à 350°C, (d) 250 h à 400°C, (e) 500 h à 400°C, (f) 720 h à 450°C (130 MPa), (g) 960 h à 450°C, (h) distribution cumulée des diamètres de boucles.

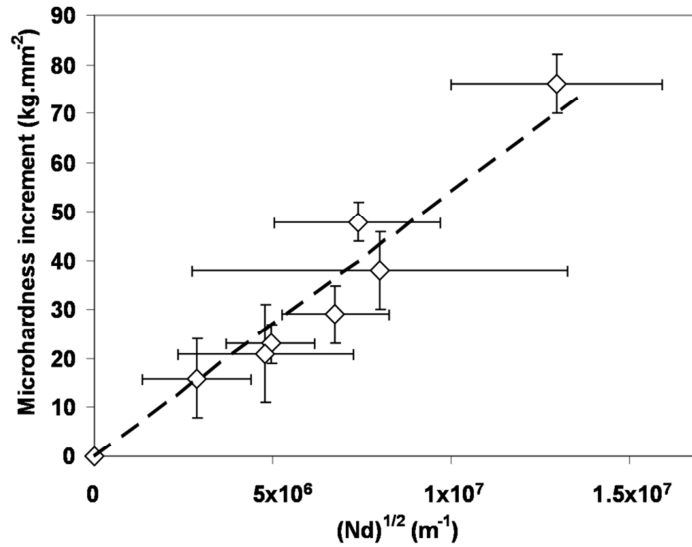


Figure 61 : Corrélation entre micro-dureté et densité et taille de boucles, mesurées après des recuits menés sur des échantillons en MSTM irradiés.

En considérant un modèle de durcissement simple, dit de durcissement par barrières dispersées, analogue à l'écroûissage par la forêt (Eq. 3.8), on constate qu'il existe une bonne corrélation entre microdureté et microstructure de boucles (Figure 61). Ceci tend donc à prouver que c'est bien ce mécanisme de durcissement par barrières dispersées qui est responsable de l'augmentation de la dureté du matériau avec l'irradiation.

$$\Delta H_v = CM\alpha\mu b\sqrt{N\langle d \rangle} \quad (3.8)$$

Où N est la densité de boucles, $\langle d \rangle$ le diamètre moyen, μ le module de cisaillement, b le vecteur de Burgers, α un coefficient caractéristique de la résistance des boucles, M le facteur de Taylor et C le coefficient de proportionnalité qui relie la limite d'élasticité et la micro-dureté.

Une caractérisation fine de ces boucles par MET, en utilisant les changements de contraste des boucles (méthode dite de contraste interne/externe) a permis de montrer qu'au début du recuit les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires et interstitielles (Figure 62) sont présentes en proportion équivalente. Au fur et à mesure du recuit la proportion de boucles lacunaires augmente, démontrant que les boucles interstitielles disparaissent plus rapidement que les boucles lacunaires. Après un recuit à 450°C et durant près de 1000 heures, seules de très grandes boucles lacunaires restent dans le matériau. Ces boucles sont peut-être des boucles de vecteur de Burgers $\langle a \rangle$ qui ont fortement grandi. Il est également possible que ces boucles soient des boucles lacunaires de vecteur de Burgers $\langle c \rangle$ parfaites, dans le plan de base, qui sont connues pour être très stables lors d'un recuit.

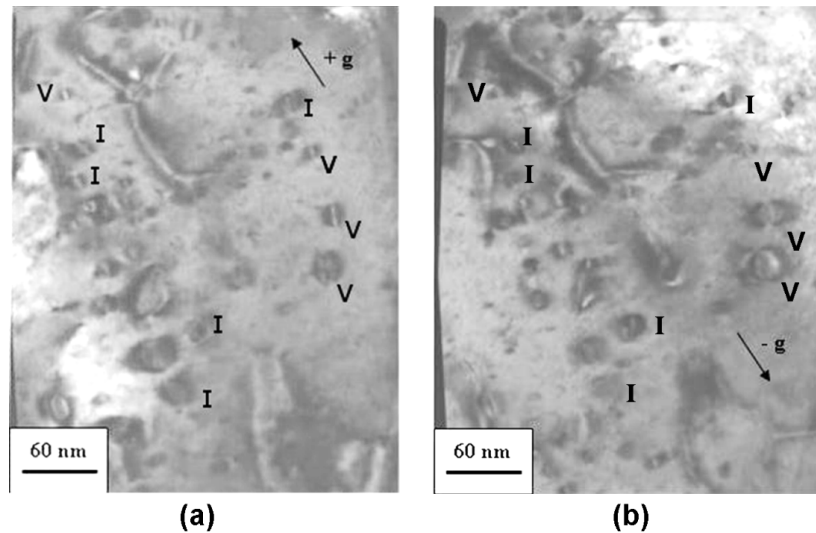


Figure 62 : Microstructure après recuit pendant 240 heures à 400°C. Le contraste des boucles est modifié (interne ou externe) lorsque le sens du vecteur de diffraction \underline{g} est modifié. (a) $+\underline{g} = 1\bar{2}1\bar{2}$, (b) $-\underline{g} = \bar{1}2\bar{1}2$.

Après recuit, des nano-précipités de niobium ont clairement pu être mis en évidence. Ces nano-précipités de niobium apparaissent sous irradiation (Doriot et al., 2005) par un phénomène de précipitation accélérée par l'irradiation comme cela a été décrit précédemment. Plusieurs observations MET montrent des dislocations accrochées sur ces nano-précipités. Compte tenu de leur très grande densité ces nano-précipités contribuent vraisemblablement au durcissement constaté. Puisque ceux-ci restent présents après recuit, ils expliquent probablement le durcissement résiduel constaté même après un traitement thermique de 40 jours à 450°C.

3.3.2 Mécanismes de recuit des boucles créées par l'irradiation

Le phénomène de recuit des boucles lors d'un traitement thermique a été discuté en détail dans le cadre du travail de thèse de J. Ribis (2008), en se basant sur des approches théoriques décrites dans la littérature. En effet, bien que sous irradiation les concentrations en défauts ponctuels (auto-interstitiels et lacunes) soient extrêmement élevées, lorsque l'irradiation est interrompue et le matériau est progressivement ramené à la température ambiante, la concentration en défauts ponctuels retombe à des valeurs proches de la concentration d'équilibre thermodynamique. Lors d'un recuit à 400°C par exemple, la concentration d'équilibre thermodynamique des lacunes augmente légèrement, mais surtout, la mobilité des lacunes est augmentée. Les auto-interstitiels sont, quant à eux, absents lors d'un recuit. Des flux de lacunes vers les différents objets du matériau se mettent alors en place. Ce sont ces flux qui contrôlent la restauration du dommage d'irradiation lors du traitement thermique.

Compte tenu de son énergie de ligne, une boucle de dislocation lacunaire a tendance à émettre des lacunes afin de réduire son périmètre. Une surconcentration en lacune apparaît donc à proximité de la boucle lacunaire. En se basant sur des considérations théoriques, il est possible de montrer que la surconcentration en lacunes à proximité de la boucle lacunaire s'exprime selon l'équation 3.9.

$$c_v = c_v^0 \exp\left(\frac{\tau V_{at}}{rbkT}\right) \quad (3.9)$$

La grandeur c_v^0 correspond à la concentration de lacunes à l'équilibre thermodynamique, τ est l'énergie de tension de ligne, V_{at} est le volume atomique, b le vecteur de Burgers, T est la température en Kelvin, k la constante de Boltzmann et r le rayon de la boucle.

Cette analyse montre que la concentration de lacunes autour d'une boucle lacunaire est supérieure à la concentration d'équilibre thermodynamique. Si la matrice contient des lacunes avec une concentration correspondant à la concentration d'équilibre thermodynamique, la boucle émet des lacunes qui diffusent vers la matrice du matériau et le diamètre de la boucle diminue. La croissance de la boucle lacunaire ne peut donc se produire qu'en présence d'une sursaturation de lacunes. La concentration de lacunes dans la matrice est complexe à calculer tout au long du recuit car elle est le résultat de l'émission et de l'absorption simultanées de lacunes par les boucles et les joints de grain.

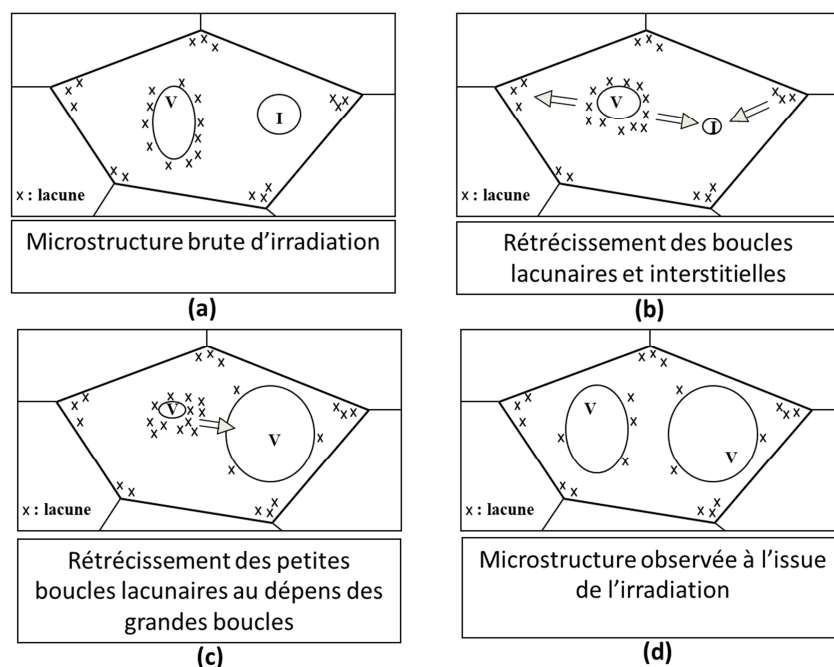


Figure 63 : Schéma décrivant les différents flux de lacunes et les différents phénomènes qui se produisent lors du recuit du dommage d'irradiation. (a) microstructure à l'issue de l'irradiation, (b) flux de lacunes des boucles lacunaires vers les joints de grains et vers les boucles interstitielles et flux de lacunes des joints de grains vers les boucles interstitielles conduisant à leur rétrécissement. (c) Flux de lacunes des petites boucles lacunaires vers les grandes boucles lacunaires. (d) Grandes boucles lacunaires observées à l'issue du recuit.

La concentration en lacunes près d'un joint de grain étant égale à la concentration d'équilibre thermodynamique, un flux de lacunes (i) se produit de la boucle lacunaire vers le joint de grain, conduisant à une diminution progressive du diamètre de la boucle (Figure 63(b)). On constate de plus, lorsque l'on considère la formule 3.9, que la concentration d'équilibre des lacunes autour d'une boucle lacunaire de petite taille est plus élevée que celle autour d'une boucle lacunaire de grande taille. Là encore un flux de lacunes (ii) apparaît donc provenant de la boucle de petite taille et allant vers la boucle de grande taille (Figure 63(c)), conduisant ainsi à la disparition progressive des petites boucles et à la croissance des grandes boucles. Ce phénomène explique donc la diminution progressive de la densité de boucles et l'augmentation du diamètre moyen des boucles. Puisque dans les alliages de zirconium sont présentes à la fois des boucles <a> lacunaires et interstitielles, les boucles interstitielles évoluent également au cours du recuit. La formule 3.9 s'écrit pour des boucles interstitielles sous la forme de l'équation 3.10.

$$c_v = c_v^0 \exp\left(-\frac{\tau V_{at}}{rbkT}\right) \quad (3.10)$$

L'équation 3.10 montre que la concentration de lacunes autour d'une boucle interstitielle est inférieure à la concentration d'équilibre thermodynamique. Le matériau étant dans une situation de légère sursaturation en lacunes lors du recuit, un flux de lacunes (iii) se produit donc des joints de grains vers les boucles interstitielles, conduisant ainsi à leur disparition progressive (Figure 63(b)). Ceci explique qu'à l'issue d'un long recuit (près de 1000 h) réalisé à 450°C, seules des boucles lacunaires soient observées (Figure 63(d)).

3.3.3 Simulation du recuit des défauts d'irradiation par dynamique d'amas

Ces phénomènes ont pu être simulés, avec l'aide de A. Barbu (SRMP/CEA), grâce à un code de dynamique d'amas. La méthode de dynamique d'amas consiste en une description en champ moyen de la microstructure d'un matériau. Cette microstructure se caractérise par des puits (dislocations, joints de grains) ainsi qu'une distribution en taille d'amas lacunaires et interstitiels, l'ensemble étant réparti de façon homogène dans le matériau. Il n'y a donc pas de description spatiale dans ce code. Le matériau est donc un milieu qui absorbe les défauts ponctuels de façon homogène.

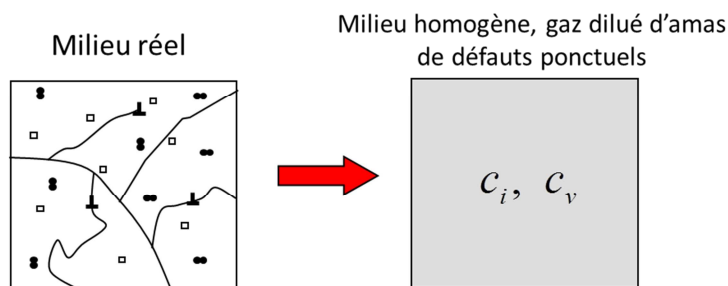


Figure 64 : Modélisation du milieu réel sous la forme d'un milieu homogène dans l'approche en champ moyen.

Le code calcule, par l'intermédiaire d'équations différentielles couplées, l'évolution de la concentration en amas de défauts ponctuels. La concentration en lacunes, par exemple, augmente sous irradiation lors de la création de paires de Frenkel par choc balistique (Figure 65), diminue lors de la recombinaison entre une lacune et un interstitiel, diminue par absorption des lacunes sur les différents puits du matériau (dislocations, joints de grain ou surface) et enfin diminue lors de l'agglomération des lacunes sur des amas lacunaires ou des amas interstitiels.

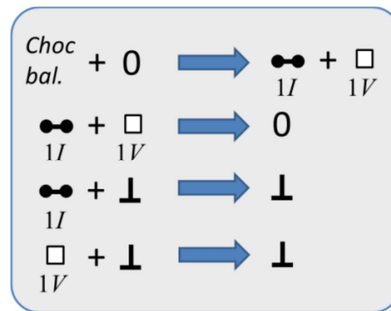


Figure 65 : Schéma décrivant les différents processus qui se produisent sous irradiation et qui expliquent l'évolution de la concentration des défauts ponctuels.

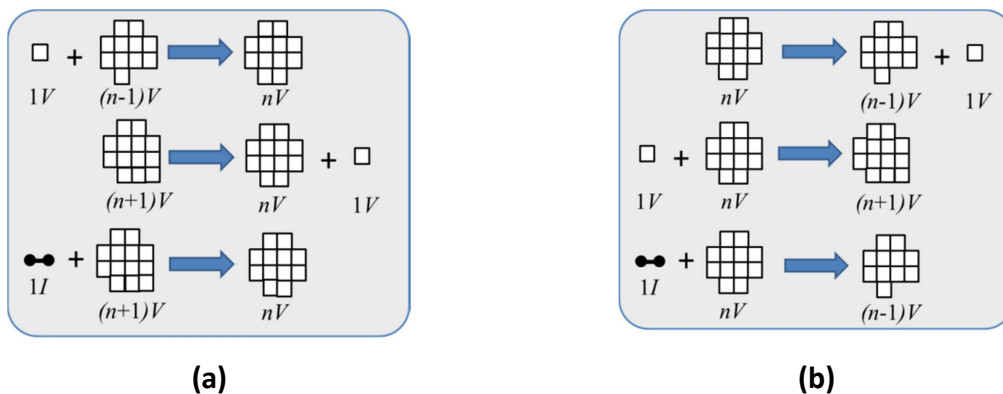


Figure 66 : Schémas décrivant l'évolution des amas de défauts ponctuels sous irradiation.

Pour ce qui concerne la concentration en amas, par exemple lacunaires, de taille n , celle-ci augmente i) lorsque de nouveaux amas de taille n sont créés dans les cascades, ii) lorsqu'un amas lacunaire de taille $n-1$ capture une lacune (Figure 66(a)), iii) lorsqu'un amas lacunaire de taille $n+1$ émet une lacune, iv) lorsque qu'un amas lacunaire de taille $n+1$ capture un interstitiel. La concentration en amas (lacunaires ou interstitielles) de taille n diminue i) lorsqu'un amas de taille n émet une lacune (Figure 66(b)), ii) absorbe une lacune, iii) absorbe un interstitiel. Ces différentes réactions se traduisent sous forme d'une équation différentielle donnant l'évolution de la concentration des amas de taille n (Annexe 4). Les taux des différentes réactions font intervenir les coefficients de diffusion des défauts ponctuels ainsi que d'autres paramètres physiques qui peuvent être obtenus expérimentalement ou bien par calculs atomistiques ab initio ou de dynamique moléculaire. Le modèle est décrit dans l'Annexe 4.

Ce code initialement développé pour simuler l'évolution de la microstructure sous irradiation a été adapté pour simuler l'évolution de la microstructure lors d'un traitement thermique (Ribis, 2008 ; Ribis et al., 2010). Le taux de création de défauts ponctuels dans le matériau est tout simplement mis à zéro lors de la simulation. De plus, une microstructure initiale d'amas de défauts ponctuels, lacunaires et interstitiels, est introduite de façon *ad hoc* au début de la simulation. Cette microstructure est choisie de façon à correspondre au mieux à la microstructure du matériau irradié (taille, densité et proportion des différentes natures de boucles).

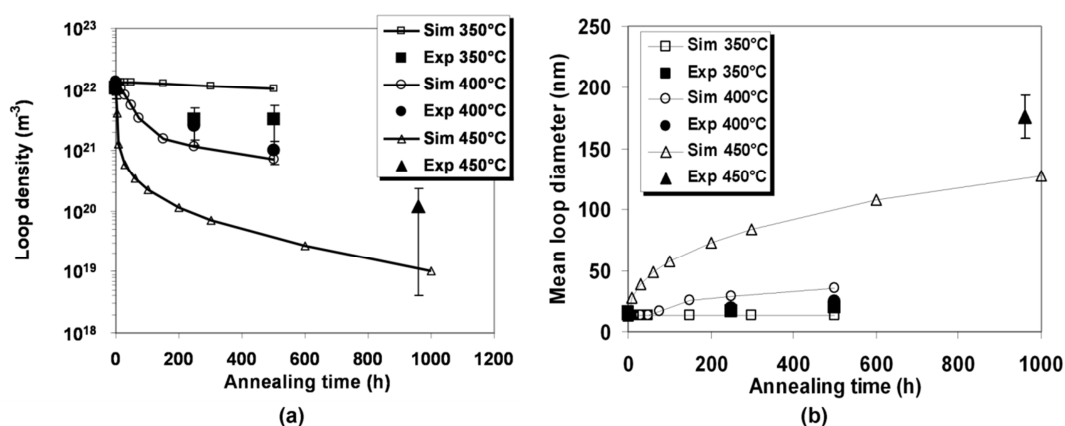


Figure 67 : Simulation de l'évolution de (a) la densité et de (b) la taille des boucles lors de différents traitements thermiques conduits sur des échantillons en M5TM irradié. Les simulations sont comparées aux résultats expérimentaux.

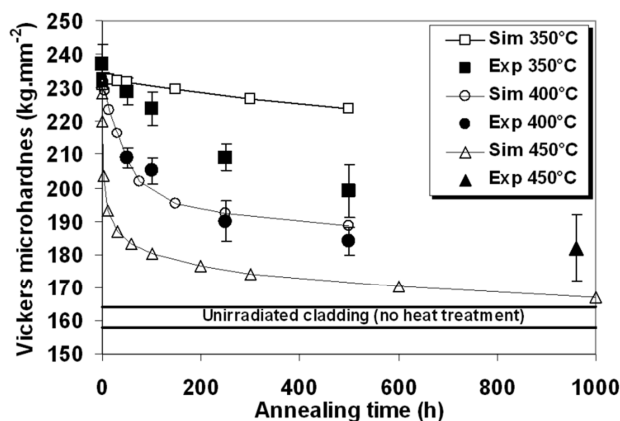


Figure 68 : Simulation par dynamique d'amas de la restauration de la micro-dureté lors de différents recuits réalisés sur M5TM irradié et comparaison avec les résultats expérimentaux.

Afin de reproduire les données expérimentales, seul un paramètre du modèle a été ajusté. Les autres coefficients étaient fixés en se basant sur une étude antérieure (Christien et Barbu, 2005). Les densités et tailles de boucles simulées sont en relativement bon accord avec les observations

expérimentales (Figure 67). L'évolution de la micro-dureté simulée est également en bon accord avec les résultats expérimentaux (Figure 68).

De plus, le modèle a été utilisé pour simuler des recuits d'une heure à différentes températures dont les résultats (taille, densité de boucles et microdureté) sont disponibles dans la littérature (Adamson et Bell, 1985). Le modèle est en très bon accord avec ces résultats, ce qui valide ainsi l'approche (Figure 69 et Figure 70).

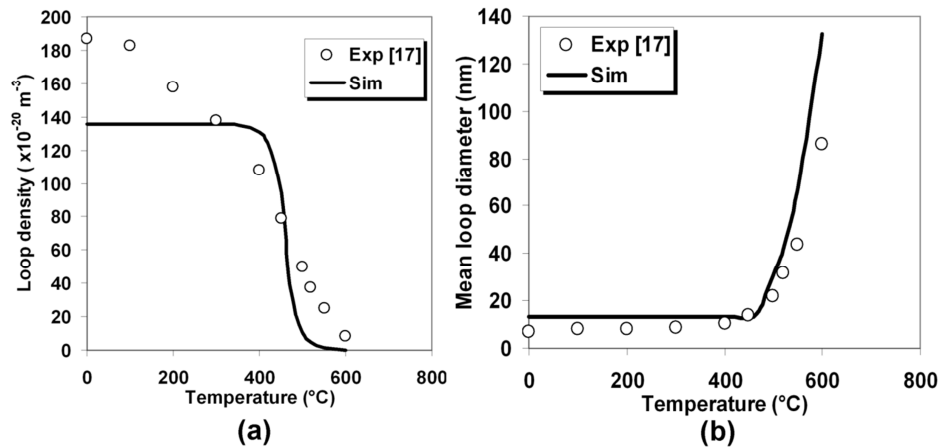


Figure 69 : Simulation de l'évolution de (a) la densité et de (b) le diamètre des boucles lors de recuits d'une heure réalisés à différentes températures et comparaison avec les résultats expérimentaux de Adamson et Bell (1985) noté [17].

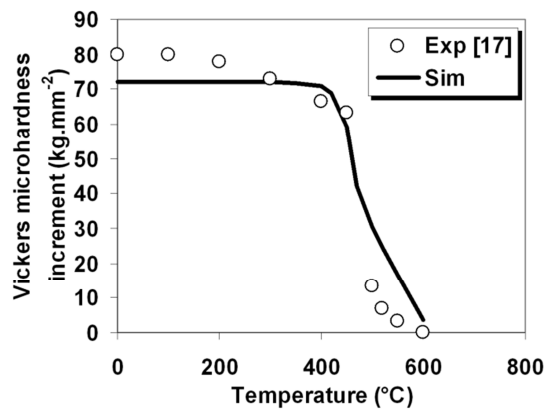


Figure 70 : Simulation de l'évolution de la microdureté lors de recuits d'une heure réalisés à différentes températures et comparaison avec les résultats expérimentaux de Adamson et Bell (1985) noté [17].

Le modèle a aussi permis de mieux appréhender le processus de recuit des boucles. En effet, en suivant, au cours de la simulation du recuit, la distribution de taille des boucles interstitielles et lacunaires, nous avons pu confirmer que le diamètre moyen et la densité des boucles interstitielles diminue lors du recuit (Figure 71). Pour ce qui concerne les boucles lacunaires, la densité diminue également lors du recuit, mais le diamètre moyen augmente progressivement.

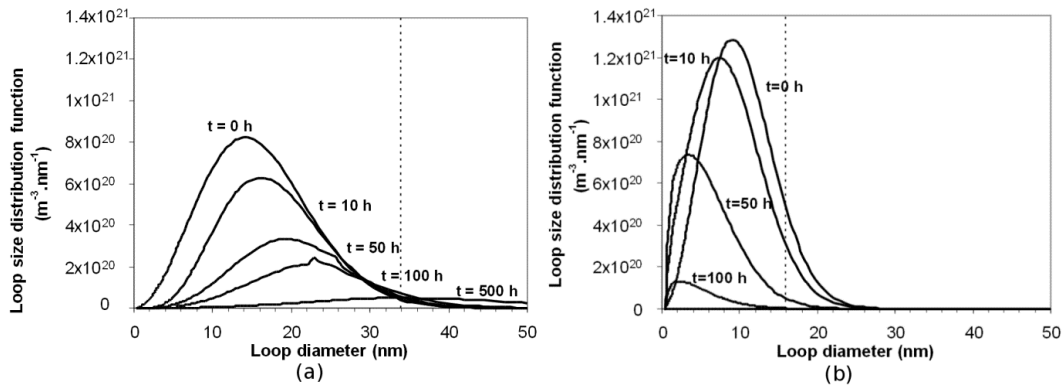


Figure 71 : Evolution de la distribution de taille des boucles (a) lacunaires et (b) interstitielles lors d'un traitement thermique à 400°C simulé par dynamique d'amas.

Grâce au modèle, il est également possible de suivre la concentration en lacunes lors d'un recuit. On constate qu'au début du recuit, une surconcentration en lacunes existe, du fait de l'émission de lacunes par les petites boucles, puis progressivement cette sur-concentration diminue. Ce phénomène conduit à l'augmentation du diamètre moyen des boucles lacunaires, en très bon accord avec la théorie.

3.3.4 Etude expérimentale des mécanismes de fluage thermique après irradiation

Dans le cadre du projet sur le transport et l'entreposage à sec des assemblages combustibles, de nombreux essais de fluage thermique à faible contrainte (jusqu'à 200 MPa) et longue durée (jusqu'à 1000 heures) ont été réalisés à des températures allant de 350°C à 420°C sur des alliages de zirconium irradiés (Zircaloy-4 détendu et M5TM). Sur certaines des éprouvettes en alliage M5TM, des lames minces ont été prélevées en cellule blindée. Les conditions d'essais des éprouvettes étudiées dans le cadre de ce travail sont rappelées dans le tableau 3.2. Dans le tableau 3.2 est également donné le niveau de déformation atteint.

Avant de décrire les résultats des observations par MET de ces lames minces, il est intéressant de discuter les niveaux de déformation atteints à l'issue de ces essais notamment en regard de la restauration du durcissement d'irradiation qui a pu être mesurée après traitements thermiques par micro-dureté.

On constate en effet dans ce tableau que lorsqu'un essai de fluage est conduit pendant 720 heures à 450°C sous une contrainte de 130 MPa, la déformation atteinte à la fin de l'essai est élevée (7%). Celle-ci est identique à la déformation atteinte sur matériau non irradié flué pendant 95 heures, seulement, dans les mêmes conditions.

Tableau 3.2. Conditions d'essais pour les matériaux flués irradiés et non irradiés effectués sur l'alliage M5TM.

	Condition d'irradiation	Température (°C)	Contrainte (MPa)	Durée de l'essai (h)	Durée de l'essai (j)	Déformation (%)
M5 TM	non irradié	450	130	95		~ 7
M5 TM	irradié	450	130	720		~ 7
M5 TM	non irradié	400	130	72	3	< 0,5
M5 TM	non irradié	400	130		10	~0.7
M5 TM	non irradié	400	130		40	~2
M5 TM	irradié	400	130	240	10	< 0,5
M5 TM	irradié	400	130	960	40	< 0,5
M5 TM	irradié + recuit 400°C, 10 j	400	130		35	< 0,5
M5 TM	irradié + recuit 450°C, 40 j	400	130		40	< 0,5

Il est possible d'évaluer, en se basant sur la formule empirique identifiée sur les résultats de microdureté, la fraction restaurée de durcissement d'irradiation au bout de 720 heures à 450°C. On constate alors que pour cette température et cette durée de traitement thermique, 86% du durcissement d'irradiation est déjà restauré. Ceci expliquerait que le matériau finisse par se déformer de façon importante, mais après une durée plus longue que le matériau non irradié.

La même analyse a été menée dans le cas des essais de fluage réalisés à 400°C jusqu'à des durées de 920 heures. On constate là aussi que la restauration de la dureté après ce traitement thermique est très significative, la fraction restaurée atteignant 78%. Néanmoins, de façon surprenante, on ne constate pas de fluage significatif du matériau lorsque l'essai de fluage a été mené à 400°C pendant 920 heures sous une contrainte de 130 MPa. La déformation reste très faible, inférieure à 0.5%.

Afin de mieux comprendre ce phénomène, nous avons cherché à découpler le rôle du recuit qui se produit au cours du fluage et le comportement en fluage lui-même. Des traitements thermiques ont donc été conduits préalablement aux essais de fluage à 400°C sous une contrainte de 130 MPa. Un premier traitement thermique à 400°C pendant 10 jours a d'abord été réalisé, conduisant à une fraction de dureté restaurée de 61%, toujours d'après la loi empirique identifiée. Sur une autre éprouvette, un traitement thermique de 40 jours à 450°C a été conduit. Ce traitement induit une restauration de 88% du durcissement d'irradiation. De façon très surprenante, il a encore été une fois constaté que malgré ces traitements thermiques le matériau se déforme très peu.

Afin de mieux comprendre tous ces phénomènes, des observations MET ont été engagées dès 2004 dans le cadre de la thèse de J. Ribis (2008) sur des lames minces prélevées dans les éprouvettes irradiées en réacteur puis déformées en fluage thermique de longue durée. Les observations MET menées sur ces lames confirment que lors du fluage se produit une restauration importante de la densité de boucles d'irradiation. Des boucles plus grandes et en plus faible densité sont effectivement observées après fluage thermique.

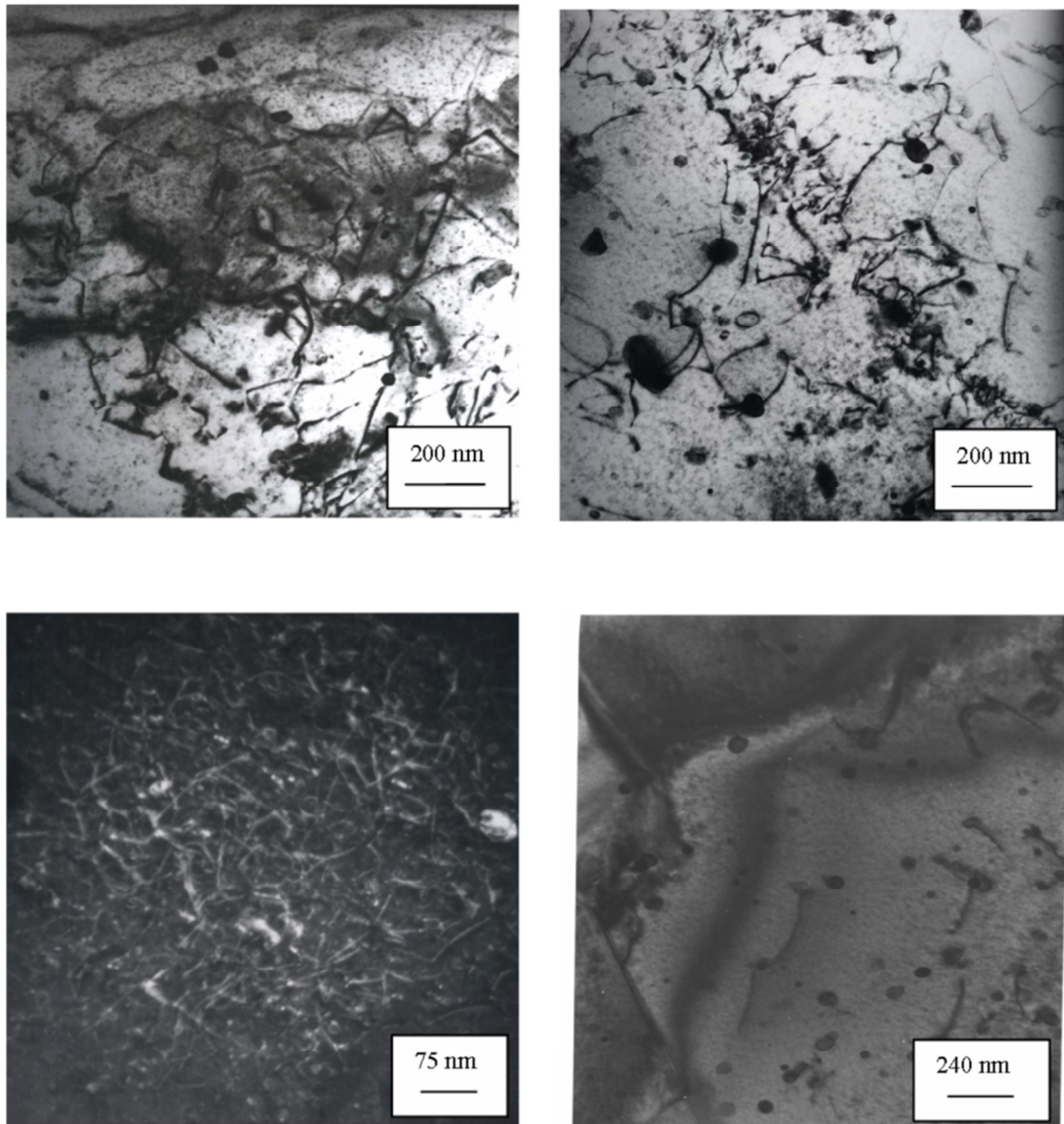


Figure 72 : Comparaison des microstructures de dislocations après essais de fluage réalisés sur M5TM irradié et non irradié. Echantillons (a) irradié et (b) non irradié déformé en fluage à 450°C sous une contrainte de 130 MPa. Echantillons (c) irradié et (d) non irradié déformé à 400°C sous une contrainte de 130 MPa.

On constate notamment, qu'après fluage à 450°C, sous une contrainte de 130 MPa, pendant 720 heures, une microstructure analogue à celle du matériau non irradié déformé en fluage à 450°C pendant 4 jours seulement est observée. En effet, les boucles <a> sont presque totalement recuites et d'autre part la densité de dislocations est similaire dans les deux matériaux, irradié et non irradié, la déformation plastique atteinte étant identique.

En revanche, après un essai de fluage à 400°C sous une contrainte de 130 MPa (pendant 10 ou 40 jours), la microstructure est très différente de celle observée dans le matériau non irradié déformé dans les mêmes conditions et jusqu'au même niveau de déformation, soit environ 0.5%, après une durée beaucoup plus courte (72 heures). On observe en effet dans le cas du matériau irradié une très grande densité de dislocations. Celles-ci sont très courbées et enchevêtrées, parfois accrochées sur les nano-précipités de niobium qui apparaissent sous irradiation. De plus, une analyse détaillée des systèmes de glissement activés montre qu'alors que dans le matériau non irradié, le système prismatique est principalement activé, lorsque le matériau est irradié, les systèmes pyramidaux <a>, prismatiques et basaux sont manifestement activés. Les observations décrites ici sont très reproductibles et ont été constatées dans plusieurs lames minces prélevées dans chacune des quatre éprouvettes en M5TM irradié déformées en fluage à 400°C sous une contrainte de 130 MPa avec ou sans traitement thermique préalable (Ribis, 2008 ; Ribis et al., 2008 ; Onimus et al., 2013b).

La présence d'une grande densité de dislocations après un essai de fluage à 400°C et 130 MPa a été initialement interprétée comme étant le résultat d'une multiplication des dislocations accentuée par la présence d'une grande densité de boucles <a> issues de l'irradiation. En effet, au début de l'essai de fluage (non précédé d'un traitement thermique) les boucles sont présentes. Celles-ci peuvent donc agir comme obstacle au glissement des dislocations et, comme des dislocations de la forêt, favoriser leur multiplication. Le recuit des boucles au cours de l'essai diminue progressivement le taux de multiplication des dislocations mais la multiplication accentuée des dislocations a déjà eu lieu. Les dislocations ainsi créées se gênent mutuellement rendant difficile leur glissement ce qui diminue la vitesse de fluage, à une contrainte donnée.

Néanmoins, les essais de fluage à 400°C et 130 MPa précédés de traitements thermiques préalables ont remis en question, au moins en partie, cette interprétation car à l'issue du traitement thermique, il n'y a quasiment plus de boucles <a> dans le matériau. Or la multiplication des dislocations est tout de même observée. D'autres objets de la microstructure sont donc vraisemblablement responsables de cette multiplication accélérée des dislocations, au moins lorsqu'il n'y a plus de boucle. Les grandes boucles de vecteur de Burgers <c>, parfaites, pourraient peut-être jouer un rôle, mais c'est plus

vraisemblablement la présence de la grande densité de nano-précipités de niobium qui expliquerait cette multiplication accentuée des dislocations (Onimus et al., 2013b). En effet, comme pour le mécanisme envisagé pour les boucles <a>, il est possible que les nano-précipités de niobium agissent comme points d'ancrage pour les dislocations, limitant leur libre parcours moyen et accentuant ainsi leur multiplication. Néanmoins, si l'on s'intéresse au durcissement individuel induit par les nano-précipités de niobium, il apparaît que celui-ci reste faible. La multiplication des dislocations se produit donc sans ancrage fort sur les nano-précipités, ce qui reste assez surprenant.

Afin de trancher quant au rôle de ces nano-précipités de niobium, des essais de fluage à 400°C et 130 MPa avec ou sans traitement thermique préalable ont récemment été réalisés sur un alliage de zirconium recristallisé irradié mais ne contenant pas de nano-précipité de niobium. Les résultats obtenus confirment le rôle des nano-précipités de niobium dans le comportement en fluage post-irradiation de l'alliage M5TM.

3.3.5 Modèle de comportement en fluage thermique

Dans le cadre de la thèse de J. Ribis (2008) un modèle de comportement mécanique a été développé pour simuler les essais de fluage post-irradiation. Ce modèle s'appuie sur l'approche simplifiée de Estrin et Mecking (1984), également utilisée par Dunlop et al. (2007), qui néglige le caractère polycristallin du matériau. Ce modèle prend néanmoins en compte certaines caractéristiques de la microstructure, comme par exemple la densité de dislocations ou la densité de boucles <a> qui sont introduites sous la forme de variables internes dont l'évolution est calculée au cours de l'essai.

Dans un premier temps, nous avons choisi de modéliser le comportement mécanique en fluage des alliages de zirconium recristallisés non irradiés. En poursuivant une démarche initiée par Dunlop et al. (2007), une loi d'écoulement de type Norton sans seuil a été choisie. Au dénominateur de cette loi apparaît une contrainte de référence caractéristique de l'état de durcissement du matériau (σ_c). L'évolution de cette contrainte de référence prend en compte la multiplication et l'annihilation des dislocations. Le détail du modèle proposé est présenté dans l'Annexe 5. Le modèle, malgré son extrême simplicité, est capable de reproduire de façon satisfaisante le comportement en fluage thermique du matériau non irradié et cela pour les deux températures de 350°C et 400°C.

Afin de prendre en compte l'influence de l'irradiation sur le comportement en fluage thermique, une variable interne correspondant à la densité de boucles <a> ($\rho_b = N \langle d \rangle$) a été introduite dans le modèle. Il a été fait le choix de ne pas intégrer, dans un premier temps, les nano-précipités de niobium. D'autre part, les modifications d'activation des systèmes de glissement ne sont pas prises

en compte dans ce modèle simple. La présence des boucles est introduite comme un terme de durcissement supplémentaire au niveau de la contrainte de référence (σ_c) (Eq. 3.11). En effet, les boucles <a> créées par l'irradiation agissent comme obstacles au glissement des dislocations.

$$\sigma_c = \sigma_c^0 + K_d \sqrt{\rho_d} + K_b \sqrt{\rho_b} \quad (3.11)$$

Ce terme de durcissement additionnel, à la température de l'essai de fluage, est, en principe, relié au durcissement d'irradiation mesuré par micro-dureté à température ambiante. Il est supposé que ce terme de durcissement est proportionnel à l'incrément de micro-dureté. En effet, l'incrément de micro-dureté est fonction de la densité de boucles <a> selon la formule 3.12, où le coefficient C correspond au coefficient de proportionnalité entre la dureté et la limite d'élasticité.

$$\Delta H_v = CM \alpha \mu b \sqrt{N \langle d \rangle} = CM \alpha \mu b \sqrt{\rho_b} \quad (3.12)$$

Comme décrit précédemment, l'évolution de la micro-dureté lors de recuits a été déterminée et une loi de restauration empirique a été identifiée (Eq. 3.7). Sur la base de cette loi de restauration, il est possible de déduire une loi de restauration pour la densité de boucles <a>. En plus de la restauration thermique des boucles lors du recuit, un second phénomène a été intégré dans le modèle. En effet, des essais de fluage réalisés à forte contrainte ont montré qu'un mécanisme de balayage des boucles se produisait également. Des bandes sans boucle, analogues aux canaux décrits précédemment dans ce Chapitre, étaient observées, en plus de la restauration thermique des boucles. Ce nouveau phénomène, de balayage des boucles par les dislocations, a été introduit dans la loi d'évolution de la densité de boucles sous la forme d'un terme de restauration dynamique, c'est-à-dire fonction de la vitesse de déformation. La loi d'évolution de la densité de boucles s'écrit alors, après calcul des dérivées, selon l'équation 3.13.

$$\frac{d\rho_b}{dt} = -k_3 \rho_b \dot{\epsilon} - 2k_4 \rho_{b0} \left(\frac{\rho_b}{\rho_{b0}} \right)^{\frac{m+1}{2}} \quad \text{avec } \rho_b(0) = \rho_{b0} \quad (3.13)$$

La grandeur $\dot{\epsilon}$ correspond à la vitesse de déformation plastique équivalente. Les coefficients k_4 et m ont été obtenus par la mesure l'évolution de la microdureté lors des recuits. Le coefficient k_3 est quant à lui ajustable.

Comme pour les dislocations de la forêt, la présence des boucles diminue le libre parcours moyen des dislocations en augmentant ainsi leur taux de multiplication. Ce phénomène est pris en compte dans la loi d'évolution des dislocations (Eq. 3.14).

$$\frac{d\rho_d}{dt} = \dot{\epsilon} \left(\frac{k_1}{b} (\sqrt{\rho_d} + \sqrt{\rho_b}) - k_2 \rho_d \right) \quad (3.14)$$

Les coefficients k_1 et k_2 sont ajustables. Les détails du modèle développé sont donnés dans l'Annexe 5. Ce modèle a été identifié sur le comportement macroscopique du matériau non irradié et irradié

pour des essais non précédés de traitement thermique. Un accord satisfaisant entre simulation et expérience est obtenu, malgré un nombre réduit de paramètres ajustables. En plus de simuler le comportement macroscopique, le modèle permet de calculer l'évolution des variables internes caractéristiques de l'évolution de la microstructure comme la densité de dislocations et la densité de boucles <a>. Ces variables internes peuvent ensuite être comparées aux résultats des observations MET. On note, comme attendu, un bon accord entre la densité de boucles <a> simulée et celle observée en MET. En revanche des écarts assez élevés sont constatés pour ce qui concerne la densité de dislocations. En particulier, le modèle prédit une faible multiplication des dislocations <a> lors des essais à 400°C et 130 MPa en comparaison de la grande densité de dislocations observée en MET.

De plus, le modèle développé ne permet pas de reproduire correctement le comportement en fluage constaté pour les essais précédés d'un traitement thermique. D'après l'analyse présentée précédemment, il apparaît comme nécessaire d'introduire les nano-précipités de niobium dans le modèle. Ceux-ci joueraient alors un rôle analogue aux boucles <a>, en particulier pour ce qui concerne la multiplication des dislocations.

3.3.6 Comportement en traction à température ambiante après essais de fluage post-irradiation

Comme cela a été décrit dans le Chapitre 1, après le transport à sec de l'assemblage combustible, une phase d'entreposage en eau a lieu. Lors de la manutention de l'assemblage, par exemple pour un conditionnement ultérieur, les matériaux peuvent subir diverses sollicitations mécaniques, à des températures proches de la température ambiante. Il est donc important de bien caractériser le comportement mécanique du matériau à l'issue du transport à sec. Dans ce but des essais de fluage de longue durée ont été réalisés sur des éprouvettes irradiées. Dans ces échantillons, des éprouvettes de traction sur anneaux ont été prélevées. Celles-ci ont été sollicitées en traction à température ambiante (Bourdiliau et al., 2010). Les courbes de traction sont données sur la Figure 73.

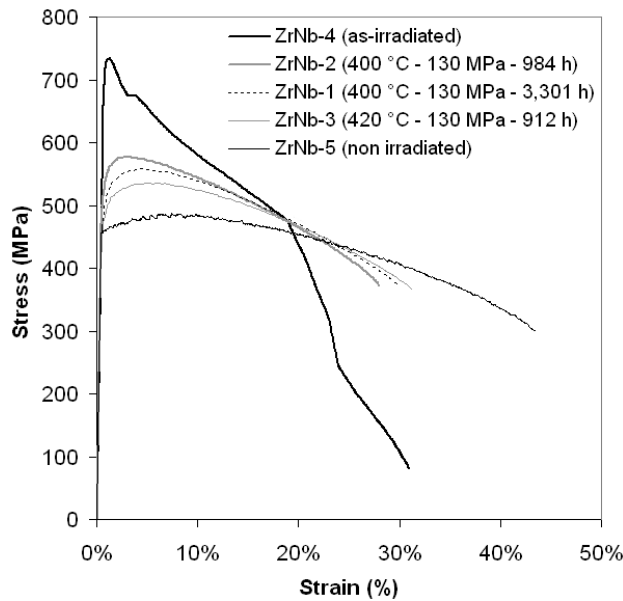


Figure 73 : Essais de traction sur anneaux réalisés à température ambiante sur des éprouvettes irradiées, non irradiées et irradiées puis fluées à différentes températures, durées et contraintes appliquées.

Ces essais mettent en évidence la diminution de la contrainte maximum (résistance mécanique R_m , ou UTS) après l'essai de fluage (Figure 73), témoignage de la restauration du dommage d'irradiation. La restauration de la résistance mécanique à température ambiante a pu être clairement corrélée à la restauration de la micro-dureté (à température ambiante) (Figure 74). De plus, l'allongement uniforme augmente à l'issue des essais de fluage (Figure 73). Ce phénomène montre que l'essai de fluage conduit à une restauration de la ductilité macroscopique du matériau. On note néanmoins que la restauration du durcissement d'irradiation ainsi que la restauration de la ductilité macroscopique restent partielles, même après des essais de fluage de très longue durée (400°C, 130 MPa, 3300 heures).

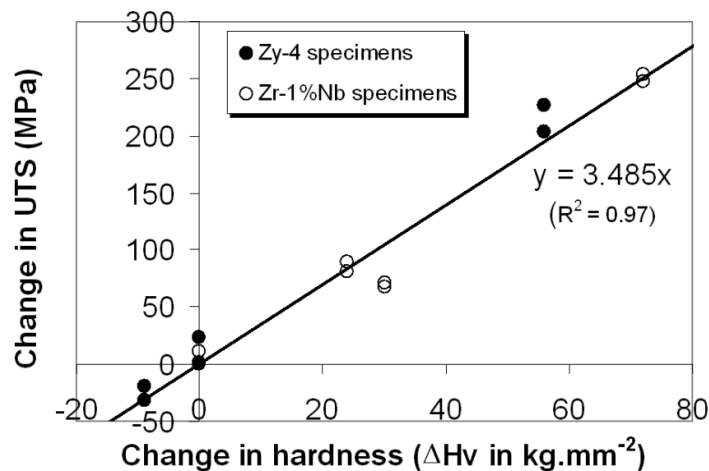


Figure 74 : Corrélation entre l'évolution de la résistance mécanique (R_m ou UTS) et l'évolution de la micro-dureté pour des échantillons en M5™ et Zy-4 détendu, après des essais de fluage post-irradiation.

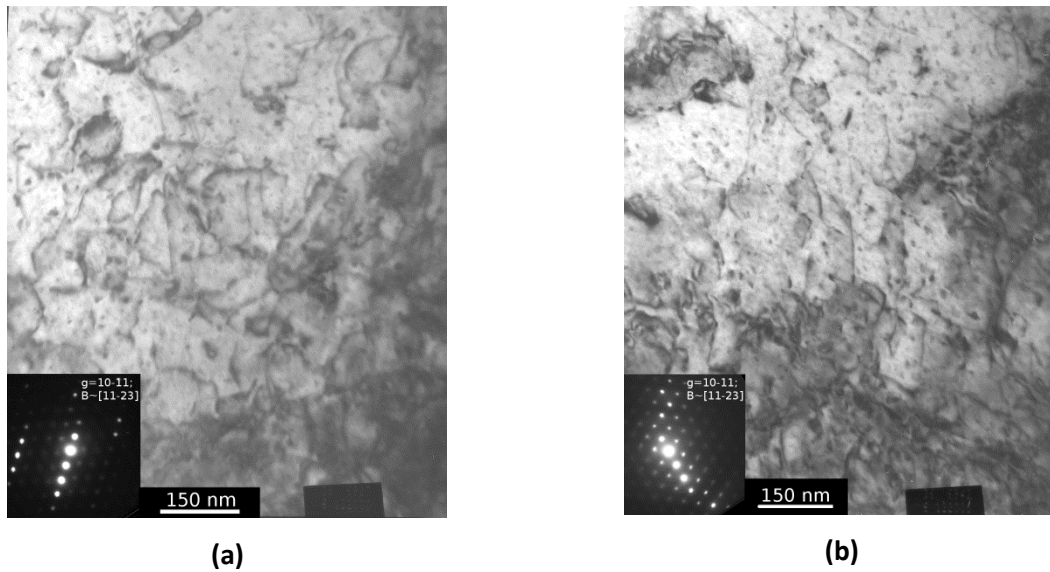


Figure 75 : Micrographies MET des échantillons en M5TM irradiés, puis flués à 420°C à une contrainte de 130 MPa pendant 912 heures et enfin tractionnés à température ambiante.

Des observations MET (Figure 75) réalisées sur des lames minces prélevées dans des éprouvettes déformées lors d'essais de traction sur anneaux à température ambiante interrompus à la contrainte maximum après essais de fluage (à 400°C ou 420°C sous une contrainte de 130 MPa) mettent en évidence le recuit des boucles <a> ainsi que l'absence du phénomène de canalisation. La déformation se produit donc de façon homogène à l'échelle du grain. D'autre part, la densité de dislocations est très élevée à l'issue des essais. Le recuit des boucles <a> observé explique la restauration de la contrainte maximum constatée lors des essais. D'autre part le fait que la déformation se produise de façon homogène, sans canalisation des dislocations, explique la restauration de la ductilité du matériau. Les restaurations partielles du durcissement d'irradiation et de la ductilité macroscopique pourraient s'expliquer par la présence de la densité de dislocation issue de l'essai de fluage et peut-être également par les nano-précipités de niobium créés lors de l'irradiation.

D'un point de vue pratique il est remarquable que le recuit des boucles conduise à une restauration de la ductilité macroscopique sans pour autant dégrader la résistance en fluage. Ceci est un résultat très intéressant pour la gestion des combustibles usés.

3.3.7 Conclusions et perspectives

Cette étude du comportement en fluage post-irradiation a révélé toute la complexité du comportement en fluage d'un matériau d'intérêt industriel et des couplages subtils qui peuvent apparaître au niveau de la microstructure. Néanmoins, par cette étude approfondie, qui s'est inscrite dans la durée, beaucoup d'éléments de compréhension ont pu être apportés concernant ce problème difficile. Des scénarios se dégagent donc mais qui restent sans doute encore à affiner.

D'autre part, une modélisation multi-échelle des phénomènes qui se produisent lors du fluage thermique post-irradiation, a été développée sur la base d'un premier scénario.

Les perspectives de ces études sont nombreuses, en particulier du point de vue de la modélisation du comportement mécanique en fluage post-irradiation. Il serait notamment très intéressant de prendre en compte la nature polycristalline du matériau en utilisant le modèle polycristallin auto-cohérent développé par R. Brenner (2002). Des premiers travaux ont déjà été réalisés. Il serait également pertinent d'intégrer la présence des nano-précipités de niobium dans le modèle compte-tenu de leur importance, en particulier lors des essais précédés d'un traitement thermique. On peut également s'interroger sur le rôle des boucles, parfaites, de vecteur de Burgers $\langle c \rangle$ sur la mobilité des dislocations $\langle a \rangle$ lors du fluage post-irradiation. Un chaînage, faible (par l'intermédiaire de la loi empirique de restauration), entre la simulation du recuit par dynamique d'amas et la simulation du comportement mécanique en fluage grâce au modèle polycristallin pourrait également être envisagé. Enfin, du point de vue expérimental, des caractérisations plus fines, par MET Haute Résolution, des nano-précipités de niobium pourraient être réalisées. Ces analyses MET approfondies pourraient ensuite être comparées à des calculs atomistiques. Selon la disponibilité de la matière irradiée aux neutrons, de nouveaux essais mécaniques de fluage, précédés ou non de recuit, pourraient encore être réalisés.

Chapitre 4

Comportement et mécanismes de déformation des alliages de Zr sous irradiation

Publications associées :

Onimus & Béchade (2012), Tournadre et al. (2012), Tournadre et al. (2013), Tournadre (2013), Tournadre et al. (2014), Gharbi et al. (2013), Gharbi et al. (2015)

Dans une première partie de ce Chapitre les différents phénomènes de déformation sous irradiation ainsi que les mécanismes associés sont brièvement rappelés en s'appuyant sur l'article de synthèse publié dans un ouvrage encyclopédique (Onimus & Béchade, 2012).

Une seconde partie du Chapitre est consacrée à l'étude du phénomène de croissance libre, sans contrainte appliquée. L'étude de l'influence de l'hydrogène sur la croissance libre est alors décrite.

Dans une troisième partie, les couplages entre contrainte appliquée et croissance libre sont étudiés. De façon plus générale, les mécanismes de fluage d'irradiation sont abordés dans cette partie.

Enfin, dans une dernière partie, les développements, en cours, de modélisation multi-échelle de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium sont brièvement décrits.

4.1 Eléments de base concernant la déformation sous irradiation

4.1.1 Croissance sous irradiation

Un phénomène particulièrement original qui se produit sous irradiation dans les alliages de zirconium est le phénomène de croissance libre. Ce phénomène consiste en une modification de la forme du matériau à volume constant sans application de contrainte. On constate en effet qu'un monocristal de zirconium, sous irradiation sans contrainte appliquée, se raccourcit suivant la

direction $\langle c \rangle$ et s'allonge dans le plan basal (sans modification des paramètres de maille du cristal) (Figure 76(a)). Pour les tubes texturés, tels que les tubes guides et les gaines, ce phénomène se traduit essentiellement par un allongement suivant la direction axiale du tube (Figure 76(b)) (associé à une diminution de l'épaisseur, le diamètre n'étant quasiment pas affecté (Soniak et al., 2002)). Dans le cas des alliages de zirconium recrystallisés, ce phénomène présente un premier transitoire rapide puis un régime stationnaire qui s'accélère finalement à forte dose d'irradiation après une période d'incubation (Figure 76).

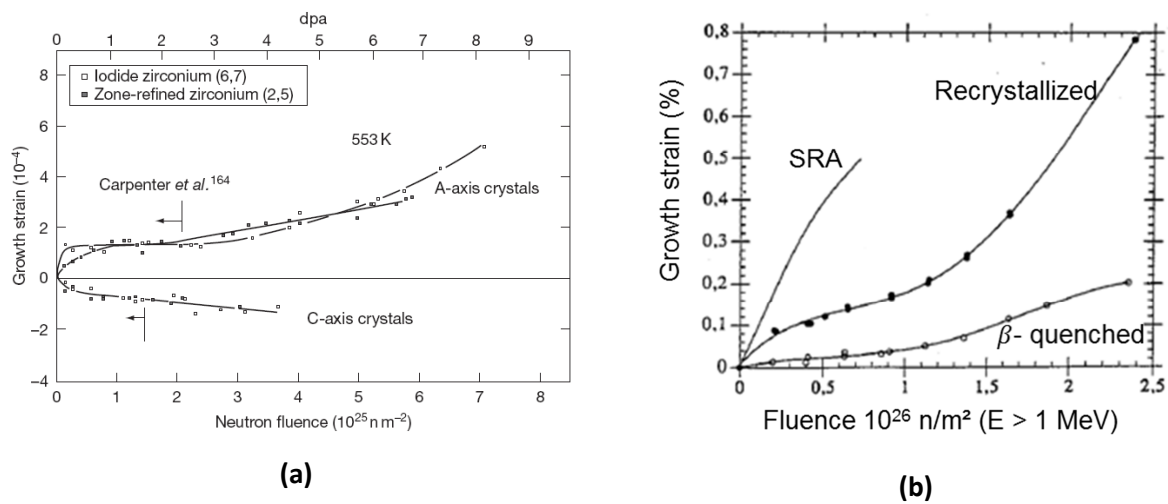


Figure 76 : (a) Déformation de monocristaux de zirconium suivant différentes directions cristallographiques (Carpenter et al., 1988). (b) Déformation axiale de croissance pour des tubes minces en Zircaloy-4 dans différents états métallurgiques (Garzarolli et al., 1989).

Du point de vue des mécanismes microscopiques, le premier transitoire rapide est attribué à la diffusion anisotrope des atomes auto-interstitiels qui diffuseraient, selon plusieurs auteurs (Bacon, 1988 ; Ackland et al., 1995 ; Le Bacq et al., 1999), plus rapidement dans le plan basal que suivant l'axe $\langle c \rangle$. Le flux d'atomes auto-interstitiels serait donc préférentiellement dirigés vers les joints de grains perpendiculaires au plan basal conduisant ainsi à un allongement des grains suivant le plan basal et un raccourcissement suivant l'axe $\langle c \rangle$.

L'apparition de la grande densité de boucles $\langle a \rangle$ au sein des grains interrompt ce phénomène. En effet, les boucles $\langle a \rangle$ deviennent alors les puits dominants pour les défauts ponctuels. Ceux-ci ne parviennent plus à atteindre les joints de grains. Les boucles $\langle a \rangle$ lacunaires et interstitielles étant présentes en même proportion dans les plans prismatiques, elles ne génèrent pas de déformation nette du cristal. On assiste alors à un régime quasi-stationnaire présentant une vitesse de déformation très faible.

Après une période d'incubation, qui semble dépendre fortement des impuretés ou des éléments d'alliages présents dans le matériau, les boucles à composante $\langle c \rangle$ apparaissent. Celles-ci sont exclusivement lacunaires et sont contenues dans le plan basal. Leur germination et croissance induit donc un rétrécissement du cristal suivant l'axe $\langle c \rangle$ et un allongement dans le plan basal (par conservation de la matière) expliquant ainsi l'accélération de croissance constatée au moment de leur apparition. Ces boucles basales ont un vecteur de Burgers du type $\frac{1}{6}\langle 20\bar{2}3 \rangle$. Dans la structure hexagonale compacte, six vecteurs de ce type existent, il y a donc six familles différentes de boucles à composante $\langle c \rangle$. Ces boucles sont formées par la présence d'un disque de lacunes dans le plan basal. Ce plan de lacunes induit initialement une faute de type extrinsèque (E) dans l'empilement ABABBAB, la boucle décrivant le pourtour de ce disque de lacunes ayant un vecteur de Burgers $\frac{1}{2}[0001]$. Au-delà d'une certaine taille critique, la boucle se transforme en une boucle de vecteur de Burgers $\frac{1}{6}\langle 20\bar{2}3 \rangle$, le disque de la boucle présente alors une faute d'empilement de type intrinsèque (I_1).

La bonne compréhension du phénomène d'accélération de croissance s'avère essentielle afin de prédire l'évolution dimensionnelle de l'assemblage combustible à fort taux de combustion. Puisque cette accélération est directement associée à l'apparition des boucles à composante $\langle c \rangle$, une étude approfondie de ces défauts d'irradiation et des différents facteurs qui peuvent affecter leur nucléation/croissance est donc nécessaire.

4.1.2 Fluage sous irradiation

En plus des mécanismes de croissance qui apparaissent sans contrainte appliquée, des mécanismes de fluage se produisent lorsqu'une contrainte est appliquée. L'irradiation agit ici suivant deux processus antagonistes. En effet, d'un côté, en générant une grande densité d'obstacles au glissement des dislocations, l'irradiation conduit à un durcissement du matériau et donc à un fluage thermique réduit. D'un autre côté, en induisant une très grande concentration de défauts ponctuels, l'irradiation favorise les mécanismes de transport et en particulier la montée des dislocations. On constate en effet que pour des conditions de contrainte et de température pour lesquelles le fluage hors réacteur (fluage dit thermique) est très faible, par exemple pour une température de 350°C et une contrainte de 90 MPa, la vitesse de déformation sous irradiation est relativement rapide (Figure 77).

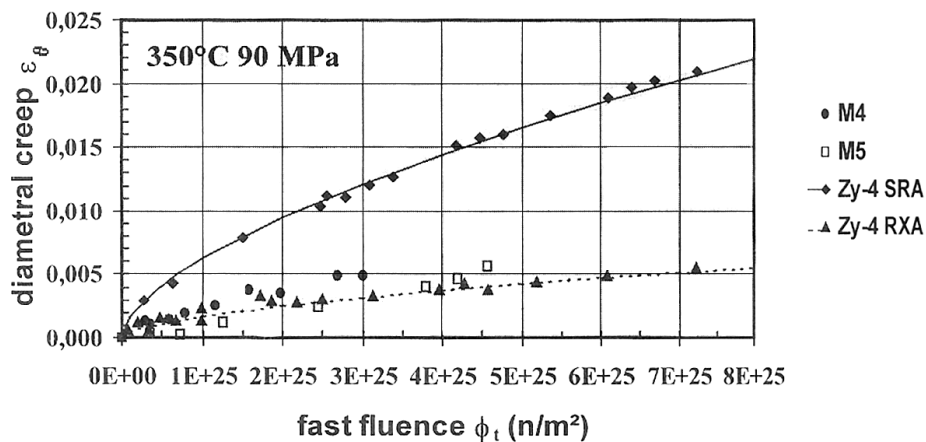


Figure 77 : Déformation diamétrale en fonction de la fluence de tubes pressurisés en alliages de zirconium, pour une contrainte circonférentielle de 90 MPa, placés en réacteur expérimental, sous flux de neutrons, à une température de 350°C (Soniak et al., 2002).

Depuis la découverte de ce phénomène, dans les années 50, de nombreux mécanismes de fluage d'irradiation ont été proposés (Matthews & Finnis, 1988). Un mécanisme communément admis pour expliquer le fluage d'irradiation est le mécanisme d'absorption préférentielle induite par la contrainte (ou SIPA pour Stress Induced Preferential Absorption). Selon ce mécanisme, les défauts ponctuels, lacunes et interstitiels, créés sous irradiation en très forte concentration, sont absorbés par les dislocations induisant leur montée. L'application d'une contrainte extérieure biaise l'absorption des défauts ponctuels par les dislocations en fonction de l'orientation de leur vecteur de Burgers par rapport à l'orientation de la contrainte. Ainsi, des flux différents de défauts ponctuels sont absorbés par les différentes dislocations induisant une montée des dislocations dans des sens différents, selon leur orientation par rapport à la contrainte (Figure 78).

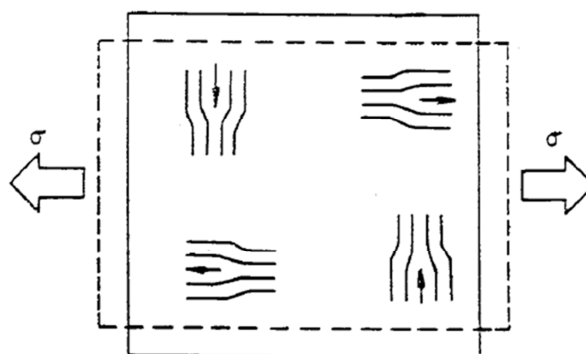


Figure 78 : Mécanisme de fluage d'irradiation par montée pure des dislocations sous irradiation (mécanisme SIPA, Stress Induced Preferential Absorption).

Ce mécanisme est généralement invoqué pour expliquer le fluage d'irradiation des aciers austénitiques, matériau qui présente un fluage thermique quasiment nul dans les conditions de température et de contrainte correspondant au fonctionnement des réacteurs nucléaires. Certains auteurs (Martin & Poirier, 1971) ont démontré, en se basant sur une analyse théorique des mécanismes de montée des dislocations hors et sous irradiation, que le fluage rapide observé sous irradiation avait bien pour origine un mécanisme de déformation distinct du mécanisme opérant hors irradiation. Cette vitesse de fluage plus rapide a donc bien son origine dans une composante additionnelle de déformation et non pas comme une simple accélération, multiplicative, du fluage thermique.

Dans le cas des alliages de zirconium la situation semble plus complexe car le fluage thermique peut aussi se produire dans les conditions de température et de contrainte correspondant au fonctionnement d'un REP. Plusieurs auteurs (Holt, 1980 ; Franklin et al., 1983) proposent que dans les alliages de zirconium le glissement des dislocations soit assisté par la montée (Climb-plus-Glide) qui est facilitée sous irradiation, conformément au mécanisme SIPA décrit précédemment.

Un phénomène macroscopique qui attesterait de l'importance de la montée des dislocations dans le comportement en fluage sous irradiation est la différence observée entre le comportement de l'alliage Zy-4 détendu, qui flue beaucoup plus vite sous irradiation que l'alliage Zy-4 dans l'état recristallisé (Figure 77). En effet le Zy-4 détendu contient une densité de dislocations $\langle a \rangle$ et $\langle c+a \rangle$ beaucoup plus élevée que le Zy-4 recristallisé. Néanmoins, il est également probable que les différences de taille et de forme des grains entre ces deux alliages puissent également être à l'origine des différences observées. Il est donc difficile de conclure de façon définitive concernant le mécanisme de montée des dislocations sous irradiation sur la base seule de ces constats macroscopiques. Des études microstructurales fines s'avèrent donc nécessaires pour identifier les mécanismes mis en jeu lors du fluage d'irradiation.

4.2 Accélération de croissance, influence de l'hydrogène

4.2.1 Influence des conditions d'irradiation sur les boucles $\langle c \rangle$

Afin de disposer d'une bonne compréhension et prédiction de la déformation, lors de l'accélération de croissance des alliages de zirconium, une étude analytique, utilisant les irradiations par particules chargées, a été engagée dès 2009, dans le cadre de la thèse de L. Tournadre (2012). Les particules chargées permettent d'atteindre sur des durées courtes (de quelques heures jusqu'à quelques jours) des doses d'irradiation équivalentes à plusieurs années en réacteur. De plus, à l'issue de ces irradiations les échantillons ne sont pas radioactifs ce qui facilite grandement leur manipulation. En revanche l'épaisseur irradiée reste très fine : de quelques centaines de nanomètres à quelques

dizaines de microns. Il est donc très difficile de mesurer des déformations sur des échantillons classiques irradiés par particules chargées. Néanmoins, puisque l'accélération de croissance est clairement corrélée à l'apparition des boucles à composantes $\langle c \rangle$, étudier l'influence de certains paramètres sur l'évolution des boucles à composantes $\langle c \rangle$ devrait permettre, en principe, d'en déduire l'influence de ces mêmes paramètres sur l'accélération de croissance.

C'est cette démarche qui a été entreprise dans le cadre de la thèse de L. Tournadre (Tournadre, 2012a) puis de N. Gharbi (Gharbi et al., 2013). Dans un premier temps nous avons cherché à vérifier qu'il était possible d'obtenir des boucles à composante $\langle c \rangle$ par irradiation aux ions Zr et aux protons. Ces défauts n'avaient en effet été observés jusqu'alors qu'après irradiation aux neutrons ou aux électrons. Les échantillons étudiés étaient prélevés dans des tubes épais (tube TREX qui est un produit intermédiaire de la gamme de mise en forme des tubes minces en alliages de Zr) présentant une texture marquée avec des axes $\langle c \rangle$ étalés dans le plan DT-DN (Direction Transverse – Direction Normale) et préférentiellement orientés vers la direction DT (Figure 79). Le prélèvement de lames minces dans les plans DT-DL ou bien DT-DN permet d'observer de nombreux grains avec des axes $\langle c \rangle$ proches du plan de la lame, facilitant ainsi l'observation de boucles $\langle c \rangle$ qui ne peut se faire qu'en utilisant un vecteur de diffraction parallèle à la direction $\langle c \rangle$ ($g=0002$).

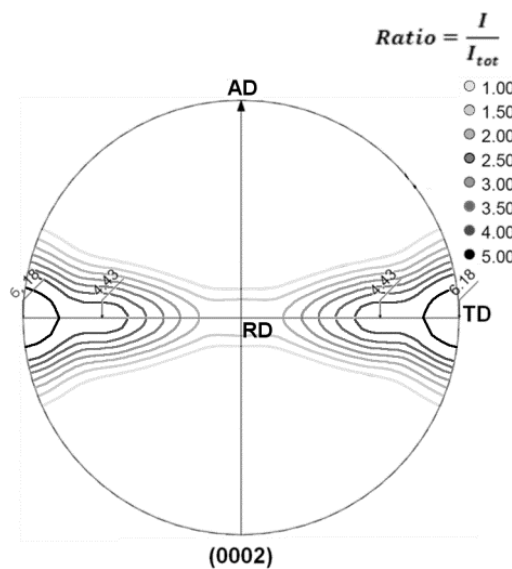


Figure 79: Figure de pôle (0002) du tube épais (TREX) en Zircaloy-4 recristallisé.

Des irradiations aux ions zirconium de faibles énergies (300 keV et 600 keV) ont été réalisées au CSNSM/IN2P3/CNRS à Orsay, à des températures de 245°C, 280°C et 300°C, et jusqu'à des doses de 4, 7 dpa et 12 dpa principalement. Le profil de dommage correspondant (ions Zr de 600 keV) est donné sur la Figure 80(a).

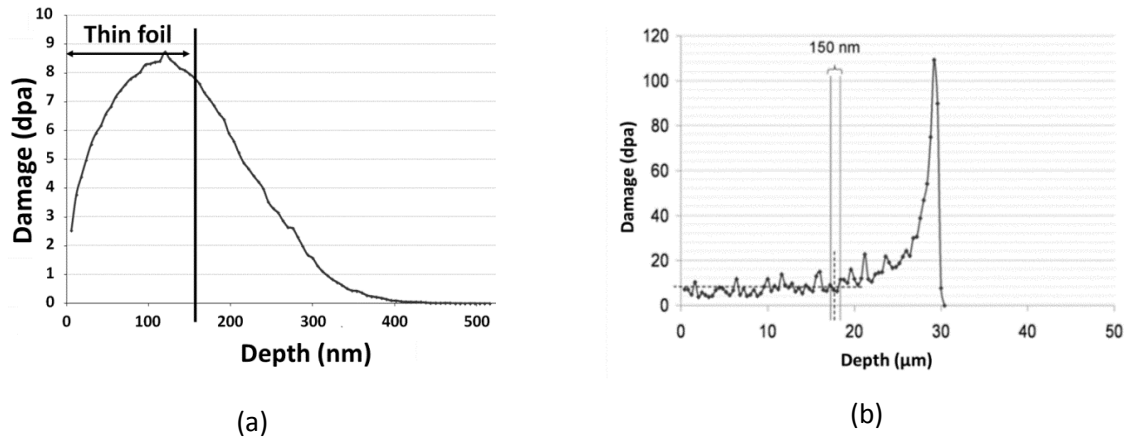


Figure 80: Profils de dommage pour des irradiations aux (a) ions Zr de 600 keV Zr et pour une dose de 11.5×10^{18} ions/cm² et (b) protons de 2 MeV et pour une dose de 8.9×10^{23} ions/m² ($E_d = 40$ eV).

A l'issue de ces irradiations nous avons observé, en MET, dans les échantillons en Zy-4 recristallisé et M5TM, des boucles à composante <c> de diamètre compris entre 30 et 50 nm (Figure 81) relativement petites en comparaison des irradiations aux neutrons pour lesquelles les boucles présentent des diamètres supérieurs à 100 nm. Les densités volumiques de boucles étaient de l'ordre de 3×10^{20} à 10×10^{20} m⁻³. Aucune différence nette n'a été décelée entre la microstructure de boucles <c> dans le M5TM et le Zy-4 (Tournadre, 2012 ; Tournadre et al., 2012 ; Tournadre et al., 2014).

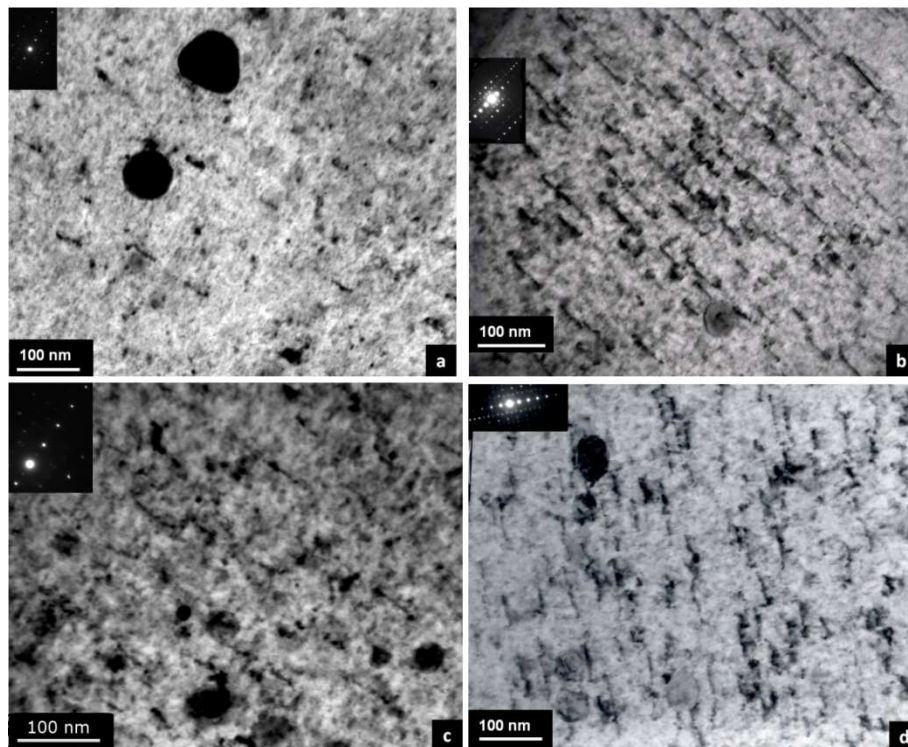


Figure 81 : Evolution des boucles <c> lors d'irradiation aux ions Zr de 600 keV à 300°C. Zy-4 recristallisé irradié à (a) 4.1 dpa, (b) 7 dpa. M5TM irradié à (c) 4.1 dpa, (d) 7 dpa.

Les irradiations aux protons de 2 MeV ont été réalisées à l'Université du Michigan, où un dispositif éprouvé, utilisant de l'indium liquide pour le contact thermique, permet de garantir la température d'irradiation des échantillons malgré la forte puissance déposée en surface par l'intense faisceau de protons. Les irradiations ont été réalisées à une température de 350°C jusqu'à des doses de 5, 8, 12 et 19 dpa. Le profil de dommage correspondant est donné sur la Figure 80(b).

Les observations MET ont révélées que dans le Zy-4 recristallisé les boucles à composante <c> avaient des diamètres de 100 à 120 nm (Figure 82(a)), qui augmentent faiblement avec la dose, pour une densité volumique qui augmente de 4×10^{20} à $10 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$ quand la dose augmente de 8 à 19 dpa.

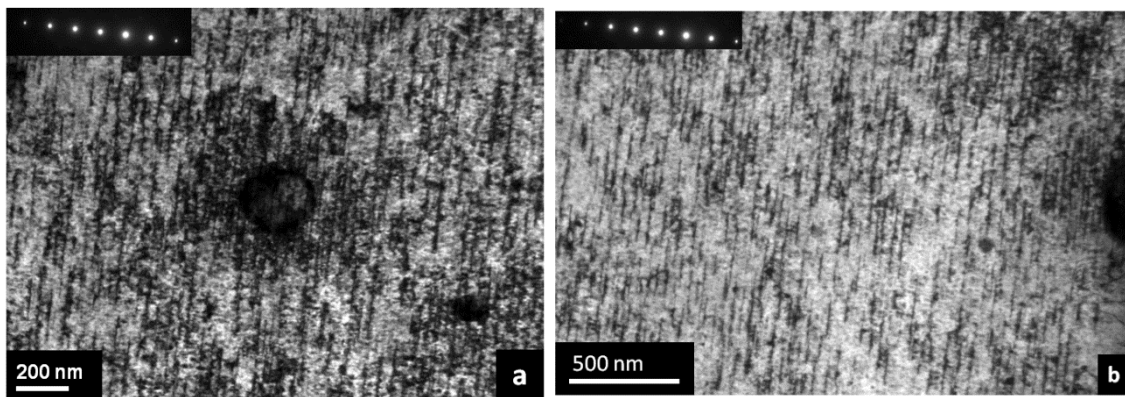


Figure 82 : Zy-4 recristallisé irradié par des protons de 2 MeV à 350°C jusqu'à 19 dpa. (a) échantillon témoin, (b) échantillon pré-hydruré à 185 ppm massique.

Lors d'irradiations aux neutrons, les boucles <c>, qui apparaissent dès 6 dpa, ont généralement des diamètres supérieurs à 150 nm et des densités volumiques inférieures à $10 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$. Les microstructures observées après irradiation aux protons à 350°C sont donc plus semblables à celles obtenues lors d'irradiation aux neutrons que ne le sont celles obtenues après irradiation aux ions Zr (à 300°C).

Pour ce qui concerne l'alliage M5TM, les boucles présentait des diamètres de 50 nm à 8 dpa et augmentant jusqu'à 70 nm à 19 dpa. La densité restait également faible et augmentait progressivement de 1×10^{20} à $3 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$. Par comparaison, lors d'irradiations aux neutrons, les boucles <c>, qui apparaissent à une dose de 10 dpa, avaient des diamètres supérieurs à 150 nm et des densités volumiques inférieures à $2 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$. En somme, là encore l'irradiation aux protons (à 350°C) conduit à des microstructures plus semblables à celles obtenues aux neutrons, que celles générées par les irradiations aux ions Zr.

Ces observations peuvent s'expliquer par les différences qui existent entre irradiations aux neutrons, aux ions Zr et aux protons. En effet, les irradiations aux ions lourds, comme aux neutrons, conduisent à la formation de grandes cascades de déplacements, alors que l'irradiation aux ions légers, comme les protons, conduisent à la formation de petites cascades séparées les unes des autres. Puisque nos observations montrent que c'est l'irradiation aux protons qui reproduit mieux l'irradiation aux neutrons, on peut en déduire que cet aspect du dommage d'irradiation n'a pas une influence majeure sur la microstructure résultante.

Les irradiations aux neutrons sont conduites avec un taux de création de dommage de l'ordre de 7.0×10^{-8} dpa.s⁻¹. Les irradiations aux protons sont conduites avec un taux de création de dommage de 2.0×10^{-5} dpa.s⁻¹ et les irradiations aux ions Zr à un taux d'endommagement de 5×10^{-4} dpa.s⁻¹. Ainsi, alors que l'irradiation aux protons est réalisée 300 fois plus vite que celle aux neutrons, l'irradiation aux ions Zr est quant à elle conduite 7000 fois plus vite.

Pour ce très fort taux de création de dommage, la concentration de défauts ponctuels est très élevée, les défauts ponctuels n'ayant pas le temps de s'éloigner suffisamment de leur lieu de création pour leur permettre de rencontrer des amas déjà formés. Ceux-ci rencontrent préférentiellement d'autres défauts ponctuels, par exemple du même type (formant ainsi des bi-lacunes par exemple), ce qui conduit à une germination importante de nouveaux amas de défauts ponctuels. Un fort taux de création de dommage favorise ainsi la germination des amas, au détriment de leur croissance.

Comme il est discuté dans la littérature (Was, 2007), il est possible de compenser ce phénomène, par un équivalent temps-température, en augmentant la température d'irradiation. Une température plus élevée augmente en effet la mobilité des défauts ponctuels, augmentant ainsi leur libre parcours moyen. Ceux-ci ont alors plus de chance de rencontrer des amas déjà formés conduisant ainsi à leur croissance. Le taux d'agglomération étant augmenté, la concentration de défauts ponctuels diminue, diminuant ainsi le taux de nucléation des amas. Ainsi une augmentation de température favorise la croissance des amas au détriment de leur nucléation.

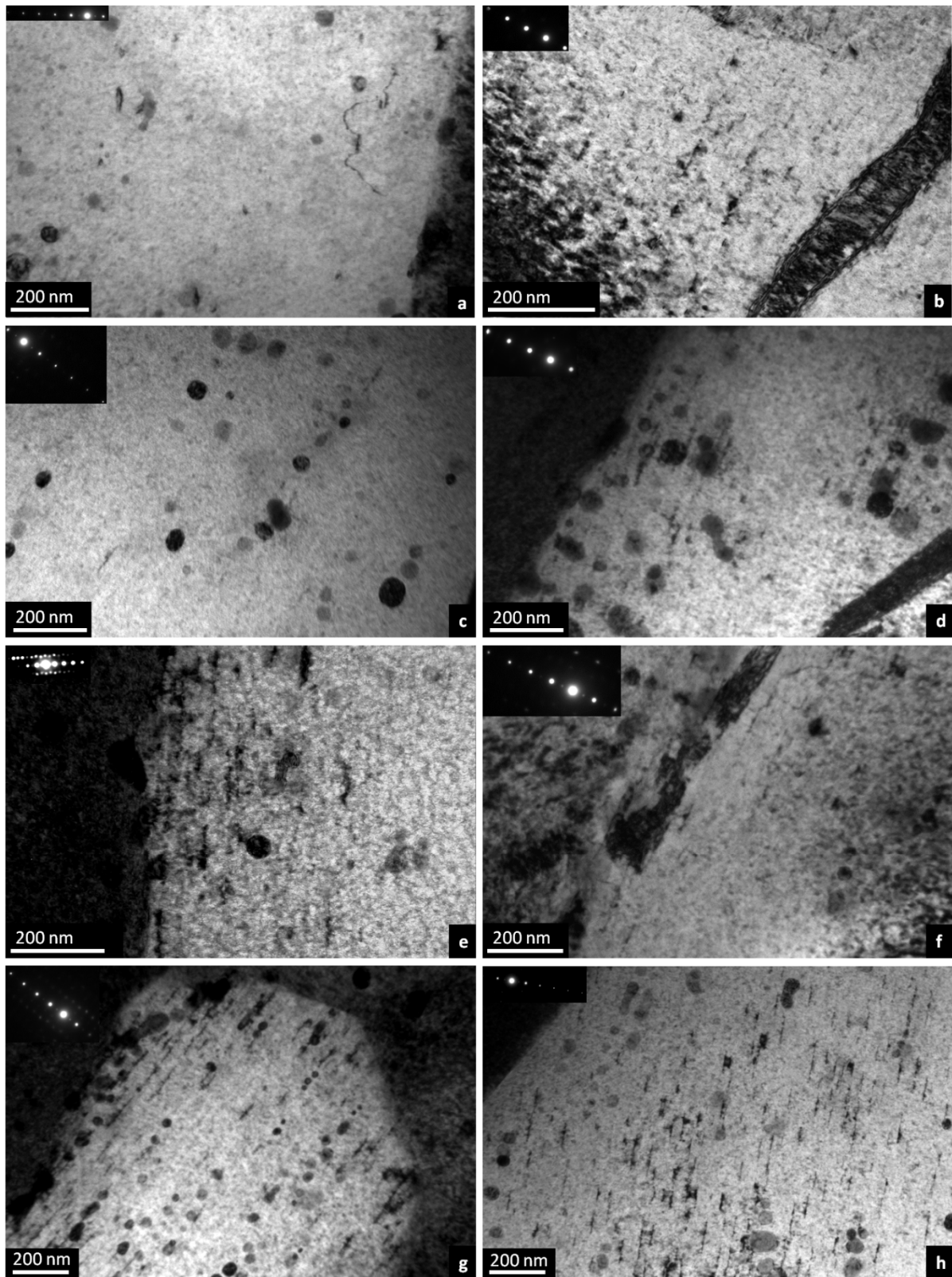


Figure 83 : Evolution des boucles <c> lors d'irradiations aux protons de 2 MeV à 350°C dans le M5TM irradié à (a) 4.9 dpa, (c) 8.1 dpa, (e) 12.5 dpa et (g) 19 dpa. Sur les figures (b), (d), (f), (h) sont données les micrographies obtenues sur M5TM pré-hydruré à 350 ppm massique, aux mêmes doses d'irradiation.

4.2.2 Influence de l'hydrogène sur les boucles <c>

Lors de leur séjour en réacteur, les alliages de zirconium, utilisés pour les tubes guides, s'oxydent. Simultanément à cette oxydation, une fraction des atomes d'hydrogène, issus de la réduction des molécules d'eau, pénètrent dans les tubes guides. L'introduction des atomes d'hydrogène dans le matériau induit un léger allongement qui est proportionnel à la teneur incorporée (Bossis et al., 2009).

Certains retours d'expériences concernant le grandissement d'assemblages combustibles laissent suspecter que cette prise d'hydrogène, en plus d'induire ce léger allongement, puisse affecter l'accélération de croissance. Ce phénomène pourrait se produire du fait d'une interaction entre atomes d'hydrogène et boucles <c> ce qui favoriserait leur germination ou bien leur croissance induisant ainsi une déformation de croissance plus importante que sans prise d'hydrogène.

Afin, d'apporter une réponse à AREVA quant à l'existence d'un tel mécanisme, nous avons irradié, avec l'aide de particules chargées, des échantillons d'alliages de zirconium M5TM pré-hydrurés (jusqu'à 350 ppm massique d'hydrogène, ce qui correspond à une teneur bien supérieure à celles habituellement rencontrées qui dépassent rarement 100 ppm). Les irradiations aux protons ont été préférées pour ces expériences car celles-ci permettent d'irradier jusqu'à une épaisseur de 30 µm, correspondant à six grains irradiés dans l'épaisseur. En analysant par MET une zone comprise en 10 µm et 20 µm de profondeur, on s'affranchit d'éventuels effets de surface et notamment d'une désorption de l'hydrogène en extrême surface. En revanche, simultanément à l'irradiation, des atomes d'hydrogène sont implantés dans le matériau, en plus de l'hydrogène initialement présent. Ainsi, des échantillons témoins, non pré-hydrurés ont systématiquement été irradiés conjointement aux échantillons pré-hydrurés (Tournadre, 2012 ; Tournadre et al, 2013 ; Tournadre et al., 2014).

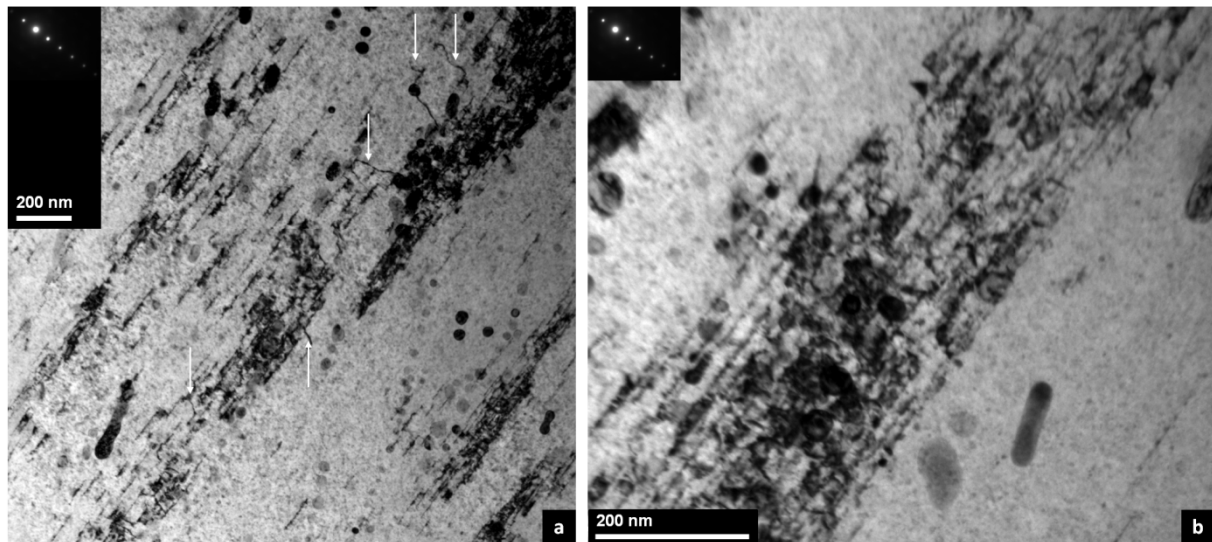


Figure 84 : M5TM pré-hydruré à 350 ppm massique d'hydrogène, irradié aux protons de 2 MeV à 350°C jusqu'à 19 dpa. (a) Des amas de boucles <c> et des dislocations <c+a> sont pointés par des flèches. (b) la même zone observée à plus fort grandissement.

Les observations MET réalisées sur ces échantillons ont révélé une légère augmentation de la densité de boucles à composante <c> lorsque la teneur en hydrogène introduite avant irradiation augmente (Figure 83). De plus, la distribution spatiale des boucles <c> au sein des grains était clairement plus homogène lorsque les échantillons étaient pré-hydrurés. De surcroît, pour la plus faible dose de 5 dpa, alors que les échantillons témoins ne contenaient pas de boucle à composante <c>, il est apparu que les échantillons pré-hydrurés contenaient déjà quelques boucles à composante <c> (Figure 83(b)). Ainsi l'hydrogène agirait sur la dose seuil de germination des boucles à composante <c> et peut-être également sur leur croissance. Nous avons également pu noter la présence d'amas de boucles <c> qui semblent s'être formés à l'emplacement d'anciens hydrures qui se seraient dissous lors de l'irradiation (Figure 84).

Il faut noter que dans ces expériences un autre phénomène complique l'interprétation des observations MET. Du fait du fort dépôt d'énergie par le faisceau sur la surface des échantillons, il existe un gradient de température important entre la face avant et la face arrière des échantillons. Le coefficient de diffusion de l'hydrogène étant sensible au gradient de température (phénomène de thermo-diffusion) (Sawatzky, 1960) un gradient d'hydrogène s'établit progressivement entre la face avant et la face arrière des échantillons. Ce phénomène se manifeste par l'observation d'un gradient de teneur en hydrures sur une métallographie d'une coupe transverse d'un échantillon irradié (Figure 85). La teneur en hydrogène dans la zone irradiée et observée en MET ne correspond donc

pas à la teneur globale de l'échantillon. Ce phénomène pourrait également expliquer la dissolution progressive d'hydrures, au cours de l'irradiation, dans la zone caractérisée par MET.

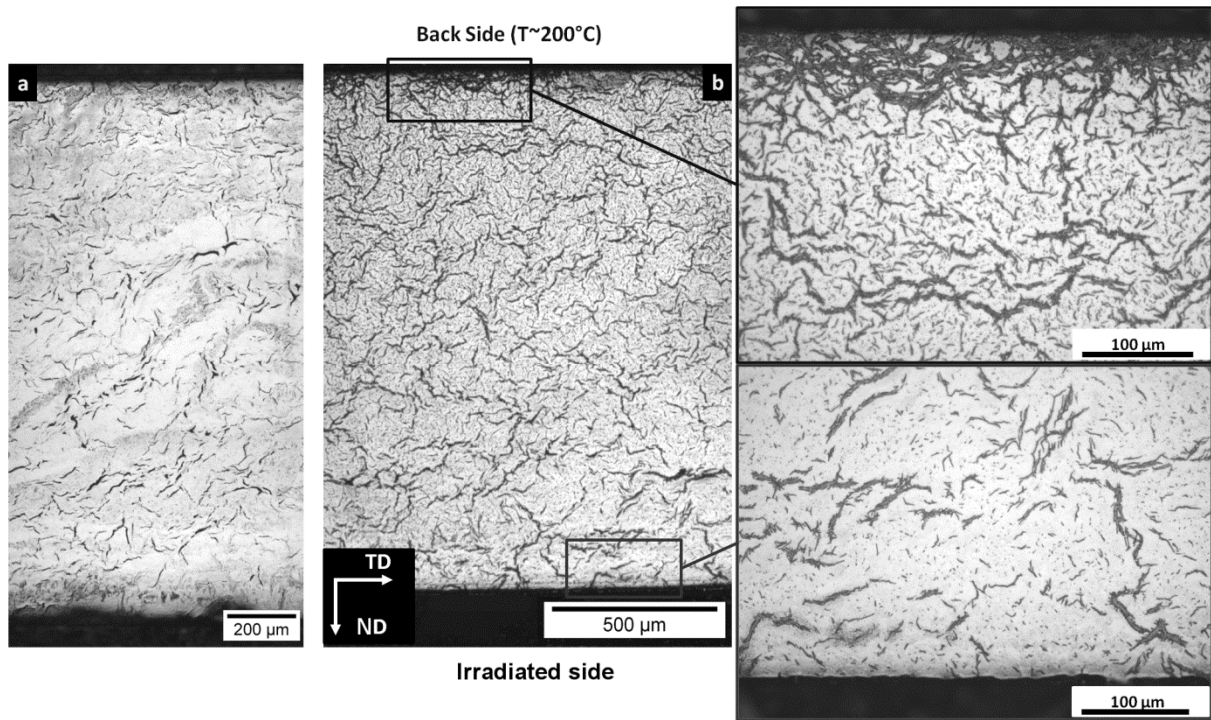


Figure 85 : Observations métallographiques d'échantillons en alliage M5™ pré-hydruré à 350 ppm. (a) échantillon non irradié, (b) échantillon après irradiation aux protons de 2 MeV à 350°C jusqu'à 19 dpa.

Afin de comprendre comment l'hydrogène peut faciliter la germination et/ou la croissance des boucles à composante <c>, il est intéressant de considérer la formule donnant l'énergie d'une boucle fautée en fonction de son rayon donnée par Hirth et Lothe (Hirth et Lothe, 1968).

$$E_{boucle}(R) = E_{ligne} + E_{faute} = 2\pi R \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left(\ln \left(\frac{4R}{r_0} \right) - 1 \right) + \pi R^2 \gamma_{faute} \quad (4.1)$$

Il a été démontré, grâce à des simulations ab initio à l'échelle atomique, que la présence d'atomes d'hydrogène abaisse l'énergie de faute d'empilement basale I_2 (Domain & Legris, 2004). Plus récemment, des calculs réalisés par Varvenne et al. (2015) ont montré que l'hydrogène abaissait également la faute E et I_1 . Ce phénomène expliquerait ainsi que l'énergie de la boucle soit abaissée par la présence d'hydrogène.

Dans le cadre de la théorie de la dynamique d'amas, la nucléation et la croissance des amas de défauts ponctuels est gouvernée par le flux net de défauts ponctuels sur la boucle. Une boucle lacunaire peut germer et grandir si le flux de lacunes absorbées par la boucle est supérieur à la somme du flux d'interstitiels absorbé par la boucle et du flux de lacunes émis par la boucle. En

conséquence la microstructure de boucles <c> dépend des taux de capture et d'émission des défauts ponctuels par les boucles <c>. Il est à noter que du fait de la très forte énergie de formation des auto-interstitiels, les amas de défauts ponctuels ne peuvent émettre d'auto-interstitiels.

Le taux d'émission d'une lacune par une boucle lacunaire (α_{nv}^v) est fonction de l'énergie de liaison entre la lacune et la boucle (E_{nv}^B) selon l'équation 4.2.

$$\alpha_{nv}^v \propto \exp\left(-\frac{E_{nv}^B}{kT}\right) \quad (4.2)$$

où k est la constante de Boltzmann et T est la température. Cette énergie de liaison, qui est une quantité positive, est définie par l'équation 4.3.

$$E_{nv}^B = E_v^f - (E_{nv} - E_{(n-1)v}) \quad (4.3)$$

où E_v^f est l'énergie de formation de la lacune, E_{nv} l'énergie d'une boucle contenant n lacunes et $E_{(n-1)v}$ est l'énergie d'une boucle contenant $n-1$ lacunes.

En utilisant l'énergie d'une boucle basée sur la théorie élastique (Eq. 4.1), une approximation du premier ordre peut être obtenue pour l'énergie de liaison (Eq. 4.4).

$$E_{nv}^B \cong E_v^f - \frac{1}{2} \frac{V_{at}}{R\pi b} \left(2\pi \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \ln\left(\frac{4R}{r_0}\right) + 2\pi R\gamma_{fault} \right) \quad (4.4)$$

où V_{at} est le volume atomique.

On peut alors constater que si l'énergie de faute d'empilement est abaissée par la présence d'hydrogène, l'énergie de liaison entre la lacune et la boucle est augmentée. Ceci a alors pour effet de diminuer le taux d'émission de lacunes par la boucle lacunaire. En conséquence le flux net de lacunes vers la boucle (absorption moins émission) se trouve être augmenté ce qui augmente la nucléation et la croissance des boucles. Ce phénomène expliquerait ainsi que la présence d'hydrogène en solution solide augmente la densité de boucles <c>.

Les hydrures qui se dissolvent progressivement lors de l'irradiation pourraient alors également agir comme source d'hydrogène. Ceci expliquerait la présence d'amas de boucles <c> à la place de ce qui ressemble à d'anciens hydrures dissous.

Il est aussi possible que du fait d'une forte déformation induite par la précipitation des hydrures (qui conduit localement à une dilatation de 17%), des dislocations <c+a> soient générées à l'interface de ces hydrures. Lorsque les hydrures se dissolvent, les dislocations <c+a> d'interface restent présentes et agissent comme site de germination des boucles <c>. Ces dislocations <c+a> peuvent aussi subir une montée hélicoïdale sous irradiation, attestée par ailleurs (Griffiths et al., 1993), notamment dans les plans de base. Ce phénomène s'apparente alors à la croissance de boucles <c> et serait aussi responsable d'une augmentation de la déformation de croissance.

Ces différents phénomènes pourraient ainsi expliquer que la densité de boucles <c> soit augmentée en présence d'hydrogène sous forme de solution solide et sous forme d'hydrures.

4.3 Couplage entre croissance et contrainte appliquée

Le retour d'expérience d'AREVA nous a conduits à suspecter qu'un paramètre extérieur, autre que la prise d'hydrogène, pouvait également augmenter l'accélération de croissance des alliages de zirconium. En effet, les tubes guides, lors de leur fonctionnement subissent des historiques de chargement axial assez complexes. Pour certains historiques particuliers, une croissance plus importante que celle enregistrée habituellement a été constatée. Comme dans le cas de l'hydrogène, il nous est alors apparu qu'un couplage entre la contrainte appliquée et la nucléation/croissance des boucles <c> avait pu se produire.

En effet, dans la littérature un phénomène est fréquemment décrit sur le plan théorique, les preuves expérimentales de ce phénomène étant néanmoins très rares. Ce phénomène est l'absorption préférentielle par les boucles interstitielles induite par la contrainte, dans les aciers austénitiques, des défauts ponctuels (ou SIPA pour Stress Induced Preferential Absorption). Selon cette théorie, lorsqu'une contrainte de traction est appliquée perpendiculairement au plan d'une boucle interstitielle, l'absorption des atomes auto-interstitiels par cette boucle serait favorisée conduisant à une croissance de ces boucles plus importante que sans contrainte appliquée. Inversement, si la contrainte est appliquée dans le plan de la boucle, l'absorption d'auto-interstitiels serait défavorisée ce qui conduirait à des boucles de diamètre plus petit que sans contrainte appliquée. En considérant qu'un phénomène similaire puisse s'appliquer aux boucles lacunaires à composante <c> apparaissant dans les tubes guides en réacteur, un couplage entre contrainte appliquée est accélération de croissance, via une composante de fluage d'irradiation associée aux boucles <c>, pourrait alors être observé.

Afin d'étudier la pertinence de ce mécanisme, un dispositif spécifique de flexion quatre points, a été conçu dans le cadre de la thèse de L. Tournadre (Tournadre, 2012 ; Tournadre et al., 2014) afin d'irradier avec des ions zirconium sous contrainte des échantillons d'alliages de zirconium. Grâce à ce dispositif la fine couche irradiée, de 300 nm d'épaisseur, subit une contrainte de traction. La contrainte de traction en surface est donnée par la formule analytique issue de la théorie des poutres (équation 4.5).

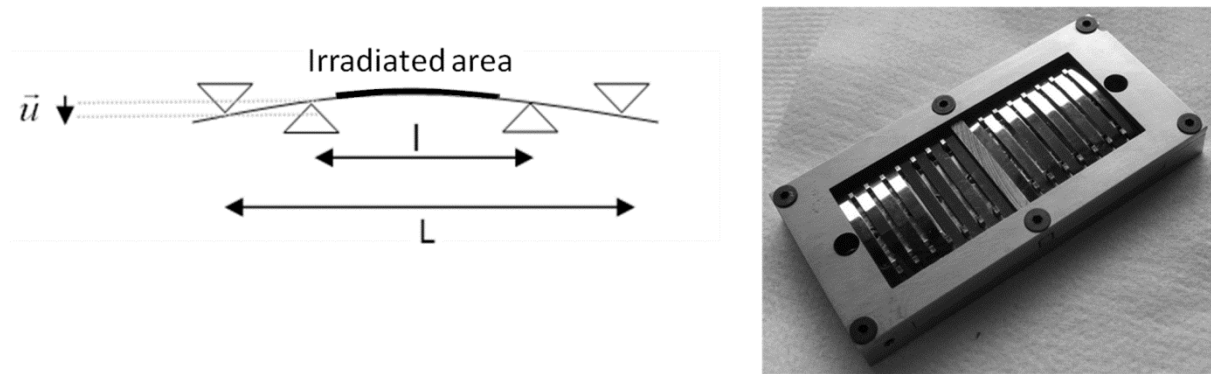


Figure 86: Dispositif de flexion 4 points sous irradiation aux ions développé.

$$\sigma_{max} = -6 \frac{E h u}{(L - l)(L + 2l)} \quad (4.5)$$

La température des échantillons a pu être mesurée lors d'une expérience de calibration à l'aide d'un thermocouple soudé par point sur un échantillon témoin. Un soin tout particulier a été apporté au plan de prélèvement des échantillons vis-à-vis de la texture du matériau. En effet, compte tenu de la texture du tube épais, si une contrainte de traction est appliquée suivant la direction DT, de nombreux grains subissent une contrainte de traction parallèle à l'axe <c> et d'autres grains subissent une contrainte de traction perpendiculaire à l'axe <c>. Afin d'observer facilement les boucles <c> dans ces grains (dans des conditions telles que $g=0002$), nous avons prélevé les échantillons dans le plan DT-DN du tube épais (Gharbi et al., 2013). En plus d'échantillons mis en traction, certains échantillons étaient mis en compression, en plaçant les languettes non pas en flexion quatre points mais dans des conditions de flambement.

La contrainte se relaxant lors de l'irradiation, il est apparu nécessaire d'irradier préalablement le matériau sans contrainte jusqu'à l'apparition des premières boucles <c>, puis d'appliquer alors la contrainte. Ainsi, les boucles <c> subissent effectivement une contrainte qui peut, le cas échéant, affecter leur croissance.

Dans son travail de thèse, N. Gharbi a repris la démarche initiée lors de la thèse de L. Tournadre (Tournadre, 2012 ; Tournadre et al., 2014), en l'appliquant de façon systématique avec grand soin. Pour chaque grain, l'épaisseur de la lame était mesurée localement par perte d'énergie des électrons (EELS), l'orientation vis-à-vis de la sollicitation était déterminée et le nombre et la longueur des boucles étaient méticuleusement mesurés en s'aidant de dispositifs semi-automatiques d'analyse d'images. Ainsi dans le cas du Zy-4 recristallisé plus de 19000 boucles ont été comptées dans 41 grains observés dans plusieurs lames elles-mêmes prélevées dans plusieurs éprouvettes. Le diamètre

moyen, la densité volumique et la densité linéique des boucles pour chaque grain ont alors été tracés en fonction de la composante suivant $\langle c \rangle$ du déviateur des contraintes (Gharbi et al., 2013 ; Gharbi et al., 2015) (Figure 87). Connaissant l'angle entre l'axe $\langle c \rangle$ du grain et la direction de traction (θ), grâce à l'indexation des clichés de diffraction, il est en effet possible de déterminer cette grandeur d'après l'équation 4.6.

$$\sigma_s^{\langle c \rangle} = \sigma \left(\frac{2}{3} \cos^2 \theta - \frac{1}{3} \sin^2 \theta \right) \quad (4.6)$$

L'orientation de la direction de traction par rapport au repère cristallin de chacun des grains étudiés est représentée dans le triangle standard (Figure 88).

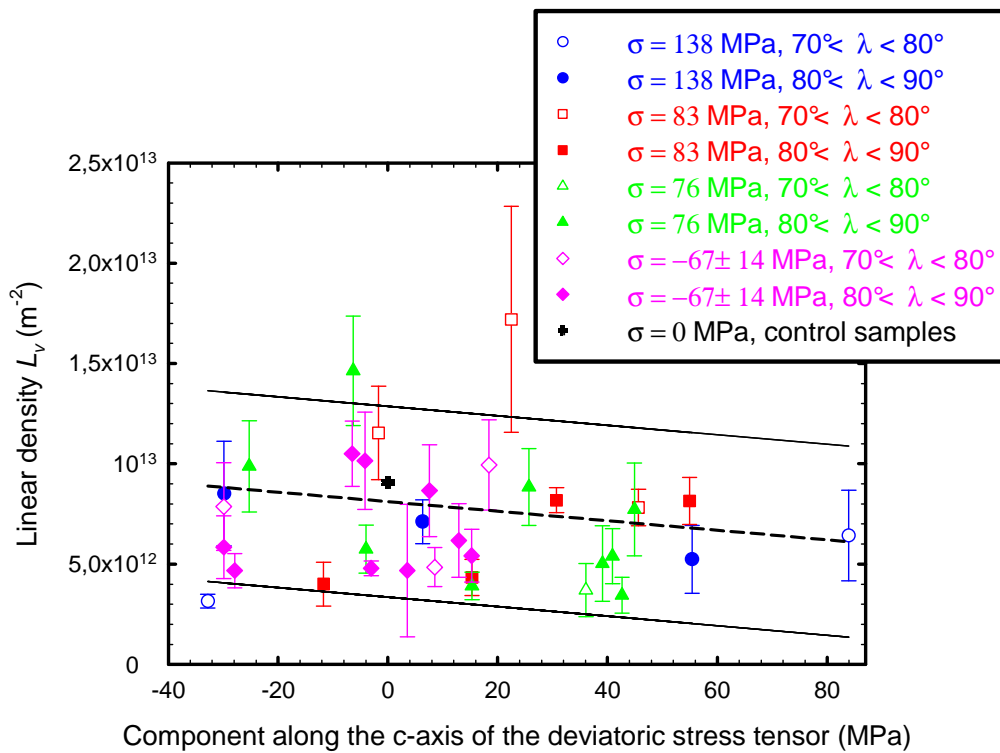


Figure 87: Densité linéique de boucles $\langle c \rangle$ représentée en fonction de la composante parallèle à la direction $\langle c \rangle$ du tenseur déviateur des contraintes.

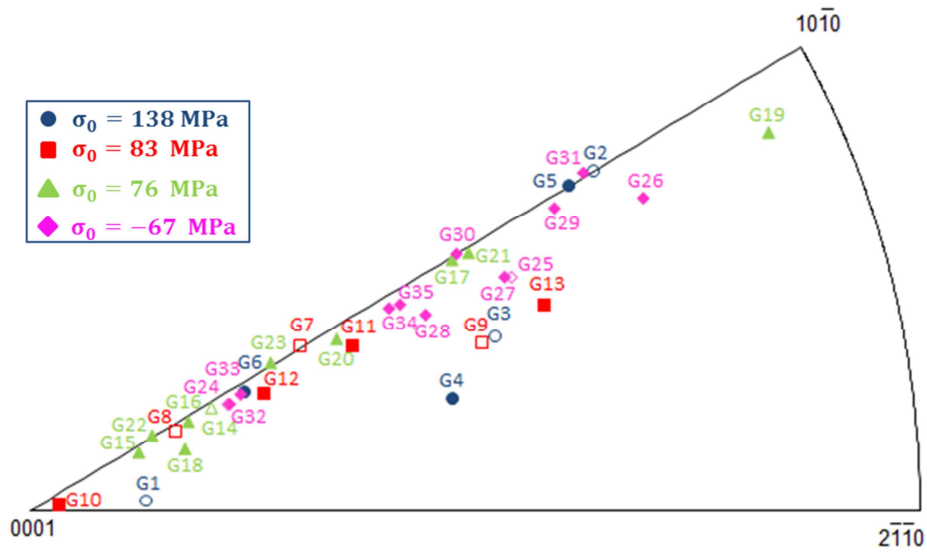


Figure 88: Figure de pôles inverse indiquant la direction de traction pour tous les grains étudiés dans le cas du Zy-4 recristallisé.

On note sur la Figure 87 que la densité linéique de boucles $\langle c \rangle$ a tendance à légèrement diminuer quand la composante suivant l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur des contraintes augmente. Ce phénomène serait en accord avec le mécanisme SIPA appliqué aux boucles $\langle c \rangle$ lacunaires. En effet, selon ce mécanisme, le biais d'absorption des atomes auto-interstitiels par une boucle s'écrit selon l'équation 4.7.

$$Z_i^l(\sigma) = Z_0 + C\sigma_{ij}^s n_i n_j \quad (4.7)$$

où Z_0 est le biais dû à la différence d'interaction élastique entre un interstitiel et une dislocation, et une lacune et une dislocation, sans contrainte appliquée.

Le paramètre C dépend de la taille des boucles et d'autres paramètres caractéristiques du matériau. σ_{ij}^s est le déviateur de la contrainte appliquée, n_i et n_j sont des vecteurs unitaires selon la normale au plan d'habitat de la boucle.

Ainsi, pour une boucle située dans le plan basal, le biais s'écrit selon l'équation 4.8.

$$Z_i^l(\sigma) = Z_0 + C\sigma_s^{\langle c \rangle} \quad (4.8)$$

Lorsqu'une contrainte de traction est appliquée suivant l'axe $\langle c \rangle$, on a $\sigma_s^{\langle c \rangle} = \frac{2}{3}\sigma$. L'efficacité de capture des atomes auto-interstitiels par les boucles $\langle c \rangle$ est alors augmentée. La croissance de la boucle est donc réduite.

Au contraire, lorsque la contrainte de traction est appliquée perpendiculairement à l'axe $\langle c \rangle$, on a $\sigma_s^{\langle c \rangle} = -\sigma/3$. L'efficacité de capture des auto-interstitiels par la boucle est réduite, la croissance de la boucle lacunaire est donc favorisée.

On peut néanmoins noter que cet effet semble relativement faible en regard de la forte dispersion de grain à grain. Cette dispersion pourrait s'expliquer par la présence de contraintes intergranulaires, liées à des effets de voisinage, qui viendrait affecter la contrainte subie effectivement par les grains. Cette constatation suggère qu'à l'échelle du grain les couplages entre contrainte appliquée et accélération de croissance sont relativement faibles et peuvent donc être négligés. Ce résultat justifie donc, en partie, l'utilisation de modèles qui considèrent comme additifs la croissance et le fluage d'irradiation.

Par cette étude expérimentale, utilisant une démarche analytique, il a été possible d'apporter à AREVA des éléments de réponse à des questions posées concernant le comportement des alliages de zirconium en réacteur.

4.4 Premières tentatives d'étude expérimentale des mécanismes de fluage d'irradiation

Malgré la démonstration de ce couplage faible entre contrainte appliquée et boucles $\langle c \rangle$, il existe nécessairement d'autres couplages entre la contrainte et la microstructure des alliages de zirconium sous irradiation. En effet, sous irradiation et sous une contrainte appliquée, les alliages de zirconium se déforment grâce au phénomène de fluage d'irradiation. Cette déformation est le résultat de l'action combinée de la création de défauts ponctuels en forte concentration qui s'éliminent sur les différents puits de la microstructure et de l'application d'une contrainte. Ces phénomènes doivent donc en principe se traduire au niveau de la microstructure du matériau.

Néanmoins, jusqu'à présent aucune étude expérimentale n'a été en mesure de déterminer les mécanismes actifs lors du fluage d'irradiation sur la base de l'évolution de la microstructure (Doriot, communication personnelle). C'est pour cette raison que dans le cadre de la thèse de J. Drouet (2014) nous avons engagé en 2013 une étude expérimentale originale. Celle-ci consiste à irradier des échantillons de Zy-4 recristallisé pré-écrouis, de telle façon à contenir quelques dislocations $\langle a \rangle$, *in situ* dans un microscope électronique en transmission mais à température ambiante. Parallèlement, d'autres échantillons ont été mis en flexion à température ambiante et à 300°C sous irradiation, sur le dispositif décrit précédemment, afin d'observer l'influence de l'irradiation combinée à une contrainte appliquée sur les dislocations $\langle a \rangle$.

Les observations menées sur ces différents échantillons mettent en évidence quelques indices de montée hélicoïdale des dislocations $\langle a \rangle$ à température ambiante qui se traduisent par des dislocations sinueuses (Figure 89).

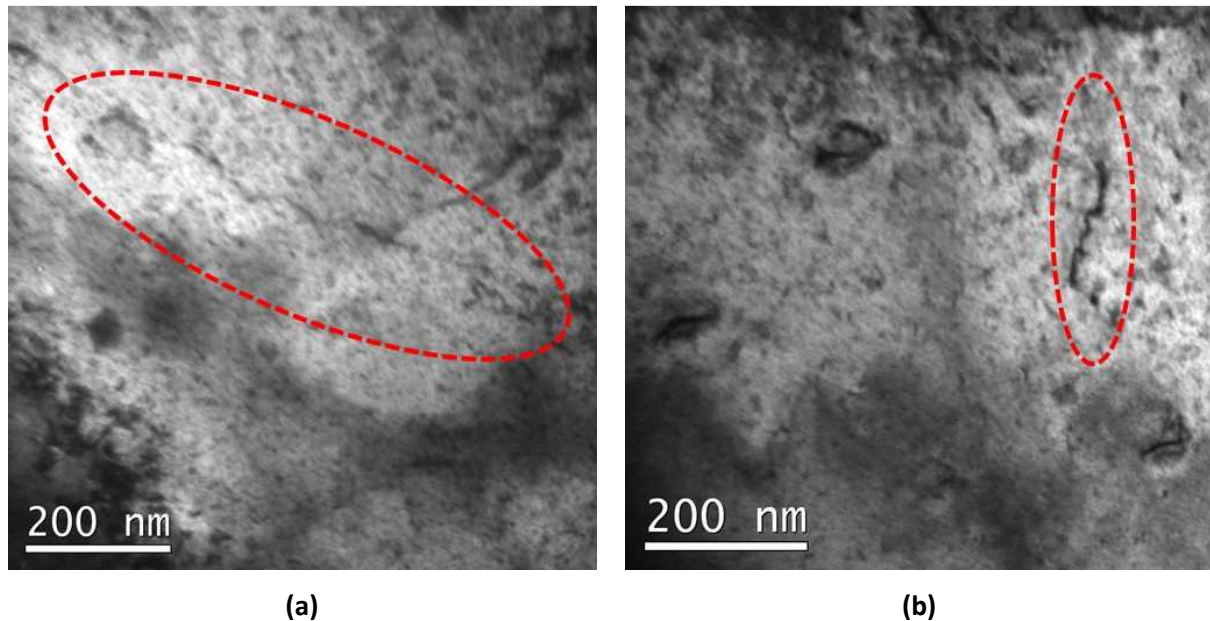


Figure 89 : Observation de dislocations « ondulées », manifestation d'une montée hélicoïdale, dans deux grains différents.

De nouvelles expériences dans d'autres conditions d'irradiation sont encore nécessaires pour déterminer expérimentalement les mécanismes de fluage d'irradiation, comme la montée des dislocations, qui sont effectivement actifs. Ce travail est actuellement poursuivi dans le cadre de la thèse de M. Gaumé.

4.5 Vers une modélisation multi-échelle de la déformation sous irradiation des alliages de Zr

En poursuivant la démarche initiée par A. Barbu, nous avons, dès 2011, avec l'aide de T. Jourdan (SRMP/CEA), utilisé un code de dynamique d'amas, CRESCENDO, fondé sur la même démarche que le code de A. Barbu (Hardouin-Duparc et al., 2002) (Chapitre 3 et Annexe 4) qui avait été utilisé pour simuler le recuit des boucles $\langle a \rangle$. Ce code a été développé en grande partie par T. Jourdan, en collaboration avec EDF. Dans ce code de dynamique d'amas, en plus de la population de boucles $\langle a \rangle$, qui peuvent être soit lacunaires, soit interstitielles, nous avons introduit une nouvelle population de boucles : les boucles à composante $\langle c \rangle$. En prenant en compte l'anisotropie de diffusion des auto-interstitiels, comme l'avait fait Christien et Barbu (2005 ; 2009) en s'inspirant de Woo (1988), nous

avons pu montrer que seules les boucles <c> lacunaires grandissaient. L'influence de la contrainte sur les biais d'absorption de défauts ponctuels par les boucles a également été prise en compte dans le modèle. Des premières simulations confirment l'influence de la contrainte sur le diamètre moyen des boucles <c>. Il apparaît néanmoins que l'effet reste relativement faible, en accord avec la faible influence de la contrainte sur les boucles <c> observée expérimentalement. Grâce à ce modèle, il devrait être possible à terme, et sous réserve d'un choix de coefficients appropriés, de simuler à la fois l'évolution de la microstructure de boucles <a> et <c> au cours de l'irradiation, ainsi que les différents flux de défauts ponctuels vers les autres puits du matériau et en particulier les joints de grains et les boucles <c>. Grâce au calcul de ces différents flux il sera possible d'en déduire la déformation d'un monocristal de zirconium lors des différentes phases de la croissance, avec ou sans contrainte appliquée.

Parallèlement à ce travail de modélisation à l'échelle microscopique, un modèle macroscopique permettant de simuler le comportement mécanique sous irradiation des alliages de zirconium a été proposé dans le cadre de la thèse de L. Tournadre. Celui-ci s'inspire d'une part de la démarche proposée par Christodoulou et al. (1996) et Causey et al. (2000) mais également du modèle de fluage thermique présenté au Chapitre 3 (et décrit dans l'Annexe 5). Le caractère polycristallin est oublié dans cette approche et les mécanismes de déformation sont pris en compte de façon simplifiée. Une additivité simple des trois composantes de la déformation sous irradiation (fluage thermique, fluage d'irradiation, croissance) est considérée. Le fluage d'irradiation est simulé de façon empirique comme une vitesse d'écoulement plastique proportionnelle à la contrainte. Le fluage thermique est modélisé par une loi de Norton identique au modèle de comportement en fluage thermique post-irradiation décrit dans le Chapitre 3. Le durcissement dû à l'irradiation est en effet pris en compte dans la contrainte de référence, présente au dénominateur de la loi d'écoulement, par l'augmentation de la densité de boucles <a>. L'accélération de croissance est, quant à elle, prise en compte par l'introduction d'une densité de boucles <c>. L'augmentation de la densité de boucles <c> conduit alors à une augmentation de la déformation de croissance selon une relation linéaire. Les lois de comportement sont, comme au Chapitre 2 et 3, intégrées grâce au logiciel Sidolo développé par P. Pilvin (2003) et décrit par Andrade-Campos et al. (2007). Ce modèle, actuellement en cours d'amélioration dans le cadre de la thèse de N. Gharbi, est en mesure de reproduire de façon satisfaisante le comportement sous irradiation du Zy-4 recristallisé et du Zy-4 détendu.

Afin de prendre en compte explicitement le caractère polycristallin du matériau, il pourrait être intéressant d'utiliser un modèle d'homogénéisation, en s'inspirant des travaux menés par Turner et al. (1994, 1999) et Tomé et al. (1993). Selon cette approche, les comportements en croissance, en

fluage thermique et en fluage d'irradiation sont introduits au niveau des lois intragranulaires. Des couplages apparaissent alors entre ses différentes composantes de déformation par l'intermédiaire des contraintes inter-granulaires. C'est cette démarche que nous avons récemment engagée, en utilisant le modèle polycristallin développé par R. Brenner (2002a, 2002b, 2005). A terme, ce modèle polycristallin devrait permettre de prédire le comportement sous irradiation des alliages de zirconium.

4.6 Conclusions et perspectives

L'étude de l'influence de différents paramètres sur les boucles à composante <c> qui sont responsables de l'accélération de croissance a permis d'apporter des réponses à des questions que se posait AREVA concernant le comportement des matériaux en réacteur nucléaire. Les industriels disposent donc maintenant d'une meilleure compréhension de certains couplages éventuels entre accélération de croissance, prise d'hydrogène et influence d'une contrainte extérieure. Des efforts significatifs ont déjà été réalisés pour disposer d'une modélisation multi-échelle de ces phénomènes, mais ceux-ci restent à poursuivre. Du point de vue des mécanismes de fluage d'irradiation, l'étude débute tout juste et le domaine est vaste et relativement vierge.

Les perspectives de cette étude des mécanismes de déformation sous irradiation sont nombreuses. Tout d'abord, il convient de poursuivre la caractérisation de l'évolution des boucles <c> par irradiation aux particules chargées afin d'obtenir une meilleure compréhension du phénomène d'accélération de croissance. L'influence de la température et de la dose sur la nucléation/croissance des boucles <c> reste un point important. Par ailleurs, des études complémentaires du rôle de l'hydrogène sur la croissance et nucléation des boucles <c>, notamment en s'affranchissant de l'implantation d'hydrogène et surtout du gradient de température, s'avèrent également importantes. Pour ce qui concerne l'étude de l'influence d'une contrainte appliquée sur la croissance des boucles <c>, de nouvelles expériences sont encore envisagées. En effet, dans le cadre de la thèse de L. Tournadre (2012), en plus du montage de mise en contrainte d'échantillons sous faisceau d'ions lourds, un autre montage original a été conçu et réalisé afin de mettre en contrainte des échantillons sous faisceau de protons. Ce montage a déjà été utilisé lors d'une irradiation aux protons à l'Université du Michigan pour une première expérience qui n'a pas porté ses fruits. Une nouvelle expérience optimisée est prévue afin d'étudier l'influence d'une contrainte appliquée sur l'évolution des boucles <c> sous irradiation aux protons.

Le peu de connaissances actuelles concernant les mécanismes de déformation de fluage d'irradiation effectivement actifs laisse ouvert un grand champ d'investigations expérimentales possibles. On cherchera notamment à étudier le mécanisme de montée des dislocations sous irradiation avec et sans contrainte appliquée. On pourra également s'interroger sur le rôle des joints de grains, et aussi sur le rôle des boucles <a>, dans les mécanismes de fluage d'irradiation.

Afin d'étudier tous ces phénomènes, nous avons travaillé au développement d'un montage spécifique pour conduire des irradiations aux protons sur l'installation JANNUS-Saclay. Ce nouveau dispositif s'inspire du montage de l'Université de Michigan utilisant de l'indium liquide. Il devrait être opérationnel prochainement. Parallèlement, nous initions un projet visant à développer un porte-objet de traction in situ chauffant sous irradiation aux électrons pour le microscope très haute tension de 1 MeV du SRMA (MET Très Haute Tension). Simultanément, le développement d'un porte-objet de traction in situ chauffant sous irradiation aux ions lourds est également envisagé.

Du point de vue de la modélisation, de nombreuses perspectives se dessinent également. En effet, le modèle de dynamique d'amas appliqué aux alliages de zirconium n'en est encore qu'à ses balbutiements. Un travail est encore nécessaire pour obtenir une microstructure simulée fidèle à la réalité et en déduire le comportement en croissance d'un monocristal de zirconium. L'utilisation d'un modèle polycristallin pour en déduire le comportement macroscopique du matériau semble également être une voie très prometteuse.

En plus de ces modélisations numériques et de ces études expérimentales analytiques, nous nous sommes engagés, depuis 2013 dans le cadre de la thèse de P. Lapouge, dans un projet particulièrement novateur. Ce projet, en collaboration avec T. Pardoën de l'Université catholique de Louvain, consiste à fabriquer des micro-machines d'essais mécaniques (ou lab on chip) par des techniques de photolithographie et de dépôt en phase vapeur (PVD ou CPVD) utilisées dans la micro-électronique. Les micro-éprouvettes se présentent sous la forme de poutres de 2 μm de large, 50 μm de long et 200 nm d'épaisseur (Boé, 2009 ; Gravier, 2009). Une force connue est appliquée sur cette éprouvette par l'intermédiaire d'un actionneur, en nitrure de silicium amorphe, et la déformation est mesurée lors d'observations par microscopie électronique à balayage. Les éprouvettes sont constituées d'un matériau modèle, le cuivre pur. Compte tenu de la faible épaisseur de ces éprouvettes, celles-ci sont irradiées entièrement sous un flux d'ions lourds de faible énergie (typiquement des ions Cu de 600 keV). Il est alors possible de caractériser mécaniquement le comportement du matériau sous irradiation ou bien après irradiation. Un montage permettant de protéger de l'irradiation l'actionneur en nitrure de silicium amorphe a déjà été conçu et testé avec

succès. Cette étude très prospective est actuellement en cours et pourrait être transposée à l'étude des mécanismes de déformation des alliages de zirconium sous irradiation.

Chapitre 5

La difficile remontée des échelles pour déduire le comportement mécanique des matériaux

5.1 Réduction et « reconstruction »

Dans ce mémoire, nous avons pu constater les difficultés rencontrées pour prédire le comportement mécanique des alliages de zirconium après ou sous irradiation ou bien même lorsque ceux-ci ne sont pas irradiés. Ces études illustrent, comme bien sûr de nombreuses autres, la difficile remontée des échelles. En effet, dans de nombreux domaines de la recherche scientifique (biologie, matière condensée,...) cette remontée des échelles constitue un des principaux enjeux actuels. Comme le soulignent Aspect et al. (2004) dans leur ouvrage collectif, la compréhension de la nature physique du monde ne se résume pas à la connaissance des particules et des interactions fondamentales. Les propriétés de la matière sont le résultat du comportement collectif des atomes en interaction qui la composent. La déduction de ces propriétés est un défi considérable compte tenu du gigantisme du nombre d'atomes dans chaque grain de matière (Aspect et al., 2004). C'est dans le cadre de ce grand défi lancé à la Science du XXI siècle que se situe notre étude sur les alliages de zirconium.

Comme le souligne Lévy-Leblond (2004), la Science a été animée depuis l'Antiquité par une démarche visant à expliquer les propriétés de la matière par ses constituants élémentaires. C'est la démarche réductionniste. L'étape de découverte des constituants élémentaires, l'analyse, a été un succès. Cependant, l'étape de synthèse, que nous appellerons « reconstruction », visant à déduire les propriétés de la matière à partir des connaissances acquises sur les particules élémentaires et leurs interactions, pose encore bien des problèmes. Il existe bien sûr des succès notables comme l'étape de remontée de l'échelle du noyau et des électrons à l'échelle des atomes et des molécules (Popper, 1984; Klein et Lachize-Rey, 1996; Lévy-Leblond, 2004).

La phase de remontée, des atomes vers notre matière quotidienne, est pose problème, notamment du fait du très grand nombre d'atomes mis en jeu. En général, seule une compréhension qualitative

et *a posteriori* des propriétés de la matière usuelle, sur la base de la structure atomique, est véritablement accessible. En effet, pour des systèmes suffisamment simples, le cas emblématique étant le gaz parfait, grâce à la physique statistique et la mécanique quantique, il est possible de déduire certaines propriétés macroscopiques (Jensen, 2001). Mais dans le cas de matériaux réels, utilisés industriellement, la prédiction des propriétés à partir des constituants semble demeurer une utopie (Bensaude-Vincent, 1998). Il ne suffit en effet pas de connaître la composition chimique d'un matériau pour déduire ses propriétés. C'est la façon dont sont agencés les atomes (10^{23} atomes !), et cela à différentes échelles, qui confèrent des propriétés spécifiques à chaque matériau. C'est d'ailleurs ce qui explique l'immense variabilité de propriétés qui peuvent apparaître alors que la classification périodique des éléments ne contient qu'une centaine d'espèces (Bensaude-Vincent, 1998 ; Jensen, 2001).

5.2 La méthode en physique du solide

Dans son ouvrage passionnant, Jensen (2001) décrit justement comment les physiciens tentent, en se ramenant à des systèmes plus simples, d'expliquer les propriétés de la matière ordinaire à partir des atomes. Dans le cas d'un cristal parfait pur, les physiciens du solide ont développé des modèles se rapprochant du cas du gaz parfait (champ moyen, milieu effectif), en introduisant éventuellement des particules fictives « stables » (électrons libres, trous, phonons...). Ces modèles ont permis, malgré le grand nombre d'atomes en interaction qui constituent le solide, de déduire des propriétés macroscopiques (conductivité électrique, thermique...). Lorsque les systèmes étudiés sont plus complexes les physiciens ont recours à la simulation numérique.

Pour Jensen (2001) la principale raison qui explique que cette démarche de reconstruction est possible, c'est que les physiciens construisent un **solide abstrait et idéal** qui leur permet d'effectuer des calculs. D'autre part cette démarche est aussi rendue possible par une **séparabilité des échelles** entre les échelles subatomiques et l'échelle de la molécule ou du solide. En effet, comme le note Jensen (2001) lorsqu'un solide est perturbé par une faible énergie, la structure interne des atomes qui le constitue n'est pas affectée. Ceci permet aux physiciens du solide de ne pas traiter explicitement les phénomènes subatomiques.

Ainsi, grâce à la construction d'une matière **simplifiée, homogène et purifiée**, constituée de briques élémentaires conçues de façon adéquate, et d'un découpage en une succession de niveaux imbriqués bien séparés, il est possible, d'après Jensen (2001), d'expliquer les propriétés de la matière à partir des atomes. Cette démarche a en effet remporté d'indéniables succès, notamment grâce à la simulation numérique. Néanmoins, la prédiction des propriétés mécaniques d'un alliage métallique d'intérêt industriel reste encore particulièrement difficile.

5.3 Les difficultés de la reconstruction

Le matériau métallique industriel n'est en effet en général pas pur mais contient divers éléments d'alliage, et quelques impuretés, qui affectent très fortement ses propriétés mécaniques. Le matériau industriel n'est pas un cristal parfait homogène, mais est un matériau hétérogène, en général polycristallin, éventuellement texturé, qui contient des phases secondaires : précipités, matériau multi-phasé. Au sein des grains les cristaux ne sont pas parfaits mais contiennent une multitude de défauts : dislocations, défauts ponctuels, atomes solutés, interfaces. Le matériau présente donc une structuration hétérogène à différentes échelles, de l'échelle des atomes jusqu'à l'échelle macroscopique. C'est la microstructure. Cette microstructure est le produit de son procédé d'élaboration, de sa mise en forme, de son vieillissement et donc de l'ensemble de l'histoire du matériau. D'après Cahn (Cahn, 2001) c'est justement ce concept de microstructure qui est le dénominateur commun à toute la Science des Matériaux. C'est la complexité de cette structuration hiérarchique des matériaux, de leur hétérogénéité et de leur « impureté » qui rend difficile un simple passage à la moyenne, expliquant la difficulté de la démarche de reconstruction dans le domaine du comportement mécanique des matériaux. Cette structuration complexe des atomes du matériau, à différentes échelles, fait « émerger » de nouvelles propriétés qui ne sont pas contenues dans les constituants élémentaires (Anderson, 1972; Medawar, 1974 ; Jacrot, 2006). Ainsi le matériau est quelque chose de plus que ses composants, il est « mixte » (Bensaude-Vincent, 1998). Par principe, la prédiction de ses propriétés est possible, mais la complexité de cette structuration multi-échelle rend cette déduction particulièrement difficile voire presque utopique dans le cas d'un matériau industriel.

De plus, la notion de séparabilité d'échelles décrite par Jensen (2001) s'applique parfois difficilement à tous ces différents objets qui constituent la microstructure du matériau.

De surcroît, il existe une multiplicité de mécanismes, ou réactions, qui peuvent se produire avec des énergies très proches. Ces différents mécanismes sont donc en compétition et il n'est pas simple de prévoir quel mécanisme se produit préférentiellement ou bien quel phénomène est du premier ordre. C'est donc souvent seulement a posteriori que le comportement du matériau est expliqué (Bensaude-Vincent, 1998).

Par ailleurs, les modèles polycristallins d'homogénéisation en champ moyen semblent souvent être mis en défaut compte-tenu du rôle très important des effets de voisinage et de corrélation spatiale entre grains. D'autre part, le glissement des dislocations est un phénomène discret, ce glissement peut de plus se produire de façon collective, ce qui rend le passage à la moyenne particulièrement délicat. Sous irradiation, des couplages complexes entre les flux de défauts ponctuels vers les différents objets de la microstructure rendent également le passage à la moyenne difficile. Là encore,

des effets de corrélation spatiale très importants peuvent apparaître, rendant très délicate la mise en œuvre de procédures d'homogénéisation en champ moyen.

5.4 Le recours à la simulation numérique

Du point de vue de la simulation numérique, la meilleure façon de traiter de façon la plus précise ces corrélations spatiales est de décrire la microstructure de la façon la plus « complète » possible, en utilisant une approche en « champ complet ». Néanmoins selon plusieurs auteurs (Aspect et al., 2004 ; Klein & Lachièze-Rey, 1996) même en utilisant des puissances de calculs exceptionnelles, qui seront peut-être accessibles dans l'avenir, il apparaît utopique de pouvoir simuler par des méthodes de type *ab initio* s'appuyant sur la mécanique quantique, une assemblée d'atomes représentative d'un grain de matière macroscopique (10^{23} atomes). De plus, dans une telle simulation, imaginaire, une grande quantité d'information n'est pas pertinente pour en déduire des propriétés macroscopiques. Il est nécessaire de filtrer, extraire l'information pertinente.

Des étapes de « coarse graining », ou homogénéisation, s'avèrent donc nécessaires d'un point de vue pratique. A chaque étape, des informations sont oubliées, simplifiées (structure fine du cœur des dislocations, différentes configurations des auto-interstitiels, détails des jonctions entre dislocations, ...). Ces informations simplifiées doivent alors être prises en compte par des grandeurs ou des paramètres effectifs dans les modèles utilisés aux échelles supérieures.

5.5 L'exemple des études menées sur les alliages de zirconium

L'étude menée sur les alliages de zirconium illustre certains aspects de cette difficile remontée des échelles pour un matériau industriel. Mais cette étude illustre également quelques-unes des stratégies qui peuvent être mises en œuvre pour contourner ces difficultés.

L'étude expérimentale approfondie des mécanismes de déformation des alliages de zirconium irradiés a révélé un phénomène de balayage des défauts d'irradiation, qui devrait en principe conduire à un adoucissement. Or ce phénomène d'adoucissement n'est pas observé à l'échelle macroscopique. Un autre phénomène, intervenant à une autre échelle (incompatibilités de déformations intergranulaires), est ici responsable de ce comportement. La méthode mise en œuvre dans ce cas a été de confronter les mécanismes observés à l'échelle microscopique à une analyse fine du comportement à l'échelle macroscopique. Cette démarche permet, parfois avec l'aide de la simulation numérique, de mettre en évidence d'éventuelles contradictions nécessitant de réviser le scénario initialement envisagé. Sur la base de ce nouveau scénario il est alors possible de proposer de nouveaux essais macroscopiques, ou bien d'autres caractérisations spécifiques, destinés à valider ou invalider ce nouveau scénario.

Une démarche similaire a été employée dans le cas du fluage thermique post irradiation. En effet, en confrontant, après une étude expérimentale très approfondie, les observations de la restauration des défauts d'irradiation à l'échelle microscopique avec le comportement en fluage mesuré à l'échelle macroscopique, des contradictions sont apparues. En effet, malgré la restauration des défauts d'irradiation, la vitesse de fluage restait faible. Cette analyse a mis en évidence l'importance d'une multiplication exagérée des dislocations lors du fluage, phénomène effectivement observé à l'échelle microscopique. Afin de tester ce phénomène, des essais avec recuit préalables ont été proposés. Ces essais n'ont pas abouti au résultat escompté, la vitesse de fluage restant faible même après recuit. Le scénario a alors dû être modifié une nouvelle fois en considérant la présence des nano-précipités de niobium qui apparaissent sous irradiation. Pour mettre à l'épreuve ce nouveau scénario, des essais macroscopiques ont une fois de plus été proposés sur un alliage ne contenant pas de niobium. Ces nouveaux essais ont ainsi permis de valider, en partie, le nouveau scénario microscopique proposé.

5.6 Réflexion sur la « méthode »

On voit donc ici que de nombreux allers-retours sont nécessaires entre les échelles macroscopique et microscopique afin de déduire un scénario capable d'expliquer le comportement par les mécanismes microscopiques. Il n'est en effet pas possible de se contenter d'une approche qui ne prend en compte que les mécanismes microscopiques pour tenter une remontée des échelles. Il est nécessaire de caractériser finement le comportement du matériau à l'échelle macroscopique conjointement à une analyse des mécanismes à l'échelle microscopique. Cette confrontation entre le comportement macroscopique permet notamment de vérifier si un phénomène n'a pas été oublié aux différentes échelles. En particulier, l'échelle polycristalline est souvent sous-estimée, alors que les contraintes internes intergranulaires peuvent jouer un rôle très important sur le comportement macroscopique du matériau.

De surcroît des allers-retours entre expériences et théories ou simulations numériques sont également nécessaires, et cela à chacune des échelles. A chaque modèle développé pour remonter d'une échelle à une autre doit correspondre des expériences réalisées aux échelles pertinentes. Une représentation schématique d'une étude multi-échelle serait alors plus juste sous la forme de la Figure 90. Les expériences ou les essais réalisés à l'échelle macroscopique font office de « juge de paix », car celles-ci testent l'ensemble du matériau dans toute sa complexité. Ce sont les seules capables de trancher quant à la pertinence des mécanismes envisagés dans le scénario proposé.

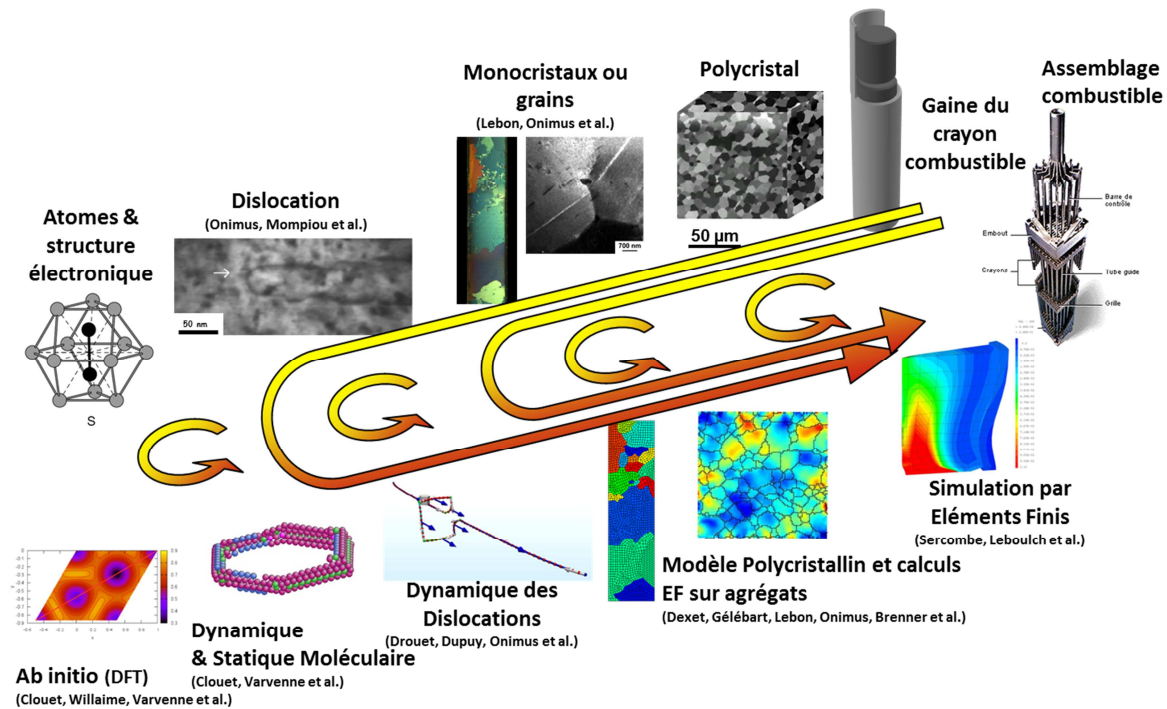


Figure 90 : Représentation schématique de la « méthode » effectivement mise en œuvre.

Il est donc important de conserver une approche globale du matériau, à l'échelle macroscopique, conjointement à une approche plus physique des mécanismes à l'échelle microscopique.

La démarche réductionniste, ou « constructionniste », est bien sûr valable par principe dans le cas de la Science des Matériaux, mais du point de vue de la méthode une attitude purement réductionniste peut être mise en échec face à la complexité des matériaux et aux processus multiples qui gouvernent leur comportement mécanique. Une approche qui laisse plus de place à une vision « complexe » (Morin, 1990) ou « mixte » (Bensaude-Vincent, 1998) est donc nécessaire pour aborder un matériau d'intérêt industriel. En particulier, il est important d'aborder un problème de mécanique des matériaux avec une variété de points de vue différents (Bensaude-Vincent, 1998), une pluralité de représentations (Ruphy, 2013). Ces points de vue sont alors complémentaires et peuvent s'alimenter les uns les autres. C'est ainsi que dans le domaine de la mécanique des matériaux deux démarches différentes sont souvent menées conjointement, en recherchant leur convergence.

En effet, parallèlement à la démarche de « métallurgie physique » s'intéressant aux mécanismes à l'échelle atomique ou bien des défauts cristallins et cherchant à remonter les échelles, des modèles de comportements mécaniques macroscopiques empiriques, dits phénoménologiques, sont développés. Ceux-ci cherchent à décrire la rhéologie des matériaux dans le cadre d'une démarche fondée sur la thermodynamique. Ces modèles abordent le matériau comme une boîte noire homogène. Des variables internes décrivent son évolution au cours d'essais mécaniques (Lemaitre &

Chaboche, 1994). Afin d'enrichir ce type de modèles en tirant partie de la connaissance, qualitative, des mécanismes microscopiques, il a été proposé d'introduire des variables internes caractéristiques de la microstructure (densité de dislocations) (Mecking & Kocks, 1981) ainsi que la texture cristallographique du matériau dans les modèles polycristallins (Kocks et al., 2000). Ces approches nécessitent une identification de paramètres ajustables, par approche inverse, sur le comportement macroscopique du matériau. Ces paramètres ajustables masquent tout ce qui a été oublié, simplifié. Ces modèles restent donc relativement empiriques et plusieurs jeux de paramètres ou bien plusieurs modèles différents peuvent éventuellement rendre compte du comportement du même matériau (Ruphy, 2013). Néanmoins, lorsqu'ils sont confrontés à des essais mécaniques suffisamment riches, ces modèles renseignent sur les mécanismes pertinents, du premier ordre. Cette approche « micromécanique » est donc complémentaire de la démarche de « métallurgie physique ». Ces deux démarches ne s'opposent pas et devraient pouvoir être appliquées conjointement pour résoudre les questions posées sur un matériau d'intérêt industriel. C'est cette approche conjointe que je m'efforcerai de mettre en œuvre et de promouvoir dans mes travaux futurs.

Chapitre 6

Conclusion générale et perspectives

Par ce mémoire, j'ai tenté de décrire de façon synthétique, ma contribution à la compréhension des mécanismes de déformation, et des effets de l'irradiation, des alliages de zirconium. Des avancées parfois nuancées, parfois significatives voire majeures, ont pu être notées dans différents domaines.

Après un Chapitre introductif, le deuxième Chapitre du manuscrit a permis de décrire une méthode permettant de déduire le comportement monocristallin d'éprouvettes polycristallines à grands grains. Grâce à cette méthode le comportement du zirconium à température ambiante a été déterminé, lorsque le glissement prismatique est activé. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les données expérimentales existantes dans la littérature. Un modèle de comportement du zirconium monocristallin a aussi pu être proposé et ce modèle a été validé en simulant, par éléments finis, le comportement des éprouvettes multi-cristallines complètes.

A l'échelle du polycristal, l'importance des contraintes internes inter-granulaires, issues des incompatibilités de déformation, sur le comportement mécanique macroscopique a été réaffirmée. Une analyse fine du comportement mécanique nous a conduits à développer un modèle de comportement macroscopique simple prenant en particulier en compte l'érouissage cinématique dû aux contraintes inter-granulaires. Un modèle polycristallin a également été proposé pour simuler le comportement en érouissage des alliages de zirconium non irradiés. Ce modèle reproduit bien le comportement macroscopique mais surestime, à l'échelle microscopique, l'activation des systèmes de glissement secondaires. L'étude et la modélisation du comportement du matériau polycristallin non irradié avait principalement pour objectif d'établir un point de comparaison avec le matériau irradié.

Des avancées majeures, décrites dans le troisième Chapitre, ont été réalisées dans la compréhension et la modélisation des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium après irradiation. A l'échelle la plus fine, les interactions élémentaires entre dislocations et boucles sont maintenant bien comprises et simulées. La simulation, par dynamique des dislocations, de celles-ci a été validée par comparaison avec les observations de MET en traction in situ. A l'échelle du grain, le phénomène de canalisation des dislocations a été également bien caractérisé par MET. A l'échelle du polycristal, le comportement mécanique est maintenant bien compris et bien simulé. Le modèle polycristallin développé prend en effet en compte le durcissement par les boucles induites par l'irradiation, le balayage de ces boucles, ainsi qu'un écrouissage cinématique intra-granulaire associé aux fortes incompatibilités de déformation générées par la localisation de la déformation dans les canaux. Ce modèle a permis de simuler des essais hors de la base d'identification, validant le modèle à l'échelle macroscopique. L'activation des systèmes de glissement prédit par le modèle est également en très bon accord avec les observations MET, validant ainsi le modèle également à l'échelle microscopique.

Concernant le comportement en fluage post-irradiation, le recuit du dommage d'irradiation qui se produit lors du fluage a été finement caractérisé. Un modèle de dynamique d'amas a permis de simuler le recuit du dommage d'irradiation. Les résultats des simulations sont en bon accord avec les observations expérimentales. Les mécanismes de déformation lors du fluage post-irradiation ont été ensuite caractérisés et ont mis en évidence un phénomène de multiplication « accentuée » des dislocations qui a été attribué à la présence des défauts d'irradiation et de nano-précipités de niobium qui apparaissent sous irradiation. Un premier modèle de comportement macroscopique intégrant des variables internes caractéristiques de la microstructure du matériau (dislocations, défauts d'irradiation), qui évoluent lors de la déformation et lors du recuit, a été développé et identifié sur le comportement mécanique en fluage post-irradiation.

Enfin, des avancées significatives, décrites dans le quatrième Chapitre, ont pu être réalisées concernant la déformation sous irradiation à forte dose des alliages de zirconium. Le rôle de l'hydrogène sur l'accélération de croissance a pu être confirmé par des observations MET de boucles à composante $\langle c \rangle$ réalisées sur des échantillons pré-hydrurés et irradiés avec des protons. Une influence de la contrainte sur la croissance des boucles à composantes $\langle c \rangle$ a aussi été mise en évidence lors d'irradiations aux ions Zr, mais celles-ci semblent néanmoins faibles en regard de la dispersion de grain à grain observée. Une modélisation multi-échelle de ces phénomènes, par un modèle de dynamique d'amas ainsi qu'un modèle polycristallin, est actuellement en cours.

Concernant l'étude des mécanismes de déformation en situation de fluage d'irradiation, plusieurs projets ont déjà été lancés et plusieurs expériences réalisées. Néanmoins, cette partie constitue une part importante des perspectives de ces études.

Perspectives et Programme de Recherches

Les perspectives de ce travail ont été progressivement données à l'issue de chacune des parties. Celles-ci sont néanmoins rappelées ici, en les priorisant et en les structurant sous la forme d'un Programme de Recherches.

Du point de vue de la **méthode**, il est essentiel de poursuivre les études aux échelles les plus élémentaires, et en particulier à l'échelle des défauts cristallins, mais également à l'échelle macroscopique, tout en considérant toujours les échelles intermédiaires et en particulier l'échelle du polycristal. A chaque échelle on tentera d'utiliser des modèles multi-échelles adaptés qui devront être comparés à des résultats expérimentaux obtenus aux échelles pertinentes. Systématiquement, le comportement macroscopique sera analysé de la façon la plus fine possible, en réalisant éventuellement des essais à historique de chargement complexe. Ceci permettra d'obtenir une vision du matériau qui englobe tous les processus se produisant à chacune des différentes échelles, garantissant ainsi qu'une échelle n'est pas oubliée dans l'analyse.

Du point de vue de l'**organisation**, j'envisage de bien sûr poursuivre l'encadrement de thèses, tout en continuant les collaborations initiées avec mes collègues numériques et expérimentateurs. Ces projets continueront de se dérouler dans le cadre de projets CEA-EDF-AREVA, tout en y associant étroitement des collègues académiques du CNRS et des Universités. D'autres projets pourront également avoir lieu dans le cadre d'appels d'offre européens ou ANR. J'envisage également d'approfondir certains échanges que je mène depuis de nombreuses années avec des collègues internationaux (USA, Canada, UK) qui devront se concrétiser par des collaborations effectives. J'essaierai aussi d'intensifier les échanges avec les collègues étudiant les phénomènes à l'échelle atomique. Je pourrais aussi me tourner progressivement, et à plus long terme, vers une position visant à guider, orienter la R&D sur les effets de l'irradiation dans les matériaux métalliques.

Du point de vue des **moyens**, je prévois de poursuivre mon implication dans le développement de dispositifs permettant d'irradier des échantillons sous contrainte, comme les deux dispositifs déjà développés dans le cadre des études présentées précédemment. Il est notamment prévu de développer des dispositifs de traction in situ chauffants, en MET, sous irradiation aux ions et aux

électrons. Le montage permettant d'irradier avec des protons sur l'installation Jannus développé sera aussi utilisé pour irradier des échantillons sous contrainte. La technique expérimentale centrale de mes études restera donc la Microscopie Electronique en Transmission, associée à des dispositifs spécifiquement développés. L'analyse d'essais macroscopiques restera également un élément important de ce programme. Du point de vue de la modélisation, un accent tout particulier sera mis sur la modélisation polycristalline, la modélisation par dynamique d'amas et la modélisation par dynamique des dislocations.

Du point de vue **thématique**, les travaux initiés sur le comportement monocristallin du zirconium seront poursuivis, avec des collègues académiques du CNRS et des Universités. Les résultats, en particulier de traction in situ en MET, seront comparés à des simulations réalisées à l'échelle atomique. Des essais sur éprouvettes à grands grains et des simulations par dynamique des dislocations devraient également permettre une meilleure connaissance et prédiction du comportement monocristallin du zirconium. Les lois de comportement identifiées à l'échelle du monocristal seront également introduites dans un modèle polycristallin afin d'en déduire le comportement macroscopique, comportement qui pourra être comparé aux essais expérimentaux. Parallèlement, le modèle polycristallin sera identifié sur des essais à historique de chargement complexe réalisés sur des alliages de zirconium non irradiés. Des efforts seront également réalisés pour améliorer la description polycristalline, en utilisant d'autres types de modèles polycristallins en champ moyen ou bien des méthodes d'homogénéisation en champ complet.

Après irradiation, de nouvelles expériences de traction in situ sur matériau irradié aux ions seront réalisées et comparées aux simulations par dynamique des dislocations. On retiendra également le projet d'aboutir à une simulation par dynamique des dislocations du phénomène de canalisation par balayage des boucles, permettant d'identifier une loi de comportement intra-granulaire à intégrer dans le modèle polycristallin développé. Ce modèle polycristallin sera par ailleurs identifié sur des essais à historique de chargement complexe. Pour ce qui concerne le fluage post-irradiation, un travail doit encore être réalisé concernant la modélisation polycristalline couplée au modèle de dynamique d'amas simulant le recuit.

Mais c'est surtout vers l'étude expérimentale des mécanismes de déformation sous irradiation que vont se tourner nos efforts. Concernant les alliages de zirconium les mécanismes de fluage d'irradiation seront étudiés expérimentalement par irradiations aux particules chargées et une modélisation polycristalline sera développée pour déduire le comportement du matériau en réacteur. Par ailleurs, en utilisant des matériaux modèles, comme du cuivre pur, les mécanismes de fluage d'irradiation seront étudiés par irradiation aux particules chargées en utilisant des micro-

machines élaborées par des méthodes issues de la micro-électronique. Si ces différentes approches portent leurs fruits, la démarche pourra alors être étendue à d'autres matériaux.

Ces travaux menés depuis plus de dix ans contribuent déjà à une meilleure compréhension des mécanismes de déformation et du comportement mécanique des alliages de zirconium notamment sous et après irradiation. Ceux-ci permettront à terme, en poursuivant cette démarche de modélisation multi-échelle, d'améliorer la fiabilité et la performance des assemblages combustibles des réacteurs nucléaires à eau pressurisée.

Annexes

Modèles développés ou adaptés

Annexe I : Loi de comportement monocristalline

La loi de comportement monocristalline identifiée dans le cadre de la thèse de C. Lebon (2012) s'appuie sur une formulation classique développée pour la plasticité cristalline des métaux CFC.

Pour chaque système de glissement, la cission résolue est calculée grâce à la connaissance de la contrainte appliquée et de l'orientation du cristal dans le repère macroscopique. Le calcul de la cission résolue est réalisé selon l'équation I-1, où $\underline{\underline{\mu}}_s$ est le tenseur d'orientation du système de glissement considéré.

$$\tau_s = \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\mu}}_s \quad (I-1)$$

Le tenseur d'orientation $\underline{\underline{\mu}}_s$ s'écrit selon l'équation I-2, où \underline{n}_s est un vecteur unitaire normal au plan de glissement et \underline{m}_s le vecteur unitaire parallèle à la direction de glissement.

$$\underline{\underline{\mu}}_s = \frac{1}{2}(\underline{n}_s \otimes \underline{m}_s + \underline{m}_s \otimes \underline{n}_s) \quad (I-2)$$

La loi d'écoulement au niveau de chaque système de glissement s'exprime sous la forme d'une fonction sinus hyperbolique de la cission résolue sur le système de glissement considéré (équation I-3). Un seuil est pris en compte dans la loi d'écoulement.

$$\dot{\gamma}^s = 2\dot{\gamma}_0^s \sinh \left[\frac{(|\tau_s| - \tau_\mu^s) V_s}{k_B T} \right] \text{signe}(\tau_s) \quad (I-3)$$

V_s est un volume d'activation, T la température, k_B la constante de Boltzmann et $\dot{\gamma}_0^s$ un autre coefficient. τ_μ^s est la contrainte seuil athermique qui s'exprime selon l'équation I-4 qui reprend la loi d'écrouissage de Taylor généralisée selon l'approche de Franciosi (1985) dans laquelle apparait la matrice d'interaction (A_{rs}) entre systèmes de glissement. Le coefficient α correspond à une résistance d'obstacle, μ est le module de cisaillement et b le vecteur de Burgers.

$$\tau_\mu^s = \alpha \mu b \sqrt{\sum_{r \in S} (A_{rs} \rho_r)} \quad (I-4)$$

Dans cette loi apparait également la densité de dislocations selon chaque système de glissement qui évolue selon la loi classique (équation I-5) dans laquelle on retrouve un terme de multiplication et un terme d'annihilation. Deux coefficients gouvernent respectivement la multiplication (K) et l'annihilation (g_c).

$$\dot{\rho}^s = \frac{\dot{\gamma}^s}{b} \left(\frac{K}{\sqrt{\sum_{u \neq s} \rho^u}} - g_c \rho^s \right) \quad (I-5)$$

Enfin, grâce à la loi d'écoulement I-3, les vitesses de cisaillement selon chaque système de glissement sont déduites. Il est alors possible de calculer la vitesse de déformation plastique du monocristal qui s'écrit selon l'équation I-6. Une intégration temporelle permet de déduire la déformation plastique du monocristal au pas de temps suivant.

$$\underline{\dot{\epsilon}}_g^p = \frac{1}{2} \sum_{s \in S} \dot{\gamma}_s (\underline{n}_s \otimes \underline{m}_s + \underline{m}_s \otimes \underline{n}_s) \quad (I-6)$$

Quatre familles de systèmes de glissement sont initialement considérées pour les monocristaux de zirconium. Il s'agit des systèmes de glissement prismatique <a>, pyramidal de vecteur de Burgers <a>, pyramidal de vecteur de Burgers <c+a> et basal <a>. Au vu des premières observations au MEB, le maclage est supposé inactif dans les grains bien orientés pour le glissement prismatique. Celui-ci est donc négligé dans une première approche. Il n'est par conséquent pas intégré dans la loi de comportement utilisée. En accord avec l'expérience, seul le glissement prismatique est finalement considéré actif dans les simulations, les autres systèmes de glissement sont bloqués.

Certains paramètres du modèle ont été fixés d'après les données de la littérature, en particulier les coefficients du tenseur d'élasticité, d'autres coefficients ont été fixés d'après l'étude expérimentale. Seuls les paramètres g_c , K et $\dot{\gamma}_0^s$ ont finalement été ajustés afin de minimiser l'écart entre l'expérience et la simulation (Tableau I-1). Cette loi de comportement a été tout d'abord ajustée à l'aide du logiciel Sidolo puis introduite, avec l'aide de L. Vincent (Vincent et al., 2011) dans un calcul Cast3m.

Tableau I-1 : Paramètres de la loi de comportement. *Coefficients fixés.

Coefficient	Valeur	
C_{11}^*	143 GPa	(Fisher et Renken, 1964)
C_{12}^*	73 GPa	(Fisher et Renken, 1964)
C_{44}^*	32 GPa	(Fisher et Renken, 1964)
α^*	0.28	(Douglass, 1971)
b^*	3.23 Å	
V^*	100b ³	(Lebon, 2012)
$a^{su} (s \neq u)^*$	0	(Lebon, 2012)
a^{ss}^*	1	(Lebon, 2012)
g_c	2.60 nm	
K	42	
ρ_0^s	$2.5 \times 10^{12} m^{-2}$	(Lescoat, 2008)
$\dot{\gamma}_0^s$	$5.0 \times 10^{-8} s^{-1}$	

Annexe II : Modèle de comportement macroscopique de type Chaboche

Le modèle de comportement mécanique macroscopique utilisé et adapté au comportement des alliages de zirconium non irradiés et irradiés est du type de ceux développés par Chaboche (2008). Il a été programmé dans le logiciel Sidolo (Pilvin, 2003 ; Andrade-Campos et al., 2007). Les principales équations du modèle sont décrites dans cette Annexe.

Tout d'abord, puisque seule la sollicitation de pression interne a été étudiée, il a été fait le choix de simplifier le modèle en utilisant un critère d'écoulement de Von Mises. Ce choix induit seulement une légère erreur sur la direction de l'écoulement. Un modèle empirique macroscopique plus complet, mais plus complexe, qui prend notamment en compte l'anisotropie de comportement, a été proposé par Delobelle et al. (1996).

Le comportement du matériau suit la loi de normalité en considérant un critère isotrope. Cette loi de normalité s'écrit selon l'équation II-1.

$$\underline{\dot{\underline{\epsilon}}}^p = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{dev(\underline{\underline{\sigma}}) - \underline{\underline{X}}}{J_2(\underline{\underline{\sigma}} - \underline{\underline{X}})} \quad (\text{II-1})$$

La grandeur $J_2(\underline{\underline{x}})$ correspond au second invariant du tenseur $\underline{\underline{x}}$ qui se calcule selon l'équation II-2.

Le tenseur $dev(\underline{\underline{x}})$ correspond au déviateur du tenseur du second ordre $\underline{\underline{x}}$. Le tenseur $\underline{\underline{X}}$ est un tenseur déviatorique.

$$J_2(\underline{\underline{x}}) = \sqrt{\frac{3}{2} dev(\underline{\underline{x}}) : dev(\underline{\underline{x}})} \quad (\text{II-2})$$

La grandeur \dot{p} correspond au multiplicateur visco-plastique qui est calculé par la loi d'écoulement.

La loi d'écoulement choisie (équation II-3) est une loi de type de Norton. Celle-ci prend en compte l'écrouissage cinématique.

$$\dot{p} = \left\langle \frac{J_2(\underline{\underline{\sigma}} - \underline{\underline{X}}) - R}{k} \right\rangle^n \quad (\text{II-3})$$

Avec la notation $\langle x \rangle = 0$ si $x < 0$ et $\langle x \rangle = x$ si $x \geq 0$

De façon cohérente avec l'analyse du comportement macroscopique, la contrainte isotrope (R) a été choisie constante ($R = R_0$). Tout l'écrouissage macroscopique est donc porté par l'écrouissage cinématique, dans cette première approche simple.

L'écrouissage cinématique est choisi sous la forme classique d'une loi de Armstrong-Frederick selon l'équation II-4, où l'évolution de la variable interne $\underline{\underline{\alpha}}$ suit la forme donnée par l'équation II-5.

$$\underline{\underline{X}} = \frac{2}{3} C \underline{\underline{\alpha}} \quad (\text{II-4})$$

$$\underline{\underline{\dot{\alpha}}} = \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p - D \underline{\underline{\alpha}} \dot{p} - \left(\frac{J_2(\underline{\underline{\alpha}})}{\alpha_0} \right)^m \frac{\underline{\underline{\alpha}}}{J_2(\underline{\underline{\alpha}})} \quad (\text{II-5})$$

Dans l'équation II-5 on reconnaît un terme de rappel dynamique ainsi qu'un terme de restauration statique. Ce dernier terme permet la restauration statique de la contrainte interne particulièrement notable lors des phases de relaxation. Le modèle proposé contient huit coefficients ajustables, le coefficient de Poisson étant fixé à $\nu=0.42$ (Schwenk et al., 1978). Les paramètres ajustés sont donnés dans le tableau II-1.

Pour ce qui concerne la modélisation du comportement mécanique des alliages de zirconium recristallisés irradiés, une évolution de la contrainte isotrope a été prise en compte (équation II-6). En effet, une diminution de la contrainte d'écoulement a été constatée après la relaxation. Un terme de restauration statique de la contrainte isotrope a alors été introduit. Celui-ci reproduit l'effet du recuit des défauts d'irradiation qui se produit lors de la relaxation (durant 72 heures à 350°C).

$$\dot{R} = -b(R - R_0) \text{ avec } R(0) = R_0 + \Delta R \quad (\text{II-6})$$

Les coefficients ajustés sur le comportement du matériau irradié sont donnés dans le Tableau II-1.

Tableau II-1 : Paramètres de la loi de comportement issus de la littérature. * coefficient fixé.

Coefficient	Valeur, matériau non irradié	Valeur, matériau irradié
E (MPa)	89500	79700
ν^*	0.42	0.42
n	13.0	6.2
k (MPa.s ^{1/n})	130	520
R_0 (MPa)	100	140
C (MPa)	8700	5.01×10 ⁵
D	80	3000
m	1.7	1.5
α_0 (s ^{1/m})	24	16
b	-	4×10 ⁻⁶
ΔR (MPa)	-	60

Annexe III : Modèle polycristallin

Le modèle polycristallin utilisé est le modèle développé par Pilvin (1994). C'est ce modèle qui a été adapté aux alliages de zirconium irradiés. Cette approche originale et pragmatique a été proposée par Cailletaud (1992) et Pilvin (1994) afin de simuler le comportement cyclique de polycristaux de texture isotrope. Ce modèle a ensuite été extrapolé aux polycristaux de texture anisotrope présentant un comportement élasto-visco-plastique (Geyer, 1999).

Ce modèle s'inspire du modèle auto-cohérent développé par Berveiller et Zaoui (1979) pour les polycristaux. En effet, ces auteurs (Berveiller et Zaoui, 1979) ont montré que pour un comportement élasto-plastique, pour un comportement intragranulaire élastique isotrope (donc homogène) et pour une texture isotrope, la formulation du modèle auto-cohérent (bien adapté pour modéliser les polycristaux) se ramène à un modèle rigoureux simple, basé sur une linéarisation sécante du comportement du matériau. Pour une sollicitation radiale monotone, les auteurs ont montré qu'il existait une relation explicite entre la contrainte locale dans la phase cristallographique considérée et la contrainte macroscopique (équation III-1).

$$\underline{\underline{\sigma}}_g = \underline{\underline{\Sigma}} + 2\mu(1-\beta)\alpha(\underline{\underline{E}}^p - \underline{\underline{\varepsilon}}_g^p) \quad \text{avec} \quad \frac{1}{\alpha} \approx 1 + \frac{3}{2}\mu \frac{\|\underline{\underline{E}}^p\|}{J_2(\underline{\underline{\Sigma}})} \quad \text{et} \quad \beta = \frac{2(4-5\nu)}{15(1-\nu)} \quad (\text{III-1})$$

La grandeur α définie dans l'équation III-1 est proche de 1 au début de l'écoulement plastique puis diminue progressivement reproduisant ainsi le phénomène d'accommodation plastique entre les grains du polycristal. Cette relation de localisation permet la simulation d'essais monotones mais n'est pas adaptée pour décrire les sollicitations cycliques. Afin de conserver l'avantage d'une relation de localisation explicite Cailletaud (1992) et Pilvin (1994) ont postulé une relation de localisation explicite (équation III-2) de nature heuristique en introduisant une nouvelle variable interne tensorielle $\underline{\underline{\beta}}_g$ qui évolue de façon non linéaire avec la déformation locale de la phase cristalline (équation III-3).

$$\underline{\underline{\sigma}}_g = \underline{\underline{\Sigma}} + 2\mu(1-\beta)\left(\underline{\underline{B}} - \underline{\underline{\beta}}_g\right) \quad \text{avec} \quad \underline{\underline{B}} = \sum_{g \in G} f_g \underline{\underline{\beta}}_g \quad (\text{III-2})$$

$$\dot{\underline{\underline{\beta}}}_g = \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p - D\left(\underline{\underline{\beta}}_g - \delta \underline{\underline{\varepsilon}}_g^p\right) \left\| \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p \right\| \quad (\text{III-3})$$

L'évolution non linéaire de cette nouvelle variable interne est inspirée de l'évolution non linéaire de l'écrouissage cinématique utilisée dans les modèles macroscopiques empiriques à variables internes.

L'effet de l'évolution non linéaire de cette variable interne est de prendre en compte l'accommodation plastique entre les grains, à l'instar du facteur α du modèle de Berveiller-Zaoui.

Ce modèle polycristallin « semi-empirique » proposé par Cailletaud (1992) et Pilvin (1994) (C-P) n'est pas auto-cohérent en tant que tel. Les auteurs ont néanmoins proposé d'ajuster les deux paramètres D et δ de la loi d'évolution de la variable interne $\beta_{=g}$ sur la réponse mécanique locale du modèle auto-cohérent de Berveiller et Zaoui (B-Z). Plus précisément, dix orientations cristallographiques sont choisies. Pour ces dix orientations les contraintes et déformations locales sont calculées par les deux modèles. Grâce à une procédure de minimisation par moindres carrés les coefficients D et δ sont ajustés afin que le modèle C-P soit le plus proche du modèle B-Z. Cet ajustement est réalisé en simulant avec les deux modèles un essai de traction monotone sur une texture isotrope. De plus, le modèle B-Z étant limité aux comportements élasto-plastiques, les lois de comportement choisies sont quasi-élastoplastiques (très faible sensibilité à la vitesse).

Puisque ce modèle polycristallin est adapté pour simuler les sollicitations cycliques, Cailletaud et Pilvin ont proposé d'utiliser ce modèle, ajusté sur un essai monotone, pour la simulation d'essais cycliques. De plus, ces auteurs ont proposé d'extrapoler, de façon pragmatique, le domaine d'application du modèle aux textures anisotropes. Cette extension se base sur l'hypothèse que la cinétique de l'accommodation plastique est identique que la texture soit isotrope ou que la texture soit anisotrope (coefficients D et δ identiques). Cette extrapolation étend ainsi considérablement le domaine d'application du modèle polycristallin à des matériaux présentant des textures anisotropes et pour des essais cycliques.

Poursuivant la démarche initiée par Geyer (1999) nous avons utilisé ce modèle en simplifiant significativement l'approche afin de limiter le nombre de paramètres ajustables, en particulier dans le cas du matériau non irradié, l'objectif étant toujours d'établir un point de référence pour prendre en compte, dans un second temps, l'influence de l'irradiation. Les lois intragranulaires adoptées ici sont donc particulièrement simples. Les paramètres de la loi d'écoulement sont choisis de telle façon que le comportement soit quasi-élastoplastique (très faible sensibilité à la vitesse). De plus, il est choisi dans une première approche de ne pas prendre en compte d'écrouissage intragranulaire, toujours afin de limiter le nombre de paramètres ajustables. Le comportement est donc plastique parfait.

Le calcul se déroule selon l'algorithme suivant. A chaque pas de temps, le chargement est connu, en contrainte ou en déformation. La loi de Hooke généralisée (III-4) est appliquée afin de déduire la contrainte macroscopique.

$$\underline{\underline{\Sigma}} = 2\mu \left\{ \mathbf{I} + \frac{\nu}{1-2\nu} \mathbf{I} \otimes \mathbf{I} \right\} (\underline{\underline{E}} - \underline{\underline{E}}^p) = \sum_{g \in G} f_g \underline{\underline{\sigma}}_g \quad (\text{III-4})$$

où $\mu = E / (2 + 2\nu)$ est le module de cisaillement.

Ensuite, la contrainte locale dans la phase cristalline considérée (grain) est calculée grâce à la loi III-5

$$\underline{\underline{\sigma}}_g = \underline{\underline{\Sigma}} + 2\mu(1-\beta) \left(\underline{\underline{B}} - \underline{\underline{\beta}}_g \right) \quad \text{avec} \quad \underline{\underline{B}} = \sum_{g \in G} f_g \underline{\underline{\beta}}_g \quad (\text{III-5})$$

La variable $\underline{\underline{\beta}}_g$ évolue selon l'équation III-6.

$$\dot{\underline{\underline{\beta}}}_g = \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p - D \left(\underline{\underline{\beta}}_g - \delta \underline{\underline{\varepsilon}}_g^p \right) \left\| \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p \right\| \quad (\text{III-6})$$

Connaissant la contrainte locale, il est possible de déduire la cission résolue sur tous les systèmes de glissement grâce à la formule III-7.

$$\tau_s = \frac{1}{2} \underline{\underline{\sigma}}_g : (\underline{\underline{n}}_s \otimes \underline{\underline{m}}_s + \underline{\underline{m}}_s \otimes \underline{\underline{n}}_s) \quad (\text{III-7})$$

Grâce à la loi d'écoulement (III-8) la vitesse de cisaillement sur chacun des systèmes est ensuite déduite.

$$\dot{\gamma}_s = \left\langle \frac{|\tau_s| - \tau_s^c}{K} \right\rangle^n \text{sign}(\tau_s) \quad (\text{III-8})$$

Pour le matériau non irradié, il est considéré qu'il n'y a pas d'écrouissage intragranulaire, les cissions critiques sont donc constantes ($\tau_s^c = \tau_s^{c0}$).

La vitesse de déformation plastique du grain peut alors être calculée selon la formule (III-9).

$$\dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p = \frac{1}{2} \sum_{s \in S} \dot{\gamma}_s (\underline{\underline{n}}_s \otimes \underline{\underline{m}}_s + \underline{\underline{m}}_s \otimes \underline{\underline{n}}_s) \quad (\text{III-9})$$

La vitesse de déformation plastique du polycristal est enfin déduite selon la relation de moyenne (III-10) et la déformation plastique macroscopique au pas de temps suivant est calculée par intégration temporelle.

$$\underline{\underline{\dot{E}}}^p = \sum_{g \in G} f_g \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}}_g^p \quad (\text{III-10})$$

Les coefficients du modèle sont identifiés par minimisation d'une fonction coût par moindres carrés en comparant les essais simulés aux essais expérimentaux. Simultanément, les essais de traction

monotone avec une texture isotrope sont simulés permettant ainsi l'identification des coefficients D et δ de la relation de localisation explicite. Les coefficients du modèle identifié sur le comportement du matériau non irradié sont donnés dans le Tableau III-1.

Tableau III-1 : Paramètres identifiés pour le modèle, dans le cas du matériau non irradié et du matériau irradié (à 350°C).
*Coefficients fixés lors de l'identification.

Paramètre	Identification pour le matériau non irradié	Identification pour le matériau irradié
E (MPa)	80000	80000
ν *	0.4	0.4
n *	10	10
K * (MPa.s ^{1/n})	5	5
τ_p^c (MPa)	45	45
$\Delta\tau_p^c$ (MPa)	-	195
$\tau_{\pi<a>}^c$ (MPa)	60	60
$\Delta\tau_{\pi<a>}^c$ (MPa)	-	180
$\tau_{\pi<c+a>}^c$ (MPa)	140	140
$\Delta\tau_{\pi<c+a>}^c$	-	160
τ_B^{c0} (MPa)	85	85
$\rho_b(0)$ * (m ⁻²)	-	5×10 ¹⁴
α_B	-	0.5
k_B	-	40
C_B (MPa)	-	1×10 ⁵
D_B	-	3000
D	260	280
δ	0.26	0.53

Ce modèle a ensuite été étendu au comportement des alliages de zirconium recristallisés irradiés. Le durcissement d'irradiation par les boucles est pris en compte pour le système basal par l'ajout d'un terme proportionnel à la racine de la densité linéique de boucles, analogue à l'écroissage par les dislocations de la forêt (III-11).

$$\tau_B^c = \tau_B^{c0} + \alpha_B \mu b \sqrt{\rho_l} \quad \text{avec} \quad \rho_l = Nd \quad (\text{III-11})$$

Puisque seule la canalisation dans le plan basal a été observée lors des sollicitations de pression interne et de traction sens travers à 350°C, il a été choisi de ne considérer le balayage des boucles que selon les systèmes basaux. Les trois systèmes basaux peuvent contribuer au balayage des boucles dans le canal, la densité de boucles diminue donc selon l'équation III-12.

$$\frac{d\rho_l}{dt} = -k_B \rho_l \left[\sum_{s \in B} |\dot{\gamma}_s| \right] \quad (\text{III-12})$$

avec $\rho_l = Nd$, $\rho_l(0) = N_0 d$, $k_B = H/b$, $N_0 = 5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et $d = 10 \text{ nm}$.

Pour les autres systèmes de glissement, un comportement plastique parfait, sans écrouissage ni adoucissement a été considéré. En effet, bien qu'aucun canal n'ait été observé selon ces autres systèmes pour les sollicitations de traction sens travers et de pression interne, il n'est pas exclu que ces systèmes s'activent faiblement, afin d'accommoder les contraintes élevées dans certains grains mal orientés pour le glissement basal. Les cissions critiques de ces systèmes doivent néanmoins rester élevées afin que les activités simulées des systèmes soient cohérentes avec les observations expérimentales. Le durcissement d'irradiation pour les autres systèmes de glissement est donc pris sous la forme donnée par l'équation III-13.

$$\tau_s^c = \tau_s^{c0} + \Delta \tau_s^c, \quad \text{avec} \quad \Delta \tau_s^c \quad \text{étant constant pour} \quad s \neq B \quad (\text{III-13})$$

En ce qui concerne la loi d'écoulement, celle-ci est modifiée afin de prendre en compte un terme d'écrouissage cinématique intra-granulaire (Eq. III-14).

$$\dot{\gamma}_s = \left\langle \frac{|\tau_s - x_s| - \tau_s^c}{K} \right\rangle^n \text{sign}(\tau_s - x_s) \quad (\text{III-14})$$

Ce terme d'écrouissage cinématique intra-granulaire revêt un caractère semi-empirique. En effet, celui-ci permet de prendre en compte les contraintes internes en retour, ou « back stress », générées par les fortes incompatibilités de déformation résultant de la localisation (par canalisation dans le plan basal) de la déformation au sein des grains. L'écrouissage cinématique intra-granulaire s'écrit sous la forme des équations III-15 et III-16. Puisque seule la canalisation suivant le plan basal est considérée, le terme d'écrouissage cinématique n'affecte que le glissement basal (équation III-15). Ce terme est donc nul pour les autres systèmes de glissement (équation III-16).

$$\text{Pour les systèmes basaux } (s \in B), \quad \dot{x}_s = C_B \dot{\gamma}_s - D_B x_s |\dot{\gamma}_s| \quad \text{avec} \quad x_s(t=0) = 0 \quad (\text{III-15})$$

$$\text{Pour les systèmes de glissement non basaux } (s \neq B) \quad \dot{x}_s = 0 \quad (\text{III-16})$$

Annexe IV : Modèle de dynamique d'amas

Le modèle de dynamique d'amas utilisé a été développé par Hardouin-Duparc et al. (2002), puis a été adapté au zirconium par Christien et al. (2005, 2009). Ce modèle simule, en se basant sur une approche en champ moyen, l'évolution des amas de défauts ponctuels sous irradiation. Le matériau est considéré comme un milieu qui absorbe les défauts ponctuels de façon homogène. Le code calcule, par l'intermédiaire d'équations différentielles couplées, l'évolution de la concentration en amas de défauts ponctuels. L'évolution de la distribution d'un amas de type j est donnée par l'équation générale IV-1.

$$\frac{dC_j}{dt} = G_j + \sum_k w(k, j)C_k - \sum_k w(j, k)C_j - L_j \quad (\text{IV-1})$$

Où C_j est la concentration de l'amas de type j , G_j le taux de création de défauts, $w(k, j)$ le taux de transition par unité de concentration d'un amas de type k en un amas de type j , $w(j, k)$ le taux de transition par unité de concentration d'un amas de type j en un amas de type k et L_j le taux d'élimination de l'amas de type j par les puits.

L'équation générale (IV-1) donnant l'évolution de la distribution d'un amas de type j peut être traduite par l'ensemble des équations discrètes gouvernant l'évolution de la population d'amas d'auto-interstitiels (IV-2) et de lacunes (IV-3).

$$\frac{dC_{ni}}{dt} = G_{ni} + [\beta_{(n-1)i}^i C_{1i}]C_{(n-1)i} + [\beta_{(n+1)i}^v C_{1v} + \alpha_{(n+1)i}^i]C_{(n+1)i} - [\alpha_{ni}^i + \alpha_{ni}^v + \beta_{ni}^v C_{1v} + \beta_{ni}^i C_{1i}]C_{ni} \quad (\text{IV-2})$$

$$\frac{dC_{nv}}{dt} = G_{nv} + [\beta_{(n-1)v}^v C_{1v}]C_{(n-1)v} + [\beta_{(n+1)v}^i C_{1i} + \alpha_{(n+1)v}^v]C_{(n+1)v} - [\alpha_{nv}^v + \beta_{nv}^i C_{1i} + \beta_{nv}^v C_{1v}]C_{nv} \quad (\text{IV-3})$$

Où $C_{n\theta}$ est la concentration volumique des amas contenant n défauts ponctuels de type θ ($\theta = i$ pour les interstitiels et $\theta = v$ pour les lacunes), $G_{n\theta}$ est le taux de production de défauts ponctuels de type θ (en $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$), $\beta_{n\theta}^{\theta'}$ est le taux de capture d'un défaut ponctuel de type θ' par un amas $n\theta$ et $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$ est le taux d'émission d'un défaut de type θ' par un amas $n\theta$.

Pour $n = 1$, l'évolution de la concentration est donnée par les équations (IV-4) et (IV-5).

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1v}}{dt} = & G_{1v} - R_{iv}C_{1i}C_{1v} - K_d^v C_{1v} - K_s^v C_{1v} - 4\beta_{1v}^v C_{1v}C_{1v} + 4\alpha_{2v}^v C_{2v} + \beta_{2v}^i C_{1i}C_{2v} \\ & - C_{1v} \sum_{n=2} \beta_{nv}^v C_{nv} - C_{1v} \sum_{n=2} \beta_{ni}^v C_{ni} + \sum_{n=3} \alpha_{nv}^v C_{nv} \end{aligned} \quad (IV-4)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1i}}{dt} = & G_{1i} - R_{iv}C_{1i}C_{1v} - K_d^i C_{1i} - K_s^i C_{1i} - 4\beta_{1i}^i C_{1i}C_{1i} + 4\alpha_{2i}^i C_{2i} + \beta_{2i}^v C_{1v}C_{2i} \\ & - C_{1i} \sum_{n=2} \beta_{ni}^i C_{ni} - C_{1i} \sum_{n=2} \beta_{nv}^i C_{nv} + \sum_{n=3} \alpha_{ni}^i C_{ni} \end{aligned} \quad (IV-5)$$

Pour $n = 2$, l'évolution de la concentration est donnée par les équations (IV-6) et (IV-7).

$$\frac{dC_{2v}}{dt} = 2\beta_{1v}^v C_{1v}C_{1v} - 2\alpha_{2v}^v C_{2v} - \beta_{2v}^v C_{1v}C_{2v} + \alpha_{3v}^v C_{3v} - \beta_{2v}^i C_{1i}C_{2v} + \beta_{3v}^i C_{1i}C_{3v} \quad (IV-6)$$

$$\frac{dC_{2i}}{dt} = 2\beta_{1i}^i C_{1i}C_{1i} - 2\alpha_{2i}^i C_{2i} - \beta_{2i}^i C_{1i}C_{2i} + \alpha_{3i}^i C_{3i} - \beta_{2i}^v C_{1v}C_{2i} + \beta_{3i}^v C_{1v}C_{3i} \quad (IV-7)$$

Où R_{iv} est le taux de recombinaison d'un interstitiel avec une lacune, $K_d^\theta C_{1\theta}$ est le taux d'élimination du défaut ponctuel de type θ par les lignes de dislocations présentes avant irradiation et $K_s^\theta C_{1\theta}$ est le taux d'élimination du défaut ponctuel de type θ par les surfaces ou par les joints de grains.

Pour obtenir l'évolution de la distribution des amas de défauts ponctuels, il faut résoudre un système de $N_i + N_j$ équations différentielles avec N_i et N_j les tailles maximales des amas interstitiels et lacunaires, respectivement.

Pour des temps d'irradiation assez longs, on peut être amené à résoudre un nombre très important d'équations. Or, la puissance actuelle de calcul des ordinateurs limite le nombre $N_i + N_j$ total d'équations à résoudre. Il est alors nécessaire de transformer les équations discrètes en des équations continues de type Fokker-Planck pour pouvoir étudier les boucles de grandes tailles. Apparaît alors l'intérêt de la modélisation en dynamique d'amas qui permet d'atteindre ainsi des temps d'irradiation très longs et donc des doses comparables à celles obtenues expérimentalement.

Dans la suite sont données quelques-unes des équations décrivant les taux de recombinaison, d'absorption et d'émission par les différents puits présents dans le milieu simulé.

Le taux de recombinaison, R_{iv} (en $cm^{-3}s^{-1}$), des défauts ponctuels s'exprime selon l'équation (IV-8).

$$R_{iv} = 4\pi r_{iv}(D_i + D_v) \quad (IV-8)$$

Où r_{iv} est le rayon de recombinaison qui est généralement égal à quelques distances interatomiques, D_i le coefficient de diffusion des interstitiels et D_v le coefficient de diffusion des lacunes. Le coefficient de diffusion d'un défaut ponctuel est donné par l'équation (IV-9).

$$D_\theta = D_\theta^0 \exp\left(\frac{-E_m^\theta}{kT}\right) \quad (\text{IV-9})$$

D_θ^0 est le coefficient pré-exponentiel, E_m^θ l'énergie de migration du défaut ponctuel θ et k la constante de Boltzmann.

Comme on se place ici dans le cas de la diffusion isotrope, un seul coefficient de diffusion est défini dans toutes les directions et pour chacun des défauts ponctuels.

Le taux d'élimination des défauts ponctuels par les dislocations, $K_d^\theta C_{1\theta}$ (en $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$), est donné par l'expression IV-10.

$$K_d^\theta C_{1\theta} = \rho Z_d^\theta D_\theta C_{1\theta} \quad (\text{IV-10})$$

Avec ρ la densité de dislocations et Z_d^θ le coefficient d'absorption d'un défaut ponctuel de type θ par une dislocation droite. Généralement, Z_d^v est pris égal à 1 et Z_d^i à 1.1 ou à 1.2. Ce coefficient traduit le fait que l'interaction élastique est plus forte entre une dislocation droite et un interstitiel qu'avec une dislocation droite et une lacune.

Le taux de capture des défauts ponctuels de type θ' par les boucles de dislocation de taille n et de type θ , $\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{1\theta'}$ (en $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$), est donné par l'équation (IV-11).

$$\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{1\theta'} = 2\pi r_n Z_{n\theta}^{\theta'} D_{\theta'} C_{1\theta'} \quad (\text{IV-11})$$

r_n est le rayon de la boucle et peut être exprimé en fonction du nombre de monomères formant la boucle selon l'équation (IV-12).

$$r_n = \sqrt{\frac{nV_{atm}}{\pi b}} \quad (\text{IV-12})$$

V_{atm} est le volume atomique et b la norme du vecteur de Burgers de la boucle de dislocation.

Dans l'expression du taux d'absorption d'un défaut ponctuel par une boucle de dislocation, $Z_{n\theta}^{\theta'}$ représente un terme d'efficacité de capture (sans unité). Ce paramètre est appelé « facteur de biais d'interaction » puisqu'il permet de prendre en compte l'interaction élastique préférentielle d'une dislocation avec un interstitiel.

Plusieurs approches ont été proposées pour définir ce terme de manière à ce que son expression analytique soit validée pour toute valeur de n . En effet, pour les grandes boucles ce terme doit correspondre à celui donné pour une dislocation droite.

L'approche adoptée est celle qui permet de prendre en compte la forme toroïdale de la boucle de dislocation (Equation IV-13).

$$Z_{n\theta}^{\theta'} = Z_d^{\theta'} \text{Max} \left[\frac{2\pi}{\ln \left(\frac{8 r_n}{r_p} \right)}; 1 \right] \quad (\text{IV-13})$$

Avec r_p le rayon de la dislocation égal généralement à $2b$.

Cette expression du facteur de biais est obtenue par un calcul analytique de diffusion de défauts ponctuels sur une boucle de dislocation de forme toroïdale.

Le taux d'émission d'un défaut de type θ' par une boucle de dislocation de taille n et de type θ , $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$ (en s^{-1}), est donné par l'équation (IV-14).

$$\alpha_{n\theta}^{\theta'} = 2\pi r_{n-1} Z_{(n-1)\theta}^{\theta'} D_{\theta'} \frac{\exp \left(\frac{-E_{n\theta}^{B\theta'}}{kT} \right)}{V_{atm}} \quad (\text{IV-14})$$

Les énergies de liaison, $E_{n\theta}^{B\theta'}$, d'un défaut de type θ' à une boucle de dislocation de taille n et de type θ sont données par des calculs atomistiques ou des lois analytiques. L'énergie de liaison d'un défaut ponctuel de type θ à un amas de taille n est définie comme la différence entre l'énergie de formation du défaut ponctuel et de l'écart d'énergie entre un amas de taille n et un amas de taille $n - 1$ par l'équation (IV-15).

$$E_{n\theta}^{B\theta'} = E_{\theta}^f - \left(E_{n\theta}^f - E_{(n-1)\theta}^f \right) \quad (\text{IV-15})$$

Les énergies de liaison se déduisent donc des expressions des énergies de formation des amas. Dans l'approche utilisée ici, une loi dite « capillaire » a été adoptée (Equation IV-16 et IV-17), ou l'énergie de liaison d'un amas de taille n fait intervenir l'énergie de liaison d'une bi-lacune et d'un di-interstitiel et les énergies de formation des défauts ponctuels (Equations IV-16 et IV-17).

$$E_{n\theta}^{B\theta'} = E_{\theta}^f + \frac{E_{2\theta}^B - E_{\theta}^f}{2^{2/3} - 1} \left[n^{2/3} - (n-1)^{2/3} \right] \quad (\text{IV-16})$$

$$E_{n\theta}^{B\theta'} = E_{\theta'}^f - \frac{E_{2\theta}^B - E_{\theta}^f}{2^{2/3} - 1} \left[(n+1)^{2/3} - n^{2/3} \right] \quad (\text{IV-17})$$

Où E_{θ}^f est l'énergie de formation du défaut ponctuel θ et $E_{2\theta}^B$ l'énergie de liaison entre deux défauts ponctuels θ .

Le taux d'absorption d'un défaut ponctuel de type θ par les joints de grain d'un grain cubique de côté d peut être également calculé en se plaçant dans le cas où l'absorption en volume par les lignes et les boucles de dislocation est prépondérante par rapport à l'absorption aux joints de grains. Le taux d'absorption, $K_j^{\theta} C_{1\theta}$ (en $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$), d'un défaut ponctuel de type θ par les joints de grains est alors donné par l'équation (IV-18).

$$K_j^{\theta} C_{1\theta} = \frac{6\sqrt{S_m^{\theta}}}{d} D_{\theta} C_{1\theta} \quad (\text{IV-18})$$

L'effet multi-puits lié à la présence de dislocations et des boucles interstitielles et lacunaires est pris en compte par le terme S_m^{θ} qui représente la force du puits total du milieu sans les surfaces pour le défaut ponctuel θ . Ainsi le terme S_m^{θ} s'écrit selon l'équation IV-19.

$$S_m^{\theta} = \rho Z_d^{\theta} + \frac{1}{D_{\theta}} \sum_{n=2}^{\infty} \beta_{n\theta}^{\theta} C_{n\theta} + \beta_{n\theta'}^{\theta} C_{n\theta'} \quad (\text{IV-19})$$

Les coefficients du modèle sont rappelés dans le Tableau IV-1.

Tableau IV-1 : Principaux coefficients du modèle de dynamique d'amas.

	Symbole	Valeur
Taille de grain	d_g	10^{-3} cm
Energie de formation des lacunes	E_f^v	1.79 eV
Energie de migration des lacunes	E_m^v	0.93 eV
Coefficient pré- exponentiel de diffusion des lacunes	D_{0v}	$2.0 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
Energie de formation des auto-interstitiels	E_f^i	3.77 eV
Energie de migration des auto-interstitiels le long de l'axe <c>	$E_m^i\langle c \rangle$	0.15 eV
Energie de migration des auto-interstitiels le long de l'axe <a>	$E_m^i\langle a \rangle$	0.06 eV
Energie de liaison de la bi-lacune	E_B^{2v}	0.22 eV
Energie de liaison du bi-interstitiel	E_B^{2i}	1.42 eV
Coefficient pré- exponentiel de diffusion des auto-interstitiels		
le long de l'axe <c>	$D_{0i\langle c \rangle}$	$4.7 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
le long de l'axe <a>	$D_{0i\langle a \rangle}$	$3.5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
Rayon de recombinaison	r_{iv}	10^{-7} cm
Interaction élastique entre un interstitiel et une dislocation	Z_d^i	1.1
Interaction élastique entre une lacune et une dislocation	Z_d^v	1.0
Densité de dislocations	ρ	10^8 cm^{-2}
Vecteur de Burgers (boucles <a>)	b	3.23×10^{-8} cm
Volume atomique	V_{at}	$2.33 \times 10^{-23} \text{ cm}^3$

Annexe V : Modèle de comportement en fluage thermique

Lors de la thèse de J. Ribis (2008), un modèle de comportement mécanique a été proposé afin de simuler le fluage thermique des alliages de zirconium irradiés. Dans un premier temps, nous avons choisi de modéliser le comportement mécanique en fluage des alliages de zirconium recristallisés non irradiés. En poursuivant une démarche initiée par Dunlop et al. (2007), nous avons choisi une loi d'écoulement de type Norton sans seuil (équation V-1).

$$\dot{p} = \dot{\varepsilon}_0 \left(\frac{J_2(\underline{\underline{\sigma}})}{\sigma_c} \right)^n \quad (\text{V-1})$$

Comme la base d'essais ne comportait que des essais de pression interne, sans mesure en continue de la déformation axiale, il n'est pas possible de caractériser l'anisotropie de comportement en fluage du matériau. Nous avons donc choisi, comme précédemment pour le modèle de type Chaboche (Annexe II), d'utiliser un critère de Von Mises qui induit simplement une légère erreur sur la direction d'écoulement simulée. Le comportement du matériau suit la loi de normalité qui s'écrit selon l'équation V-2.

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}}}^{vp} = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{dev(\underline{\underline{\sigma}})}{J_2(\underline{\underline{\sigma}})} \quad (\text{V-2})$$

Où $J_2(\underline{\underline{x}})$ correspond au second invariant du tenseur $\underline{\underline{x}}$ défini par l'expression V-3.

$$J_2(\underline{\underline{x}}) = \sqrt{\frac{3}{2} dev(\underline{\underline{x}}) : dev(\underline{\underline{x}})} \quad (\text{V-3})$$

Au dénominateur de la loi d'écoulement est introduite une contrainte de référence (σ_c) qui prend en compte l'écroutissage du matériau du fait de la multiplication des dislocations selon une formulation classique (équation V-4).

$$\sigma_c = \sigma_c^0 + M \alpha \mu b \sqrt{\rho_d} = \sigma_c^0 + K_d \sqrt{\rho_d} \quad (\text{V-4})$$

La loi d'évolution de la densité de dislocations est une loi également classique (V-5) prenant en compte un terme de multiplication et un terme d'annihilation des dislocations conduisant progressivement à l'établissement d'un régime stationnaire permettant ainsi de reproduire le fluage primaire puis le fluage secondaire.

$$\frac{d\rho_d}{dt} = \frac{\dot{p}}{b} \left(\frac{1}{\lambda} - 2y\rho_d \right) \text{ avec } \lambda = \frac{1}{k_1 \sqrt{\rho_d}} \text{ et } y = \frac{k_2 b}{2} \quad (\text{V-5})$$

L'équation V-5 peut se ré-écrire sous la forme de l'équation V-6.

$$\frac{d\rho_d}{dt} = \dot{\rho} \left(\frac{k_1}{b} \sqrt{\rho_d} - k_2 \rho_d \right) \quad (V-6)$$

Le modèle comporte quatre paramètres ajustables k_1 , k_2 , σ_c^0 , K_d . Le coefficient n est pris égal à la valeur déterminée expérimentalement sur un diagramme de Norton. La densité initiale de dislocations est également fixée et prise égale à $\rho_d(0) = \rho_d^0 = 10^{11} \text{ m}^{-2}$. Le coefficient $\dot{\epsilon}_0$ est un paramètre redondant qui est fixé $\dot{\epsilon}_0(T = 673 \text{ K}) = 1$ pour la température de 400°C (soit 673 K). La dépendance en température est prise en compte par l'intermédiaire du coefficient $\dot{\epsilon}_0(T)$, qui est exprimé par l'équation V-7.

$$\dot{\epsilon}_0(T) = \exp \left[-\frac{Q}{k_B} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}} \right) \right] \text{ où } T_{ref} = 673 \text{ K} \quad (V-7)$$

Le modèle, malgré son extrême simplicité, est capable de reproduire de façon satisfaisante le comportement en fluage thermique et cela pour les deux températures de 350°C et 400°C.

Afin de prendre en compte l'influence de l'irradiation sur le comportement en fluage thermique, une variable interne correspondant à la densité de boucles <a> ($\rho_b = N < d >$) a été introduite dans le modèle. Il a été fait le choix de ne pas intégrer, dans un premier temps, les nano-précipités de niobium. D'autre part, les modifications d'activation des systèmes de glissement ne sont pas prises en compte dans ce modèle simple. La présence des boucles est introduite comme un terme de durcissement supplémentaire au niveau de la contrainte de référence (équation V-8) qui apparait au dénominateur de la loi d'écoulement. En effet, les boucles <a> créées par l'irradiation agissent comme obstacle au glissement des dislocations.

$$\sigma_c = \sigma_c^0 + K_d \sqrt{\rho_d} + K_b \sqrt{\rho_b} \quad (V-8)$$

Dans cette première approche, la densité de boucles <a> apparait dans un terme de durcissement additionnel. Néanmoins, puisque les boucles <a> et les dislocations sont des obstacles de résistance similaire, il serait probablement plus approprié de calculer la contrainte de référence comme la racine de la somme des deux densités d'obstacles.

Ce terme de durcissement additionnel, à la température de l'essai de fluage, est, en principe, relié au durcissement d'irradiation mesuré par micro-dureté à température ambiante. On fait l'hypothèse que ce terme de durcissement est proportionnel à l'incrément de micro-dureté. En effet, l'incrément de micro-dureté est fonction de la densité de boucles <a> selon la formule V-9, où le coefficient C correspond au coefficient de proportionnalité entre la dureté et la limite d'élasticité.

$$\Delta H_v = C M \alpha \mu b \sqrt{N \langle d \rangle} = C M \alpha \mu b \sqrt{\rho_b} \quad (V-9)$$

L'évolution de la micro-dureté lors des recuits a été déterminée de façon précise et une loi de restauration empirique a été identifiée. Cette loi de restauration empirique s'écrit sous la forme de l'équation V-10.

$$\Delta H_v = \Delta H_{v0}(1-f) \text{ avec } \frac{df}{dt} = k_4(1-f)^m \text{ et } k_4 = k_{40} \exp\left(-\frac{Q_b}{kT}\right) \quad (\text{V-10})$$

Sur la base de cette loi de restauration, il est possible de déduire une loi de restauration pour la densité de boucles $\langle a \rangle$. Celle-ci s'écrit, après calcul des dérivées, selon l'équation V-11.

$$\left(\frac{d\rho_b}{dt}\right)_{thermique} = -2k_4\rho_{b0}\left(\frac{\rho_b}{\rho_{b0}}\right)^{\frac{m+1}{2}} \quad (\text{V-11})$$

Dans cette approche les coefficients de la loi de restauration des boucles sont tous fixés par les résultats expérimentaux : la densité initiale de boucles ($\rho_b(0) = \rho_{b0}$) est fixée en accord aux observations MET à une valeur de $1.8 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ ($N = 1.2 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et $d = 15 \text{ nm}$), et les paramètres m et k_4 sont fixés par la loi de restauration de la micro-dureté.

En plus de la restauration thermique des boucles lors du recuit, un second phénomène a été intégré dans le modèle. En effet, des essais de fluage réalisés à forte contrainte ont montré qu'un mécanisme de balayage des boucles se produisait également. Des bandes sans boucle, analogues aux canaux décrits dans la partie précédente, étaient observées, en plus de la restauration thermique des défauts d'irradiation. Ce nouveau phénomène, de balayage des boucles par les dislocations, a été introduit dans la loi d'évolution de la densité de boucles sous la forme d'un terme de restauration dynamique, c'est-à-dire qui est fonction de la déformation (équation V-12). Le nouveau coefficient k_3 est laissé libre lors de la procédure d'identification.

$$\left(\frac{d\rho_b}{dt}\right)_{balayage} = -k_3\rho_b\dot{\rho} \quad (\text{V-12})$$

La formule globale décrivant l'évolution de la densité de boucles s'écrit donc sous la forme de l'équation V-13.

$$\frac{d\rho_b}{dt} = -k_3\rho_b\dot{\rho} - 2k_4\rho_{b0}\left(\frac{\rho_b}{\rho_{b0}}\right)^{\frac{m+1}{2}} \text{ avec } \rho_b(0) = \rho_{b0} \quad (\text{V-13})$$

Comme pour les dislocations de la forêt, la présence des boucles diminue le libre parcours moyen des dislocations en augmentant ainsi le taux de multiplication. Ce phénomène est pris en compte dans la loi d'évolution des dislocations V-14.

$$\frac{d\rho_d}{dt} = \dot{\rho} \left(\frac{k_1}{b} (\sqrt{\rho_d} + \sqrt{\rho_b}) - k_2\rho_d \right) \quad (\text{V-14})$$

Lors de la procédure d'identification, les quatre paramètres ajustables du modèle pour le matériau non irradié sont identifiés, puis dans un second temps, seuls deux paramètres ajustables K_b , k_3 sont identifiés sur le comportement en fluage du M5TM irradié. Ce modèle a été identifié sur le comportement macroscopique du matériau non irradié et irradié pour des essais non précédés de traitement thermique. De plus, le modèle permet de calculer l'évolution des variables internes caractéristiques de l'évolution de la microstructure comme la densité de dislocations ou bien la densité de boucles <a>. Ces variables internes peuvent ensuite être comparées aux résultats des observations MET.

Références :

*Références pour lesquelles ma contribution a été significative

Ackland, G.J., Wooding, S.J., Bacon, D.J. (1995). Defect, surface and displacement-threshold properties of α -zirconium simulated with a many-body potential. *Philos. Mag. A*, 71, pp. 553–565.

Adamson, R.B., Bell, W.L. (1985). Microstructure and mechanical behaviour of materials, in: *International Symposium, Xian, China*, vol. 1, p. 237.

Akhtar, A., Teghtsoonian, A. (1971). Plastic deformation of zirconium single crystals. *Acta Metall.* Vol. 19, pp. 655-663.

Akhtar, A. (1973). Basal slip in Zirconium. *Acta Metall.* Vol. 21, pp. 1-11.

Anderson, P. W. (1972). *More Is Different*, Science, New Series, Vol. 177, No. 4047, pp. 393-396.

Andrade-Campos, A., Thuillier, S., Pilvin, P., Teixeira-Dias, F. (2007). On the determination of material parameters for internal variable thermoelastic–viscoplastic constitutive models. *Int. J. Plasticity*, Vol. 23(8), pp. 1349-1379.

Aspect, A., Balian, R., Balibar, S., Brézin, E., Cabane, B., Fauve, S., Kaplan, D., Léna, P., Poirier, J.-P., Prost, J. (2004). *Demain la Physique*, Ed. Odile Jacob.

Bacon, D. J. (1988). A review of computer models of point defects in hcp metals. *J. Nucl. Mater.*, 159, pp. 176–189.

Bacroix, B., Béchade, J.-L., Zhu, K., Chaubet, D., Barcelo, F., Crépin, J. (2006). Elaboration et croissance de multicristaux à gros grains en Zr, *Actes de la Conférence Matériaux 2006*, Dijon.

Bensaude-Vincent, B., (1998). *Eloge du mixte: Matériaux nouveaux et philosophie ancienne*, Hachette Littératures.

Berveiller, M., Zaoui, A. (1979). An extension of the self-consistent scheme to plastically-flowing polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids* Vol. 26, pp. 325-344.

Boé, A., Safi, A., Coulombier, M., Fabrègue, D., Pardoën T., Raskin, J.-P. (2009). MEMS-based microstructures for nanomechanical characterization of thin films, *Smart Mater. Struct.* 18, p. 115018.

Bornert, M., Bretheau, T., Gilormini, P. (2000). *Homogénéisation en mécanique des matériaux*, Hermes Science Publications.

Bornert, M., Brémand, F., Doumalin, P., Dupré, J.-C., Fazzini, M., Grédiac, M., Hild, F., Mistou, S., Molimard, J., Orteu, J.-J., Robert, L., Surrel, Y., Vacher, P., Wattrisse, B. (2009). Assessment of Digital Image Correlation Measurement Errors: Methodology and Results, *Experimental Mechanics* Vol. 49, pp. 353–370.

Bossis, P., Verhaeghe, B., Doriot, S., Gilbon, D., Chabretou, V., Dalmais, A., Mardon, J.-P., Blat, M., Miquet, A. (2009). In *PWR Comprehensive Study of High Burn-Up Corrosion and Growth Behavior of M5® and Recrystallized Low-Tin Zircaloy-4*, *Journal of ASTM International*, Vol. 6(2) (15th ASTM Int. Symp.: Zirconium in the Nuclear Industry–Sun River, OR, ASTM STP 1505, pp. 430-456).

*Bourdilliau, B., Onimus, F., Cappelaere, C., Pivetaud, V., Bouffioux, P., Chabretou, V., Miquet, A. (2010). Impact of the irradiation damage recovery during transportation on the subsequent room temperature tensile behavior of irradiated zirconium alloys, *J. ASTM Int.*, Vol. 7, No. 9 (16th Int.

- Symp. on Zirconium in the Nuclear Industry, 9th May 2010 – 13th May 2010, Chengdu, Sichuan Province, China).
- Brenner, R. (2001). Influence de la microstructure sur le comportement en fluage thermique d'alliages de zirconium : analyse expérimentale et mise en œuvre de méthodes d'homogénéisation. Thèse de l'Université Paris XIII.
- Brenner, R., Béchade, J.-L., Castelnau, O., Bacroix, B. (2002a). Thermal creep of Zr–Nb1%–O alloys: experimental analysis and micromechanical modelling, *Journal of Nuclear Materials* Vol. 305, pp. 175–186.
- Brenner, R., Masson, R. Castelnau, O., Zaoui, A. (2002b). A “quasi-elastic” affine formulation for the homogenized behaviour of nonlinear viscoelastic polycrystals and composites, *European Journal of Mechanics A/Solids* Vol. 21, pp. 943–960.
- Brenner, R., Masson R. (2005). Improved affine estimates for nonlinear viscoelastic composites *European J. Mech. A/Solids* Vol. 24, pp. 1002–1015.
- Cahn, R.W., (2001). *The coming of material science*, Pergamon Materials Series, Elsevier Science Ltd.
- Caillard, D., Martin, J.-L. (2003). *Thermally activated mechanisms in crystal plasticity*. Pergamon Press.
- Cailletaud, G. (1992). A micromechanical approach to inelastic behaviour of metals. *Int. J. Plast.* Vol. 8(1), pp. 55-73.
- Carpenter, G. J. C., Zee, R. H., Rogerson A. (1988). Irradiation growth of zirconium single crystals: A review. *J. Nucl. Mater.* Vol. 159, pp. 86–100.
- Causey A.R, Holt, R., Christodoulou, N., Ho, E.T.C (2000). Irradiation enhanced deformation of Zr2.5Nb pressure tubes at high neutron fluences. *Zirconium in the Nuclear Industry, Twelfth Int. Symp.*, ASTM STP 1354, pp. 74-85.
- Chaari, N., Clouet, D., Rodney, D. (2014). First Order Pyramidal Slip of $1/3\langle 11-20 \rangle$ Screw Dislocations in Zirconium. *Metall. Mater. Trans. A*, Vol. 45A, pp. 5898-5905.
- Chaboche, J.L. (2008). A review of some plasticity and viscoplasticity constitutive theories. *Int. J. Plasticity* 24, pp. 1642–1693.
- Chaubet, D., Fondère, J.-P., Bacroix, B. (2000). Strain-anneal growth of Zr 701 large crystals. *Mater. Sci. Eng. A* Vol. 300, pp. 245-253.
- Christien, F., Barbu, A. (2005). Effect of self-interstitial diffusion anisotropy in electron-irradiated zirconium: A cluster dynamics modeling. *J. Nucl. Mater.* Vol. 346, pp. 272-281.
- Christien, F., Barbu, A. (2009). Cluster Dynamics modelling of irradiation growth of zirconium single crystals. *J. Nucl. Mater.* Vol. 393, pp. 153–161.
- Christodoulou, N., Causey, A.R, Holt, R.A, Tomé, C.N., Badie, N., Klassen, R.J., Sauvé, R., Woo, C.H. (1996). Modeling In-Reactor Deformation of Zr-2.5Nb Pressure Tubes in CANDU Power Reactors, *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh Int. Symp.*, ASTM STP 1295, pp. 518-537.
- Clouet, E. (2012). Screw dislocation in zirconium: An ab initio study. *Phys. Rev. B* Vol. 86, pp. 144104.
- Crépin, J. (1995) Etude des mécanismes de déformation et d'endommagement du zirconium grade 702 traité bêta. Thèse de l'Ecole Polytechnique.
- Delobelle, P., Robinet, P., Geyer, P., Bouffieux, P. (1996). A model to describe the anisotropic viscoplastic behaviour of Zircaloy-4 tubes. *J. Nucl. Mater.* Vol. 238(2), pp. 135-162.
- Derep, J.L., Ibrahim, S., Rouby, R., Fantozzi, G. (1980). Deformation behaviour of zircaloy-4 between 77 and 900 K. *Acta Metall.* Vol. 28, p. 607-619.

- Dickson, J.I., Boutin, J., Handfield, L. (1984). A comparison of two simple methods for measuring cyclic internal and effective stresses. *Mater. Sci. Eng.* 64, L7.
- Dollins, C. C. (1972). Post Irradiation Recovery of Irradiation Damage. *Radiat. Eff.*, Vol. 16, pp. 271–280.
- Domain, C., and Legris, A., Investigation of Glide Properties in Hexagonal Titanium and Zirconium: An Ab Initio Atomic Scale Study. IUTAM Symposium on Mesoscopic Dynamics of Fracture Process and Materials Strength, Springer, Dordrecht, Netherlands, 2004, pp. 411–420.
- Domain, C., Besson, R., Legris, A. (2004). Atomic-scale ab initio study of the Zr–H system: II. Interaction of H with plane defects and mechanical properties, *Acta Mater.* Vol. 52, pp. 1495–1502.
- Doriot, S., Gilbon, D., Béchade, J. L., Mathon, M. H., Legras, L., and Mardon, J. P. (2005). Microstructural Stability of M5™ Alloy Irradiated up to High Neutron Fluences, *J. ASTM Int.*, Vol. 2, No. 7 (Zirconium in the Nuclear Industry: 14th Int. Symp., ASTM STP 1467, American Society for Testing and Materials, Vol. 1467, pp. 175-201, 2005).
- Douglass, D.-L. (1971). The metallurgy of zirconium. Atomic energy review supplement, ed. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- *Drouet, J. (2014). Étude expérimentale et modélisation numérique du comportement plastique des alliages de zirconium sous et après irradiation. Thèse de l'Université de Toulouse.
- *Drouet, J., Dupuy, L., Onimus, F., Momprou, F., Perusin, S., Ambard, A. (2014). Dislocation dynamics simulations of interactions between gliding dislocations and radiation induced prismatic loops in zirconium, *J. Nucl. Mater.*, Vol. 449(1–3), pp. 252–262.
- *Drouet, J., Onimus, F., Dupuy, L., Momprou (2015). Comparison between dislocation dynamics simulation and in situ tensile test in irradiated zirconium alloys, soumis à *Physical Review Letters*.
- Dunlop, J.W., Brechet, Y.J.M., Legras, L., Estrin, Y. (2007). Dislocation density-based modelling of plastic deformation of Zircaloy-4, *Mater. Sci. and Eng. A* Vol. 443, pp. 77–86.
- Estrin, Y., Mecking, H. (1984). A unified phenomenological description of work hardening and creep based on one-parameter models. *Acta Metall.* Vol. 32(1), pp. 57-70.
- Feaugas, X. (1999). On the origin of the tensile flow stress in the stainless steel AISI 316L at 300 K: back stress and effective stress, *Acta mater.* Vol. 47, No. 13, pp. 3617-3632.
- Feaugas, X. (2003). Tensile and cyclic hardening: back and effective stresses concepts and their applications. *Recent Research Devel. Mater. Sci.* Vol. 4, p. 35.
- Ferrer, F. (2000). Etude des mécanismes de déformation du zirconium entre 25°C et 400°C. Influence d'une faible teneur en soufre, Thèse de l'École Polytechnique.
- Fisher, E. S. et Renken, C. J. (1964). Single-Crystal Elastic Moduli and the hcp to bcc Transformation in Ti, Zr; and Hf. *Phys. Rev. A* Vol. 135(2A), pp. 482-494.
- Fournier, L., Serres, A., Auzoux, Q., Leboulch, D., Was, G.S. (2009). Proton irradiation effect on microstructure, strain localization and iodine-induced stress corrosion cracking in Zircaloy-4, *J. Nucl. Mater.* Vol. 384, pp. 38–47.
- Franciosi, P. (1985). The concepts of latent hardening and strain hardening in metallic single crystals, *Acta Metall.* Vol. 33(9), pp. 1601–1612.
- François, D., Pineau, A., Zaoui, A. (1995). Comportement mécanique des matériaux, Hermès Paris Ed.
- Franklin, D. G.; Lucas, G. E.; Bement, A. L. (1983). Creep of zirconium in nuclear reactors; American Society for Testing and Materials: West Conshohocken, PA, ASTM STP 815, pp 1–167.

Franklin, D.G., Adamson, R.B. (1988). Implications of Zircaloy creep and growth to light water reactor performance, *J. Nucl. Mater.* Vol. 159, pp. 12-21.

Fregonese, M., Régnard, C., Rouillon, L., Magnin, T., Lefebvre, F., Lemaignan, C., (2000). Failure Mechanisms of irradiated Zr alloys related to PCI : Activated slip systems, localized strains, and iodine-induced stress corrosion cracking, *Zirconium in nuclear industry : twelfth international symposium*, ASTM STP 1354, G. P. Sabol and G. D. Moan, Eds, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, pp. 377-398.

Garat, V., Mardon, J.-P., McCoy, K., Dunn, B. (2013). M5® fulfills the new requirements by regulators. *Proceedings of the LWR Fuel Performance Meeting / TopFuel 2013*, Sept. 15-19, 2013, Charlotte, USA.

Garzarolli, F., Steinberg, E., and Weidinger, H. G. (1989). Microstructure and Corrosion Studies for Optimized PWR and BWR Zircaloy Cladding. *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium*, ASTM STP 1023, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, pp. 202-212.

Gélébart, L., Crépin, J., Dexet, M., Sauzay, M., Roos, A. (2004) Identification of Crystalline Behavior on Macroscopic Response and Local Strain Field Analysis: Application to Alpha Zirconium Alloys, *J. of ASTM Int.*, Vol. 1(9) (*Zirconium in the Nuclear Industry: 14th International Symposium*, ASTM STP 1467, American Society for Testing and Materials, Vol. 1467, pp. 585-603, 2005).

Gélébart, L., Mondon-Cancel, R. (2013). Non-linear extension of FFT-based methods accelerated by conjugate gradients to evaluate the mechanical behavior of composite materials. *Comput. Mater. Sci.* Vol. 77, pp. 430–439.

Geyer, P., (1999). Comportement élasto-viscoplastique de tubes en Zircaloy-4 : Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique, Thèse de l'Ecole des Mines de Paris.

*Gharbi, N., Onimus, F., Jourdan, T., Gilbon, D., Mardon, J.-P., Feugas, X. (2013). Impact of applied stress on c-component loops: toward an advanced understanding of radiation induced growth of recrystallized zirconium alloys. *Proceedings of the LWR Fuel Performance Meeting / TopFuel 2013*, Sept. 15-19, 2013, Charlotte, USA.

*Gharbi, N., Onimus, F., Gilbon, D., Mardon, J.-P., Feugas, X. (2015). Impact of an applied stress on c-component loops under Zr ion irradiation in recrystallized Zircaloy-4 and M5®. soumis à *J. Nucl. Mater.*

Graff, S. (2006). Viscoplastic behavior of zirconium alloys in the temperatures range 20°C–400°C: characterization and modeling of strain ageing phenomena, Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.

Gravier, S., Coulombier, M., Safi, A., André, N., Boé, A., Raskin, J.-P., Pardoën, T. (2009). New On-Chip Nanomechanical Testing Laboratory, Applications to Aluminum and Polysilicon Thin Films, *Journal of Microelectromechanical Systems*, Vol. 18(3), pp. 555-569.

Griffiths, M., Gilbon, D., Regnard, C., and Lemaignan, C. (1993). HVEM Study of the Effects of Alloying Elements and Impurities on Radiation Damage in Zr-Alloys, *J. Nucl. Mater.*, Vol. 205, pp. 273–283.

Grosjean, C. (2009). Anisotropie de comportement en fluage thermique de tubes gaine et de tubes guide en alliages de Zirconium. *Développements expérimentaux et résultats*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.

Guillet, J.-L., Guérin, Y. (2008). *Les combustibles nucléaires*, Monographies DEN. CEA Saclay et Groupe Moniteur (Editions du Moniteur), Paris.

*Haquin, A. et F. Onimus (2008). Etude des mécanismes de plasticité du zirconium à grains millimétriques sollicité en traction, Note Technique DMN-SRMA-LA2M-NT-2008-2934.

- Hardouin-Duparc, A., Moingeon, C., Smetniansky-de-Grande, N., Barbu, A. (2002). Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations. *J. Nucl. Mater.* Vol. 302(2), pp. 143-155.
- Hirth, J. P. et Lothe, J. (1968). *Theory of Dislocations*, Mc Graw Hill Ed.
- Holt, R. A. (1980). Microstructure dependence of irradiation creep and growth of zirconium alloys. *J. Nucl. Mater.*, 90(1-3), pp. 193-204.
- Jacrot, B., Pebay-Peyroula, E., Mache R., Debru C. (2006). *Physique et Biologie : une interdisciplinarité complexe*, Ed. EDP Sciences.
- Jensen, P. (2001). *Entrer en matière: Les atomes expliquent-ils le monde*, Ed. Seuil.
- Klein, E., Lachièze-Rey, M. (1996). *La quête de l'unité. L'aventure de la Physique*, Ed. Albin Michel.
- Kocks, U. F., Tomé, C. N., Wenk, H. R. (2000). *Texture and Anisotropy*, Cambridge University Press.
- Kubin, L. P. (2013) *Dislocations, mesoscale simulations and plastic flow*, Oxford University Press.
- Le Bacq, O., Willaime, F.; Pasturel, A. (1999). Unrelaxed vacancy formation energies in group-IV elements calculated by the full-potential linear muffin-tin orbital method: Invariance with crystal structure. *Phys. Rev. B*, Vol. 59, pp. 8508-8515.
- *Lebon, C., (2012). Etude expérimentale et simulation numérique des mécanismes de plasticité dans les alliages de zirconium. Thèse de l'Université de La Rochelle. Rapport CEA-R-6305.
- Lemaignan, C. (2012). Zirconium alloys : properties and characteristics. Chapter 2.07 in: *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, R. Könings Ed., Vol. 2, pp. 217-232.
- Lemaitre, J., Chaboche, J.-L. (1990). *Mechanics of Solid Materials*, Cambridge University.
- *Lescoat, M.-L., Onimus, F. (2008). Etude du comportement de monocristaux de zirconium: premiers essais de traction sur éprouvettes à grains millimétriques, Note Technique DMN-SRMA-LA2M-NT-2008-2900.
- Letouzé, N., Brenner, R., Castelnau, O., Béchade, J.-L., Mathon, M.H. (2002). Residual strain distribution in Zircaloy-4 measured by neutron diffraction and estimated by homogenization techniques. *Scr. Mater.*, Vol. 47, pp. 595-599.
- Lévy Leblond, J.-M. (2004). *De la matière relativiste, quantique, interactive : Collège de la Cité des Sciences et de l'Industrie*, Ed. Seuil.
- Lustman, B., (1979). Zirconium technology : twenty years of evolution. *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourth International Symposium*, ASTM STP 681, pp. 5-18.
- Mardon, J.-P., Charquet, D., Senevat, J., (2000). Influence of composition and fabrication process on out-of-pile and in-pile properties of M5 alloy. *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, ASTM STP 1354, G.P. Sabol and G.D. Moan, Eds., pp. 505-524.
- Mardon, J.-P., Garner, G.L., Hoffmann, P.B. (2010). M5® a breakthrough in Zr alloy. *Proceedings of the LWR Fuel Performance/TopFuel 2010*, Orlando, Florida, USA, Sept. 26-29, 2010.
- Martin, G., Poirier, J.-P. (1971). Considérations sur la relation entre le fluage sous irradiation et les dommages créés par l'irradiation en l'absence de contrainte. *J. Nucl. Mater.* Vol. 39, pp. 93-101.
- Matthews, J. R.; Finnis, M. W. (1988). Irradiation creep models—an overview. *J. Nucl. Mater.*, Vol. 159, pp. 257-285.
- Mecking, H., Kocks, U. F. (1981). Kinetics of flow and strain-hardening. *Acta Metall.*, Vol. 29(11), pp. 1865-1875.

- Medawar, P. (1974). A geometric model of reduction and emergence, in: *Studies in the Philosophy of Biology*, F.J. Ayala, T. Dobzhansky Ed., University of California Press, pp. 57-63.
- Meric, L., Poubanne, P., Cailletaud, G. (1991a). Single crystal modeling for structural calculations. Part 1: Model presentation. *J. Eng. Mater. Technol.* Vol. 113, pp. 162–170.
- Meric, L., Cailletaud, G. (1991b). Single crystal modeling for structural calculations. Part 2: Finite element implementation. *J. Eng. Mater. Technol.* Vol. 113, pp. 171–182.
- Michel, B., Sercombe, J., Thouvenin, G. (2008). A new phenomenological criterion for pellet–cladding interaction rupture, *Nuclear Engineering and Design* Vol. 238, pp. 1612–1628.
- Michel, B., Sercombe, J., Nonon, C., Fandeur, O. (2012). Modeling of Pellet Cladding Interaction, Chapter 3.22 in: *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, R. Könings Ed., Vol. 3, pp. 677-712.
- Mills, D. et G.-B. Craig (1968). The plastic deformation of zirconium-oxygen alloy single crystals in the range 77 to 950 K. *Trans. of the Metal. Soc. of AIME* Vol. 242(9).
- Monnet, G., B. Devincere, et al. (2004). Dislocation study of prismatic slip systems and their interactions in hexagonal close packed metals: application to zirconium. *Acta Mater.* Vol. 52, pp. 4317-4328.
- Morin, E. (1990). *Science avec Conscience*, Nouvelle Edition, Seuil, Coll. Sciences.
- Olson, G. B. (2000). Designing a new material world, *Science*, Vol 288, pp. 993-998.
- *Onimus, F. (2004). Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés. Thèse de l’Ecole Centrale des Arts et Manufactures. Rapport CEA-R-6061.
- *Onimus, F., Monnet, I., Bechade, J.-L., Prioul, C., Pilvin, P. (2004). A statistical TEM investigation of dislocation channeling mechanism in neutron irradiated zirconium alloys, *J. Nucl. Mater.*, Vol. 328(2-3), pp. 165-179.
- *Onimus, F., Béchade, J.-L., Prioul, C., Pilvin, P., Monnet, I., Doriot, S., Verhaeghe, B., Gilbon, D., Robert, L., Legras, L., Mardon, J.-P. (2005). Plastic Deformation of Irradiated Zirconium Alloys : TEM Investigations and Micro-Mechanical Modeling, *J. ASTM Int.*, Vol. 2, No. 8 (Zirconium in the Nuclear Industry: 14th International Symposium, ASTM STP 1467, American Society for Testing and Materials, Vol. 1467, pp. 53-78, 2005). **Best paper J. Schemel Award from ASTM International.**
- *Onimus, F., Bechade, J.-L., Duguay C., Gilbon, D., Pilvin, P. (2006). Investigation of neutron radiation effects on the mechanical behavior of recrystallized zirconium alloys, *J. Nucl. Mater.*, Vol. 358 (2-3), pp. 176-189.
- *Onimus, F., Béchade, J.-L. (2009) A polycrystalline modeling of the mechanical behavior of neutron irradiated zirconium alloys, *J. Nucl. Mater.* Vol. 384(2), pp. 163-174.
- *Onimus, F., Béchade, J.-L. (2012). Radiation effects in zirconium alloys, Chapter 4.01 in: *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, R. Könings Ed., Vol. 4, pp. 1-31.
- *Onimus, F., Dupuy, L., Momprou, F. (2012). In situ TEM observation of interactions between gliding dislocations and prismatic loops in Zr-ion irradiated zirconium alloys, *Progr. Nucl. Ener.* Vol. 57, pp. 77-85.
- *Onimus, F., Béchade, J.-L., Gilbon, D. (2013a). Experimental analysis of slip systems activation in neutron irradiated zirconium alloys and comparison with polycrystalline model simulations, *Metall. Mater. Trans. A.* Vol. 44 Suppl. 1, 2013, pp. 45 – 60. **Best paper J. M. Howe Award from ASM International.**

- *Onimus, F., Doriot, S., Ribis, J., Cappelaere, C. (2013b). Etude des mécanismes de déformation en fluage des alliages de zirconium irradiés, Poster présenté au colloque Plasticité 2013, 17-19 avril 2013, Paris, France.
- Pickman, D.O. (1994). Zirconium alloy performance in light water reactors: a review of UK and Scandinavian experience. Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, A. M. Garde, E. Ross Bradley Eds, pp. 19-32.
- Pilvin, P. (1994). The contribution of micromechanical approaches to the modelling of inelastic behaviour of polycrystals. Proceedings of the International Conference on Biaxial/Multiaxial Fatigue ESIS/SF2M, p. 31.
- Pilvin, P. (2003). Notice d'utilisation de SiDoLo. Laboratoire Génie Mécanique et Matériaux Université de Bretagne-Sud, Version 2.
- Poinssot, C. (2002). Comment stocker ou entreposer sûrement des combustibles nucléaires usés conservés en l'état. Clefs du CEA, Vol. 46, pp. 85-87.
- Popper, K. (1984). L'Univers irrésolu, Ed. Hermann.
- Pujol, C. (1994). Etude des mécanismes de déformation en traction et fluage du Zr-alpha entre 20 et 300°C, Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Prioul, C. (1995). Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium: Conséquences sur les propriétés mécaniques. SF2M, Journées d'Etudes Propriétés-Microstructures, 25 et 26 avril 1995, les Editions de Physique.
- Rautenberg, M. (2012). Étude Macro et Microscopique du Comportement Viscoplastique d'Alliages de Zirconium Sollicités Thermo-mécaniquement entre 300°C et 420°C. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Rautenberg, M., Feugas, X., Poquillon, D., Cloué, J.-M. (2012). Microstructural characterization of creep anisotropy at 673 K in the M5TM alloy, Acta Mater. 60, pp. 4319–4327.
- Régnard, C., Verhaeghe, B., Lefebvre-Joud, F., Lemaignan, C., (2002). Activated slip systems and localized straining of irradiated alloys in circumferential loadings, ASTM STP 1423, Zirconium in the nuclear industry, 13th international symposium, Annecy.
- *Ribis, J., (2008). Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement en fluage des alliages de zirconium irradiés. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble Rapport CEA-R-6199.
- *Ribis, J., Onimus, F., Béchade, J.-L., Doriot, S., Cappelaere, C., Lemaignan, C., Barbu, A., Rabouille, O. (2008). Experimental and Modelling Approach of Irradiation Defects Recovery in Zirconium alloys, Impact of an applied stress, Journal of ASTM International, Vol. 5, No. 3.
- *Ribis, J., Onimus, F., Béchade, J.-L., Doriot, S., Barbu, A., Cappelaere, C., Lemaignan, C. (2010). Experimental study and numerical modelling of the irradiation damage recovery in zirconium alloys, J Nucl. Mater., Vol. 403, pp. 135–146.
- Robinet, P. (1995). Étude expérimentale et modélisation du comportement viscoplastique anisotrope du zircaloy 4 dans deux états métallurgiques, Thèse de l'Université de Besançon.
- Rupa, N. (2000). Effet de l'hydrogène et des hydrures sur le comportement viscoplastique du zircaloy-4 recristallisé, Thèse de l'Université Technologique de Compiègne.
- Ruphy, S. (2013). Pluralismes scientifiques, enjeux épistémiques et métaphysiques, Hermann Ed.
- Sawatzky, A. (1960). Hydrogen in Zircaloy-2: Its Distribution and Heat of Transport, J. Nucl. Mater., Vol. 2, No. 4, pp. 321–328.

- Schwenk, E.B., Wheeler, K.R., Shearer, G.D., Webster, R.T. (1978). Poisson's ratio in zircaloy-4 between 24° and 316° C. *Journal of Nuclear Materials*, 73(1), pp. 129-131.
- Serra, A., Bacon, D. J. (2013). Atomic-level computer simulation of the interaction between dislocations and interstitial loops in "alpha"-zirconium. *Modelling Simul. Mater. Sci.* 21, 045007.
- Soniak, A., L'Hullier, N., Mardon, J.-P., Rebeyrolle, V., Bouffioux, P., Bernaudat, C. (2002). Irradiation creep behavior of Zr-base alloys. *Zirconium in the nuclear industry, 13th International Symposium, ASTM STP 1423*, G.D. Moan and P. Rudling Eds, ASTM International, pp. 837–862.
- Soo, P., Higgins, G. T. (1968). The deformation of zirconium-oxygen single crystals. *Acta Metallurgica* 16, pp. 177-186.
- Tenckhoff, E., (1988). Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy, *ASTM STP 966*, pp. 1-77.
- Tomé, C. N. So, C.B., Woo, C.H. (1993). Self-consistent calculation of steady-state creep and growth in textured zirconium, *Philos. Mag. A*, 67(4), pp. 917-930.
- *Tournadre, L., (2013). Vers une meilleure compréhension des mécanismes de déformation par croissance libre sous irradiation des alliages de zirconium. Thèse de l'Université de La Rochelle.
- *Tournadre, L., Onimus, F., Béchade, J.-L., Gilbon, D., Cloué, J.-M., Mardon, J.-P., Feaugas, X., Toader, O., Bachelet, C. (2012). Experimental Study of <c> Component Loops Nucleation and Growth under Charged Particles Irradiation in Recrystallized Zircaloy-4, *Journal of Nuclear Materials Vol. 425*, pp. 76-82.
- *Tournadre, L., Onimus, F., Béchade, J.-L., Gilbon, D., Cloué, J.-M., Mardon, J.-P., Feaugas, X. (2013) Toward a better understanding of the hydrogen impact on the radiation induced growth of zirconium alloys, *J. Nucl. Mater. Vol. 441*, pp. 222-231.
- *Tournadre, L., Onimus, F., Béchade, J.-L., Gilbon, D., Cloué, J.-M., Mardon, J.-P., Feaugas, X. (2014) Impact of hydrogen pick-up and applied stress on c-component loops: toward a better understanding of the radiation induced growth of recrystallized zirconium alloys, published in *ASTM STP 1543 (17th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, February 03-07, 2013, Taj Krishna, Hyderabad, India)*.
- Turner, P.A., Tomé, C.N., Woo C.H. (1994). Self-consistent modelling of nonlinear visco- elastic polycrystals: An approximate scheme, *Phil Mag A*, Vol. 70, No. 4, pp. 689-711.
- Turner, P.A., Tomé, C.N., Christodoulou, N.C., Woo, H. (1999). A self-consistent model for polycrystals undergoing simultaneous irradiation and thermal creep, *Philosophical Magazine A*, Vol. 79, No 10, pp. 2505 – 2524.
- Varvenne, C., Mackain, O., Clouet, E. (2015). Hydrogen and vacancy clustering in zirconium. Submitted to *Acta Materialia*.
- Vincent, L., Gelebart, L., Dakhlaoui, R., Marini, B. (2011). Stress localization in BCC polycrystals and its implications on the probability of brittle fracture, *Mater. Sci. Eng., Vol. A 528*, pp. 5861–5870.
- Was, G. S. (2007). *Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys*; Springer: New York.
- Wisner, S.B., Reynolds, M.B., Adamson, R.B. (1994). *Zirconium in the Nuclear Industry: 10th International Symposium, ASTM STP 1245*, p. 599.
- Woo, C.H. (1988). Theory of irradiation deformation in non-cubic metals: effects of anisotropic diffusion, *J. Nucl. Mater.* 159, pp. 237-256.
- Xu, F., Holt, R. A. et al. (2007). Evidence for basal slip in Zircaloy-2 at room temperature from polycrystalline modelling. *J. Nucl. Mater. Vol. 373*, pp. 217-225.