

N° 218

N° CNRS A.O. 11562

*POU*

*X*

*188*

T H E S E

PRESENTEE

*phy*  
*POU* | *188*

A LA FACULTE DES SCIENCES DE POITIERS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean-Louis POUCHOU

FLUAGE DE TUNGSTENE ET DE MOLYBDENE  
SOUS IRRADIATION A BASSE TEMPERATURE

Soutenu le 26 juin 1975, devant la Commission d'Examen

M.	J.	CAISSO	Président
MM.	J.	GRILHE	Rapporteurs
	Y.	QUERE	
	J.	LETEURTRE	
MM.	P.	MOINE	Examineurs
	P.	COSTA	

N° 218

N° CNRS A.O. 11562

**T H E S E**

**PRESENTEE**

**A LA FACULTE DES SCIENCES DE POITIERS**

**POUR OBTENIR**

**LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES**

par

**Jean-Louis POUCHOU**

ST4/3759

**FLUAGE DE TUNGSTENE ET DE MOLYBDENE  
SOUS IRRADIATION A BASSE TEMPERATURE**

Soutenu le 26 juin 1975, devant la Commission d'Examen

<b>M.</b>	<b>J.</b>	<b>CAISSO</b>	<b>Président</b>
<b>MM.</b>	<b>J.</b>	<b>GRILHE</b>	
	<b>Y.</b>	<b>QUERE</b>	<b>Rapporteurs</b>
	<b>J.</b>	<b>LETEURTRE</b>	
<b>MM.</b>	<b>P.</b>	<b>MOINE</b>	<b>Examineurs</b>
	<b>P.</b>	<b>COSTA</b>	

**En hommage  
à la mémoire  
de J. PONSOYE.**

## REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses. Je remercie Monsieur E. GRISON, Directeur de la Division de Métallurgie et d'Etude des Combustibles Nucléaires, de m'avoir autorisé à la présenter sous forme de thèse, ainsi que Monsieur R. LALLEMENT, Chef du Département d'Etudes des Combustibles à base de Plutonium, de m'avoir fait bénéficier de bonnes conditions de travail.

Monsieur le Professeur J. GRILHE a dirigé cette thèse ; je tiens à lui exprimer toute ma gratitude pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Monsieur le Professeur P. MOINE et Monsieur P. COSTA ont accepté de faire partie du jury ; Monsieur le Professeur J. CAISSO m'a fait l'honneur d'en assurer la présidence. Je les en remercie très sincèrement.

Je tiens à exprimer ma vive reconnaissance à Monsieur QUERE, Chef de la Section d'Etudes des Solides Irradiés, et à Monsieur J. LETEURTRE pour les conseils, les idées et les encouragements qu'ils m'ont prodigués, et pour la sympathie qu'ils m'ont toujours témoignée.

La plus grande partie des résultats présentés dans ce mémoire est le fruit d'une étroite collaboration avec Monsieur L. ZUPPIROLI. Qu'il trouve ici l'expression de mon amitié, et mes vœux de parfaite réussite pour la poursuite des travaux que nous avons entrepris en commun.

Je veux dire mon amicale reconnaissance à tous mes camarades de la S.E.S.I. Je tiens à remercier tout particulièrement Madame N. HOUSSEAU pour les contrôles de sources fissiles et la réalisation photographique de cet ouvrage, Monsieur A. FRANCOIS qui a pris une part prépondérante dans le montage des capsules d'irradiation, et Monsieur J. DURAL sans l'aide duquel les irradiations en pile n'auraient pu être effectuées. Je dois enfin à Messieurs J. SOULLARD et J.Y. BOUNAUD de fructueuses discussions.

## TABLE DES MATIERES

- <u>CHAPITRE I</u> - INTRODUCTION	1
- <u>CHAPITRE II</u> - ENDOMMAGEMENT PAR LES FRAGMENTS DE FISSION DE L'URANIUM	6
II.1 - Rappels sur la fission de l'uranium	6
II.2 - Création de défauts ponctuels et effets thermiques induits par les fragments de fission	7
II.2.1 - Ralentissement dans la matière	7
II.2.2 - Energie cédée en chocs atomiques	10
II.2.3 - Effets thermiques associés à l'excitation électronique	11
II.2.4 - Nombre maximum de paires de Frenkel créées par un fragment de fission	12
II.2.5 - Les cascades de déplacements	13
II.2.6 - Pointes thermiques associées aux cascades de déplacements	15
II.3 - Endommagement par une source mince de fragments de fission	16
- <u>CHAPITRE III</u> - TECHNIQUES EXPERIMENTALES	17
III.1 - Les sources de fragments de fission	17
III.1.1 - Avantages des sources d'UO <sub>2</sub>	17
III.1.2 - Détermination de l'épaisseur des sources	18
III.1.3 - Dégradation des sources sous irradiation	19

III.2 - Les échantillons	21
III.3 - Dispositif d'irradiation à basse température	23
III.3.1 - Le dispositif VINKA	23
III.3.2 - Système d'acquisition et de traitement des données	25
III.4 - Détermination de la fluence d'irradiation	25
III.4.1 - Mesure du flux de neutrons thermiques	25
III.4.2 - Calcul du flux de fragments de fission frappant l'échantillon	26
III.5 - Mesure de la température d'irradiation	27
III.6 - Mesures de variations de longueur	28
III.6.1 - Capteur de déplacements	28
III.6.2 - Capsules d'irradiation	28
III.7 - Mesure des variations de résistivité électrique	32
<b>- <u>CHAPITRE IV</u> - RESULTATS EXPERIMENTAUX</b>	<b>33</b>
IV.1 - Irradiations sous traction de tungstène	33
IV.1.1 - Variations de résistivité	33
IV.1.2 - Variations de longueur	35
IV.2 - Irradiations sous traction de molybdène écroui	35
IV.2.1 - Variations de résistivité	35
IV.2.2 - Variations de longueur	37
IV.2.3 - Les boucles de dislocation	43
IV.2.4 - Irradiations sous contrainte variable	44
IV.3 - Résumé des résultats expérimentaux	46

- <u>CHAPITRE V</u> - ANALYSE ET INTERPRETATION DES RESULTATS	48
V.1 - Modèle de "croissance induite"	48
V.1.1 - Germination orientée des boucles	48
V.1.2 - Croissance des boucles de dislocation	51
V.1.3 - Coefficient de croissance induite	51
V.1.4 - Basculement des boucles sous l'effet de la contrainte appliquée	54
V.2 - Faibles fluences	54
V.3 - Fluences moyennes	55
V.3.1 - Fluage sous contrainte fixe	55
V.3.2 - Fluage sous contrainte variable	57
V.4 - Fluences élevées	61
V.4.1 - Les recombinaisons entre boucles	63
V.4.2 - Fluage par montée d'un réseau	64
- <u>CHAPITRE VI</u> - DISCUSSION	67
VI.1 - Rôle des boucles dans les irradiations à usage technologique	68
VI.2 - Croissance induite des métaux isotropes, et croissance naturelle de l'uranium	70
- <u>CHAPITRE VII</u> - CONCLUSIONS	74
- ANNEXE I - Endommagement par une source mince de fragments de fission	77
- ANNEXE II - Fissiographie et alphagraphe	81
- ANNEXE III - Découpage d'échantillons par photogravure	84
- ANNEXE IV - Mesures de longueur et de résistivité - Etalonnages et erreurs	88
- ANNEXE V - Vitesse initiale d'allongement	92

- ANNEXE VI	- Effet des contraintes internes sur le fluage aux faibles contraintes appliquées	94
- ANNEXE VII	- Effets géométriques liés au basculement des boucles de dislocation	97
- ANNEXE VIII	- Défauts créés par les fragments de fission dans le molybdène à basse température	104
- ANNEXE IX	- Fluage transitoire lors d'un changement de contrainte appliquée	110
- ANNEXE X	- Les recombinaisons entre boucles	112
- ANNEXE XI	- Fluage par montée d'un réseau isotrope saturé en dislocations	116
- <u>REFERENCES</u>		126

## I - INTRODUCTION

A ses débuts, la technologie des réacteurs nucléaires se heurtait au problème des déformations subies en pile par l'uranium  $\alpha$ . Rapidement contourné du point de vue technologique, ce problème de la "croissance" de l'uranium allait devenir un thème de recherche fondamentale, fournissant en particulier de nombreuses informations sur la création et l'agglomération des défauts ponctuels (cf. / 1 /).

Aujourd'hui, la technologie des réacteurs à neutrons rapides soulève de nouveaux problèmes : c'est le gonflement et le fluage sous irradiation des matériaux de structure de ces réacteurs.

On ne peut pas dire que tout est clair en ce qui concerne le gonflement ; mais l'on sait au moins que cette déformation isotrope ne se manifeste qu'à des températures assez élevées (supérieures à  $0,3 T_F$  environ), et correspond à la condensation en cavités des lacunes créées par l'irradiation.

Définir en si peu de mots le fluage sous irradiation serait impossible. Les résultats expérimentaux dont on dispose à l'heure actuelle sont disparates, fragmentaires, quelquefois contradictoires. Le plus souvent, il s'agit d'essais de tenue au fluage à usage spécifiquement technologique, concernant des aciers inoxydables et des alliages à base de zirconium. Les domaines de température et de contrainte appliquée sont généralement réduits, ce qui fournit peu d'éléments pour apprécier de façon claire les mécanismes fondamentaux qui entrent en jeu.

+

+

+

Bien entendu, les mécanismes qui régissent le fluage sous irradiation sont particulièrement sensibles à la température :

- GITTUS / 2 / évalue à  $0,5 T_F$  la température au-delà de laquelle le fluage est principalement un fluage d'origine thermique (de type Coble ou Nabarro-Herring).

- Aux plus basses températures ( $T < 0,5 T_F$ ), c'est au contraire l'irradiation qui gouverne les déformations observées. Un certain nombre de mécanismes faisant intervenir une montée de dislocations (contrôlée par l'absorption des défauts ponctuels d'irradiation) ont été proposés (cf. / 3 /). Mais on doit également s'attendre à ce que les boucles de dislocation formées par condensation de défauts ponctuels interagissent avec la contrainte appliquée, en particulier au moment de leur germination : la contrainte appliquée peut provoquer une démixion des boucles interstitielles et lacunaires, ce qui conduit à une déformation permanente de l'échantillon.

Il semble que ce dernier mécanisme (qui rappelle beaucoup la croissance de l'uranium) n'ait jusqu'à présent été étudié de façon spécifique que dans notre groupe : les expériences de J. PONSROYE / 4 / <sup>(+)</sup> ont permis pour la première fois d'en déceler l'importance ; le présent travail vise à en donner une analyse plus approfondie ; les expériences de J.Y. BOUNAUD / 5 / en fournissent actuellement une illustration spectaculaire.

+  
+            +

Nous avons donc cherché à étudier de façon spécifique l'effet des boucles de dislocations sur les variations dimensionnelles en cours d'irradiation. Pour cela,

---

(+) Décédé accidentellement le 8 Juillet 1970.

il était nécessaire de limiter le mieux possible la diffusion des défauts ponctuels, c'est-à-dire d'irradier à basse température. C'est dans la boucle d'irradiation à 20 K du réacteur TRITON (Fontenay-aux-Roses) qu'ont été réalisées nos expériences.

Il était souhaitable, pour simplifier le problème, d'étudier des métaux purs. D'autre part, il était intéressant de pouvoir explorer un large domaine de contraintes appliquées. Pour ces deux raisons, nous avons choisi d'étudier le tungstène et le molybdène, de façon à profiter de la forte limite élastique de ces métaux à basse température.

Enfin, le désir d'effectuer des mesures continues sous flux nous a conduit à utiliser comme particules d'irradiation les fragments de fission de l'uranium. C'est avec ces particules lourdes et énergétiques que l'on réalise les endommagements les plus forts dans les temps les plus réduits : une expérience conduisant à un endommagement élevé (un déplacement par atome) dure une quinzaine de jours, et s'inscrit donc facilement dans un cycle de fonctionnement du réacteur. Pour obtenir un endommagement comparable à l'aide des neutrons rapides issus du réacteur TRITON, il faudrait irradier pendant quelques dizaines d'années . Ces ordres de grandeur montrent qu'en utilisant des sources de fragments de fission placées au contact des échantillons, on réalise dans ceux-ci des endommagements très supérieurs à ceux que subissent, de la part des neutrons rapides issus du réacteur, le porte-échantillon et les dispositifs de mesure qu'il contient. Ceci permet d'effectuer sur les échantillons des mesures continues de longueur, insensibles aux variations dimensionnelles que peut subir le porte-échantillon lui-même du fait du flux de neutrons.

+  
+       +

Il nous faut, avant d'aborder l'étude du fluage proprement dit, donner un aperçu général des dégâts induits par les fragments de fission dans la matière. Nous y consacrons notre premier chapitre.

Nous décrivons ensuite les techniques expérimentales mises en oeuvre, principalement la réalisation et le contrôle de sources de fragments de fission, et les mesures de longueur et de résistivité électrique sous contrainte, sous flux, et à basse température.

A la lumière des résultats obtenus, nous montrerons que le fluage sous irradiation à basse température doit schématiquement être décomposé en trois stades :

- aux faibles doses d'irradiation, disons inférieures à  $10^{-2}$  déplacement par atome (d.p.a.), la déformation observée est principalement un gonflement dû aux défauts ponctuels ;
- à des doses comprises entre  $10^{-2}$  et 1 d.p.a., le fluage doit être attribué à la germination de boucles de dislocation lacunaires et interstitielles, orientées par la contrainte appliquée ;
- aux fortes doses (supérieures à 1 d.p.a.), ces boucles se réarrangent en un réseau de dislocations. Nous avons à peine abordé ce stade expérimentalement. Mais il est prévisible qu'il se caractérise par un fluage stationnaire, plus lent que le fluage dû aux boucles, et régi par une montée orientée par la contrainte du réseau de dislocations créé par l'irradiation.

Divers problèmes seront examinés avant de parvenir à cette conclusion : création de défauts par les fragments de fission, effets thermiques induits par ces particules, interaction d'une boucle de dislocation avec une contrainte appliquée, variations dimensionnelles dues aux défauts ponctuels et aux boucles de dislocation, recombinaisons entre boucles, interactions dislocations-défauts ponctuels.

Nous terminerons en comparant brièvement nos résultats avec ceux que fournissent quelques expériences à but technologique ; nous préciserons quelques

points qui nous paraissent essentiels pour une bonne compréhension de ces expériences. Nous soulignerons enfin dans quelle mesure le comportement des matériaux isotropes irradiés sous contrainte diffère de celui de l'uranium ; cette comparaison montrera avec quelle efficacité les recombinaisons entre boucles limitent le fluage des matériaux isotropes.

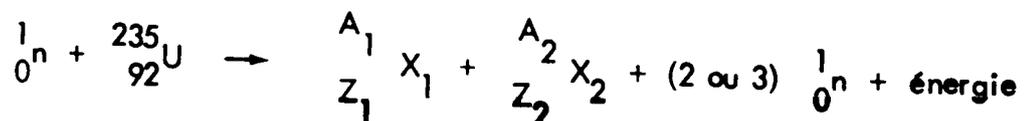
## II - ENDOMMAGEMENT PAR LES FRAGMENTS DE FISSION DE L'URANIUM

Après quelques généralités relatives à la fission de l'uranium, ce chapitre est consacré à la dissipation de l'énergie des fragments de fission dans la matière. L'énergie perdue par un fragment de fission sous forme de chocs atomiques dans le molybdène est calculée à partir de la théorie de Lindhard. On en déduit le nombre maximum de paires de Frenkel que peut créer un fragment de fission dans ce métal. Les effets thermiques associés aux fragments de fission sont également évoqués.

On détermine enfin le profil d'endommagement d'un échantillon plan soumis à un flux isotrope de fragments de fission issus d'une source mince placée à son contact.

### II.1 - Rappels sur la fission de l'Uranium 235

De toutes les particules, les neutrons thermiques sont celles qui ont la plus forte section efficace de capture par le noyau. Dans le cas de  $U^{235}$ , la capture confère au noyau une énergie suffisante pour induire sa fission. De nombreuses réactions de fission sont possibles ; mais la plus probable est celle qui donne lieu à la création de deux fragments, ainsi qu'à l'émission de quelques neutrons, d'énergies comprises entre 0,1 et 17 MeV environ :



L'énergie totale libérée par un processus de fission est voisine de 200 MeV ; l'énergie cinétique des fragments émis en constitue la partie principale (160 à 170 MeV). Le reste de l'énergie de fission représente l'énergie cinétique des neutrons de fission, le rayonnement émis instantanément, et l'ensemble de la radioactivité provenant des produits de fission / 6 /.

D'une façon générale, les fragments issus de la fission sont de masses inégales ; la figure 1 fournit la probabilité de répartition des masses des produits de la fission de  $U^{235}$  par les neutrons thermiques et les neutrons de 14 MeV (d'après / 7 /). La figure 2 donne l'énergie cinétique moyenne des fragments en fonctions de leur masse (d'après / 8 /). Ainsi, on peut schématiquement grouper les fragments de fission de  $U^{235}$  en deux familles :

- les fragments légers, de nombre de masse et d'énergie les plus probables  $A \simeq 95$  et  $E \simeq 100$  MeV ,
- les fragments lourds, définis par  $A \simeq 135$  et  $E \simeq 70$  MeV.

## II.2 - Création de défauts ponctuels et effets thermiques induits par les fragments de fission

### II.2.1 - Ralentissement dans la matière

Les fragments de fission sont, pendant la majeure partie de leur trajet dans la matière, des particules fortement chargées / 9 , 10 /. Ils ont donc une forte interaction avec les électrons, et perdent principalement leur énergie par interactions électroniques avec la cible. En fin de parcours toutefois, les collisions élastiques avec les atomes du réseau deviennent le mode de freinage prépondérant.

L'une des études les plus complètes de ces deux modes de ralentissement a été réalisée par LINDHARD et ses collaborateurs / 11 , 12 /. Le bon accord de

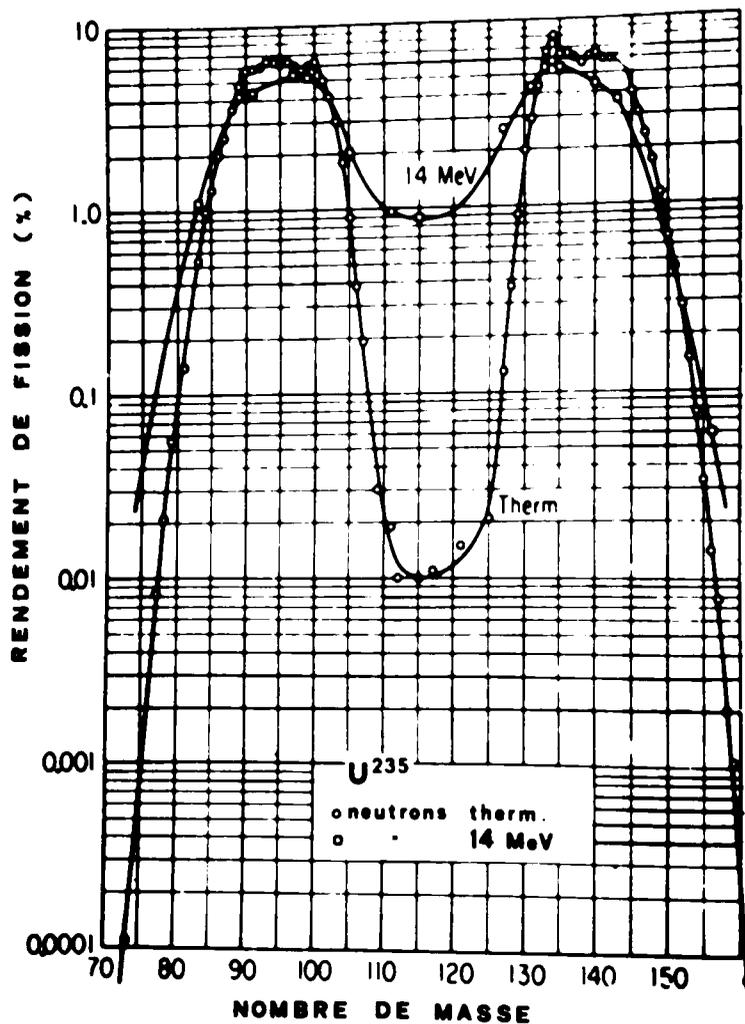


Fig.1: Spectre de masse des fragments de fission de  $U^{235}$ .

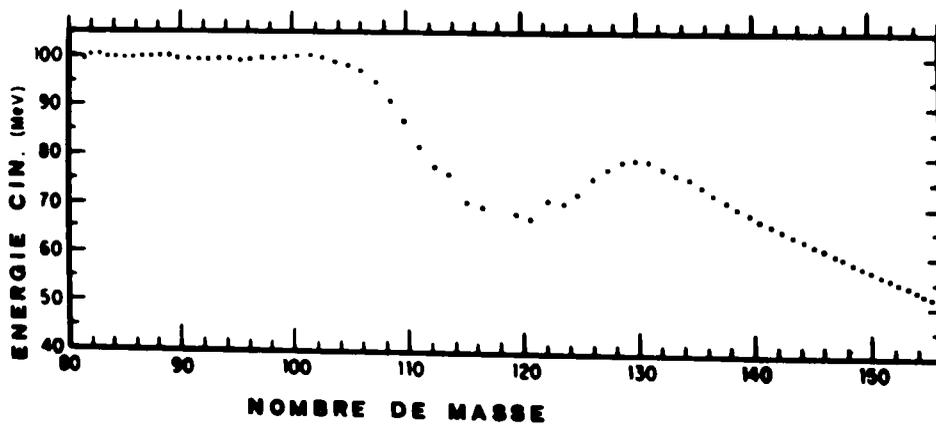


Fig.2: Energie cinétique des fragments de fission de  $U^{235}$  en fonction de leur masse.

plusieurs résultats expérimentaux avec les prévisions de cette théorie confère à celle-ci un poids indiscutable.

LINDHARD calcule l'énergie  $E(r)$  d'une particule au long de son parcours en superposant deux modes de ralentissement indépendants, chocs atomiques et excitation électronique, caractérisés par deux sections efficaces  $S_n$  et  $S_e$ . Le potentiel d'interaction entre la particule et les atomes de la cible est un potentiel écrané de type Thomas-Fermi :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \cdot \varphi\left(\frac{r}{a}\right)$$

$a$  est un paramètre d'écran, égal à  $0,8853 a_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$  ;  $a_0$  désigne le rayon de Bohr

$$(a_0 = \frac{\hbar^2}{m e^2} = 0,529 \text{ \AA})$$

Cette théorie s'applique pour des particules ayant des vitesses assez faibles, inférieures à

$$v_1 = v_0 Z_1^{2/3},$$

qui est approximativement la vitesse orbitale des électrons de la particule (dans cette relation,  $v_0 = \frac{e^2}{\hbar}$ ). Ce n'est en effet que pour des vitesses comprises entre 0 et  $v_1$  que le traitement de Thomas-Fermi fournit un pouvoir de ralentissement par excitation électronique augmentant linéairement avec la vitesse  $v$  suivant la relation :

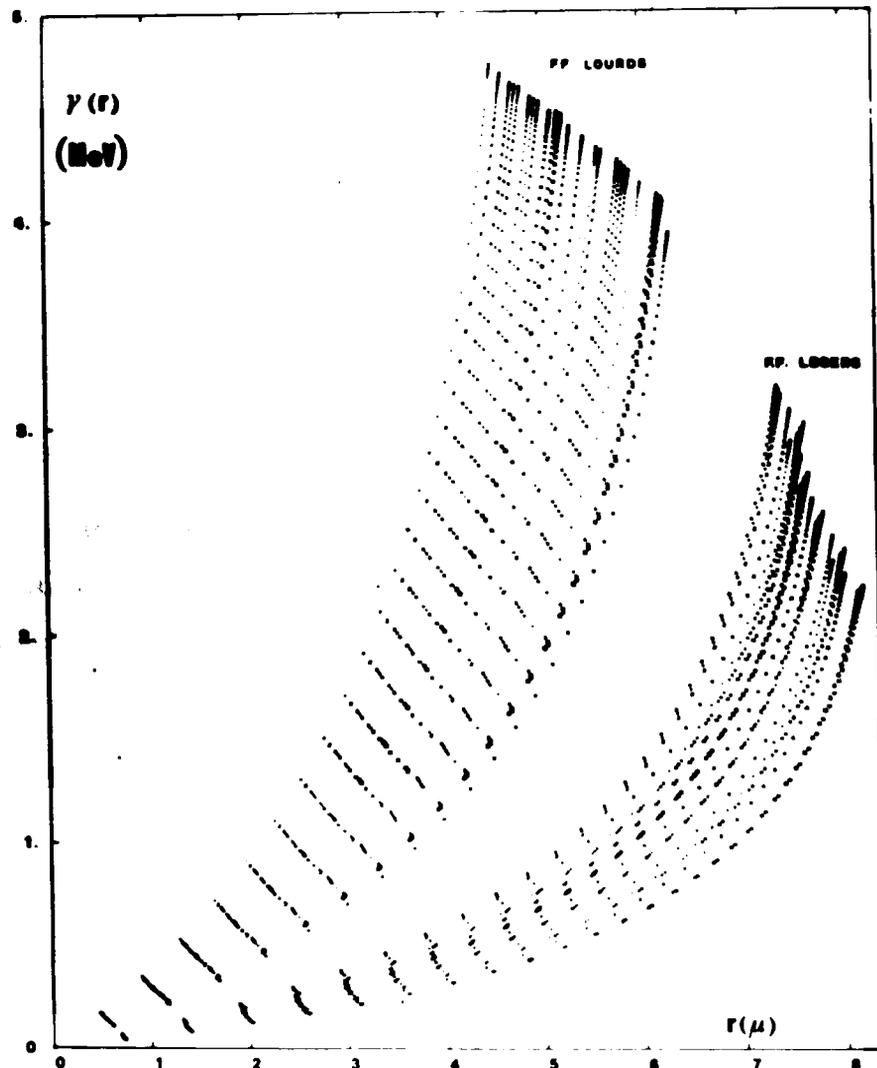
$$S_e = Z_1^{1/6} \cdot 8 \pi e^2 a_0 \cdot \frac{Z_1 Z_2}{Z} \cdot \frac{v}{v_0}$$

(avec  $Z^{2/3} = Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}$ ).

Les fragments de fission satisfont bien à cette condition de vitesse, puisque pour un fragment léger ( $Z_1 = 39$  ,  $A_1 = 95$  ,  $E = 100$  MeV),  $v$  vaut  $0,57 v_1$  , cependant que pour un fragment lourd ( $Z_1 = 53$  ,  $Z_2 = 139$  ,  $E = 67$  MeV),  $v$  vaut  $0,32 v_1$ .

### 11.2.2 - Energie dissipée en chocs atomiques

GENTHON et CHABRY / 13 / ont réalisé un programme de calcul utilisant les relations établies par LINDHARD. A partir de ce programme, nous avons calculé l'énergie  $\gamma(r)$  dissipée en chocs atomiques dans le molybdène par les 50 fragments de fission d' $U^{235}$  de plus fortes probabilités d'apparition. La figure 3 montre l'augmentation de  $\gamma$  avec la distance  $r$  parcourue dans le molybdène pour



**Fig.3:** Energie dissipée par chocs atomiques en fonction du parcours pour les 50 fragments de fission les plus probables (cible de molybdène).

des fragments légers de masses 83 à 106, et des fragments lourds de masses 128 à 152 (ces fragments couvrent 98 % de la représentation totale). Seule une faible partie de l'énergie initiale d'un fragment est libérée sous forme de chocs atomiques : un fragment lourd moyen a libéré 4,3 MeV en fin de parcours (5,5  $\mu$ ) ; un fragment léger moyen parcourt près de 8  $\mu$ , et dissipe environ 2,7 MeV par chocs atomiques.

Le parcours d'un fragment de fission est principalement défini par le freinage électronique. C'est pourquoi les fluctuations statistiques de parcours dues aux chocs atomiques sont négligeables (elles n'excèdent pas 0,1  $\mu$ ). Par contre, la théorie de LINDHARD prévoit des fluctuations beaucoup plus importantes de l'énergie totale libérée sous forme de chocs : on trouve par exemple que cette énergie est définie à 20 % près dans le cas du fragment léger Mo dans le molybdène.

### II.2.3 - Effets thermiques associés à l'excitation électronique

La théorie de LINDHARD prévoit que les fragments de fission perdent environ 95 % de leur énergie initiale par excitation électronique ; ils cèdent aux électrons de la cible quelques milliers d'eV par distance atomique de parcours, qui sont finalement convertis en agitation thermique.

Dans les isolants, cette énergie très importante ne peut se diluer que par des interactions électron-phonon, faibles, et phonon-phonon, lentes ( $\tau \simeq 10^{11}$  s). C'est pourquoi les fragments de fission peuvent induire dans ces matériaux des effets thermiques intenses tout au long de leur parcours / 14 /.

Au contraire, dans les matériaux conducteurs, la présence d'électrons libres permet à cette énergie de se répartir très rapidement dans tout le réseau, qui ne s'échauffe donc que de façon minimale. Nous verrons plus loin que nous ne devons attendre d'effets thermiques importants dans les métaux que tout à fait en fin de parcours, au sein des cascades de déplacements.

#### 11.2.4 - Nombre maximum de paires de Frenkel créées par un fragment de fission

Le nombre d'atomes que peut au maximum déplacer un premier atome choqué (primaire) d'énergie  $E$  a été calculé par KINCHIN et PEASE / 15 /. Il vaut approximativement :

$$N = \frac{E}{2 \cdot E_d}$$

où  $E_d$  est l'énergie seuil de déplacement.

Un fragment de fission moyen peut donc créer au maximum  $N_{\max} = \frac{f}{2 \cdot E_d}$  paires lacune-interstitiel (paires de Frenkel),  $f$  étant l'énergie cédée au réseau en chocs atomiques par un fragment moyen. Dans le molybdène,  $f$  vaut environ 3,5 MeV, et l'on peut prendre comme valeur moyenne de l'énergie seuil de déplacement  $E_d = 38 \text{ eV} / 16 /$ . On obtient ainsi :

$$N_{\max} \simeq 45\,000 \text{ paires de Frenkel par F.F. moyen}$$

Bien entendu, une fraction importante de ces défauts disparaît immédiatement (même à très basse température), soit par annihilation de défauts de natures différentes, soit par agglomération de défauts de même nature. Ces recombinaisons peuvent s'effectuer de façon athermique (recouvrement de zones endommagées, recombinaisons spontanées de paires proches), mais aussi, comme nous allons le voir, sous l'effet des pointes thermiques associées aux cascades de déplacements.

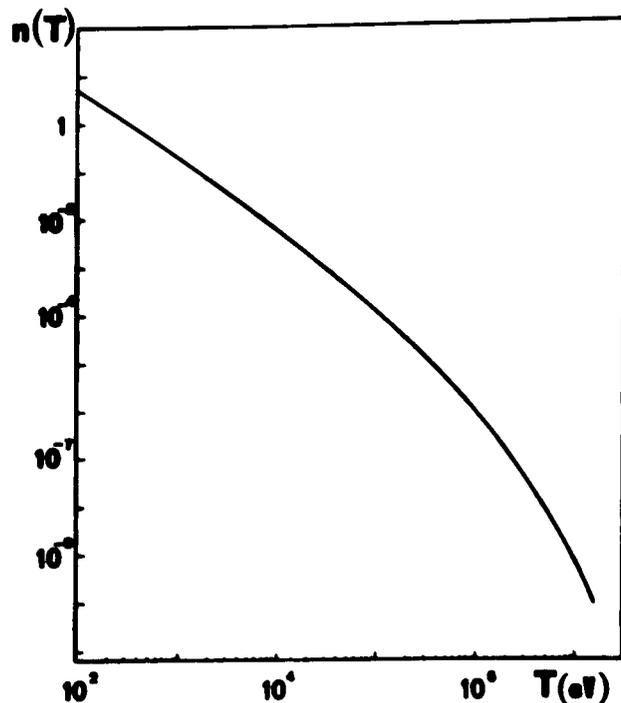
La valeur  $N_{\max} = 45\,000$  doit donc être considérée comme une limite supérieure du nombre de paires de Frenkel créées en moyenne par un fragment de fission dans le molybdène.

### 11.2.5 - Les cascades de déplacements

Comment les défauts ponctuels créés par un fragment de fission sont-ils répartis dans l'espace ? C'est une question à laquelle on ne peut encore répondre que de façon bien approximative. Essayons tout de même de préciser un peu l'importance des cascades de déplacements dans les dégâts laissés par un fragment de fission.

Lorsque l'énergie cédée à un premier atome déplacé (primaire) est inférieure à un certain seuil (de l'ordre de  $10^5$  eV), les collisions de ce primaire avec les atomes du réseau ne sont plus indépendantes : plus l'énergie du primaire est faible, plus court est son libre parcours moyen entre chocs successifs. La gerbe de collisions qui se forme alors est appelée cascade de déplacements / 17 /. Il est habituel de représenter schématiquement une cascade sous la forme d'une zone centrale riche en lacunes, entourée d'une gaine d'interstitiels, formés à distance par canalisation et chocs focalisés (cf. / 1 /). Cette image simple, assez bien confirmée par des simulations sur ordinateur / 18 , 19 /, s'applique d'autant mieux que le métal est plus lourd. Elle permet d'identifier le rayon d'une cascade de déplacements à la distance moyenne d'éjection des atomes.

Les primaires créés par un fragment de fission sont répartis suivant un certain spectre d'énergie. Nous avons déterminé l'allure de ce spectre en utilisant le programme "SOURCE" de GENTHON et CHABRY / 13 , 20 /. Ce calcul montre (figure 4) que le nombre  $n(T)$  de primaires ayant acquis une énergie comprise entre  $T$  et  $T + dT$  suit très approximativement une loi en  $T^{-2}$ . La configuration dans l'espace des défauts créés est liée à ce spectre de primaires. Pour un métal comme le molybdène (et a fortiori pour des métaux plus lourds), ce spectre montre que la quasi-totalité de l'énergie dissipée par un fragment de fission sous forme de chocs efficaces sert à créer des primaires d'énergie supérieure à 1 keV. Il est donc clair que la plus grande partie des défauts que laisse subsister un fragment de fission est créée au sein de cascades de déplacements.



**Fig.4:** Spectre des primaires créés par un fragment léger moyen dans le molybdène ( $n(T)$  est le nombre de primaires d'énergie comprise entre  $T$  et  $T+1$  eV).

Pour avoir une idée de la taille moyenne d'une cascade, il faut évaluer l'énergie qui, en moyenne, y a été dissipée. Nous trouvons que, dans le molybdène, l'énergie du primaire moyen est d'environ 100 keV. Mais en réalité, l'énergie dissipée en moyenne au sein d'une cascade de déplacements élémentaire est bien inférieure à cette valeur : en effet, au-delà d'une certaine énergie  $T_M$  (que l'on peut grossièrement fixer à 100 keV), un primaire ne crée plus une cascade, mais un chapelet de cascades successives. A partir des résultats du programme "SOURCE", nous avons vérifié que le spectre d'énergie des atomes "secondaires" déplacés par un primaire d'énergie  $T_p$  supérieure à  $T_M$  diffère peu du spectre des primaires d'énergie inférieure à  $T_p$ . Le spectre de taille des cascades créées en chapelet est donc peu différent du spectre de taille des cascades créées isolément. Il est par

conséquent licite d'évaluer l'énergie dissipée au sein d'une cascade élémentaire moyenne en ne tenant compte que de la partie du spectre de primaires correspondant aux énergies inférieures à  $T_M$ . En prenant  $T_M$  de l'ordre de 100 keV, nous trouvons que l'énergie dissipée dans une cascade élémentaire moyenne est de quelques keV. A cette valeur correspond une taille moyenne de cascade de quelques dizaines de distances interatomiques.

### 11.2.6 - Pointes thermiques associées aux cascades de déplacements

Du nombre maximum de paires de Frenkel créées par un fragment de fission, on déduit immédiatement la part de l'énergie dissipée par chocs atomiques qui subsiste effectivement dans le cristal sous forme de défauts :

$$E_{\text{eff}} = N_{\text{max}} \cdot E_{\text{p.F}}$$

où  $E_{\text{p.F}}$  est l'énergie de formation d'une paire de Frenkel, soit

$$E_{\text{eff}} = \frac{\bar{\nu} \cdot E_{\text{p.F}}}{2 E_d}$$

Dans le molybdène,  $E_{\text{p.F}}$  est vraisemblablement compris entre 5 et 10 eV, c'est-à-dire que  $\frac{E_{\text{p.F}}}{2 E_d}$  est voisin de 10.

On trouve ainsi que seule une faible fraction (10 % au maximum) de l'énergie dissipée par chocs atomiques contribue à créer des défauts. L'essentiel de l'énergie libérée au sein des cascades de collisions est dissipée en chocs inefficaces, et ne sert donc qu'à faire vibrer les atomes autour de leurs sites.

Sachant qu'une fission induit, dans un métal assez lourd, des déplacements atomiques dans un volume de l'ordre de  $10^{-16} \text{ cm}^3 / 21, 22 /$ , on trouve que chaque

atome acquiert, au sein des cascades de déplacements, une énergie de vibration de l'ordre de 1 eV. Cette distribution initiale de phonons n'est pas en équilibre thermique. Mais les vibrations atomiques peuvent rapidement se thermaliser, et l'on peut alors parler d'une élévation temporaire, mais intense, de température. C'est la "pointe thermique" qui succède à une cascade de déplacements (cf. / 1 /).

### II.3 - Endommagement par une source mince de fragments de fission

La figure 3 nous a permis de remarquer qu'un fragment de fission a un taux de perte d'énergie par chocs atomiques,  $\frac{\delta E}{\delta r}$ , croissant avec la distance  $r$  parcourue. En d'autres termes, un fragment de fission induit un endommagement plus fort en fin de parcours qu'en début de parcours.

La façon la plus simple de réaliser une irradiation par les fragments de fission est de placer au contact de l'échantillon une source, mince ou massive, de matière fissile. Dans ce cas, l'échantillon est bombardé par des particules ayant toutes les incidences, et même, dans le cas d'une source massive, toutes les énergies. Le problème se pose alors de connaître le profil d'endommagement dans l'échantillon.

Dans nos expériences, nous n'avons utilisé que des sources minces. C'est donc ce seul cas qui sera évoqué ici (le cas de sources épaisses a été publié par ailleurs / 23 /). Le calcul de l'endommagement moyen, par fragment de fission pénétrant dans l'échantillon, est détaillé en Annexe 1. Pour le molybdène, on trouve au voisinage de la surface d'entrée des particules un endommagement de l'ordre de  $1 \text{ MeV}/\mu$ ; cet endommagement décroît à peu près linéairement jusqu'à la profondeur  $\xi$  correspondant au parcours maximum du fragment le plus léger ( $8 \mu$  environ dans le molybdène). Pour obtenir un endommagement approximativement homogène, il convient donc d'utiliser un échantillon d'épaisseur peu différente de  $\xi$ , et de l'irradier par ses deux faces.

### III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

#### III.1 - Les sources de fragments de fission

Nous avons choisi d'utiliser comme sources de fragments de fission des couches minces de matière fissile déposées sur les échantillons eux-mêmes. Nos premières expériences ont été réalisées à l'aide de sources d'uranium métallique enrichi à 90 % en isotope 235. Mais nous avons rapidement trouvé avantage à fabriquer des sources d'oxyde d'uranium, pour les raisons que nous évoquons maintenant.

##### III.1.1 - Avantages des sources d'UO<sub>2</sub>

Nous avons rapidement abandonné la technique utilisée avant nous par J. PONSOYE / 4 / et consistant à effectuer par évaporation un dépôt d'uranium métallique sur les échantillons. L'obtention d'un dépôt d'uranium de bonne qualité est en effet une opération assez délicate, en raison de la très forte oxydabilité de ce métal. De plus, même protégé par un mince film d'or, un dépôt d'uranium se conserve très mal à l'air libre. En s'oxydant, il devient pulvérulent, perd de son adhérence et fournit un risque de contamination.

C'est pourquoi nous nous sommes rapidement orientés vers l'utilisation de sources d'UO<sub>2</sub> enrichi à 90 % en isotope 235. L'évaporation d'une pastille frittée

d' $\text{UO}_2$  s'effectue sans difficulté sous un vide de  $10^{-5}$  Torr, à l'aide d'un canon à électrons de 2 kW. L'évolution, en cours d'évaporation, de la coloration du dépôt permet d'obtenir en une seule fois et à 20 ou 30 % près l'épaisseur d' $\text{UO}_2$  souhaitée. Nous avons réalisé des sources présentant généralement une densité voisine de  $5 \cdot 10^{17}$  atomes fissiles par  $\text{cm}^2$ , soit une épaisseur d' $\text{UO}_2$  comprise entre 2 000 et 3 000 Å. Les risques de contamination ont été évités en recouvrant les sources d'un mince film d'or évaporé.

De telles sources présentent une excellente adhérence sur leur support, même après plusieurs cyclages thermiques entre 4 K et 300 K. De plus, leur qualité n'est pas altérée par un séjour prolongé à l'air libre ; elles peuvent donc être préparées à l'avance par petites séries.

### III.1.2 - Détermination de l'épaisseur des sources

Si elle permet d'apprécier approximativement l'épaisseur d'une source, la couleur du dépôt n'en fournit évidemment pas l'activité avec une précision suffisante. Nous avons eu recours conjointement à deux méthodes : la fissionographie et l'alphagrapie. Seuls les principes en sont exposés ici, quelques détails étant consignés en Annexe II.

. La fissionographie consiste à induire, par un flux connu de neutrons thermiques, la fission d'une petite fraction des atomes de la source. Les fragments de fission émis sont détectés par les traces qu'ils laissent dans un isolant (mica ou makrofol). De la densité de traces, et connaissant le flux de neutrons thermiques ainsi que la section efficace de fission d' $\text{U}^{235}$  par les neutrons, on déduit le nombre d'atomes fissiles par  $\text{cm}^2$  de source.

. L'alphagrapie consiste simplement à mesurer l'activité  $\alpha$  naturelle de la source. Les particules  $\alpha$  sont détectées par les traces qu'elles laissent dans une feuille de nitrate de cellulose. Mais il est important de souligner que l'activité  $\alpha$

d'une source dépend fortement de la composition isotopique exacte du lot de matière fissile dont elle provient : par exemple, l'activité spécifique de l'isotope  $U^{234}$  est environ  $3 \cdot 10^3$  fois supérieure à celle de l'isotope 235. L'alphagraphie, plus simple à mettre en oeuvre, permet donc seulement de comparer la source à étudier avec une source de référence, issue du même lot de matière fissile, et préalablement étalonnée par fysiographie.

### III.1.3 - Dégradation des sources sous irradiation

Après quelques expériences en pile à basse température, une montée importante de la radioactivité du dispositif cryogénique d'irradiation s'est manifestée. Nous avons constaté une contamination par les fragments de fission, due à une dégradation des sources fissiles sous le flux de neutrons du réacteur. Faut de pouvoir contourner cette difficulté, nous avons dû étudier en détail le comportement de diverses sources sous irradiation. Cette étude parallèle sera décrite par ailleurs / 24 /. Les points saillants en sont les suivants :

- Les couches fissiles minces déposées sur nos échantillons subissent au cours de l'irradiation une diminution d'épaisseur que l'on peut traduire par l'une des deux relations équivalentes :

$$n = n_0 \exp - \frac{m^{\star} \varphi(o) t}{n_0}$$

ou

$$n = n_0 \exp - m^{\star} \bar{\sigma}_f \varphi_n t$$

$n$  est le nombre d'atomes fissiles par  $cm^2$  de source au bout du temps  $t$  d'irradiation,

$n_0$  est la densité initiale en atomes fissiles de la source,

$m^{\star}$  est le nombre d'atomes fissiles éjectés de la source par fission dans la source,

$\nu(0)$  est le flux instantané de fragments de fission émis par  $\text{cm}^2$  de source au temps  $t = 0$ ,

$\phi_n$  est le flux de neutrons thermiques frappant la source,

$\bar{\sigma}_f$  est la section efficace moyenne de fission de  $\text{U}^{235}$  par les neutrons thermiques.

En ce qui concerne les sources d' $\text{UO}_2$  déposées sur molybdène et recouvertes d'un film d'or, le nombre  $m^*$  d'atomes fissiles éjectés par fission dans la source a été trouvé égal à  $100 \pm 20$  (à la température de l'hydrogène liquide).

La forte dépendance de ce taux de pulvérisation avec la température ( $m^* \simeq 2\,500$  à  $350\text{ K}$ ), ainsi qu'une évaluation théorique du nombre d'atomes susceptibles d'être éjectés par chocs atomiques (une dizaine environ), nous a permis de montrer que la pulvérisation des films minces résulte des effets thermiques induits par les fragments de fission.

Ainsi, les résultats expérimentaux obtenus sous irradiation peuvent être exploités convenablement moyennant une correction de fluence.

- Si maintenant l'échantillon est irradié sous forte contrainte de traction et subit en pile des déformations importantes, un deuxième processus de dégradation des sources se superpose au précédent : c'est le craquèlement du dépôt, suivi d'une perte d'adhérence de lambeaux entiers. Ce mode de dégradation, imprévisible, ne se produit toutefois que pour les échantillons subissant les plus fortes déformations. Nous avons la certitude que, pour des contraintes appliquées inférieures ou égales à  $30\text{ kg/mm}^2$ , il ne se manifeste pas. Il apparaît sous  $52\text{ kg/mm}^2$ , et devient grave pour  $72\text{ kg/mm}^2$ . Il faudra donc garder présent à l'esprit que les résultats expérimentaux obtenus à forte contrainte sont entachés, aux fluences élevées, d'une erreur par défaut qui peut être importante.

### III.2 - Les échantillons

Notre désir de réaliser dans nos échantillons des profils d'endommagement approximativement homogènes, nous a conduits à irradier de minces rubans laminés de tungstène et de molybdène, d'épaisseur  $10 \pm 0,3 \mu$ . La pureté nominale du matériau utilisé est dans les deux cas de 99,95 %. Les rapports de résistivité  $\rho_{300 K} / \rho_{20 K}$  sont égaux à 9 pour le tungstène et 13 pour le molybdène bruts de laminage.

Le matériau écroui présente des grains très allongés suivant la direction de laminage, de  $1 \mu$  de large environ et pouvant atteindre  $10 \mu$  de longueur (figures 5 et 6).

Le tungstène et le molybdène présentent la même texture de laminage, très fortement marquée comme le montre le cliché de rayons X de la figure 7. Cette forte texture nous autorise à attribuer à l'ensemble des grains une orientation unique  $\{112\} \langle 110 \rangle$ , et permet donc de définir très facilement l'orientation cristallographique de la contrainte appliquée à l'échantillon.

Les échantillons proprement dits sont des rubans de 25 à 30 mm de longueur et de  $1,5 \pm 0,05$  mm de largeur découpés par photogravure dans les feuilles laminées (quelques détails sur cette technique sont consignés dans l'Annexe III).

En plus des échantillons écrouis, nous avons utilisé quelques échantillons recuits à des températures légèrement inférieures à leurs températures de recristallisation : le tungstène a été porté à  $1500^\circ\text{C}$  pendant 30 mn sous un vide de  $2 \cdot 10^{-7}$  Torr, le molybdène à  $1100^\circ\text{C}$  pendant 1 heure sous atmosphère d'hydrogène. Ces traitements constituent essentiellement des recuits d'adoucissement : l'aspect des grains n'est pas fondamentalement modifié, et la texture de laminage est conservée. Ces recuits portent les rapports de résistivité  $\rho_{300 K} / \rho_{20 K}$  à 13 environ pour le tungstène et 40 pour le molybdène.



Fig.5: Aspect micrographique du molybdène brut de laminage.



Fig.6: Aspect micrographique du tungstène recuit.

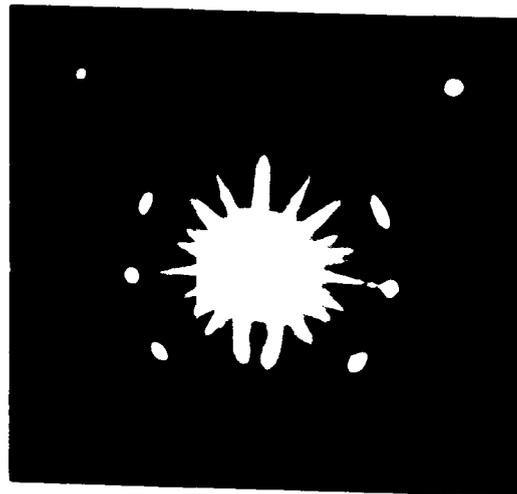


Fig.7: Diagramme de rayons X en transmission ( rayonnement du cuivre; matériau brut de laminage; angle entre la direction de laminage et le faisceau 75 degrés ).

### III.3 - Dispositif d'irradiation à basse température

#### III.3.1 - Le dispositif VINKA

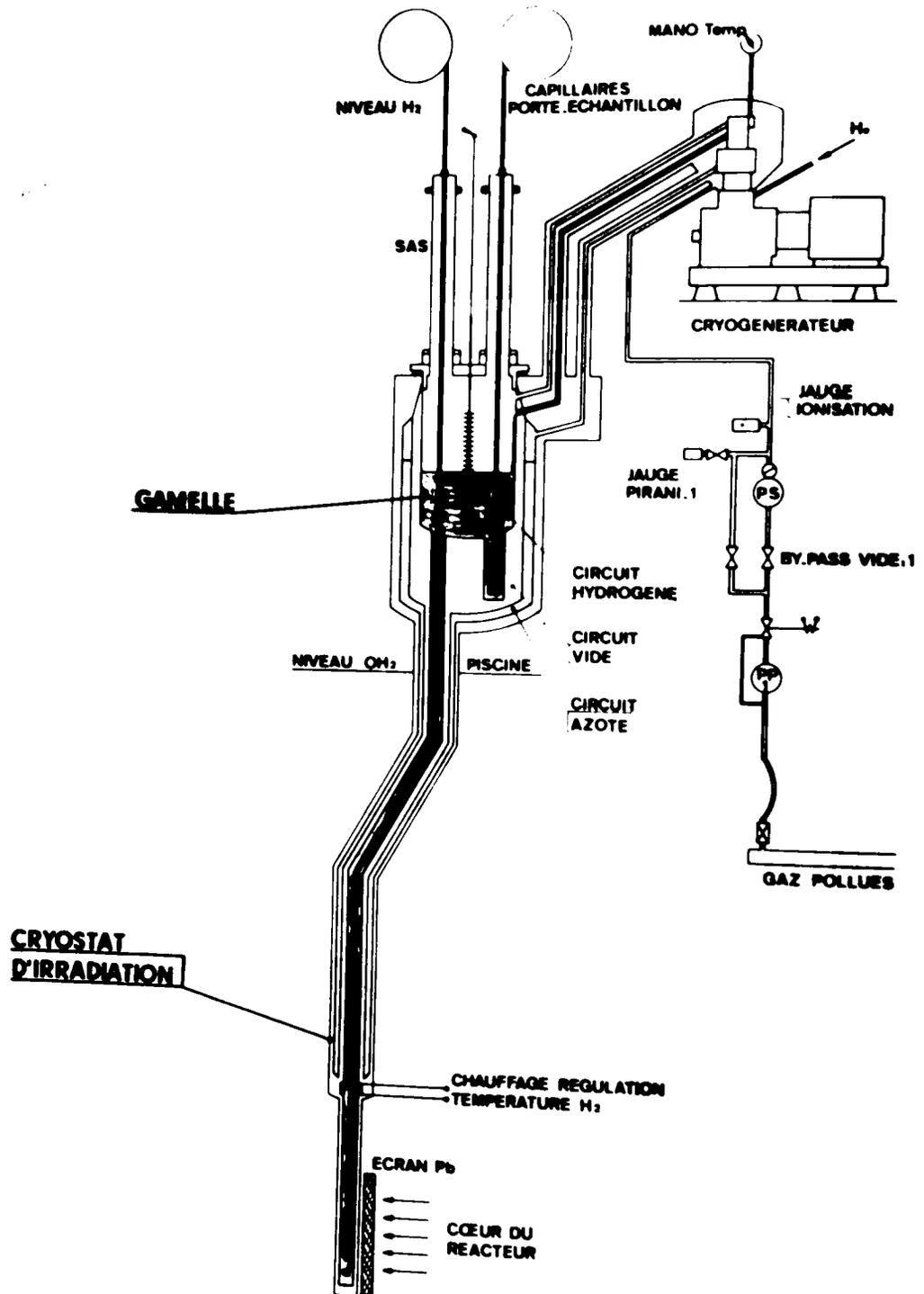
Nos expériences d'irradiation ont été réalisées dans l'hydrogène liquide grâce au dispositif VINKA, implanté dans le réacteur TRITON de Fontenay-aux-Roses. Ce dispositif a été décrit en détail par R.R. CONTE / 25 , 26 /. Nous nous limiterons donc à en rappeler les caractéristiques principales.

Cette boucle d'irradiation à 20 K se compose de deux éléments principaux (figure 8) :

- un cryogénérateur Philips PEH - 100 à deux étages fournissant une puissance frigorifique de 100 W à 20 K.
- un cryostat constitué schématiquement d'une "gamelle" prolongée par un "doigt" coudé. Celui-ci plonge dans l'eau du réacteur, jusqu'au niveau du cœur, à 7 mètres environ de profondeur. L'alimentation de cet ensemble en hydrogène liquide s'effectue en circuit fermé. Un circuit d'azote formant écran thermique et des résistances chauffantes permettent de contrôler avec précision la pression au-dessus des bains liquides. La température de l'hydrogène liquide se trouve ainsi stabilisée à  $\pm 0,05$  K près.

Compte tenu des pertes propres du cryostat et du chauffage  $\gamma$ , on dispose pour le porte-échantillon d'une puissance frigorifique voisine de 30 W à 20 K. Le chauffage  $\gamma$  étant, au flux maximum, un peu inférieur à 1 W/g, la masse du porte-échantillon ne devra pas excéder 40 g.

Le cryostat est fermé à sa partie supérieure par un couvercle muni de passages étanches par lesquels s'effectuent enfournements et défournements du porte-échantillon, soudé à un tube capillaire en acier inoxydable. Ce tube



**Fig.8:** Schéma du dispositif d'irradiation VIEKA implanté dans le réacteur TRITON de Fontenay-aux-Roses.

contient les fils de mesures électriques, et peut permettre éventuellement de faire le vide dans une capsule d'irradiation étanche.

L'ensemble cryogénérateur-cryostat est mobile par rapport au cœur du réacteur, de façon à explorer une gamme de flux allant de  $3.10^{11}$  à  $1,3.10^{13}$  n.th/cm<sup>2</sup>.s.

### III.3.2 - Système d'acquisition et de traitement des données

Une chaîne d'acquisition de données est couplée au dispositif VINKA. Elle comprend :

- un sélecteur permettant d'explorer 25 voies, commandé par une horloge numérique,
- un voltmètre numérique qui, muni d'un amplificateur à grande impédance d'entrée, fournit une sensibilité de mesure de  $10^{-7}$  Volt,
- un transcodeur, qui permet l'enregistrement simultané des données sur imprimante et bande perforée.

Le traitement des données ainsi enregistrées s'effectue intégralement à l'aide d'une calculatrice HP 9810 A munie d'un lecteur de bandes perforées et d'un traceur de courbes.

### III.4 - Détermination de la fluence d'irradiation

#### III.4.1 - Mesure du flux de neutrons thermiques

Un "collectron" ou "Neutrocoax Sodern" est solidaire du dispositif VINKA / 27 /. Sous irradiation, ce collectron engendre un courant proportionnel au flux de neutrons. La mesure de la tension induite aux bornes d'une résistance étalon de

1 M (en série avec le collectron), dans un flux connu préalablement par dosage d'un moniteur de cobalt, fournit avec une précision d'environ 5 % la relation d'étalonnage :

$$\varphi_n \text{ (n.th./cm}^2 \cdot \text{s)} = \frac{10^{11}}{1,125} \text{ V (mV)}$$

### III.4.2 - Calcul du flux de fragments de fission frappant l'échantillon

Soient :

- n le nombre d'atomes fissiles par  $\text{cm}^2$  dans la source d'uranium ou d' $\text{UO}_2$ ,
- e l'épaisseur de l'échantillon,
- $\bar{\sigma}_f$  la section efficace moyenne de fission de  $\text{U}^{235}$  par les neutrons,
- $\varphi_n$  le flux instantané de neutrons (n.th./ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ ).

Le nombre de fissions se produisant dans  $1 \text{ cm}^2$  de source pendant le temps t s'écrit :

$$n_f = n \cdot \bar{\sigma}_f \cdot \varphi_n \cdot t$$

Dans l'approximation où chaque fission donne lieu à l'émission de deux fragments, la fluence de fragments de fission sur l'échantillon est

$$\Phi \text{ (FF/cm}^2) = \varphi \cdot t = n \cdot \bar{\sigma}_f \cdot \varphi_n \cdot t$$

Quand l'endommagement dans l'échantillon est approximativement homogène, on peut exprimer la fluence d'irradiation en fragments de fission par  $\text{cm}^3$  :

$$\Phi \text{ (FF/cm}^3) = \frac{2 \cdot n \cdot \bar{\sigma}_f \cdot \varphi_n \cdot t}{e}$$

Prenons un exemple numérique typique. Pour  $U^{235}$ ,  $\bar{\sigma}_f$  vaut 500 barns, soit  $5 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2 / 22$ . Nous avons utilisé des sources comportant généralement  $5 \cdot 10^{17}$  atomes fissiles/cm<sup>2</sup>, soumises à un flux de neutrons de l'ordre de  $10^{13}$  n.th./cm<sup>2</sup>.s. En négligeant la dégradation des sources, on atteint une fluence voisine de  $10^{15}$  FF/cm<sup>2</sup> (soit  $2 \cdot 10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup> pour nos échantillons de  $10 \mu$  d'épaisseur) au bout de 100 heures d'irradiation.

Pour mieux apprécier l'importance d'une telle fluence, on peut la caractériser par les dommages qu'elle induit dans le cristal, c'est-à-dire l'exprimer en unités de déplacements par atomes (d.p.a.). Dans le molybdène par exemple, chaque fragment de fission déplace environ 30 000 atomes. Le nombre d'atomes par cm<sup>3</sup> étant voisin de  $6 \cdot 10^{22}$  dans ce métal, il correspond donc à la fluence de  $10^{15}$  FF/cm<sup>2</sup> (ou  $2 \cdot 10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup>) une dose de l'ordre de :

$$\frac{2 \cdot 10^{18} \cdot 30\,000}{6 \cdot 10^{22}} = 1 \text{ d.p.a.}$$

### III.5 - Mesure de la température d'irradiation

Le contrôle de la température d'irradiation s'effectue au moyen de thermocouples cuivre-constantan situés au voisinage immédiat des échantillons. La température de référence est fournie par une cellule à point triple de l'eau qui donne + 0,01°C à quelques  $10^{-4}$  degrés près.

Bien que le pouvoir thermoélectrique du cuivre-constantan soit faible aux basses températures (environ  $6 \mu\text{V}$  par degré à 20 K), la sensibilité du voltmètre permet de détecter des variations de température de l'ordre de 0,1 K.

### III.6 - Mesures de variations de longueur

#### III.6.1 - Capteur de déplacement

Nous avons repris la technique de mesure de variations de longueur largement décrite par ailleurs / 4 , 22 , 28 / : le capteur de déplacement est un transformateur linéaire, variable et différentiel, dont le primaire est alimenté par une tension alternative de 1 V - 5 000 Hz. La tension au secondaire est amplifiée et redressée, de telle sorte qu'au déplacement  $\Delta L$  d'un noyau magnétique à l'intérieur du capteur correspond une variation de tension continue  $\Delta U$ . La linéarité du capteur est assurée pour des déplacements du noyau atteignant 1 mm de part et d'autre de la position correspondant à son zéro électrique. Entre ces limites, allongement et tension secondaire sont liés par la relation :

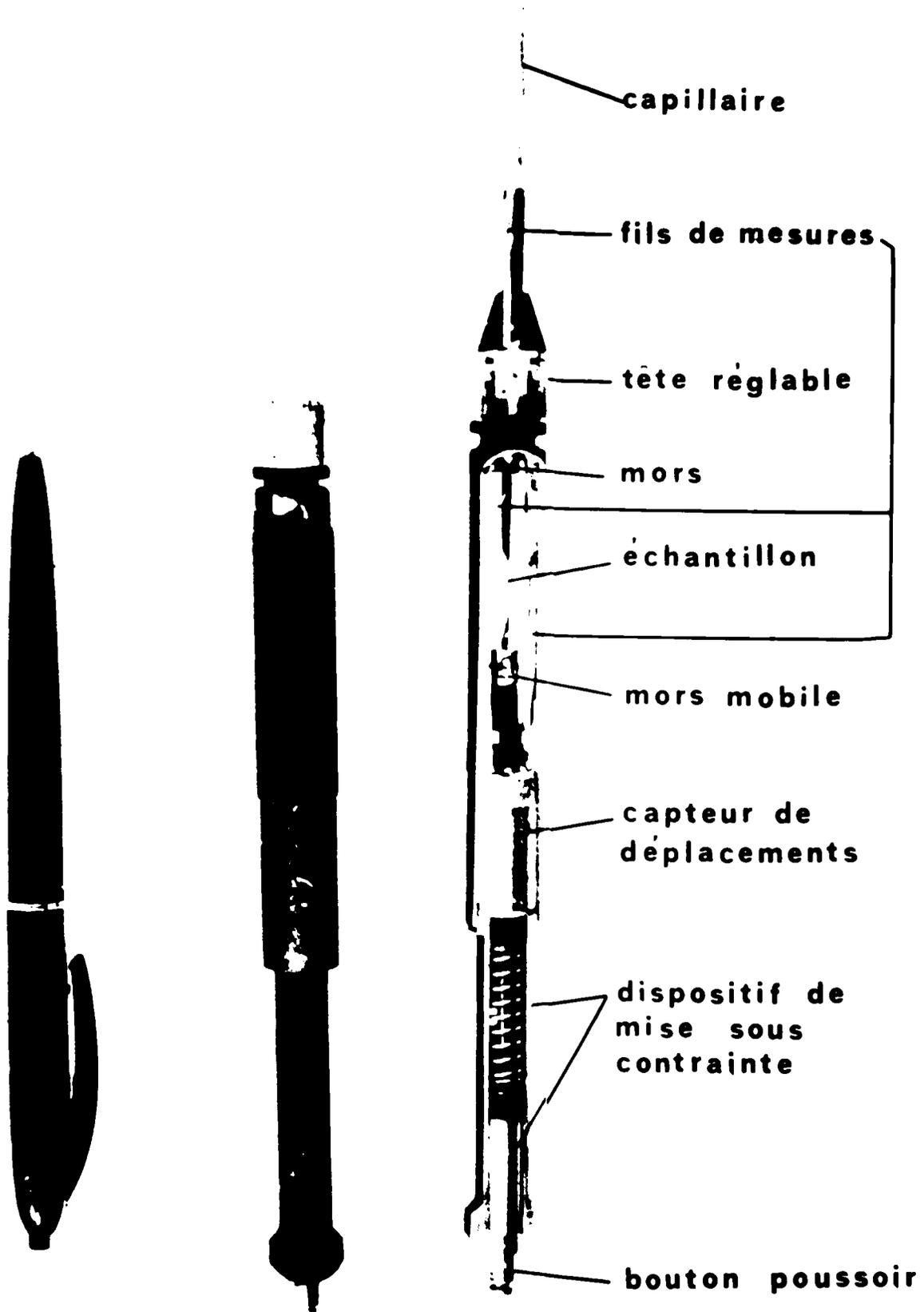
$$\Delta L = K \Delta U$$

K est une constante caractéristique de chaque capteur et sensible à la température. Cette pente K varie suivant les capteurs entre 1,1 et 1,3  $\mu$ /mV.

Disposé dans le bain cryogénique de la boucle à 20 K, un tel capteur a une résolution meilleure que 0,1  $\mu$  . Les expériences de C. WEINBERG / 22 / montrent que la fidélité de ses indications sous flux de neutrons thermiques paraît assurée jusqu'à des fluences d'au moins quelques  $10^{18}$  n.th./cm<sup>2</sup>, qui sont approximativement celles que nous avons atteintes.

#### III.6.2 - Capsules d'irradiation

Ne peuvent être introduites dans le dispositif VINKA que des capsules d'irradiation de dimensions réduites : ainsi, pour un diamètre extérieur de 13 mm, elles ne peuvent excéder 140 mm de longueur.



**Fig.9:** Capsule d'irradiation à contrainte fixe.

MACHINE DE TRACTION A 20° K SOUS FLUX

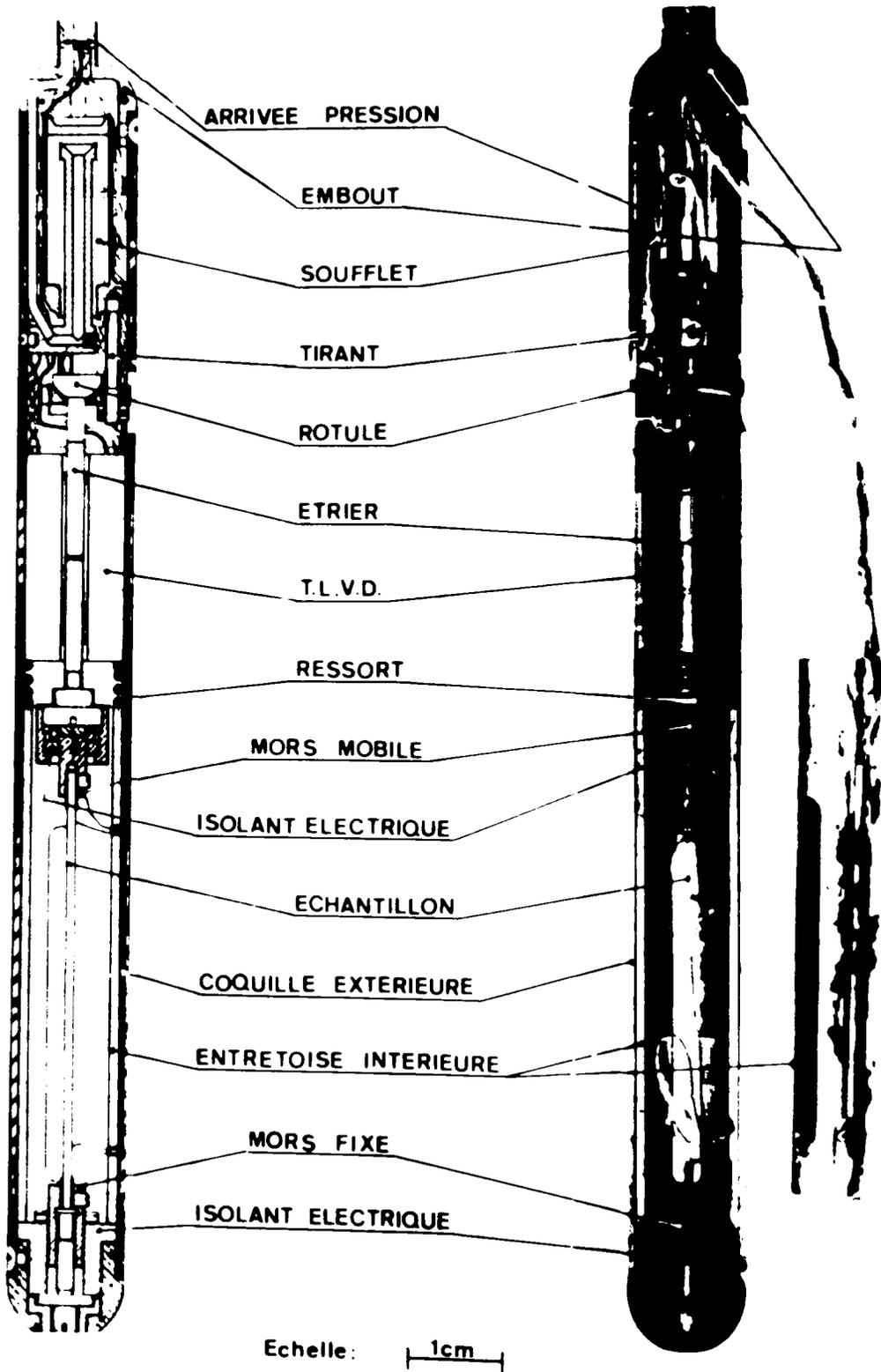


Fig.10: Capsule d'irradiation à contrainte variable /28/.

Deux types de capsules ont été utilisées, suivant que l'on souhaite ou non appliquer à l'échantillon une contrainte variable durant l'expérience :

- Capsules à ressort (contrainte appliquée fixe)

Ces capsules dérivent directement des capsules utilisées précédemment par J. PONSOYE / 4 / ; la différence principale réside dans le dispositif de mise sous contrainte de l'échantillon.

Le corps de la capsule, de 13 mm de diamètre, est un cylindre d'aluminium oxydé anodiquement. La partie supérieure de la capsule (figure 9) est munie d'une tête de réglage fileté (au pas de 0,5 mm), qui permet la translation d'un mors semi-fixe. L'échantillon est maintenu entre ce mors et un mors mobile, solidaire du noyau magnétique du capteur, et par l'intermédiaire duquel est appliquée la contrainte à l'échantillon.

Sur la partie inférieure de la capsule est vissé le dispositif de mise sous traction de l'échantillon. Ce dispositif à bouton poussoir, emprunté à un modèle répandu de stylos à bille, est déclenché par pression de la capsule au fond de la boucle à 20 K.

Les fils de liaisons électriques (8 à 16 fils suivant les expériences) passent au travers de la tête de la capsule, puis à l'intérieur du capillaire d'acier inoxydable qui lui est soudé, pour aboutir à une boîte étanche de raccordement avec le laboratoire.

- Capsules à soufflet (contrainte appliquée variable)

Ces capsules sont les micro-machines de traction conçues et décrites par CONTE et VON STEBUT / 29 /. Dans ces capsules (figure 10), la contrainte est appliquée à l'échantillon par un soufflet métallique, soumis à une pression d'hélium variable de 0 à 10 bars.

Ces capsules permettent de faire varier la contrainte appliquée à l'échantillon de façon continue et progressive. Comme dans les capsules à ressort, les déplacements sont mesurés par un transformateur variable linéaire différentiel.

Les opérations d'étalonnage de ces capsules, assez fastidieuses, sont décrites en Annexe IV. Dans cette Annexe sont également évaluées les erreurs commises sur les déterminations des pentes des capteurs et des forces appliquées aux échantillons. Disons simplement ici que les mesures d'allongement sous flux s'effectuent avec une bonne sensibilité, mais avec une précision très moyenne (5 à 10 %).

### III.7 - Mesure des variations de résistivité électrique

Nous avons suivi, en même temps que les variations de longueur, les variations de résistivité de certains échantillons sous irradiation à basse température.

Dans ce cas, quatre fils de platine de 50  $\mu$  sont soudés électriquement sur l'échantillon. Les deux fils extrêmes sont utilisés en amenées de courant, les deux autres en prises de potentiel. L'échantillon est parcouru par un courant  $i = 100$  mA, stabilisé à  $10^{-5}$  près ; la tension aux bornes de la résistance  $R$  entre prises de potentiel est mesurée à l'aide du voltmètre numérique. En raison de la forte impédance d'entrée de ce voltmètre ( $10^{10} \Omega$ ), le courant qui traverse les prises de potentiel et le voltmètre est très faible (environ  $10^{-14}$  A), et les résistances de ligne et de contact sont négligeables.

Les diverses sources d'erreurs sont décrites en Annexe IV. C'est l'incertitude sur le facteur de forme de l'échantillon qui fournit l'erreur principale sur la détermination de résistivité. Tout comme les mesures d'allongement, les mesures de variation de résistivité sont sensibles, mais peu précises (5 à 10 %).

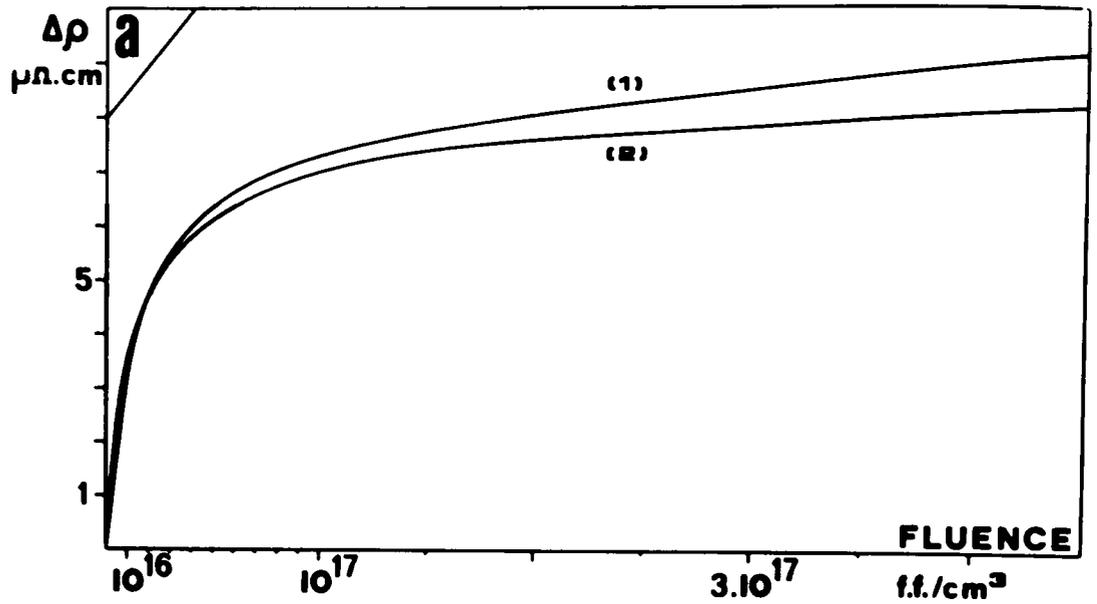
## IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX

C'est principalement le tungstène dont J. PONSOYE / 4 / avait étudié le comportement sous flux de fragments de fission. C'est sur ce même métal qu'ont été réalisées nos premières expériences. Mais par la suite, nous avons choisi de nous intéresser exclusivement au molybdène, en vue d'expériences futures sur monocristaux.

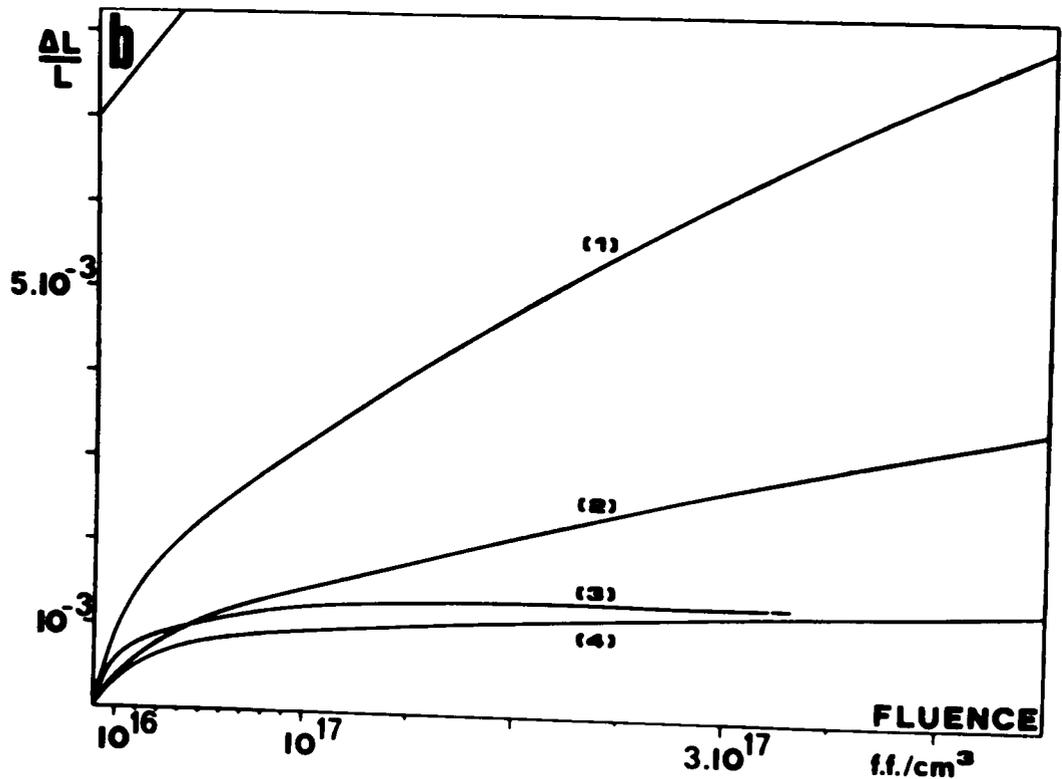
### IV.1 - Irradiations sous traction de tungstène

#### IV.1.1 - Variations de résistivité

En début d'irradiation, la résistivité électrique augmente rapidement (figure 11), avec une vitesse initiale voisine de  $6,5 \cdot 10^{-16} \mu \Omega \cdot \text{cm}$  par  $\text{FF}/\text{cm}^3$ . A partir d'une fluence de  $2 \cdot 10^{16} \text{FF}/\text{cm}^3$  environ (de l'ordre de  $10^{-2}$  d.p.a.), se manifeste un fort changement de pente et une quasi-saturation de la résistivité. Cette saturation montre que la concentration de défauts ponctuels n'augmente plus, et que les lacunes et interstitiels que continue de créer l'irradiation se condensent intégralement en amas de faible contribution à la résistivité électrique. Que sont ces amas ? La microscopie électronique nous montrera qu'il s'agit de boucles de dislocation (cf. paragraphe IV.2.3).



**Fig.11:** Augmentation de résistivité du tungstène en fonction de la fluence d'irradiation;  
(1) échantillon brut de laminage  
(2) échantillon recuit.



**Fig.12:** Allongement du tungstène en fonction de la fluence d'irradiation.  
(1) échantillon recuit,  $\sigma = 65 \text{ kg/mm}^2$   
(2) échantillon écroui,  $\sigma = 72 \text{ kg/mm}^2$   
(3) échantillon recuit,  $\sigma = 0$   
(4) échantillon écroui,  $\sigma = 0$

#### IV.1.2 - Variations de longueur

La figure 12 représente les variations de longueur de quatre échantillons de tungstène. Deux d'entre eux sont recuits, deux sont écrouis. Deux sont irradiés sous forte contrainte (65 et 72 kg/mm<sup>2</sup>), deux sous contrainte très faible (inférieure à 1 kg/mm<sup>2</sup>).

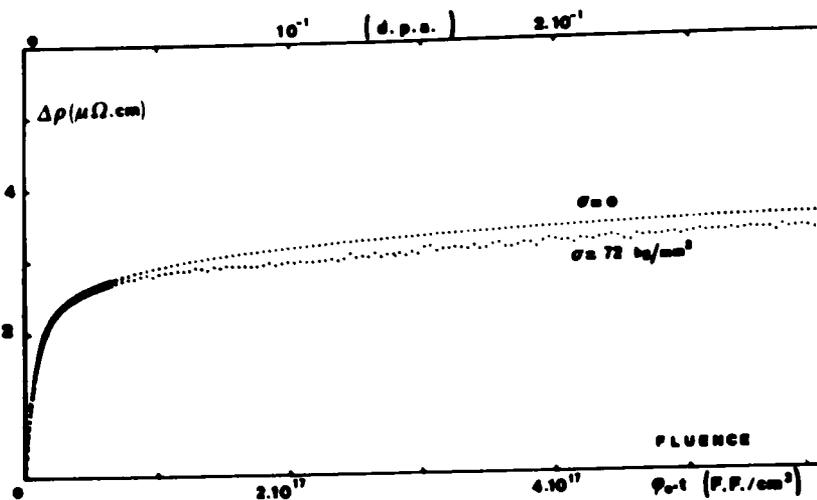
On constate que, comme la résistivité, la longueur des échantillons évolue en deux stades : la création de défauts ponctuels induit une rapide déformation initiale ; puis, à partir de  $2 \cdot 10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup> environ, s'amorce un deuxième stade. Il est important de remarquer qu'en l'absence de contrainte appliquée, ce deuxième stade se caractérise par une saturation de la longueur des échantillons. Sous contrainte élevée, au contraire, l'allongement se poursuit, plus vite d'ailleurs pour le matériau recuit que pour le matériau écroui.

#### IV.2 - Irradiations sous traction de molybdène écroui

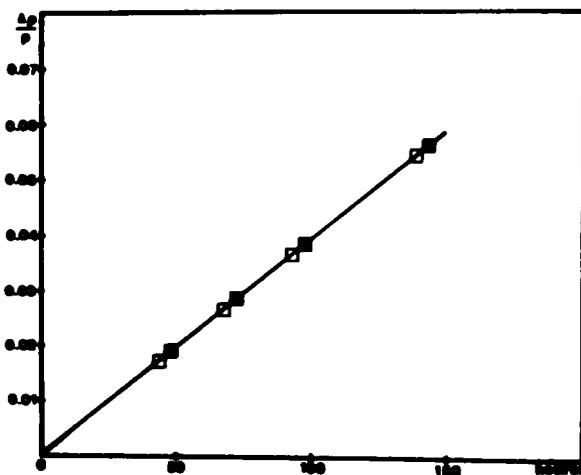
##### IV.2.1 - Variations de résistivité

La figure 13 montre que la résistivité se comporte dans le molybdène comme dans le tungstène : une rapide augmentation aux faibles fluences (avec une vitesse initiale de  $5 \cdot 10^{-16}$   $\mu\Omega$  cm par FF/cm<sup>3</sup>), suivie d'une quasi-saturation à partir de  $2 \cdot 10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup> environ.

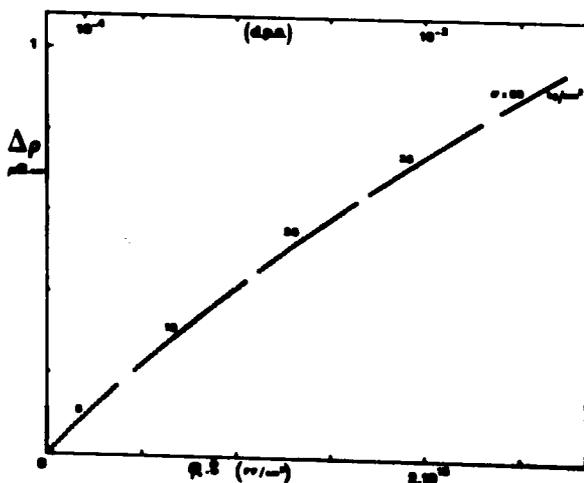
Si l'on admet (ce n'est, nous le verrons, qu'une grossière approximation) que l'irradiation laisse subsister un même nombre de lacunes et d'interstitiels, la valeur de l'excès de résistivité induit par irradiation fournit un ordre de grandeur de la concentration de saturation en paires de Frenkel :  $2 \cdot 10^{-3}$  environ, en prenant  $\rho_F \approx 15 \mu\Omega$  cm comme résistivité spécifique de 1 % de paires de Frenkel / 30 /.



**Fig.13:** Augmentation de résistivité du molybdène en fonction de la fluence pour  $\sigma = 0$  et  $\sigma = 72 \text{ kg/mm}^2$ .



**Fig.14:** Augmentation initiale de résistivité du tungstène en fonction du temps d'irradiation par les neutrons rapides /4/.  
 $\square$   $\sigma = 0$   
 $\blacksquare$   $\sigma = 120 \text{ kg/mm}^2$



**Fig.15:** Augmentation initiale de résistivité du molybdène, en fonction de la fluence, sous contrainte variable.

Comment l'application d'une contrainte influence-t-elle sur la variation de résistivité ? Les erreurs expérimentales sont telles que la figure 13 ne peut nous donner une réponse sûre.

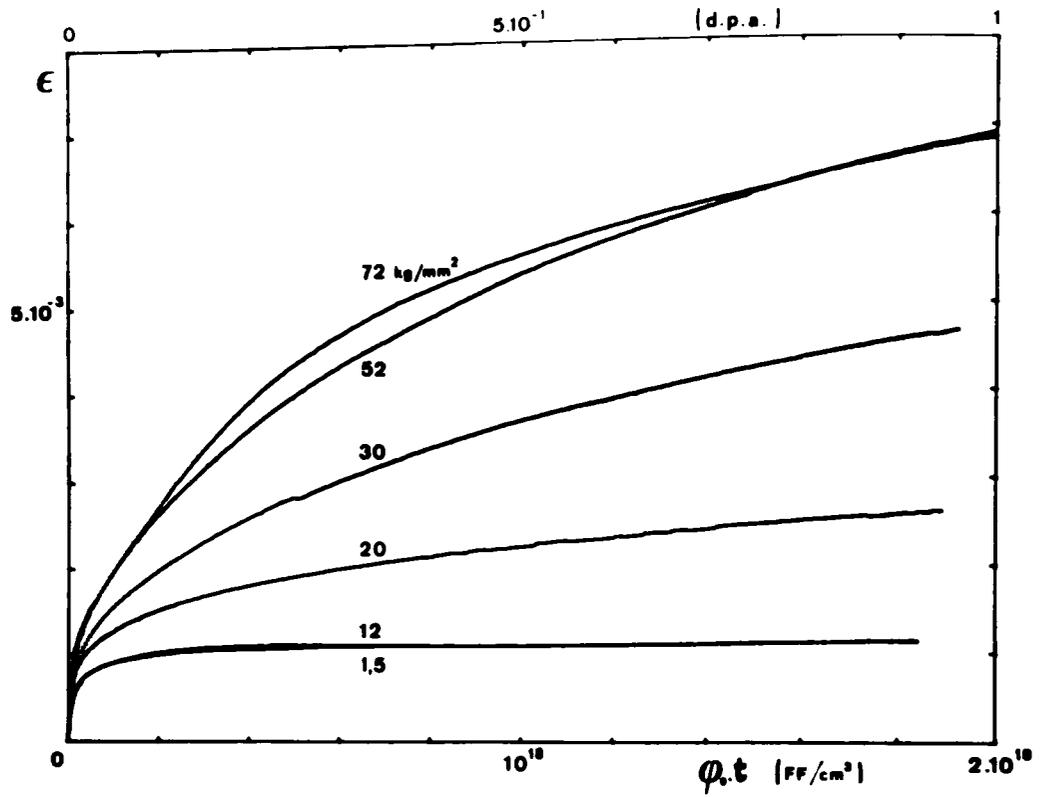
Pour limiter le mieux possible les risques d'erreurs, J. PONSROYE a irradié simultanément deux fils de tungstène par les neutrons rapides (figure 14) ; il conclut que la variation de résistivité est rigoureusement indépendante de la contrainte appliquée (0 et 120 kg/mm<sup>2</sup>).

Pour notre part, nous avons soumis un échantillon de molybdène, durant son irradiation par les fragments de fission, à une contrainte variable entre 0 et 50 kg/mm<sup>2</sup>. La figure 15 montre que divers changements de contrainte n'affectent pas la continuité de la courbe résistivité-fluence. Une analyse fine / 31 / montre que les variations de résistivité enregistrées lors d'un changement de contrainte sont très faibles (de l'ordre du dixième de la déformation élastique imposée à l'échantillon), réversibles, et correspondent à l'élasto-résistivité de l'échantillon.

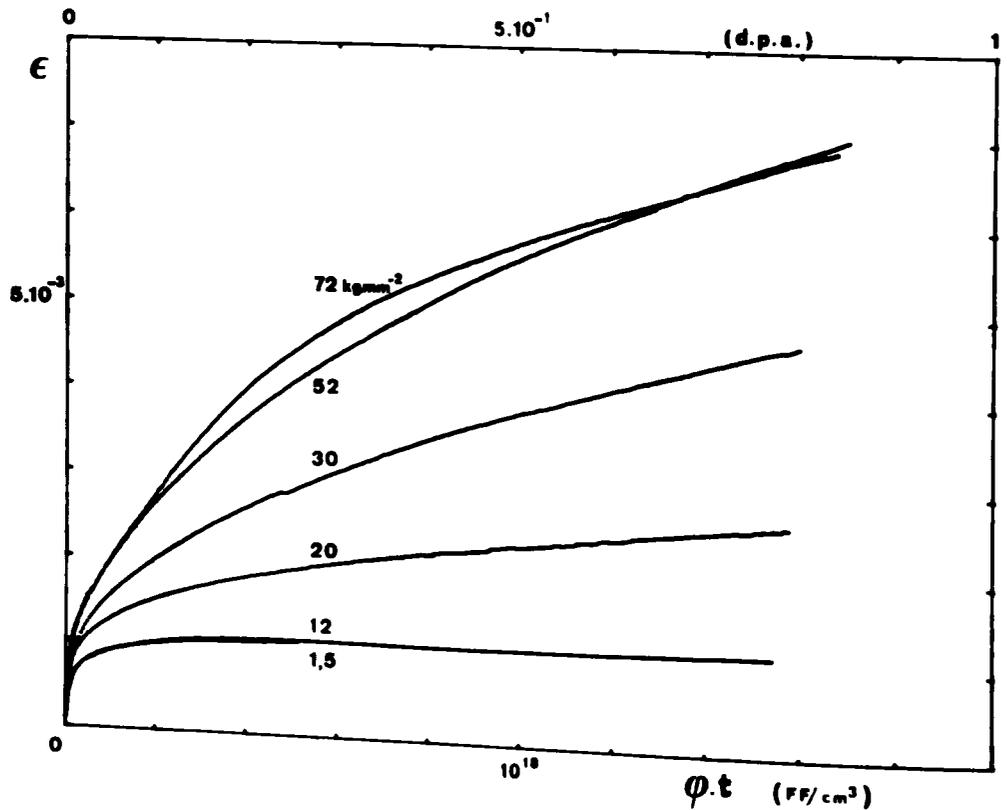
#### IV.2.2 - Variations de longueur

Le faisceau de courbes de la figure 16 représente l'allongement  $\frac{\Delta L}{L}$  en fonction de la fluence (non corrigée) pour six contraintes appliquées différentes. Ces six irradiations ont été réalisées dans des capsules différentes, avec des échantillons chaque fois différents. Néanmoins, tous ont été prélevés dans la même tôle et recouverts de la même quantité de matière fissile. Après correction de fluence, ces mêmes courbes d'allongement sont représentées sur la figure 17.

La longueur, comme la résistivité, évolue en deux stades. Comme dans le tungstène, les échantillons faiblement contraints voient leur augmentation initiale de longueur se saturer assez rapidement (dès  $2 \cdot 10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup>). Pour les échantillons plus fortement contraints, l'allongement se poursuit à une vitesse dépendant à la fois de la contrainte appliquée et de la fluence.



**Fig.16:** Allongement du molybdène en fonction de la fluence non corrigée pour diverses contraintes.



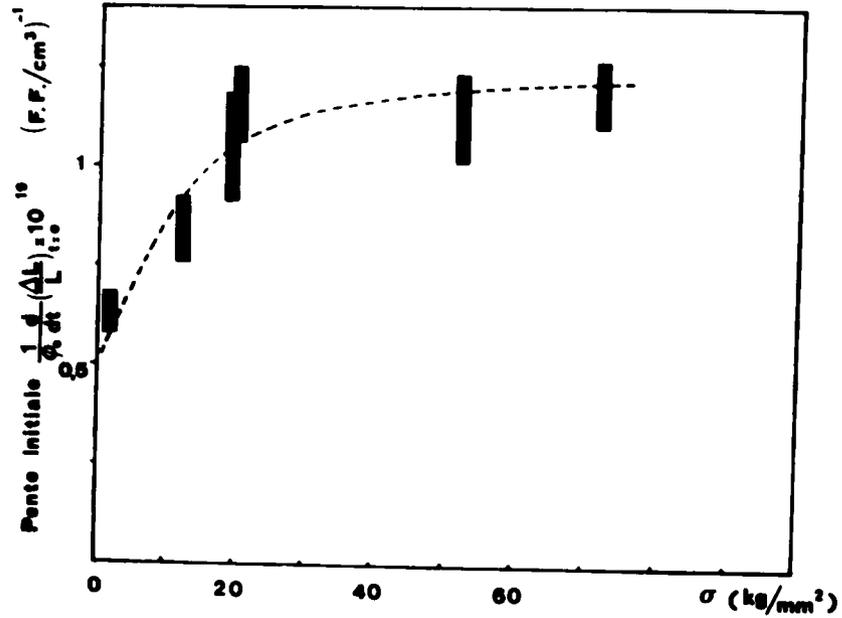
**Fig.17:** Allongement du molybdène en fonction de la fluence pour diverses contraintes appliquées (après correction de fluence).

Signalons que, quelle que soit la fluence atteinte, si le porte-échantillon est rapidement hissé hors du flux du réacteur (tout en étant maintenu dans l'hydrogène liquide), on n'observe à cette température ni variation de longueur ni variation de résistivité.

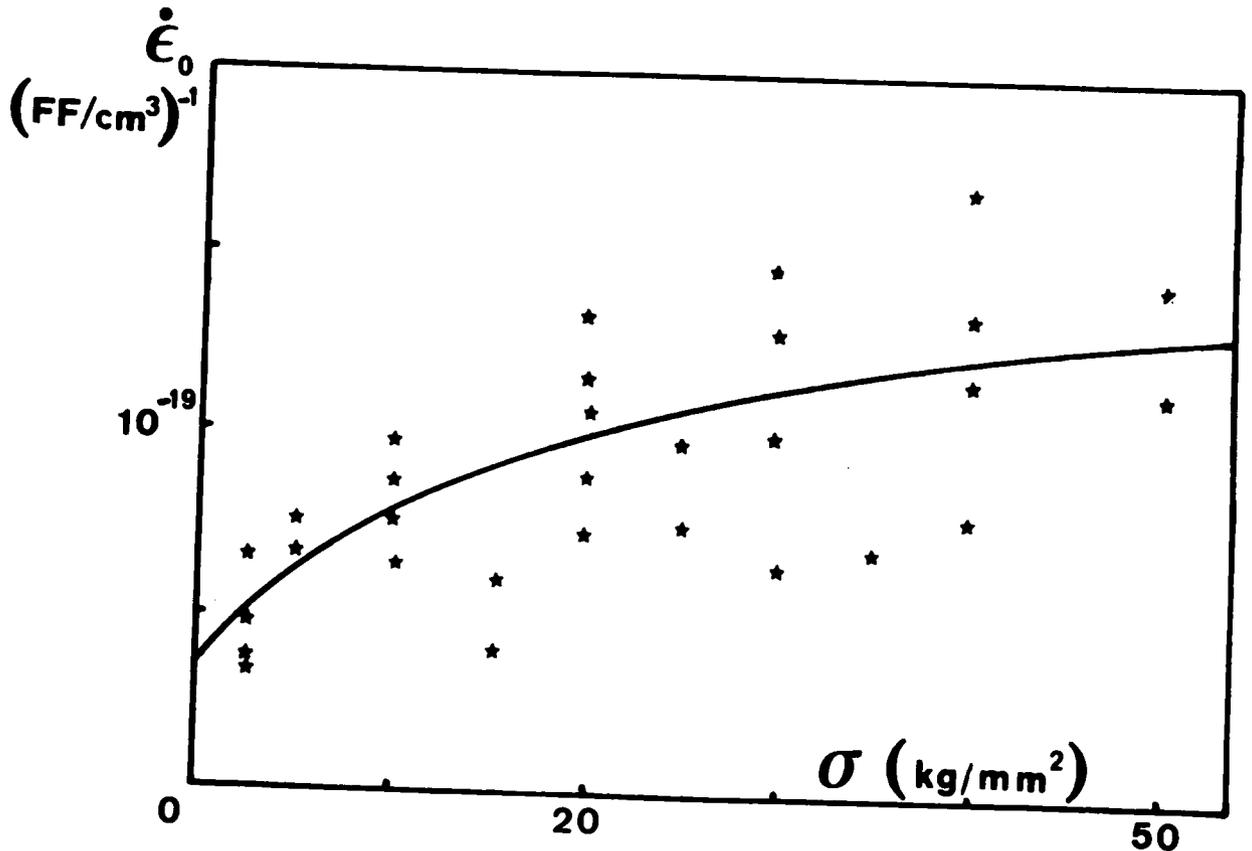
- Intéressons-nous tout d'abord à la vitesse initiale d'allongement. Déterminer avec précision une vitesse initiale à partir des courbes précédentes est délicat : le flux instantané d'irradiation est élevé, donc le chauffage  $\gamma$  fait subir d'importantes dérives au capteur de déplacements lors de la mise en flux. Moyennant quelques précautions (cf. Annexe V), nous avons décelé une variation de la vitesse initiale de déformation avec la contrainte appliquée (figure 18).

Nous avons voulu confirmer ce résultat en appliquant successivement à un même échantillon plusieurs intensités de contrainte, sans sortir du domaine initial d'allongement linéaire. Cette expérience a été réalisée à l'aide d'une capsule d'irradiation à soufflet, avec un flux instantané 30 fois plus faible environ que dans les expériences précédentes. Une contrainte donnée est maintenue jusqu'à ce qu'un traitement de moindres carrés permette de définir la vitesse d'allongement avec une erreur statistique inférieure à 15 %. Pratiquement, il faut pour cela que l'échantillon ait subi une variation de longueur de l'ordre de  $1 \mu$  (soit une déformation de quelques  $10^{-5}$ ). Nous nous trouvons là à l'extrême limite des possibilités de notre dispositif de mesure ; mais malgré la forte dispersion des points expérimentaux, la figure 19 confirme que la vitesse initiale d'allongement croît, puis tend à se saturer, lorsque la contrainte appliquée augmente.

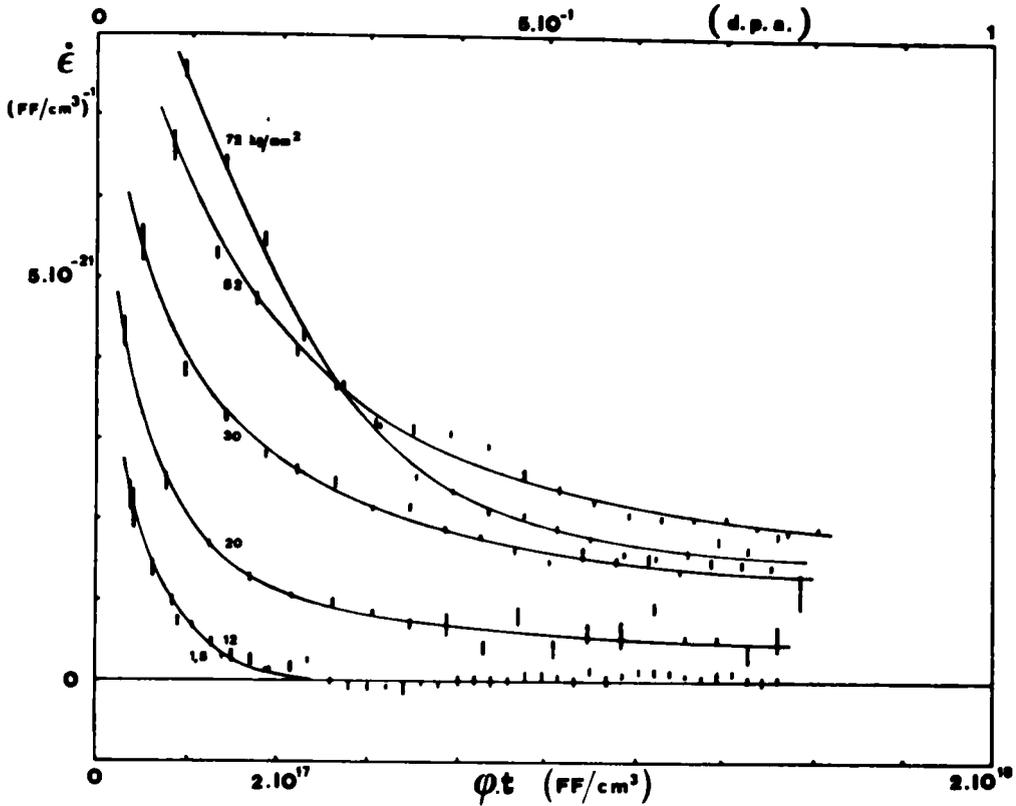
- Passons maintenant au deuxième stade de déformation. La figure 20 traduit la décroissance continue de la vitesse de fluage ( $\dot{\epsilon} = \frac{1}{L} \frac{d(\Delta L)}{d(\sigma t)}$ ) au cours de l'irradiation. Il convient de noter ici l'allure bizarre de la courbe correspondant à  $\sigma = 72 \text{ kg/mm}^2$  ; elle traduit la dégradation des sources de fragments de fission sous forte contrainte.



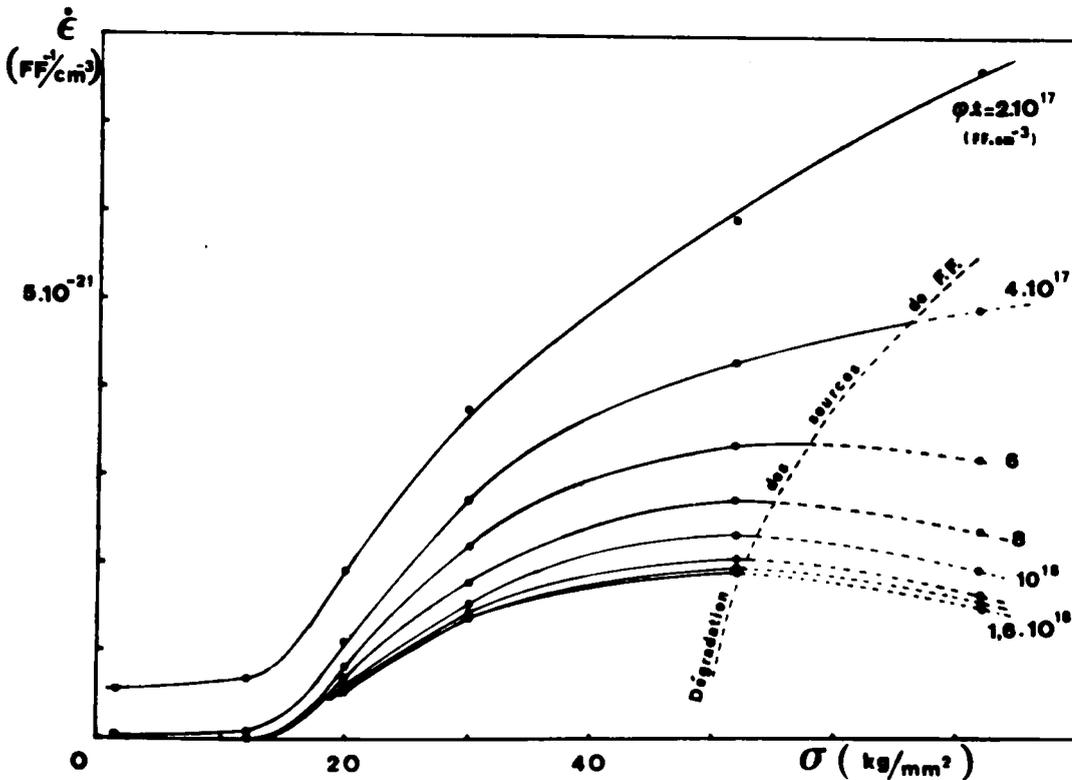
**Fig.18:** Vitesse initiale d'allongement du molybdène en fonction de la contrainte appliquée (mesures faites sur diverses capsules à contrainte fixe).



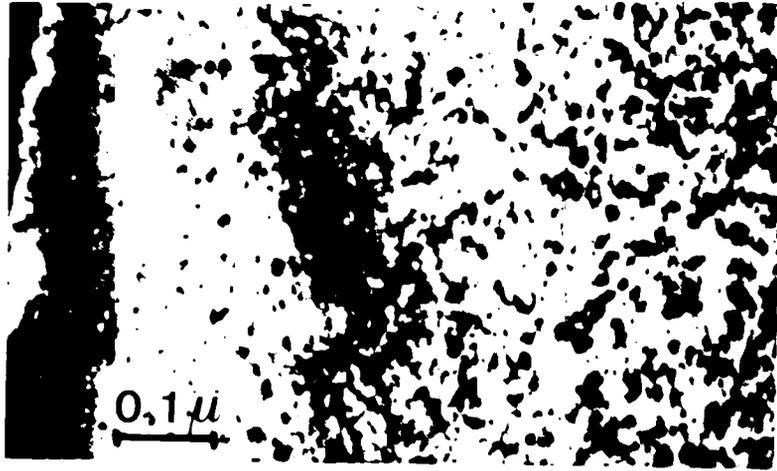
**Fig.19:** Vitesse initiale d'allongement du molybdène en fonction de la contrainte appliquée (mesures faites à l'aide d'une même capsule et de trois échantillons différents).



**Fig.20:** Evolution de la vitesse de fluage du molybdène avec la fluence pour différentes contraintes appliquées.



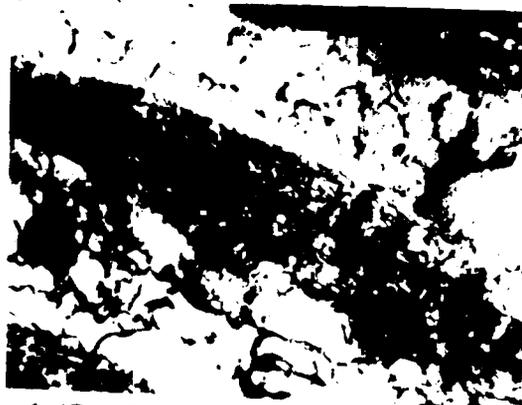
**Fig.21:** Evolution de la vitesse de fluage du molybdène avec la contrainte pour diverses fluences.



**Fig.22:** Boucles de dislocation formées après une fluence de  $8 \cdot 10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup> dans le tungstène.



**Avant irradiation**



**Faible irradiation**  
 $4 \cdot 10^{15}$  F.F./cm<sup>3</sup>



**Forte irradiation**  
 $2 \cdot 10^{18}$  F.F./cm<sup>3</sup>

1 μ

**Fig.23:** Aspect micrographique de molybdène écroui à divers stades de l'irradiation. Formation d'un réseau de dislocations à forte dose.

Sur la figure 21 on a porté la vitesse de fluage, mesurée à diverses fluences, en fonction de la contrainte appliquée. La vitesse de fluage ne varie pas linéairement avec la contrainte : pour que le fluage s'amorce dans le molybdène écroui, il faut appliquer une contrainte supérieure à  $15 \text{ kg/mm}^2$  ; deux expériences complémentaires, décrites en Annexe IV, permettent de penser que cette "incubation" est due aux contraintes internes régnant dans le matériau écroui. Au-delà de cette contrainte critique, la vitesse de fluage croît avec la contrainte ; elle se sature enfin, à partir de  $50 \text{ kg/mm}^2$  environ.

#### IV.2.3 - Les boucles de dislocation

Des échantillons irradiés à 20 K ont été observés au microscope électronique. Bien que réalisées à température ordinaire, ces observations permettent d'illustrer approximativement les courbes précédentes, et montrent que l'essentiel du fluage observé (après le stade initial de déformation rapide) doit être attribué aux boucles de dislocation créées par l'irradiation.

La micrographie 22 montre l'aspect d'un échantillon recuit ayant subi la fluence de  $8 \cdot 10^{16} \text{ FF/cm}^3$  ( $4 \cdot 10^{-2}$  d.p.a.). Après cette irradiation encore faible, la densité de boucles observables à 300 K est déjà très élevée : elle est de  $(8 \pm 2) \cdot 10^{16} \text{ boucles/cm}^3$ , ce qui, compte tenu d'un diamètre moyen de  $80 \text{ \AA}$ , correspond à une densité de dislocations voisine de  $2 \cdot 10^{11} \text{ cm/cm}^3$ . Même dans un échantillon fortement écroui, comme les rubans de molybdène brut de laminage, le réseau de dislocations formé par irradiation est incomparablement plus dense que le réseau d'écrouissage (figure 23).

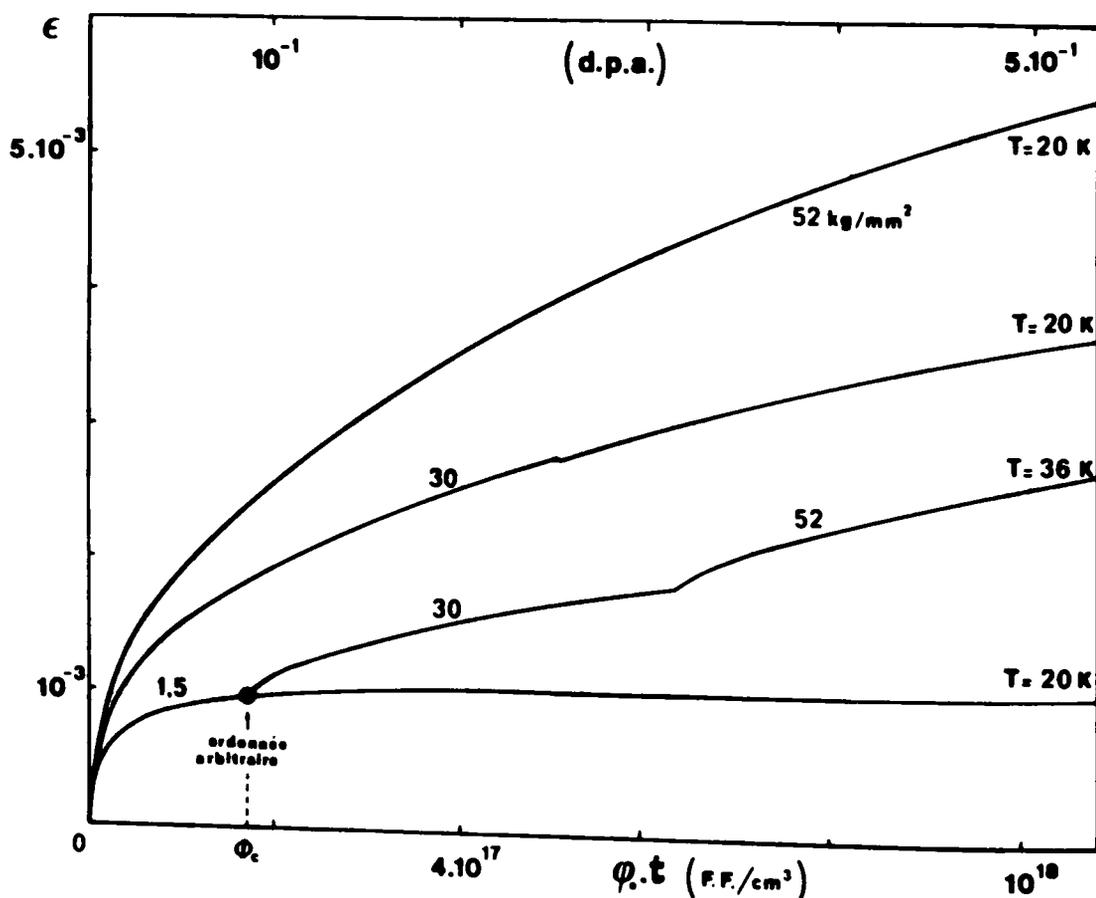
Les boucles formées dans le molybdène par condensation de défauts ponctuels ont été étudiées par DOWNEY et EYRE / 32 /. Ces boucles sont parfaites et possèdent des vecteurs de Burgers de type  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ . Elles sont par ailleurs susceptibles de se recombinaison entre elles, suivant la relation :



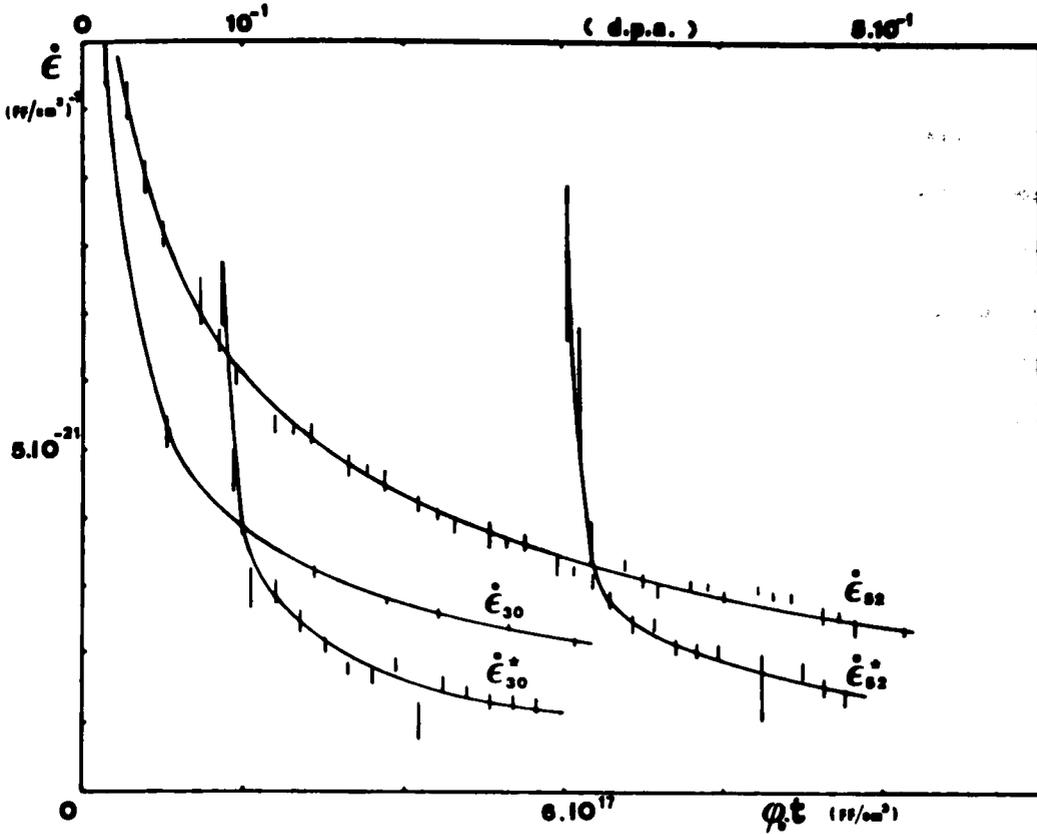
#### IV.2.4 - Irradiation sous contrainte variable

Nous avons effectué une irradiation de molybdène écroui, non plus sous contrainte fixe durant toute l'expérience, mais sous contrainte variable. L'échantillon a été irradié sous très faible contrainte (moins de  $3 \text{ kg/mm}^2$ ) jusqu'à une fluence ( $1,6 \cdot 10^{17} \text{ FF/cm}^3$ ) à laquelle nous savons que de nombreuses boucles sont formées. La contrainte a alors été portée à  $30 \text{ kg/mm}^2$  jusqu'à une fluence voisine de  $6 \cdot 10^{17} \text{ FF/cm}^3$ . Là, elle a enfin été fixée à  $52 \text{ kg/mm}^2$ .

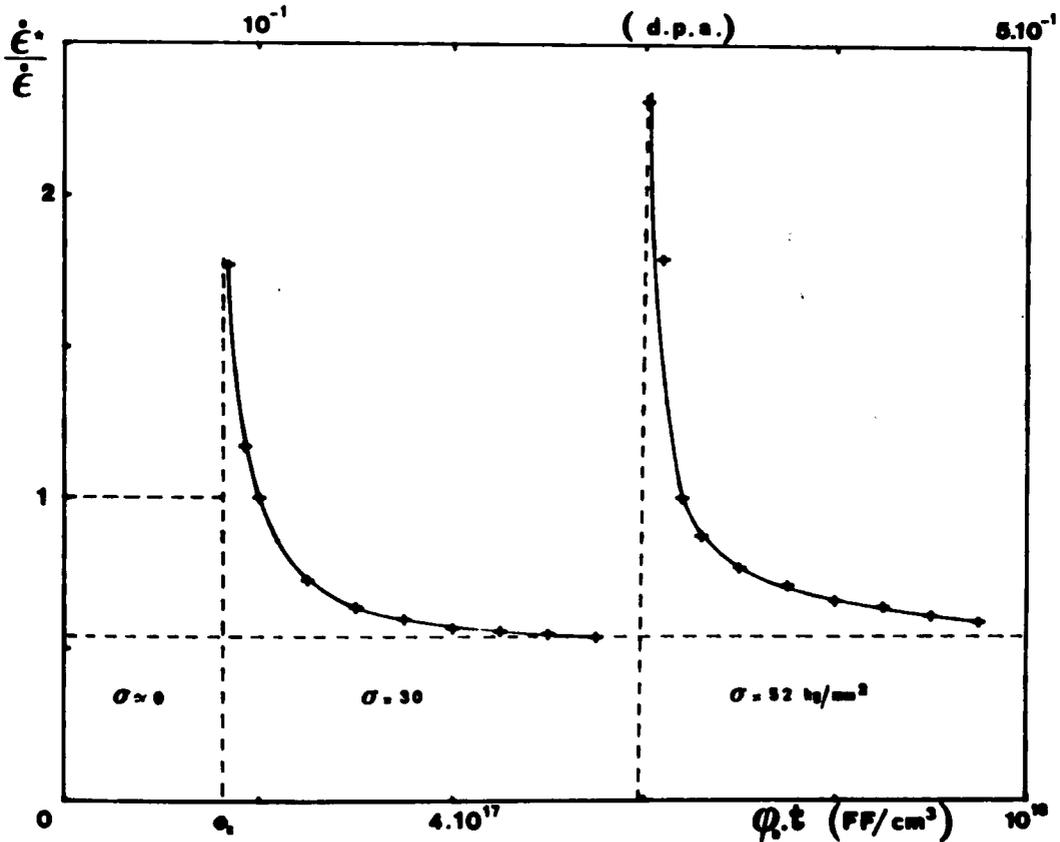
La figure 24 permet de comparer les fluages enregistrés sous contrainte fixe et sous contrainte variable. Bien entendu, sur la courbe à contrainte variable, les allongements élastiques induits par chaque accroissement de contrainte ont été supprimés, et seule apparaît la déformation résultant du fluage sous irradiation.



**Fig.24:** Fluage de molybdène sous contrainte variable (à 36 K) comparé au fluage enregistré sous contrainte fixe (à 20 K).



**Fig.25:** Comparaison des vitesses de fluage enregistrées sous contraintes fixes ( $\dot{\epsilon}_\sigma$ ) et sous contraintes variables ( $\dot{\epsilon}_\sigma^*$ ).



**Fig.26:** Evolution du rapport  $\frac{\dot{\epsilon}_\sigma^*}{\dot{\epsilon}_\sigma}$  en fonction de la fluence.

Contrairement aux expériences précédentes, des motifs de sécurité nous ont imposé d'effectuer cette irradiation dans une capsule étanche, ce qui a porté la température d'irradiation à 36 K environ (indication du thermocouple placé au voisinage de l'échantillon). A cette température, les interstitiels sont déjà mobiles / 33 , 34 / ; les recombinaisons entre défauts ponctuels sont donc accentuées, et l'on doit s'attendre à observer une vitesse de fluage plus faible qu'à 20 K.

Désignons par  $\dot{\epsilon}_{\sigma}$  la vitesse de fluage obtenue par application de la contrainte  $\sigma$  dès le début de l'irradiation, et soit  $\dot{\epsilon}_{\sigma}^{\star}$  celle qui résulte de l'application de cette même contrainte en cours d'irradiation. La figure 25 montre comment varient ces deux grandeurs pour les contraintes  $\sigma_1 = 30 \text{ kg/mm}^2$  et  $\sigma_2 = 52 \text{ kg/mm}^2$ . La figure 26 donne le rapport  $\frac{\dot{\epsilon}_{\sigma}^{\star}}{\dot{\epsilon}_{\sigma}}$  en fonction de la fluence. Cette dernière courbe traduit clairement que, lors d'un accroissement de contrainte, se manifeste une accélération brutale, mais temporaire, de la vitesse de fluage. A ce régime transitoire succède un régime stationnaire, défini par une vitesse de fluage  $\dot{\epsilon}_{\sigma}^{\star} = 0,55 \dot{\epsilon}_{\sigma}$ , quelle que soit  $\sigma$ .

Ce rapport constant, inférieur à 1, indique que le taux de création de défauts ponctuels est approximativement deux fois plus faible à 36 K qu'à 20 K. C'est un résultat du même ordre que l'on peut déduire, dans l'uranium, des mesures de coefficients de croissance à 4,6 K et 36 K / 22 /.

#### IV.3 - Résumé des résultats expérimentaux

Nous résumerons schématiquement les résultats précédents de la manière suivante :

- la résistivité électrique évolue en deux stades au cours de l'irradiation, indépendamment de la contrainte appliquée.

- après une fluence de quelques  $10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup>, la résistivité se sature : le réseau n'accepte plus de défauts ponctuels à l'état isolé ; ceux qui subsistent après l'irradiation se condensent en amas.
- la microscopie électronique montre que ces amas sont des boucles de dislocation.
- comme la résistivité, la longueur évolue en deux stades. La déformation initiale correspond en grande partie au gonflement par les défauts ponctuels ; puis la condensation des défauts ponctuels en boucles donne naissance à un stade de fluage.
- la vitesse initiale de déformation est fonction de la contrainte appliquée.
- nulle aux faibles contraintes ( $\sigma < 15$  kg/mm<sup>2</sup>), la vitesse de fluage augmente jusqu'à 50 kg/mm<sup>2</sup>, contrainte à laquelle elle se sature.
- à contrainte donnée, la vitesse de fluage décroît continûment au cours de l'irradiation.
- on ne détecte aucune variation de longueur ni de résistivité par arrêt de l'irradiation et maintien de l'échantillon à basse température.
- une augmentation de contrainte effectuée en cours d'irradiation, dans le stade des boucles de dislocation, provoque une accélération brutale, mais temporaire du fluage.
- en portant la température d'irradiation de 20 K à 36 K, c'est-à-dire en autorisant la migration des interstitiels, on réduit la vitesse de fluage de près de 50 %.
- à des fluences élevées ( $2 \cdot 10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup>, soit environ 1 d.p.a.), les boucles d'irradiation se sont recombinaisonnées en un dense réseau de dislocations.

## V - ANALYSE ET INTERPRETATION DES RESULTATS

Les résultats présentés dans le chapitre précédent ont montré qu'aux températures auxquelles nous travaillons, et pour les fluences que nous atteignons, l'essentiel des déformations enregistrées sous irradiation s'effectue dans le stade de germination et de croissance des boucles de dislocation. Avant toute analyse des résultats, il nous faut donc présenter un modèle de fluage dû aux boucles de dislocation.

### V.1 - Modèle de "croissance induite"

#### V.1.1 - Germination orientée des boucles

Lorsqu'une boucle de dislocation, lacunaire ou interstitielle, se forme par condensation de défauts ponctuels, elle peut, dans un matériau isotrope, adopter plusieurs vecteurs de Burgers cristallographiquement équivalents, donc équiprobables.

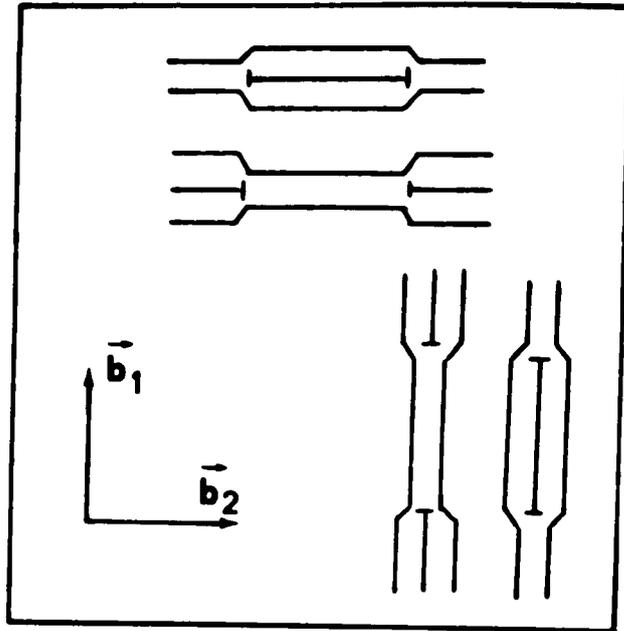
Si, pendant la germination des boucles, le matériau est soumis à un système de contraintes appliquées (autre qu'une pression hydrostatique), cette dégénérescence pourra être levée : un germe donné choisira certains vecteurs de Burgers plutôt que d'autres ; ce choix dépendra de la nature du germe, et des composantes du champ de contrainte suivant les différents vecteurs de Burgers possibles.

Considérons le schéma de la figure 27 : dans ce matériau isotrope, deux vecteurs de Burgers,  $\vec{b}_1$  et  $\vec{b}_2$ , sont cristallographiquement équivalents en l'absence de contrainte appliquée. Ils seront donc également représentés, aussi bien par les boucles interstitielles que les boucles lacunaires. Une boucle coin induit, dans la direction de son vecteur de Burgers (et aux effets de coeur près), un allongement  $\frac{\Delta L}{L} = \pm c$  (c représente la concentration atomique de défauts constituant cette boucle, le signe + s'applique à une boucle interstitielle, le signe - à une boucle lacunaire) / 63 /. Il est donc clair que si un nombre égal de lacunes et d'interstitiels se condensent en boucles, ni le volume, ni les dimensions de l'échantillon ne sont modifiées.

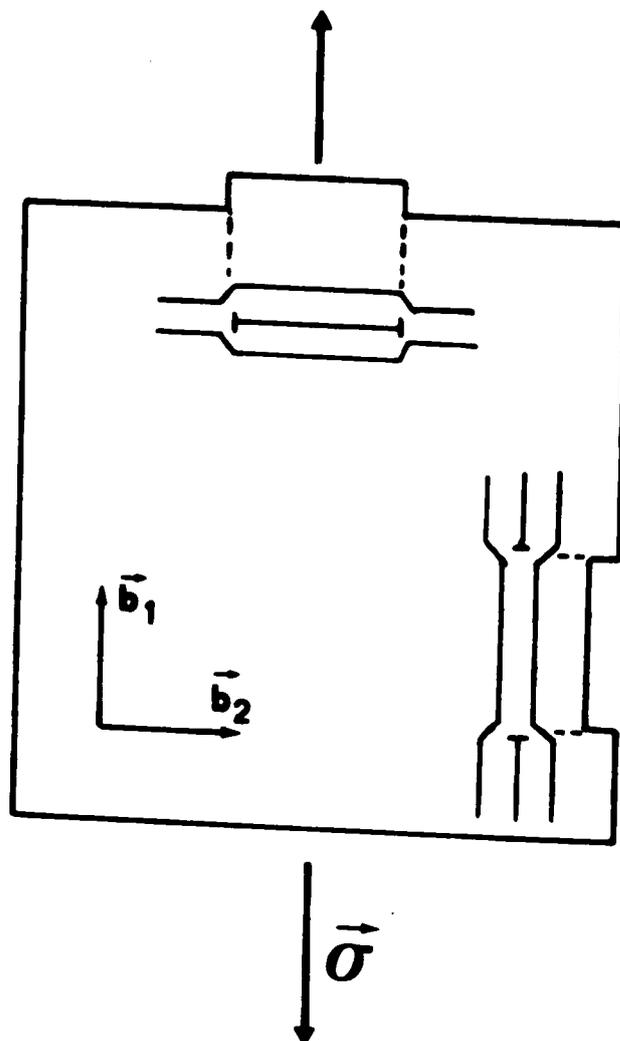
Appliquons maintenant une contrainte de traction parallèlement à  $\vec{b}_1$  (figure 28). On conçoit que l'énergie élastique emmagasinée dans le cristal sera minimale si, au moment de leur germination, les boucles interstitielles adoptent préférentiellement le vecteur  $\vec{b}_1$ , les boucles lacunaires le vecteur  $\vec{b}_2$ . Cette séparation des boucles lacunaires et interstitielles provoquera un allongement dans la direction de la traction appliquée, et une contraction dans la direction transverse. A nombre égal de lacunes et d'interstitiels condensés, cette déformation s'effectuera sans changement de volume de l'échantillon.

Ce mécanisme rappelle le mécanisme de croissance naturelle de l'uranium proposé par BUCKLEY / 35 / ; il n'en diffère que par la nature de la contrainte qui oriente la germination des boucles dans l'uranium, cette contrainte est interne, d'origine thermique, et résulte de la très forte anisotropie du matériau. En raison de cette analogie, nous avons baptisé "croissance induite" le mécanisme de fluage par germination de boucles orientée par une contrainte appliquée.

C'est HESKETH qui semble avoir, le premier, suggéré la possibilité d'un tel mécanisme / 36 /. Un peu plus tard, à la suite de travaux sur la croissance de l'uranium, cette même idée a vu le jour dans notre groupe ; elle a alors été évoquée



**Fig.27:** Répartition des boucles lacunaires et interstitielles dans un métal isotrope.



**Fig.28:** Germination orientée des boucles interstitielles et lacunaires sous l'effet d'une contrainte appliquée.

puis approfondie par J. PONSROYE et nous-mêmes / 4 , 37 , 38 /<sup>(+)</sup>. Elle a depuis intéressé d'autres auteurs / 39 , 40 /. Certains sont encore sceptiques quant à la réalité de ce mécanisme. Son efficacité a pourtant été démontrée par BOUNAUD / 5 /, grâce à des mesures de courbure résiduelle de whiskers de cuivre irradiés sous flexion à la température ordinaire. Dans le même temps, une preuve expérimentale directe en a été fournie par observation au microscope électronique du déséquilibre introduit par la contrainte dans les populations de boucles d'un acier austénitique irradié à 400°C / 57 /.

### V.1.2 - Croissance des boucles de dislocation

Après leur germination, les boucles grossissent par absorption des défauts ponctuels que crée l'irradiation. On peut se demander quel est l'effet d'une contrainte appliquée sur cette étape de la vie des boucles.

Ce n'est qu'au voisinage de la température d'auto-diffusion que les boucles de dislocation peuvent, par émission de lacunes, évoluer de façon différente suivant leur orientation par rapport à la contrainte appliquée / 41 /.

A basse température, seule l'absorption de défauts par les boucles peut être modifiée. Nous verrons plus loin que les perturbations qu'apporte la contrainte aux interactions dislocations-défauts ponctuels sont assez faibles ; nous admettrons donc en première approximation que les boucles croissent indépendamment de leur orientation par rapport à la contrainte appliquée.

### V.1.3 - Coefficient de croissance induite

Les déformations enregistrées durant le stade de condensation des défauts ponctuels sont donc liées directement à l'anisotropie de germination des boucles

---

(+) L'article / 36 / nous avait alors échappé, ce qui explique qu'il ne soit pas cité en / 4 /, / 37 / et / 38 /.

qu'induit la contrainte appliquée. Le mécanisme de croissance induite constitue ainsi un puissant moyen d'étude de la germination des boucles de dislocation <sup>(+)</sup>. C'est dans cette optique que nous en avons fait une étude détaillée / 38 /. Toutefois, pour expliquer le fluage sous irradiation, il ne nous est pas indispensable d'en faire ici le développement ; seuls quelques résultats nous seront nécessaires :

- nous définirons le coefficient de croissance induite  $k$  par la relation :

$$\frac{\Delta L}{L} = k c$$

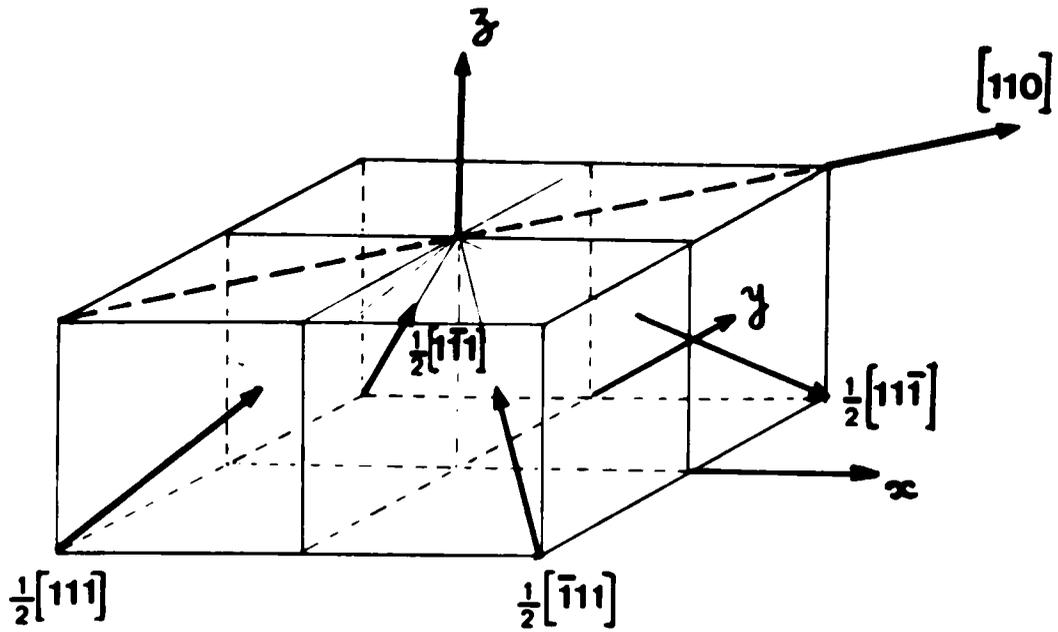
où  $\frac{\Delta L}{L}$  est l'allongement induit par une concentration atomique  $c$  de paires de Frenkel condensées en boucles.

- ce coefficient de croissance induite est évidemment nul en l'absence de contrainte, lorsque les boucles lacunaires et interstitielles adoptent en nombre égal les différents vecteurs de Burgers possibles de la structure.
- sous forte contrainte, lorsque les populations de boucles lacunaires et interstitielles sont complètement différenciées, il se sature à une valeur qui dépend de l'orientation de la contrainte appliquée par rapport aux vecteurs de Burgers possibles.

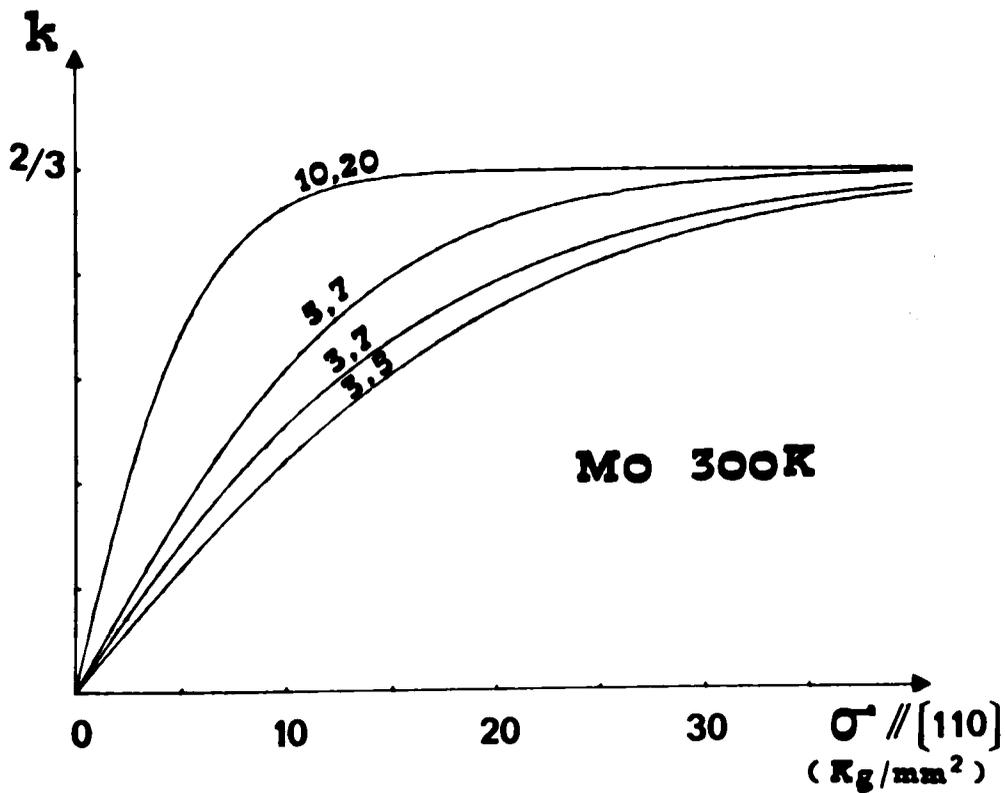
Plaçons-nous dans le cas particulier qui nous intéresse expérimentalement, celui d'une contrainte de traction appliquée suivant la direction  $| 110 |$  d'un cristal cubique centré, dont les vecteurs de Burgers sont les quatre vecteurs  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$  (figure 29). Dans cette géométrie, deux vecteurs de Burgers sont perpendiculaires à la contrainte appliquée et n'interagissent pas avec elle ; les deux autres ont même orientation par rapport à la contrainte, et sont donc équivalents. Pour des boucles coin, le coefficient de croissance induite se sature alors à la valeur  $2/3$ , comme le montre la figure 30.

---

(+) Ce mécanisme peut parfaitement être généralisé à d'autres amas plans, tels que des amas de Guinier-Preston. Il permet par exemple d'expliquer la germination orientée par une contrainte de précipités plans d'hydrure dans les alliages Zr - 2,5 % Nb / 42 /.



**Fig.29:** Orientation des vecteurs de Burgers  $\frac{a}{2}\langle 111 \rangle$  par rapport à la contrainte appliquée  $\bar{\sigma} // [110]$ .



**Fig.30:** Variation du coefficient de croissance induite avec la contrainte appliquée pour divers couples  $(N_I, N_L)$ , tailles des germes des boucles interstitielles et lacunaires.

#### V.1.4 - Basculement des boucles sous l'effet de la contrainte appliquée

Nous avons jusqu'ici supposé que les boucles sont purement coin. Il se peut qu'en réalité elles basculent le long de leur cylindre de glissement, de façon à adopter leur configuration de plus basse énergie en présence d'une contrainte appliquée.

L'allongement supplémentaire résultant de ce basculement est calculé en Annexe VII, à partir de l'angle  $\psi = (b, S)$  d'équilibre d'une boucle en présence d'une contrainte appliquée.

$$\begin{array}{c} + \\ + \quad + \end{array}$$

Nous disposons maintenant de suffisamment d'éléments pour exploiter les variations de longueur et de résistivité que nous avons mesurées sous irradiation.

#### V.2 - Faibles fluences

Rappelons les deux principaux résultats :

- La résistivité électrique est insensible, à mieux que  $10^{-3}$  près, à la contrainte appliquée. Le taux initial d'accroissement de résistivité est, dans le molybdène, de  $5 \cdot 10^{-16} \mu\Omega \cdot \text{cm}$  par  $\text{FF}/\text{cm}^3$  (figure 15).
- La vitesse initiale d'allongement augmente, puis se sature, lorsqu'on augmente la contrainte appliquée (figures 18 et 19).

Seul le changement de configuration d'un défaut de symétrie non sphérique et contribuant peu à la résistivité peut, sans modifier le comportement de la résistivité, provoquer une forte augmentation de la vitesse initiale d'allongement avec la

contrainte. L'effet observé ne peut donc résulter que de l'interaction de petites boucles de dislocation avec la contrainte appliquée.

On sait que, même à 4 K, dans l'uranium, une partie des interstitiels créés se condense, dès les premières fissions, au sein des cascades de déplacements / 43 / ; les lacunes créées par une fission initiale subsistent, quant à elles, à l'état isolé.

Pour expliquer les variations initiales de longueur et de résistivité que nous observons, nous pouvons raisonnablement utiliser ces mêmes hypothèses, et faire intervenir une germination orientée de petites boucles, dès les premiers instants de l'irradiation. Ces arguments sont utilisés en Annexe VIII pour évaluer les dégâts créés par un fragment de fission dans le molybdène. On trouve principalement :

- qu'un fragment de fission moyen laisse subsister, en tout début d'irradiation, environ 25 000 paires de Frenkel ;
- que 25 % environ des interstitiels créés sont condensés en boucles de dislocation.

A partir de ces résultats, on peut estimer à 0,2 volume atomique le volume de formation d'une paire de Frenkel, et montrer que le volume de formation de l'interstitiel est négatif.

### V.3 - Fluences moyennes (doses comprises entre $10^{-2}$ et 1 d.p.a.)

#### V.3.1 - Fluage sous contrainte fixe

Nous avons souligné que les contraintes internes présentes dans nos échantillons écrouis ont pour effet de masquer partiellement aux boucles la contrainte appliquée. Il serait donc présomptueux de vouloir, à partir de ces expériences, déduire la taille du germe d'une boucle de dislocation, par application du modèle de croissance induite.

Par contre, ce modèle permet d'accéder au nombre de défauts ponctuels se condensant en boucles à une fluence donnée. Plaçons-nous à la fluence de  $4.10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup> ; à cette fluence, la déformation est due uniquement aux boucles de dislocation : la résistivité est saturée, et la vitesse d'allongement sous contrainte nulle est nulle (cf. figures 13 et 21). A cette fluence, la vitesse de fluage se sature, sous contrainte élevée, à la valeur  $\dot{\epsilon}_{\infty} \sim 5.10^{-21}$  (FF/cm<sup>3</sup>)<sup>-1</sup>. Dans notre modèle de germination orientée de boucles coin, le coefficient de croissance induite se sature à la valeur  $k_{\infty} = 2/3$ . Nous montrerons dans le paragraphe suivant qu'en réalité, les boucles peuvent basculer d'un angle  $\psi$  par rapport à leur position coin, de façon à adopter leur configuration d'énergie minimale en présence de la contrainte appliquée. Le coefficient de croissance induite à saturation devient alors :

$$k'_{\infty} = k_{\infty} \left( 1 + \frac{\sqrt{2}}{2} \operatorname{tg} \psi \right)$$

Aux contraintes amenant la saturation de la vitesse de fluage,  $k'_{\infty}$  est voisin de 1 (cf. Annexe VII). On atteint par conséquent le nombre N de paires de Frenkel condensées en boucles, par fragment de fission, à la fluence de  $4.10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup> :

$$N = N_0 \frac{\dot{\epsilon}_{\infty}}{k'_{\infty}}$$

Avec  $N_0$  (nombre d'atomes par cm<sup>3</sup>) égal à  $6.10^{22}$ , on trouve :

$$N \simeq 300$$

Il est à remarquer combien cette valeur est faible comparée aux 25 000 défauts de chaque type que crée un fragment de fission initial. Nous reviendrons sur ce point dans le prochain chapitre.

### V.3.2 - Fluage sous contrainte variable

#### V.3.2.1 - Démonstration du basculement des boucles

Les figures 24 et 26 nous ont montré que chaque accroissement de contrainte, effectué dans le stade des boucles, induit une accélération brutale, mais temporaire, du fluage. Cet effet para-élastique traduit évidemment une réorientation des défauts présents dans l'échantillon au moment du changement de contrainte.

La para-élasticité est fréquemment associée à des défauts ponctuels de symétrie non sphérique / 44 , 45 /. Dans le cas de nos irradiations à basse température, l'effet para-élastique que nous observons pourrait traduire la réorientation d'un défaut tel que l'interstitiel dissocié. Ce défaut a besoin pour son basculement d'une énergie faible, de l'ordre de son énergie de migration / 46 , 47 /. Par conséquent, s'il existe dans nos échantillons, l'interstitiel dissocié peut sans aucun doute basculer sous l'effet des pointes thermiques associées aux cascades de déplacements. Mais CAROLI / 48 / a calculé que la résistivité d'un défaut non sphérique tel que la bilacune dépend fortement de son orientation vis-à-vis de la direction de mesure. Il est raisonnable de penser qu'il en va de même pour l'interstitiel dissocié. Ainsi, le changement de configuration de l'interstitiel dissocié devrait s'accompagner d'une variation sensible de résistivité électrique, ce qui n'est pas observé dans nos expériences.

Nous concluons donc que l'allongement para-élastique observé n'est pas dû à la réorientation d'un défaut interstitiel de type dissocié. Dès lors, les seuls défauts susceptibles d'être réorientés par la contrainte appliquée ne peuvent être que les boucles de dislocation elles n'affectent guère la résistivité du matériau ; elles sont parfaites, et peuvent approcher, sur leur cylindre de glissement, la configuration minimisant l'énergie libre de l'échantillon pour une contrainte appliquée donnée.

Partant de cette hypothèse, il nous est possible d'analyser quantitativement une expérience de fluage sous contrainte variable.

### V.3.2.2 - Analyse de l'expérience

#### 2 - Amplitude de l'allongement para-élastique .....

Considérons la première augmentation de contrainte (de 3 à 30 kg/mm<sup>2</sup>), effectuée à la fluence  $\phi_c = 1,6 \cdot 10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup> (figure 24).

L'allongement para-élastique correspondant à cette augmentation de contrainte sera saturé lorsque toutes les boucles qui existaient à la fluence  $\phi_c$  auront acquis leur nouvelle position d'équilibre avec la contrainte  $\sigma = 30$  kg/mm<sup>2</sup>. Cet allongement pourra s'écrire :

$$\delta \epsilon_{\sigma}^{\infty} = \alpha_{\sigma} \cdot c(\phi_c)$$

où  $c(\phi_c)$  est la concentration atomique globale de défauts condensés en boucles à la fluence  $\phi_c$ , et où  $\alpha_{\sigma}$  est la contribution, par défaut condensé, à l'allongement résultant du basculement de ces boucles (calculée en Annexe IX).

Ainsi, l'amplitude de l'effet para-élastique qui succède à une augmentation de contrainte permet d'accéder à la concentration de défauts condensés en boucles au moment du changement de contrainte. Il faut souligner que cette méthode indirecte autorise l'étude de la condensation des défauts ponctuels à basse température, dans les conditions mêmes de l'irradiation. Elle apparaît en cela très supérieure aux classiques comptages de boucles par microscopie électronique qui imposent, au moins pendant la fabrication des lames minces, un réchauffement de l'échantillon, et donc une recombinaison partielle des défauts créés à basse température. Toutefois, cette méthode ne peut s'appliquer qu'à des fluences assez faibles : elle n'a en effet de valeur que tant que les boucles de dislocation ne se sont pas recombinaisonnées entre elles pour former un réseau de dislocations.

Pour cette raison, nous limitons notre analyse au changement de contrainte effectué à la fluence  $\vartheta_c \approx 1,6 \cdot 10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup>, qui correspond approximativement au moment où les défauts ponctuels commencent à se condenser intégralement en boucles (résistivité et longueur sous faible contrainte sont à peu près saturées). On trouve ainsi qu'à ce stade de l'irradiation, la concentration globale de défauts condensés en boucles est  $c = (4 \pm 1) \cdot 10^{-3}$ . Ce résultat est à rapprocher de l'évaluation fournie par les comptages au microscope électronique des boucles subsistant à 300 K ( $c = (1 \pm 0,5) \cdot 10^{-3}$  à la fluence de  $8 \cdot 10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup>). Il montre que le nombre total de défauts ponctuels (lacunes et interstitiels) condensés en moyenne durant le premier stade de l'irradiation (jusqu'à  $\vartheta_c \approx 1,6 \cdot 10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup>) est de 1 500 par fragment de fission, à 25 % près.

## 2 - Cinétique

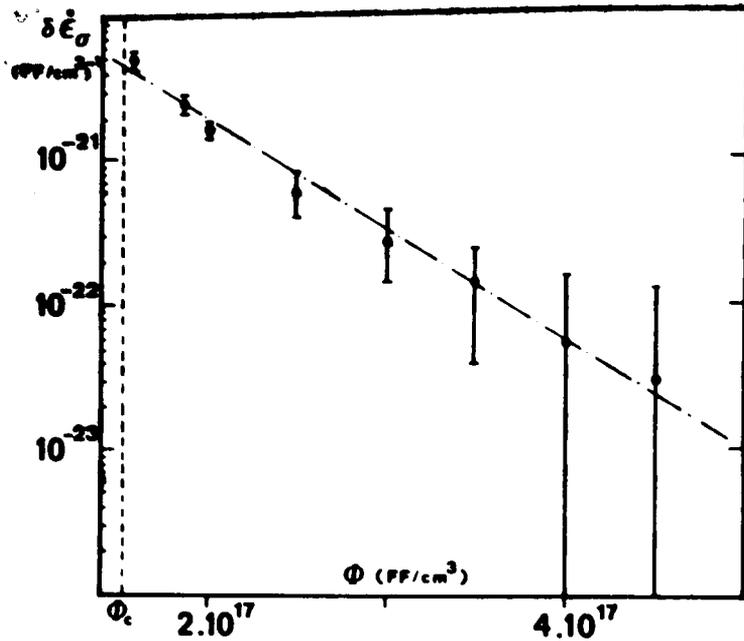
.....

La cinétique du régime transitoire de fluage observé à partir de  $\vartheta_c$  renseigne, quant à elle, sur la façon dont s'effectue le basculement des boucles. L'allongement para-élastique  $\delta \epsilon_\sigma$  suit approximativement avec la fluence une loi exponentielle simple : la loi

$$\ln(\delta \dot{\epsilon}_\sigma) = f(\vartheta - \vartheta_c)$$

est approximativement linéaire (figure 31). Ceci autorise à penser que le glissement des boucles, impossible à la température d'irradiation (36 K), peut s'opérer grâce aux effets thermiques induits par les fragments de fission pénétrant dans l'échantillon à partir de  $\vartheta_c$ .

Désignons par  $T_\sigma^\star$  la température permettant le glissement facile des dislocations sous la contrainte  $\sigma$ . On peut alors associer à chaque fragment de fission un petit volume  $v_\sigma$  porté momentanément, par les cascades de déplacements, à une température au moins égale à  $T_\sigma^\star$ .



**Fig. 31:** Variation de la vitesse d'allongement paraélastique en fonction de la fluence.

En admettant que toutes les boucles (ou portions de boucles) touchées par ce volume chaud  $v_\sigma$  adoptent en une seule fois leur position d'équilibre avec la contrainte  $\sigma$ , l'allongement para-élastique suit la loi :

$$\delta \epsilon_\sigma (\theta - \theta_c) = \alpha_\sigma \cdot c(\theta_c) \cdot F_v (\theta - \theta_c)$$

où  $F_v (\theta - \theta_c) = 1 - \exp(-v_\sigma \cdot (\theta - \theta_c))$  représente la fraction de l'échantillon touchée au moins une fois, après  $\theta_c$ , par le volume  $v_\sigma$ .

Appliquée au premier changement de contrainte, cette analyse fournit le volume  $v_{30} = (2 \pm 0,5) \cdot 10^{-17} \text{ cm}^3$  porté par chaque fragment de fission à une température au moins égale à  $T_{30}^*$ , température de glissement facile des dislocations sous une contrainte appliquée de  $30 \text{ kg/mm}^2$ . Cette température est malheur-

reusement assez mal définie ; elle dépend en particulier beaucoup de la pureté du matériau utilisé. On peut raisonnablement penser, d'après / 49 /, qu'elle est comprise entre 250 et 400 K.

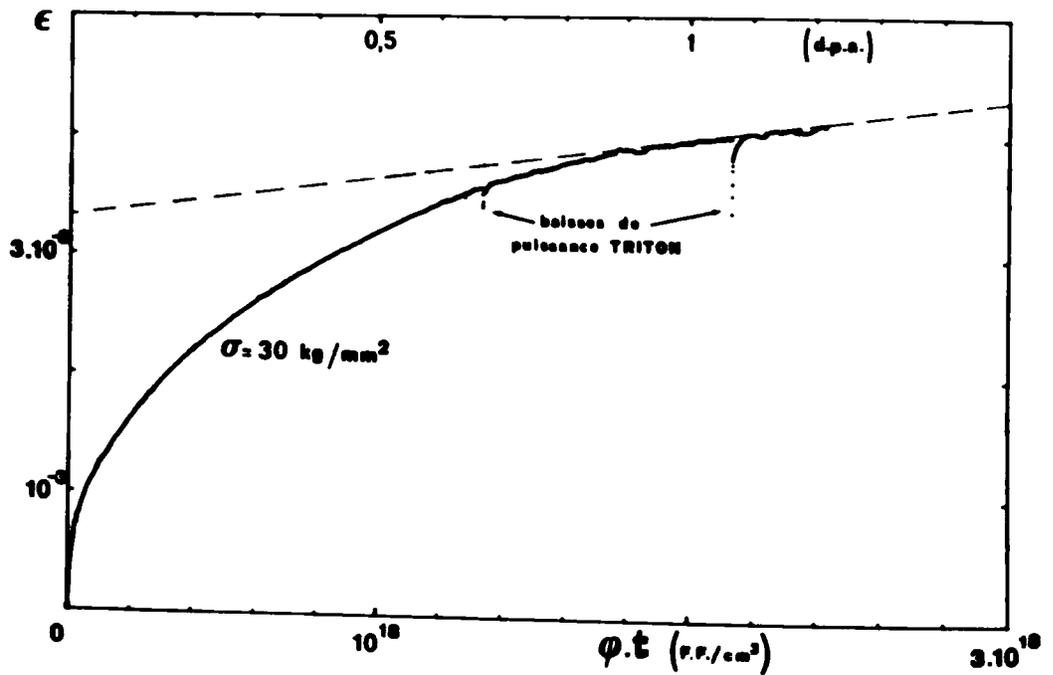
Nous venons de mettre en évidence un second aspect, extrêmement intéressant, des expériences de fluage sous contrainte variable : c'est l'étude des effets thermiques associés aux particules de haute énergie. En effet, plus la contrainte (toujours appliquée à la même fluence  $\phi_c$ ) est forte, plus la température  $T_{\sigma}^{\star}$  est faible, et plus le volume  $v_{\sigma}$  porté à cette température est grand. On peut ainsi, de façon expérimentale, atteindre la distribution spatiale de température au sein des pointes thermiques. Notre première expérience nous paraît fournir des résultats très encourageants, en bon accord avec de précédentes évaluations / 50 , 51 , 52 /.

#### V.4 - Fluences élevées (doses supérieures à 1 d.p.a.)

La microscopie électronique nous montre qu'à une fluence de  $2.10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup> (environ 1 d.p.a.) les dégâts d'irradiation visibles consistent pour une large part en un réseau de dislocations, formé par recombinaisons des boucles d'irradiation (figure 23). On trouve, aussi bien en comptant les émergences de dislocations en surface que par la méthode des intersections que ce réseau représente une densité de dislocations comprise entre  $1.$  et  $3,5.10^{11}$  cm/cm<sup>3</sup>. Cette valeur est à manier avec quelques précautions, mais elle indique toutefois que la densité de dislocations ne varie pas significativement lorsque la fluence augmente de plus d'un ordre de grandeur : à  $8.10^{16}$  FF/cm<sup>3</sup>, la densité de dislocations en boucles avait été trouvée voisine de  $2.10^{11}$  cm/cm<sup>3</sup>. Ce résultat ne doit pas surprendre : dans l'uranium, des mesures d'élargissement de raies X montrent que la densité de saturation en dislocations est atteinte dès la dose de  $10^{-1}$  d.p.a. (cf. / 1 /).

Il faut donc s'attendre, aux fortes fluences, à ce que tous les défauts ponctuels échappant aux recombinaisons spontanées soient absorbés par un réseau saturé en dislocations. A la montée de ce réseau correspondra un fluage stationnaire indépendant de la fluence.

Diverses limitations expérimentales nous ont empêché d'explorer convenablement le domaine des fortes fluences. Notre expérience de plus longue durée nous a conduits à une fluence voisine de  $2,5 \cdot 10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup>, soit une dose à peine supérieure à 1 d.p.a. (figure 32). A cette dose, la vitesse de fluage est faible, environ  $3 \cdot 10^{-22}$  (FF/cm<sup>3</sup>)<sup>-1</sup> ; cette valeur peut être considérée comme une limite supérieure de la vitesse de fluage correspondant à la montée d'un réseau.



**Fig.32:** Allongement du molybdène sous contrainte au cours d'une irradiation de longue durée.

Nous avons voulu compenser notre manque d'informations expérimentales relatives à ce fluage stationnaire par une approche théorique du problème. Il nous est apparu nécessaire de répondre à deux questions : Quel est le degré d'anisotropie du réseau de dislocations formé par recombinaisons de boucles orientées par une contrainte appliquée ? Avec quelle efficacité une contrainte oriente-t-elle la montée de ce réseau, lorsqu'il absorbe les défauts ponctuels créés par l'irradiation ?

#### V.4.1 - Les recombinaisons entre boucles

Lorsque des recombinaisons s'effectuent entre boucles de natures opposées, il est évident que la vitesse de fluage diminue en même temps que la concentration de défauts ponctuels condensés. Mais les recombinaisons entre boucles de même nature ont, elles aussi, un effet modérateur sur la vitesse d'allongement.

Nous avons déjà précisé que, conformément au critère d'énergie de Frank, les boucles "mères"  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$  peuvent interagir pour former des boucles  $a \langle 100 \rangle$ , lacunaires et interstitielles.

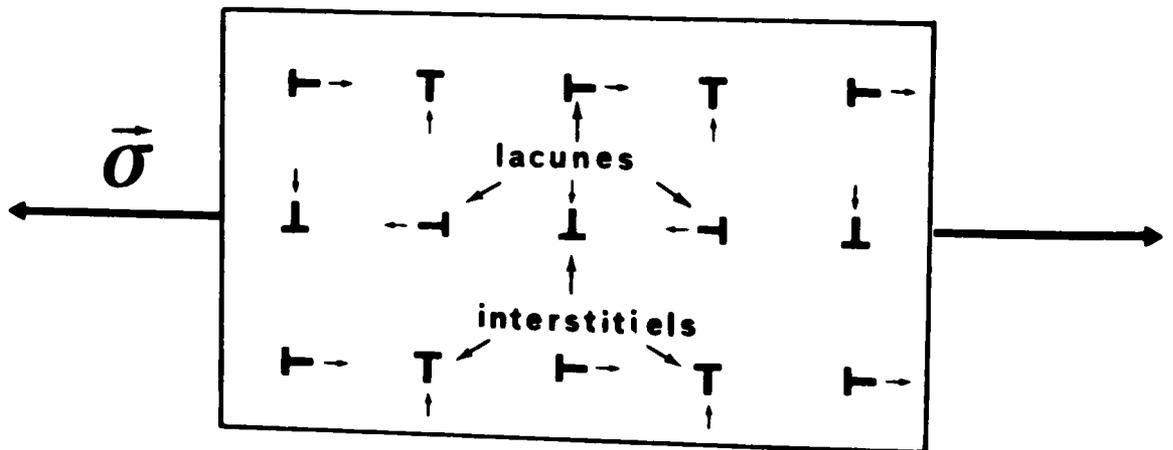
En négligeant en première approximation les interactions élastiques entre boucles  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ , et en supposant que leurs recombinaisons s'effectuent de façon purement aléatoire, nous montrons que le réseau de boucles  $a \langle 100 \rangle$  formé par recombinaisons ne contribue que très peu à l'allongement par rapport à la population des boucles "mères" dont il est issu (cf. Annexe X). Dans certaines conditions - c'est en particulier le cas d'une contrainte appliquée élevée - on constate que la population de boucles obtenues par recombinaisons n'apporte rigoureusement aucune contribution à l'allongement de l'échantillon.

Compte tenu de ce résultat, on peut donc traiter le problème du fluage aux fortes doses comme étant régi par la montée, orientée par la contrainte appliquée, d'un réseau de dislocations saturé et isotrope.

### V.4.2 - Fluage par montée d'un réseau

Le calcul détaillé de la vitesse de fluage que l'on peut attendre de la montée orientée d'un réseau est présenté en Annexe XI. Ce calcul utilise l'idée proposée initialement par ASHBY / 53 /, puis reprise par HEALD et SPEIGHT / 54 /, et qui consiste à séparer en deux familles les dislocations constituant le réseau (figure 33) :

- celles qui, compte tenu de l'orientation de leur vecteur de Burgers, verront leur attirance pour les interstitiels augmentée par la contrainte appliquée, de façon à induire un allongement de l'échantillon suivant la direction de celle-ci ;
- celles qui absorberont préférentiellement des lacunes, pour donner une contraction dans la direction perpendiculaire.



**Fig.33:** Montée orientée d'un réseau de dislocations par absorption de défauts ponctuels d'irradiation.

En utilisant, pour évaluer les interactions entre une dislocation et un défaut ponctuels, un modèle élastique simple, on arrive pour le molybdène à l'expression suivante de la vitesse de fluage (exprimée en  $(\text{FF}/\text{cm}^3)^{-1}$ ) :

$$\dot{\epsilon} = \frac{\sigma}{E} \frac{N_i \cdot (1 - \delta)}{N_0}$$

où

$E$  est le module d'Young

$N_0$  le nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$

$N_i$  le nombre de paires de Frenkel créées par fragment de fission dans les premiers instants de l'irradiation.

$\delta$  le taux de recombinaisons spontanées des paires de Frenkel.

Pour pouvoir comparer les comportements de matériaux différents, soumis à des contraintes appliquées différentes, et irradiés par des particules différentes, il est utile de définir une vitesse de fluage  $\dot{\epsilon}_u$ , exprimée en unités universelles, c'est-à-dire par unité de déformation appliquée ( $\frac{\sigma}{E} = 1$ ) et pour une concentration d'atomes déplacés égale à 1 ( $\frac{N_i}{N_0} = 1$ ).

Cette vitesse s'écrit donc :

$$\dot{\epsilon}_u = 1 - \delta$$

En faisant  $\delta = 0$ , c'est-à-dire en négligeant les recombinaisons spontanées de paires de Frenkel, on obtient une majorante de la vitesse de fluage que peut fournir la montée orientée d'un réseau. On a donc, en unités universelles,  $\dot{\epsilon}_u \leq 1$ , ce qui correspond par exemple, pour du molybdène irradié par les fragments de fission sous  $30 \text{ kg}/\text{mm}^2$ , à une vitesse  $\dot{\epsilon} \leq 5 \cdot 10^{-22} (\text{FF}/\text{cm}^3)^{-1}$ . Cette valeur est cohérente avec la valeur expérimentale de  $3 \cdot 10^{-22} (\text{FF}/\text{cm}^3)^{-1}$ .

soit 0,6 en unités universelles, déterminée à une dose un peu supérieure à 1 d.p.a. (cf. figure 32).

Remarquons enfin que l'expression de  $\dot{\epsilon}$  prévoit une dépendance linéaire de la vitesse de fluage avec la contrainte appliquée. Ce comportement est tout à fait différent de celui que nous observons à fluences modérées, lorsque le fluage est régi par la germination orientée de boucles de dislocation.

## VI - DISCUSSION

Nous avons montré que la germination orientée des boucles de dislocation fournissait une contribution importante au fluage sous irradiation à basse température. Les vitesses de fluage, mesurées dans le stade des boucles (au voisinage de  $10^{-1}$  d.p.a.), et exprimée en unités universelles sont (figures 12, 17, 32) :

- dans le tungstène, à 20 K :  $\dot{\epsilon}_u \approx 14$
- dans le molybdène, à 20 K :  $\dot{\epsilon}_u \approx 12$
- dans le molybdène, à 36 K :  $\dot{\epsilon}_u \approx 6$

A ces valeurs, il est intéressant d'associer celle que trouve HESKETH / 55 /, dans le tungstène irradié à 316 K par les neutrons rapides :  $\dot{\epsilon}_u = 8$ .

Ces vitesses de fluage sont donc toutes de l'ordre de 10, un peu supérieures lorsque les interstitiels sont immobiles, un peu plus faibles lorsque les interstitiels peuvent migrer librement. Elles sont supérieures d'au moins un ordre de grandeur à celles que peut fournir la montée orientée d'un réseau de dislocations ( $\dot{\epsilon}_u \leq 1$ ). Ce sont les vitesses les plus fortes qui aient jamais été mesurées.

A la lumière de nos expériences, nous allons discuter deux points qui nous paraissent importants :

- dans un premier temps, nous nous efforcerons de montrer que les résultats des essais technologiques de fluage dont on dispose actuellement peuvent certainement s'expliquer en grande partie par une germination orientée de boucles de dislocations.
- dans un deuxième temps, nous comparerons le fluage sous irradiation des matériaux isotropes avec la croissance naturelle de l'uranium, du point de vue des vitesses de déformation et du comportement aux fluences élevées.

### VI.1 - Rôle des boucles dans les irradiations à but technologique

On trouve dans la littérature un certain nombre de résultats d'irradiations technologiques, concernant principalement diverses nuances d'aciers inoxydables irradiés par les neutrons rapides entre 300 et 400°C (soit environ 0,3 à 0,4  $T_F$ ).

Une certaine confusion règne quant à l'interprétation de ces expériences (cf. / 3 /). Quelques points méritent, nous semble-t-il, d'être précisés.

Dans ces irradiations technologiques, les doses maximales actuellement atteintes sont d'environ 10 d.p.a. Le fluage observé peut être décomposé en deux stades : à un régime transitoire initial succède, à partir de quelques  $10^{-1}$  d.p.a., un fluage que les auteurs considèrent généralement comme stationnaire. A notre avis, ce point peut être discuté, et même contesté.

Remarquons tout d'abord que les résultats fournis par ces irradiations de très longue durée sont inévitablement entachés d'erreurs importantes ; de plus, les courbes d'allongement en fonction de la dose ne sont, le plus souvent, constituées que de trois ou quatre points expérimentaux. Il nous paraît donc bien imprudent d'affirmer que la vitesse de fluage est rigoureusement constante entre 1 et 10 d.p.a.

Ces réserves étant faites, il nous faut tenir compte des résultats obtenus par microscopie électronique. Dans l'acier M 316, irradié à 400°C, on ne forme pas

de boucles de dislocation visibles avant une dose de quelques  $10^{-1}$  d.p.a. A des doses plus élevées (quelques d.p.a.), on observe des boucles de Frank d'une taille de quelques centaines d'Angströms, et en densité de l'ordre de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  / 56 , 57 / . Aucune tendance à la formation d'un réseau n'est alors perceptible. Des irradiations aux ions ont permis d'atteindre des doses plus importantes / 58 / ; elles montrent qu'un réseau saturé en dislocations ne se forme qu'après une dose de quelques dizaines de d.p.a.

Il apparaît donc clairement qu'entre 1 et 10 d.p.a., le fluage observé est lié principalement aux boucles de dislocation. OKAMOTO et HARKNESS / 57 / ont d'ailleurs montré que la germination de ces boucles est orientée par la contrainte appliquée. On est donc en présence du type de fluage que nous avons appelé "croissance induite". Les vitesses de déformation mesurées dans ce domaine de fluence sont approximativement 10 fois plus faibles que celles que nous observons à basse température :

- dans l'acier M 316, irradié à 550 K / 59 , 60 / :

$$\dot{\epsilon}_u \approx 1$$

- pour diverses nuances d'aciers EN 58, à 550 K / 59 / :

$$1 < \dot{\epsilon}_u < 3$$

- pour le molybdène, à 550 K / 59 / :

$$\dot{\epsilon}_u \approx 1$$

Nous concluons donc que le fluage observé entre 1 et 10 d.p.a., à des températures de 0,3 à 0,4  $T_F$ , est très probablement régi par une germination orientée des boucles de dislocation. Il est vraisemblable à ces températures que la contrainte appliquée influe également sur la vitesse de croissance des boucles, ce

qui fournit une contribution supplémentaire au fluage / 42 /. Mais, quelle que soit l'importance de cette contribution, ce régime de fluage n'est en fait qu'un régime transitoire. Un régime stationnaire ne pourra s'établir qu'à des doses plus élevées (quelques dizaines de d.p.a.), lorsque les boucles se seront réarrangées en un réseau de dislocations. La vitesse de fluage  $\dot{\epsilon}_u$  correspondant à la montée de ce réseau sera inévitablement nettement inférieure à 1, en raison de l'importance des recombinaisons de paires de Frenkel à ces températures déjà élevées.

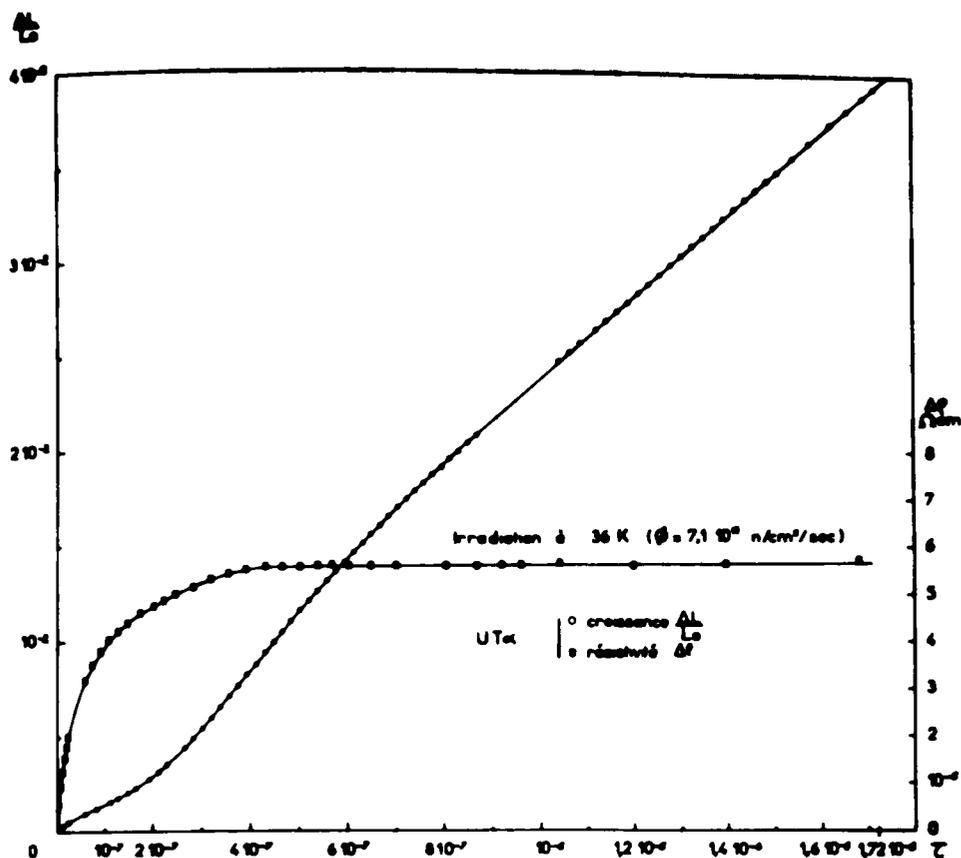
Nous pensons donc que considérer le fluage observé entre 1 et 10 d.p.a. comme un fluage stationnaire, et l'extrapoler à des doses d'irradiation correspondant à la durée de vie d'un réacteur (quelques centaines de d.p.a.), conduit à surestimer significativement la déformation finale due à l'irradiation.

## VI.2 - Croissance induite des métaux isotropes, et croissance naturelle de l'uranium

Notre modèle de croissance induite dérive, nous l'avons déjà précisé, du modèle de croissance naturelle de l'uranium, tel que l'a proposé BUCKLEY / 35 /. La seule différence provient de ce que, dans l'uranium, la contrainte qui influe sur la germination des boucles est interne, d'origine thermique, et vraisemblablement liée à la très forte anisotropie des coefficients de dilatation.

Si l'on compare nos expériences de fluage sous contrainte aux mesures de croissance de l'uranium / 21 , 22 , 44 /, on constate deux différences importantes :

- la vitesse de fluage sous contrainte est constamment décroissante alors que, dans l'uranium, la déformation est proportionnelle à la dose (figure 34) dès que la concentration de défauts ponctuels est saturée (quelques  $10^{-2}$  d.p.a.).



**Fig.34:** Allongement et augmentation de résistivité de l'uranium en fonction du taux de combustion.  
 ( $\tau = 10^{-6}$  correspond approximativement à une dose de  $10^{-1}$  d.p.a.).

- la vitesse de déformation de l'uranium est supérieure de près de deux ordres de grandeur à celle que nous observons sous forte contrainte dans le stade de fluage dû aux boucles.

Durant le stade de déformation linéaire, on mesure dans l'uranium un coefficient de croissance voisin de 30 000 à basse température (4,6 K). Ceci signifie qu'environ 15 000 paires de Frenkel sont condensées en boucles par fragment de fission moyen. Sachant qu'initialement, un fragment moyen laisse subsister approximativement 40 000 paires de Frenkel, on voit qu'une fraction de l'ordre de 30 % des défauts créés dans le stade des boucles échappe aux recombinaisons spontanées pour apporter, sous forme condensée, une contribution à la déformation.

Dans le molybdène, nous avons pu constater, dans le stade des boucles, une efficacité bien plus faible de l'irradiation : 300 défauts de chaque type sont condensés en boucles par fragment de fission, soit 1 % seulement du nombre d'atomes déplacés.

L'efficacité de l'irradiation (du point de vue du nombre de défauts condensés par fragment) est donc environ 30 fois plus forte dans l'uranium que dans le molybdène (à des températures d'irradiation inférieures dans les deux cas à la température du stade I). Il ne serait pas raisonnable de vouloir expliquer un tel écart par une différence entre les taux de recombinaison des paires de Frenkel dans ces deux matériaux. Par contre, les recombinaisons entre boucles peuvent fort bien en rendre compte. En effet, HUDSON / 61 / a montré que, dans l'uranium, les interactions élastiques entre boucles conduisent celles-ci à se rassembler par glissement en feuillets perpendiculaires : les boucles lacunaires dans le plan ( 100 ), les boucles interstitielles dans le plan ( 010 ). Au sein de ces feuillets, les boucles de même nature peuvent, au cours de leur grossissement, coalescer par montée conservative, jusqu'à créer des plans supplémentaires complets. Cette différenciation dans l'espace des boucles de natures opposées limite évidemment beaucoup les recombinaisons destructrices. On explique ainsi que la croissance de l'uranium puisse être non saturée.

Dans les matériaux isotropes au contraire, rien n'empêche les recombinaisons destructrices entre boucles. De telles recombinaisons peuvent se produire continuellement, sous l'effet de chaque fragment de fission. Leur effet est double :

- elles provoquent un abaissement du nombre apparent de défauts condensés par fragment de fission ;
- elles conduisent à la formation d'un réseau de dislocations, de telle sorte que le mécanisme de croissance induite n'apparaît que comme un mécanisme transitoire de fluage.

On conclut donc que, dans le cas général, une germination orientée de boucles ne peut conduire à des vitesses de déformation rapides et non saturées. Un tel comportement n'est possible que dans des matériaux très particuliers, comme l'uranium, dans lesquels les recombinaisons destructrices entre boucles sont beaucoup moins probables que la coalescence des boucles de même nature.

## VII - CONCLUSIONS

Pour répondre aux problèmes liés à la réalisation des réacteurs, notamment à neutrons rapides, un certain nombre d'essais technologiques de fluage sous irradiation ont été réalisés. Mais bien peu d'expériences ont été tentées dans le but de préciser les mécanismes essentiels du fluage sous irradiation. Dans ce contexte, nous nous sommes attachés à démontrer le rôle capital joué par les boucles de dislocation formées par l'irradiation.

Nous avons mesuré, lors d'irradiations par les fragments de fission à basse température (20 à 36 K), les variations de longueur et de résistivité électrique d'échantillons de tungstène et de molybdène. Ces mesures, associées à quelques observations au microscope électronique, nous ont permis de dégager schématiquement trois mécanismes de déformation :

- aux faibles doses d'irradiation (inférieures à  $10^{-2}$  d.p.a.), la déformation observée est principalement un gonflement correspondant à la création de défauts ponctuels. A cette déformation est associée une rapide augmentation de résistivité électrique.
- pour des doses modérées (comprises entre  $10^{-2}$  et 1 d.p.a.), l'essentiel du fluage peut s'expliquer par un mécanisme de germination orientée par la contrainte appliquée des boucles lacunaires et interstitielles. Nous avons bâti, pour inter-

prêter ce stade de fluage dû aux boucles, un modèle dit de "croissance induite", qui traduit bien l'évolution de la vitesse de fluage avec la contrainte appliquée : nulle en l'absence de contrainte, la vitesse de fluage se sature aux contraintes élevées. Tout au long de ce stade de fluage s'effectuent des recombinaisons spontanées entre boucles. Ces recombinaisons expliquent la faible vitesse de déformation observée dans les matériaux isotropes, comparée à celle que subit naturellement l'uranium sous irradiation.

- aux fortes doses (supérieures à 1 d.p.a.), ces réarrangements entre boucles aboutissent à la formation d'un dense réseau de dislocations, qui absorbe tous les défauts ponctuels échappant aux recombinaisons spontanées. La montée de ce réseau, orientée par la contrainte appliquée, donne lieu à un fluage stationnaire, caractérisé par une vitesse de fluage faible comparée à celle que l'on observe dans le stade des boucles.

Nous avons examiné un certain nombre de résultats de fluage sous irradiation par les neutrons rapides, acquis à des températures plus élevées ( $0,3$  à  $0,4 T_F$ ), et destinés à un usage technologique. Cette étude bibliographique, associée aux résultats de nos expériences, nous a donné la conviction que le fluage observé jusqu'à présent (les doses maximales atteintes sont d'environ 10 d.p.a.) n'est qu'un fluage transitoire, que l'on doit attribuer en grande partie à une germination orientée des boucles.

Nos expériences auront permis, nous l'espérons, de préciser certains aspects, jusqu'alors assez incertains, du fluage sous irradiation. Mais elles nous ont également apporté un certain nombre de résultats en ce qui concerne l'effet des fragments de fission sur le molybdène.

- En tout début d'irradiation, l'étude des variations du taux d'augmentation de résistivité et de la vitesse initiale de déformation en fonction de la contrainte appliquée nous a permis de montrer qu'une partie des défauts ponctuels

créés se condense spontanément en petites boucles, au sein des cascades de déplacements initiales. Nous avons pu proposer des valeurs raisonnables pour le nombre de paires de Frenkel créées initialement par un fragment de fission moyen, la fraction d'interstitiels condensés, ainsi que pour le volume de formation d'une paire de Frenkel.

- Dans le stade des boucles, l'application du modèle de croissance induite nous a permis en particulier de déterminer le nombre de paires de Frenkel condensés en boucles par fragment de fission.

- Nous avons mis en évidence la possibilité qu'ont les boucles de basculer le long de leur cylindre de glissement, de façon à adopter leur configuration d'énergie minimale en présence d'une contrainte appliquée. De ce fait, une augmentation de contrainte, effectuée dans le stade des boucles, provoque un régime transitoire de fluage accéléré. Nous avons souligné le double intérêt que présente l'analyse de cet allongement paraélastique : elle permet de déterminer la concentration de défauts condensés en boucles au moment du changement de contrainte ; elle fournit surtout un moyen original d'étude des points thermiques associées aux cascades de déplacements.

C'est volontairement que nous n'avons pas insisté dans ce travail sur le fait que la précipitation de défauts ponctuels sous contrainte appliquée constitue un moyen simple, mais puissant, d'étude de la germination d'amas plans. Des expériences sont déjà entreprises dans ce sens en ce qui concerne la germination des boucles. D'autres mériteraient de l'être en ce qui concerne, par exemple, les amas de Guinier-Preston.

**A N N E X E S**

---

## ANNEXE I

### ENDOMMAGEMENT PAR UNE SOURCE MINCE DE FRAGMENTS DE FISSION

Soit un échantillon plan dont l'une des faces est au contact d'une source mince d'épaisseur  $h$  (figure 35). Nous appelons source mince une source dont l'épaisseur est faible vis-à-vis du parcours des fragments de fission, de telle sorte que l'absorption de particules par la source elle-même puisse être négligée.

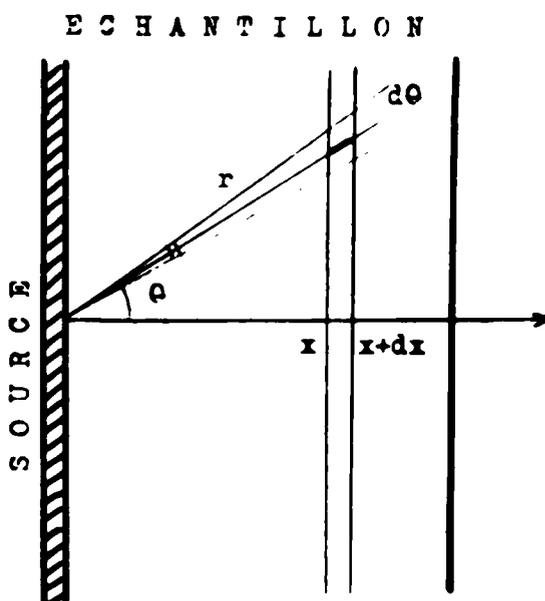


Fig.35:  
Irradiation d'un échantillon  
épais par une source mince  
de fragments de fission.

Si  $\rho_S$  représente le nombre de fissions par unité de temps et de volume dans cette source, celle-ci émet dans le demi-espace contenant la cible un flux isotrope  $\rho_S \cdot h$  de fragments de fission (par unité de surface et de temps).

Toute particule abordant la tranche d'épaisseur  $\delta x$ , à la profondeur  $x$ , sous l'incidence  $\theta$ , y libère par chocs atomique l'énergie :

$$\left(\frac{dV}{dr}\right) \frac{x}{\cos \theta} \times \frac{\delta x}{\cos \theta} \quad (+)$$

Or, une source isotrope émet, sous l'incidence  $\theta$  (à  $d\theta$  près),  $\rho_S \cdot h \cdot \sin \theta d\theta$  particules. La tranche  $\delta x$  reçoit donc au total de la source, sous forme de chocs atomiques, l'énergie :

$$E = \rho_S \cdot h \cdot \delta x = \int_0^{\theta_{\max}} \left(\frac{dV}{dr}\right) \frac{x}{\cos \theta} \cdot \text{tg } \theta \cdot d\theta$$

En effectuant le changement de variable défini par  $r = \frac{x}{\cos \theta}$ , suivi d'une intégration par parties, l'endommagement à la profondeur  $x$  s'écrit :

$$\begin{aligned} S(x) &= \frac{\delta E}{\delta x} = \rho_S \cdot h \cdot \int_x^{\xi} \frac{dV}{dr} \frac{dr}{r} \\ &= \rho_S \cdot h \left[ \frac{V(\xi)}{\xi} - \frac{V(x)}{x} + \int_x^{\xi} \frac{V(r)}{r^2} dr \right] \end{aligned}$$

où  $\xi$  représente le parcours maximum du fragment dans la cible.

En fait, la source émet toute une série de fragments différents, définis par une probabilité d'apparition  $p_i$ , un parcours maximum  $\xi_i$ , et une fonction  $V_i(r)$ . L'expression de l'endommagement moyen est donc :

---

(+) Remarquons que cette expression n'est plus définie pour  $\theta = \frac{\pi}{2}$ , c'est-à-dire pour une particule d'incidence rasante.

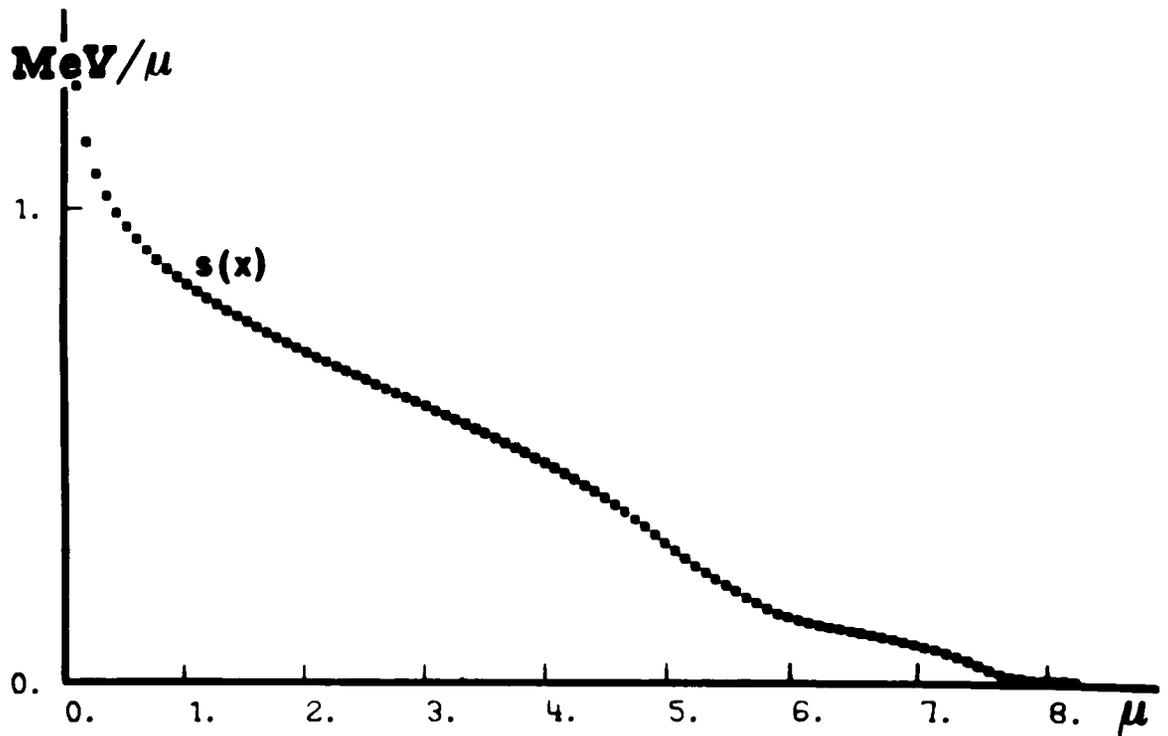
$$S(x) = \varnothing_S \cdot h \cdot s(x) = \varnothing_S \cdot h \sum_i p_i s_i(x)$$

avec 
$$s_i(x) = \int_x^{\xi_i} \frac{d\gamma_i}{dr} \frac{dr}{r}$$

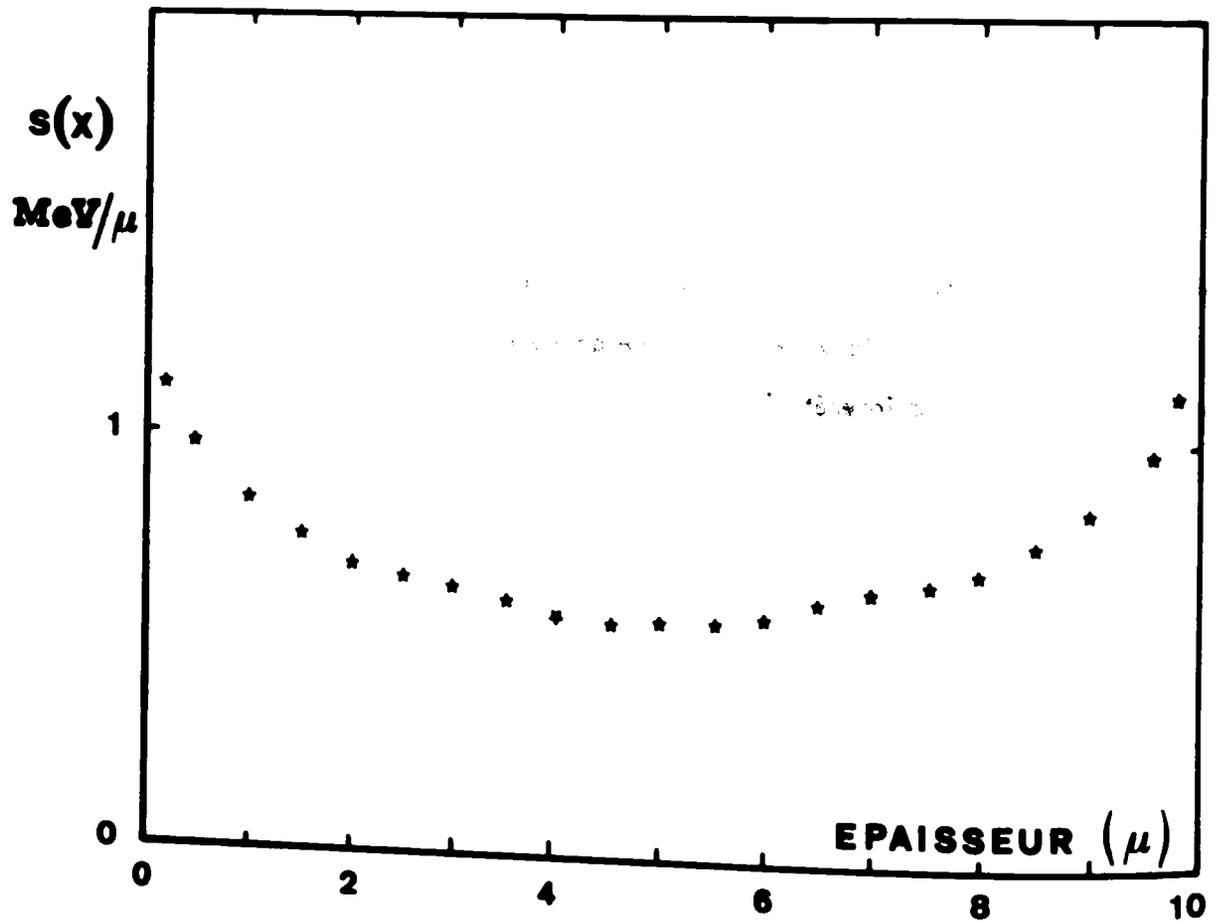
En introduisant dans cette relation les valeurs de  $p_i$ ,  $\xi_i$  et  $\gamma_i(r)$  correspondant aux 50 fragments de fission les plus probables (cf. figures 1 et 3), on obtient le profil d'endommagement moyen  $s(x)$  correspondant à une fission dans la source, c'est-à-dire par fragment de fission pénétrant dans la cible. La figure 36 donne ce profil dans le molybdène. L'endommagement est maximal près de la surface d'entrée des particules, et devient nul à une profondeur de  $8 \mu$  environ, pénétration maximale du fragment le plus léger.

La figure 37 représente le profil d'endommagement d'un échantillon de molybdène d'épaisseur  $10 \mu$ , irradié par ses deux faces.

L'endommagement apparaît assez homogène dans la partie centrale de l'échantillon, mais est sensiblement plus fort au voisinage des surfaces. Toutefois, en raison de la forte attraction qu'exercent les surfaces sur les défauts ponctuels créés à leur proximité, la valeur calculée de l'endommagement à la surface ne présente pas un grand intérêt.



**Fig.36:** Profil d'endommagement d'un échantillon de molybdène irradié par les fragments de fission issus d'une source mince placée à son contact.



**Fig.37:** Profil d'endommagement d'un échantillon de molybdène d'épaisseur  $10\mu$  irradié par ses deux faces.

## ANNEXE II

### FISSIOGRAPHIE ET ALPHAGRAPHIE

Les techniques de détection de particules énergétiques par observation et comptage des traces qu'elles laissent dans les isolants ont été principalement mises au point dans notre groupe par J. MORY / 82 /. Nous nous limitons à donner ici quelques détails sur notre mode opératoire.

#### - La fissionographie

On réalise un empilement comprenant :

- la source fissile à étudier
- un absorbant
- un détecteur de particules

Cet ensemble est soumis à une fluence connue de neutrons issus du réacteur ZOE (réacteur à faible flux). Cette fluence est choisie, en fonction de l'épaisseur présumée de la source, de façon à obtenir sur le détecteur une densité de traces convenant bien pour le comptage, de l'ordre de  $10^6$  traces/cm<sup>2</sup>. Pour nos sources comportant environ  $5 \cdot 10^{17}$  atomes fissiles par cm<sup>2</sup>, ceci conduit à choisir une fluence d'étalonnage  $\Phi_Z$  voisine de  $10^{10}$  n.th./cm<sup>2</sup>. Cette

fluence est définie expérimentalement, par dosage d'un moniteur de manganèse, à 5 % près.

Le détecteur est une feuille de makrofol suffisamment épaisse ( $60 \mu$ ) pour ne voir que l'une de ses faces lors du comptage des traces au microscope. On révèle les traces en l'attaquant pendant 30 minutes dans une solution de soude à 250 g/l portée à  $60^\circ\text{C}$ .

L'absorbant est constitué d'une feuille de makrofol de  $12 \mu$  d'épaisseur. Le parcours moyen des fragments de fission étant de  $20 \mu$  dans ce matériau, ce filtre sert à sélectionner les particules ayant une trajectoire peu inclinée par rapport au plan du détecteur. Grâce à ce filtre, les traces sont observées suivant une direction proche de leur axe longitudinal, et apparaissent donc à peu près rondes et de petite taille. Ceci nous permet de faire des comptages automatiques (à l'aide d'un Quantimet 720) avec de faibles risques d'erreurs dues au recouvrement de traces.

Les comptages sont réalisés sur 50 champs de vue de  $200 \times 150 \mu$  répartis dans l'échantillon. Dans ces conditions, on détermine les densités de traces  $D$  avec une erreur statistique de 5 %.

Soumise ultérieurement à une fluence  $\Phi_T$  de neutrons, une source ainsi étalonnée fournira une fluence  $\Phi_{FF}$  de fragments de fission définie par :

$$\Phi_{FF} = \frac{\Phi_T}{\Phi_Z} \cdot \frac{D}{R}$$

où  $R$  est le rendement de l'absorbant égal dans notre cas à  $\frac{20 - 12}{20} = 0,4$ .

### - L'alphagraphie

Cette technique, plus simple à mettre en oeuvre que la précédente, ne fournit pas une détermination directe de l'épaisseur d'une source, mais permet des comparaisons entre sources.

Elle consiste à mesurer l'activité  $\alpha$  naturelle d'une source à l'aide d'un détecteur de particules constitué cette fois d'une feuille de nitrate de cellulose de  $100 \mu$ . Les trajectoires des particules  $\alpha$  sont également sélectionnées par un absorbant de makrofol d'épaisseur  $25 \mu$ .

Le détecteur est révélé pendant 3 minutes à  $60^{\circ}\text{C}$  dans une solution de potasse à  $150 \text{ g/l}$  (ce temps d'attaque fait apparaître les traces correspondant à des particules d'énergies comprises entre  $0,8$  et  $3 \text{ MeV}$ ).

Dans le cas de nos sources, une pose de 20 à 40 heures fournit des densités de traces convenables (de l'ordre de  $10^6/\text{cm}^2$ ).

Comme il a été souligné au paragraphe III.1.2, l'activité  $\alpha$  d'une source dépend très fortement de sa composition isotopique exacte (l'isotope  $\text{U}^{234}$  est un émetteur  $\alpha$  beaucoup plus puissant que  $\text{U}^{235}$ ).

Pour éviter de graves risques d'erreurs, il faut donc se garder d'effectuer des comparaisons d'activité  $\alpha$  entre sources issues de lots différents de matière fissile.

## ANNEXE III

### DECOUPAGE D'ECHANTILLONS PAR PHOTOGRAVURE

La photogravure peut s'imposer comme méthode de découpage d'échantillons métalliques dans les cas où les procédés mécaniques classiques sont inadaptés :

- soit parce que les séries à réaliser sont très petites, et que le prix de revient d'une découpe mécanique serait très élevé (en raison par exemple du prix de fabrication de l'outil de coupe) ;
- soit en raison de la miniaturisation de l'objet à réaliser ;
- soit parce que l'on désire effectuer une découpe propre du double point de vue de la régularité des contours et de l'absence d'écrouissage.

Dans notre cas, compte tenu de la fragilité de nos échantillons à basse température, il était nécessaire d'utiliser cette méthode pour éviter les amorces de rupture qu'aurait entraîné un découpage mécanique. La figure 38 représente la forme des "peignes" que nous avons réalisés dans des tôles de  $10 \mu$  de tungstène et de molybdène .



Fig.38: Forme des "peignes" découpés par photogravure.

#### - Détails expérimentaux

##### . Cache photographique

Le dessin de la pièce à découper est réalisé en noir sur blanc, à l'échelle 5. Il est ensuite reproduit en négatif, à l'échelle 1, sur plaque de verre à émulsion très fine (Kodak High Resolution Plate).

##### . Dépôt de la résine photo-sensible (Kodak Thin Film Resist)

Après polissage mécanique, décapage chimique, rinçage et séchage de la tôle, le dépôt de la résine s'effectue de la façon suivante : l'échantillon, tenu au bout d'une pince suspendue à l'arbre d'un moteur, est plongé dans le bain de résine, puis extrait lentement de ce bain, à l'aide du moteur, à une vitesse de 1 cm/mn environ. Une fois couvert de résine, l'échantillon est étuvé pendant 15 minutes à 75°C.

### . Exposition de la résine

L'une des faces de la tôle est exposée entièrement aux U.V. Puis on place le cache photographique au contact de l'autre face que l'on expose à son tour. La source lumineuse utilisée est une lampe à lumière noire MAZDA MAW 125, munie d'un réflecteur. Pour une distance lampe-échantillon de 15 cm environ, le temps d'exposition convenable est de 50 à 60 secondes.

### . Développement et rinçage de la résine

Le développement de la résine s'effectue dans le KTR Developer pendant 1 mn 30 s, en agitant légèrement l'échantillon. L'élimination de la résine non polymérisée s'effectue ensuite par immersion dans le KTR Rince pendant 1 mn 30 s. Là encore, une légère agitation de l'échantillon est nécessaire.

On effectue ensuite un rinçage à l'eau courante.

On termine par une opération de séchage et durcissement de la résine polymérisée par étuvage à 115°C pendant 15 minutes.

### . Attaque du molybdène

L'attaque des parties de tôle non couvertes de résine s'effectue dans le bain suivant : 1 volume d'acide nitrique concentré, 1 volume d'acide sulfurique concentré, 3 volumes d'eau, à la température ambiante. Il convient d'agiter fréquemment l'échantillon afin d'éliminer les bulles de gaz susceptibles de décoller la résine sur ses bords.

### . Attaque du tungstène

Le problème de l'attaque du tungstène est beaucoup plus délicat : les bains chimiques d'attaque de ce métal (à base d'acide fluorhydrique) détériorent

beaucoup plus vite la résine qu'ils ne dissolvent le métal. On est conduit à effectuer un polissage électrochimique, dans un bain de soude à 40 g/litre, à la température de - 40°C, sous une tension de 20 Volts. Même dans ces conditions, il est très difficile d'éviter une dégradation partielle de la résine, et seuls 1 ou 2 échantillons par peigne sont de qualité satisfaisante.

#### . Elimination de la résine

On utilise un solvant spécial : Stripping Solution A 20 (Baker et Adamson). Le traitement d'élimination de la résine consiste en quelques immersions dans ce bain porté à 100°C, alternées avec des rinçages à l'eau courante.

## ANNEXE IV

### MESURES DE LONGUEUR ET DE RESISTIVITE ETALONNAGES ET ERREURS

#### - Mesures de longueur

##### . Capsules à ressort

L'étalonnage du capteur de déplacements s'effectue à basse température, mais hors du flux du réacteur, c'est-à-dire à 2 mètres du fond du dispositif VINKA. Il consiste à mesurer les signaux provenant du capteur après trois ou quatre déplacements successifs de 0,5 mm du noyau, chacun correspondant à une rotation d'un tour de la tête de la capsule.

La droite  $U = f(x)$  obtenue fournit la pente  $K$  du capteur avec une précision de l'ordre de 5 % (limitée principalement par l'erreur sur le déplacement du noyau).

Ainsi, la mesure d'une déformation sera entachée d'une erreur, variable d'une expérience à l'autre, pouvant atteindre 6 % : 5 % sur la pente du capteur, et 1 % sur la longueur initiale de l'échantillon.

A ceci doit être ajoutée une erreur systématique, identique pour toutes les expériences : le capteur est en effet sensible à la température (sa pente augmente d'environ 15 % entre 300 K et 20 K). Or, sous flux, le rayonnement  $\gamma$  porte vraisemblablement les enroulement du capteur à une température nettement supérieure à 20 K. La nécessité d'effectuer hors flux l'étalonnage du capteur conduit donc à une erreur systématique par excès de quelques pour cent sur les variations de longueur mesurées.

Le dispositif de mise sous contrainte est, quant à lui, étalonné à la température ordinaire, avant le montage complet de la capsule d'irradiation. On amène simplement le mors mobile à sa future position de fonctionnement (définie par le capteur de déplacements) en le chargeant avec des poids croissants ; on définit ainsi à 4 g près la force exercée par le ressort. La section de nos échantillons étant de  $1,5 \cdot 10^{-2} \text{ mm}^2$ , la contrainte appliquée est donc définie à mieux que  $0,3 \text{ kg/mm}^2$  près. C'est cette contrainte, mesurée à la température ordinaire, qui apparaît sur nos courbes expérimentales. La contrainte réellement appliquée sur l'échantillon au cours d'une irradiation dans VINKA est certainement supérieure d'environ 5 %, en raison de la variation des constantes élastiques des ressorts avec la température / 62 /.

D'autre part, lorsque l'échantillon s'allonge sous irradiation, la force exercée par le ressort diminue. Nous avons utilisé, suivant l'importance de la contrainte à appliquer, des ressorts de raideur 50 g/mm ou 100 g/mm. Nous mesurons typiquement des variations de longueur de l'ordre de  $100 \mu$ . La contrainte appliquée diminue donc suivant les cas de 1 à 2 % au cours de l'expérience.

### . Capsules à soufflet

Les techniques d'étalonnage de ces capsules ont été décrites en détail par VON STEBUT / 28 /. Nous rappellerons seulement que les flexibilités sous charge et sous pression des soufflets sont mesurées à basse température (77 K et 4 K)

à l'aide d'une machine INSTRON. De cet étalonnage préalable du soufflet, on déduit avec une précision meilleure que 5 % la pente du capteur de déplacements (cette mesure peut être effectuée à basse température et sous flux).

Le principal problème posé par ce type de capsules provient de la forte variation de contrainte qui résulte d'une déformation de l'échantillon. En effet, les soufflets ont une flexibilité de l'ordre de 2 kg/mm ; par conséquent, lorsqu'un échantillon subit une déformation de  $10^{-3}$  sous une contrainte initialement appliquée de 30 kg/mm<sup>2</sup> par exemple, celle-ci diminue d'environ 10 %. De telles capsules ne permettent pas par exemple de maintenir une contrainte faible pendant le stade initial de gonflement de l'échantillon ; c'est pourquoi, sur la figure 24 , ce stade de déformation n'est pas représenté.

#### - Mesures de résistivité électrique

L'erreur sur la résistance de l'échantillon provient principalement des tensions d'origine thermoélectrique qui peuvent s'instaurer dans la ligne de mesure de potentiel, entre l'échantillon et le voltmètre.

Si  $\delta u$  est l'effet thermoélectrique global, la tension affichée sur le voltmètre est

$$v = R i + \delta u$$

Dans aucune de nos expériences, cette tension parasite  $\delta u$ , bien qu'assez fluctuante, n'a dépassé notablement 0,5  $\mu V$ . La tension  $v$  que nous mesurons avant irradiation étant de l'ordre de 500  $\mu V$ , l'effet thermoélectrique induit donc une erreur inférieure à  $10^{-3}$  sur la mesure de résistance de nos échantillons. Jugeant cette précision suffisante pour nos besoins, nous n'avons pas cherché à affiner les déterminations par inversion du courant à chaque mesure.

L'erreur principale sur les déterminations de résistivité ne provient pas de la mesure de résistance électrique, mais des incertitudes sur le facteur de forme  $Q = \frac{L}{S}$  : la longueur de l'échantillon est connue à 1 % près, sa largeur et son épaisseur le sont à 3 % près environ, soit une erreur systématique, constante pendant toute la durée d'une irradiation, pouvant atteindre 7 %.

L'erreur sur la variation de résistivité correspondant au changement de forme de l'échantillon est très faible. En effet, nous mesurons des allongements  $\frac{\Delta L}{L}$  de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-3}$ . En supposant que cette déformation s'effectue sans changement de volume de l'échantillon (c'est-à-dire en négligeant le gonflement initial), on obtient une majorante de la diminution de résistivité correspondante :

$$\left| \frac{\Delta \rho}{\rho} \right| = \left| -\frac{\Delta Q}{Q} \right| = 2 \frac{\Delta L}{L} \approx 10^{-2}$$

L'influence des produits de fission sur la résistivité est tout à fait négligeable. En effet, pour les plus longues irradiations, nous avons atteint des fluences d'environ  $3 \cdot 10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup>, ce qui correspond à des concentrations atomiques en fragments de fission de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-5}$ . En attribuant à ces atomes étrangers une résistivité spécifique raisonnable, de l'ordre de  $10 \mu \Omega \text{ cm} / \%$ , on les trouve responsables d'une résistivité de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-2} \mu \Omega \text{ cm}$ , que l'on comparera aux accroissements de résistivité atteints en fin d'irradiation : 8 à  $9 \mu \Omega \text{ cm}$  dans le tungstène, 3 à  $4 \mu \Omega \text{ cm}$  dans le molybdène.

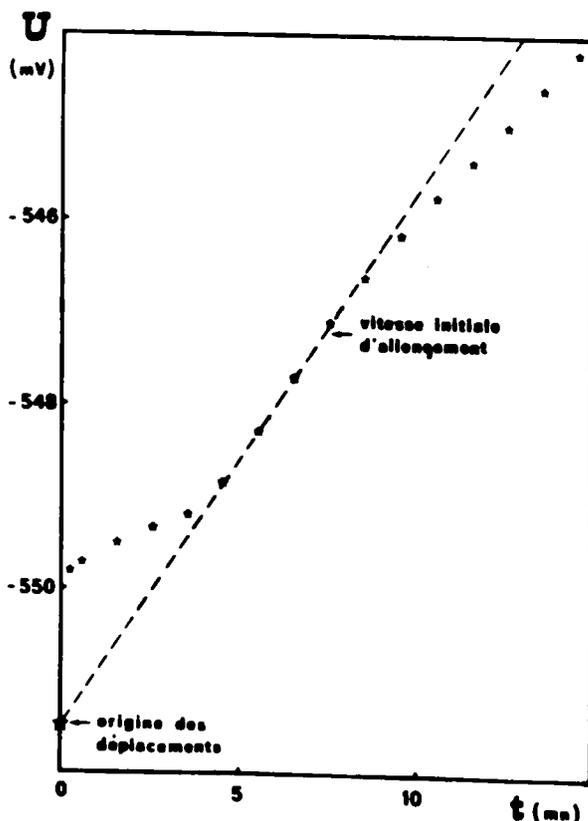
On pourra remarquer sur les courbes expérimentales (figures 11 et 13) que, même lorsque les concentrations de saturation en défauts ponctuels sont atteintes, la résistivité électrique n'est pas rigoureusement saturée : elle augmente de quelques  $10^{-1} \mu \Omega \text{ cm}$  pour une fluence de l'ordre de  $10^{18}$  FF/cm<sup>3</sup>. On attribue généralement cet effet à une dissolution par l'irradiation des précipités d'impuretés présents initialement dans les échantillons.

## ANNEXE V

### VITESSE INITIALE D'ALLONGEMENT

Pour atteindre des doses importantes en des temps raisonnables, la plupart de nos irradiations ont été effectuées à fort flux de neutrons thermiques ( $10^{13}$  à  $1,3 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s). Dans ces conditions, la mesure de la pente initiale des courbes de longueur est délicate : en effet, brusquement soumis, lors de la mise en flux, à un échauffement  $\gamma$  intense, le capteur de déplacements a besoin de quelques minutes pour prendre sa température d'équilibre et fournir des indications raisonnables.

La figure 39 montre un exemple typique des indications du capteur dans les premières minutes de l'irradiation.



**Fig. 39:**  
Dérive du capteur de déplacements lors de la mise en flux.

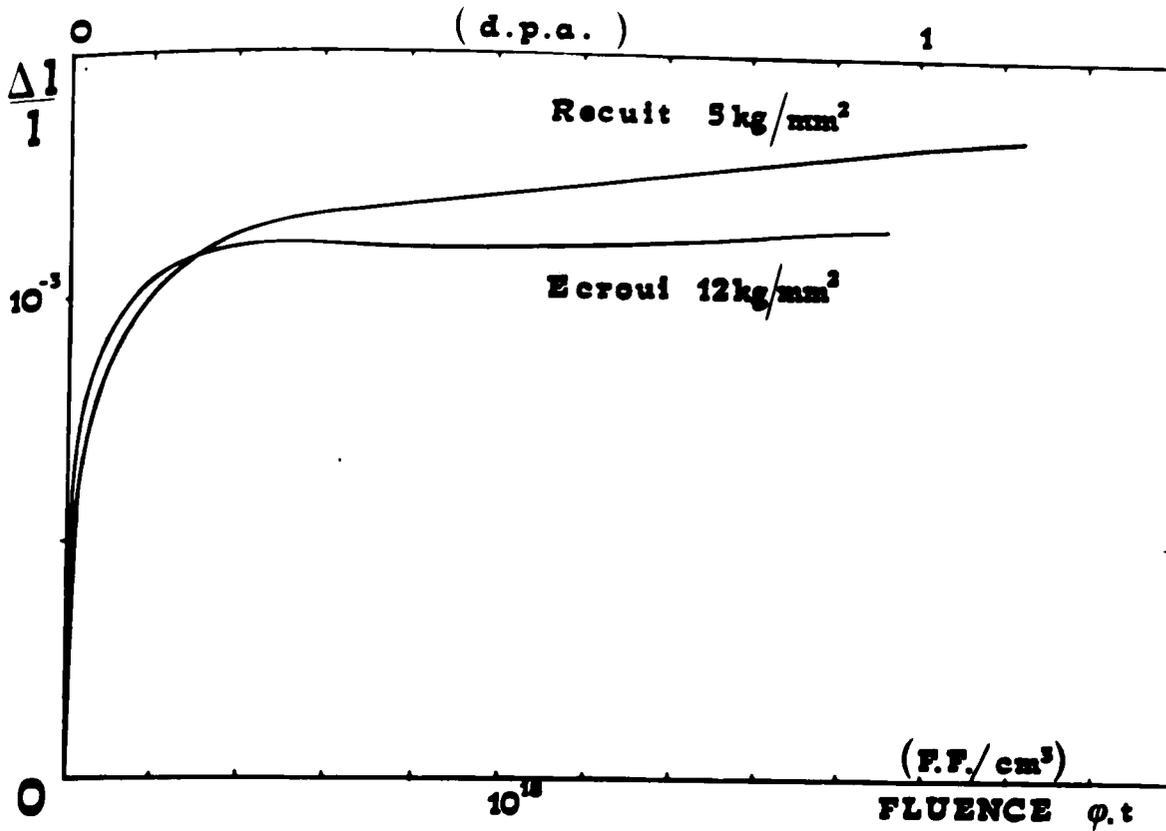
Cette figure montre comment ont été mesurées les pentes initiales reportées sur la figure 18, et comment est définie l'origine des déplacements utilisée pour le traçage des courbes  $\frac{\Delta L}{L} = f(\varnothing)$ .

## ANNEXE VI

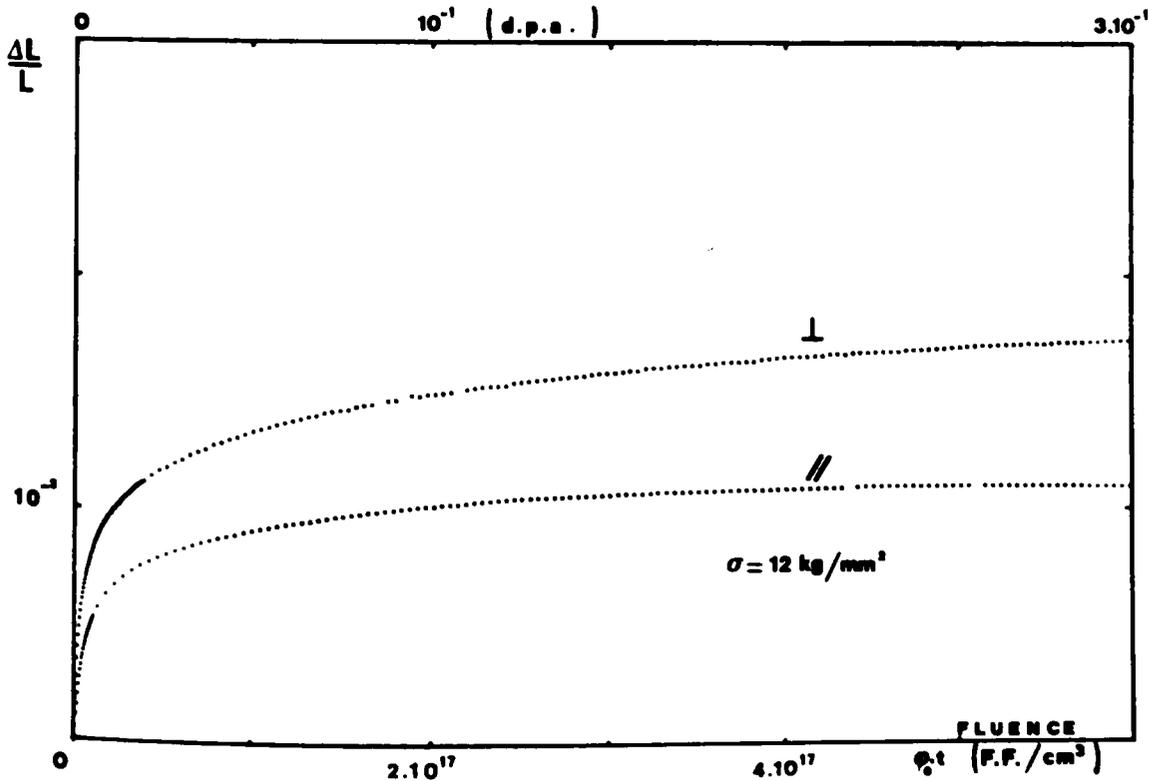
### EFFET DES CONTRAINTES INTERNES SUR LE FLUAGE AUX FAIBLES CONTRAINTES APPLIQUEES

L'examen des courbes correspondant aux échantillons irradiés sous faible contrainte (figures 17, 20 et 21) conduit à la remarque suivante : un échantillon irradié à  $\sigma = 12 \text{ kg/mm}^2$  se comporte exactement comme un échantillon irradié à  $\sigma = 1,5 \text{ kg/mm}^2$ . Ceci semble en complet désaccord avec la théorie exposée en / 38 /, où l'on trouve que le coefficient de croissance à  $12 \text{ kg/mm}^2$  doit approximativement atteindre la moitié de sa valeur à saturation (figure 30). Pour expliquer cette anomalie, il faut rappeler le fait que l'échantillon est brut de laminage. La contrainte que voit une boucle en cours de germination n'est pas exactement la contrainte appliquée. Une contrainte interne due aux joints de grains et dislocations présents dans l'échantillon écroui s'y ajoute. Celle-ci aurait, dans la direction de laminage (qui est aussi celle de la contrainte appliquée), une composante uniaxiale valant approximativement  $15 \text{ kg/mm}^2$ . Deux expériences complémentaires ont été faites pour vérifier cette hypothèse :

- Un échantillon de molybdène découpé suivant la direction de laminage a subi un recuit d'une heure à  $1100^\circ\text{C}$ . La figure 40 montre la variation de longueur d'un tel échantillon irradié sous une contrainte de  $5 \text{ kg/mm}^2$ . Comme on pouvait s'y



**Fig.40:** Influence du traitement thermique sur le fluage du molybdène.



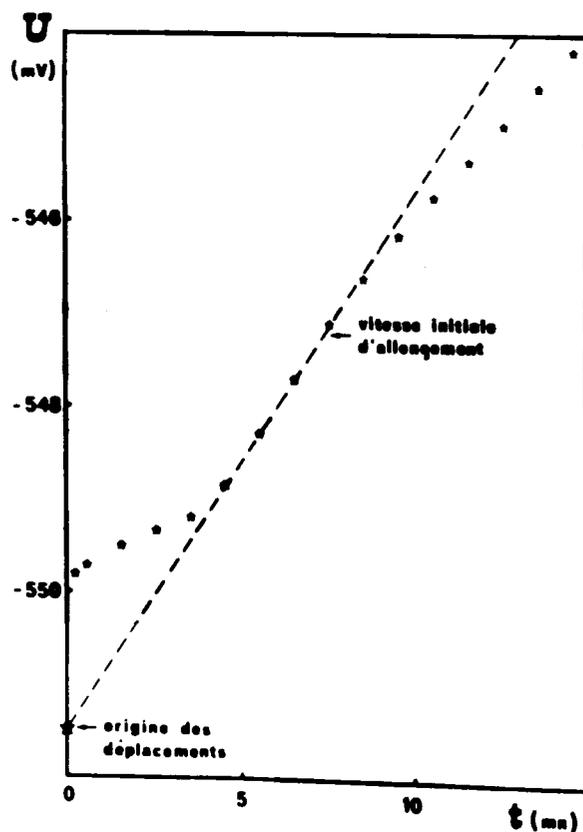
**Fig.41:** Influence de la direction de la contrainte appliquée sur le fluage du molybdène brut de laminage.

## ANNEXE V

### VITESSE INITIALE D'ALLONGEMENT

Pour atteindre des doses importantes en des temps raisonnables, la plupart de nos irradiations ont été effectuées à fort flux de neutrons thermiques ( $10^{13}$  à  $1,3 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s). Dans ces conditions, la mesure de la pente initiale des courbes de longueur est délicate : en effet, brusquement soumis, lors de la mise en flux, à un échauffement  $\gamma$  intense, le capteur de déplacements a besoin de quelques minutes pour prendre sa température d'équilibre et fournir des indications raisonnables.

La figure 39 montre un exemple typique des indications du capteur dans les premières minutes de l'irradiation.



**Fig. 39:**  
Dérive du capteur de déplacements lors de la mise en flux.

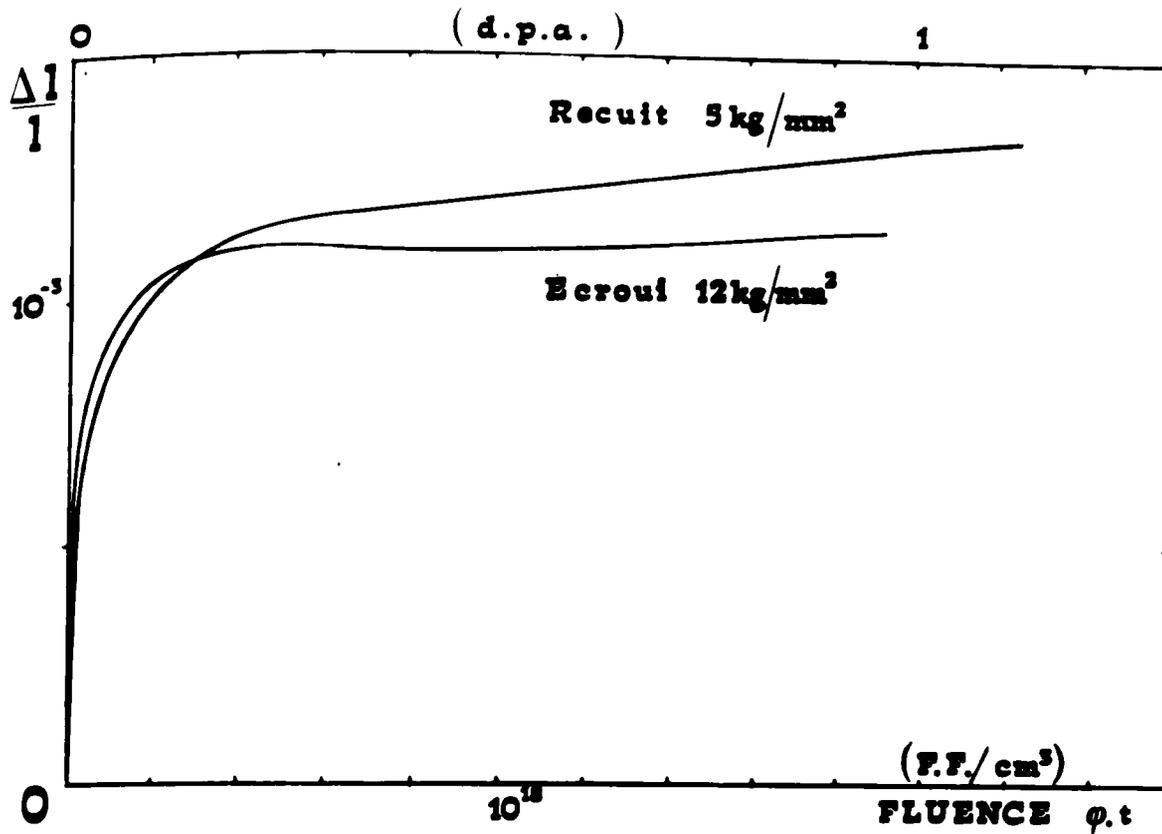
Cette figure montre comment ont été mesurées les pentes initiales reportées sur la figure 18, et comment est définie l'origine des déplacements utilisée pour le traçage des courbes  $\frac{\Delta L}{L} = f(\theta)$ .

## ANNEXE VI

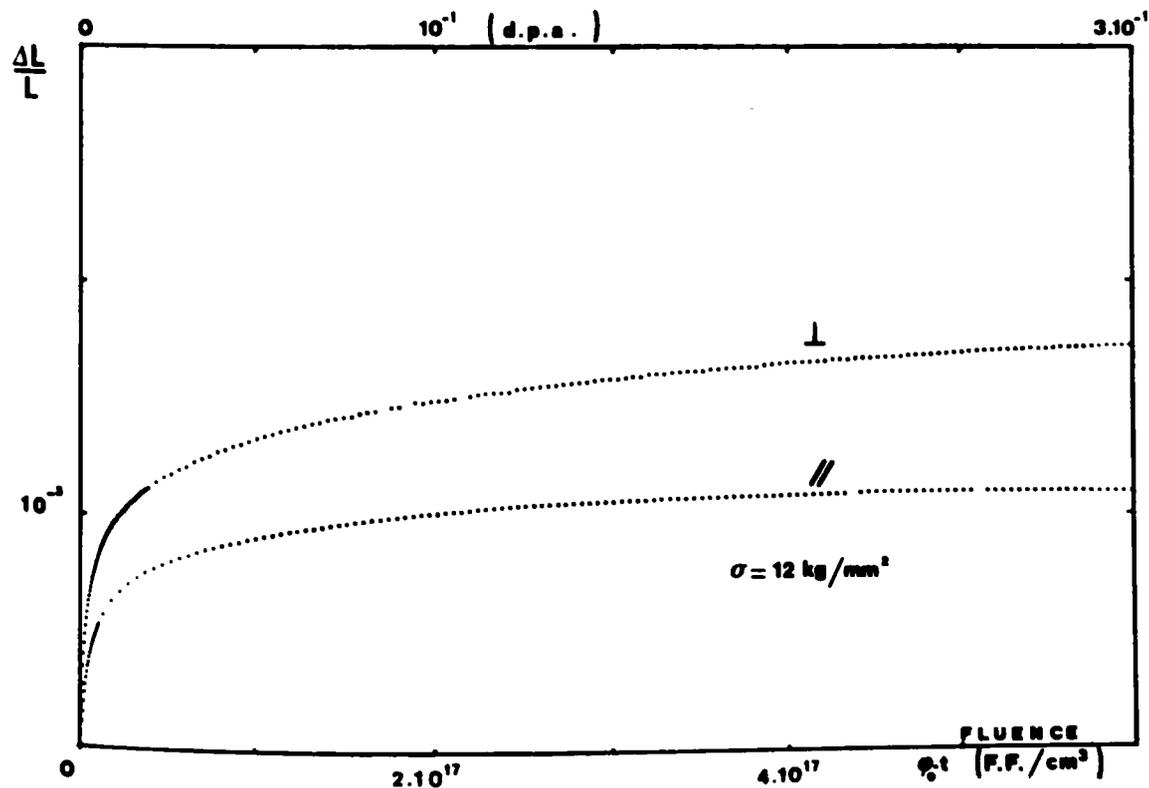
### EFFET DES CONTRAINTES INTERNES SUR LE FLUAGE AUX FAIBLES CONTRAINTES APPLIQUEES

L'examen des courbes correspondant aux échantillons irradiés sous faible contrainte (figures 17, 20 et 21) conduit à la remarque suivante : un échantillon irradié à  $\sigma = 12 \text{ kg/mm}^2$  se comporte exactement comme un échantillon irradié à  $\sigma = 1,5 \text{ kg/mm}^2$ . Ceci semble en complet désaccord avec la théorie exposée en / 38 /, où l'on trouve que le coefficient de croissance à  $12 \text{ kg/mm}^2$  doit approximativement atteindre la moitié de sa valeur à saturation (figure 30). Pour expliquer cette anomalie, il faut rappeler le fait que l'échantillon est brut de laminage. La contrainte que voit une boucle en cours de germination n'est pas exactement la contrainte appliquée. Une contrainte interne due aux joints de grains et dislocations présents dans l'échantillon écroui s'y ajoute. Celle-ci aurait, dans la direction de laminage (qui est aussi celle de la contrainte appliquée), une composante uniaxiale valant approximativement  $15 \text{ kg/mm}^2$ . Deux expériences complémentaires ont été faites pour vérifier cette hypothèse :

- Un échantillon de molybdène découpé suivant la direction de laminage a subi un recuit d'une heure à  $1100^\circ\text{C}$ . La figure 40 montre la variation de longueur d'un tel échantillon irradié sous une contrainte de  $5 \text{ kg/mm}^2$ . Comme on pouvait s'y



**Fig.40:** Influence du traitement thermique sur le fluage du molybdène.



**Fig.41:** Influence de la direction de la contrainte appliquée sur le fluage du molybdène brut de laminage.

attendre, l'échantillon recuit continue de s'allonger alors que la longueur de l'échantillon écroui, irradié sous  $12 \text{ kg/mm}^2$ , est saturée.

- Les déformations subies au cours de l'opération de l'aminage et les contraintes internes qui en résultent sont différentes dans la direction de laminage et dans la direction perpendiculaire à celle-ci, comme en témoignent par exemple des essais de traction effectués sur des échantillons découpés suivant ces deux directions. Une expérience d'irradiation sous contrainte a été effectuée sur un échantillon découpé perpendiculairement à la direction de laminage (figure 41). Les contraintes internes ont une composante uniaxiale moins élevée dans cette direction, et l'échantillon (noté  $\perp$ ) continue de s'allonger légèrement sous  $12 \text{ kg/mm}^2$ , alors que l'autre (noté  $//$ ) voit sa longueur se saturer.

Malgré ces deux expériences qui semblent aller dans le sens de l'interprétation donnée plus haut, une grave objection subsiste. Si un échantillon irradié sous  $12 \text{ kg/mm}^2$  voit sa longueur se saturer à cause d'une contrainte interne anisotrope, on comprend mal pourquoi un échantillon irradié sous très faible contrainte extérieure ne verrait pas sa longueur diminuer sous l'effet de la contrainte interne agissant de façon prépondérante.

## ANNEXE VII

### EFFETS GEOMETRIQUES LIES AU BASCULEMENT DES BOUCLES DE DISLOCATION

#### - Allongement dû à une boucle de dislocation

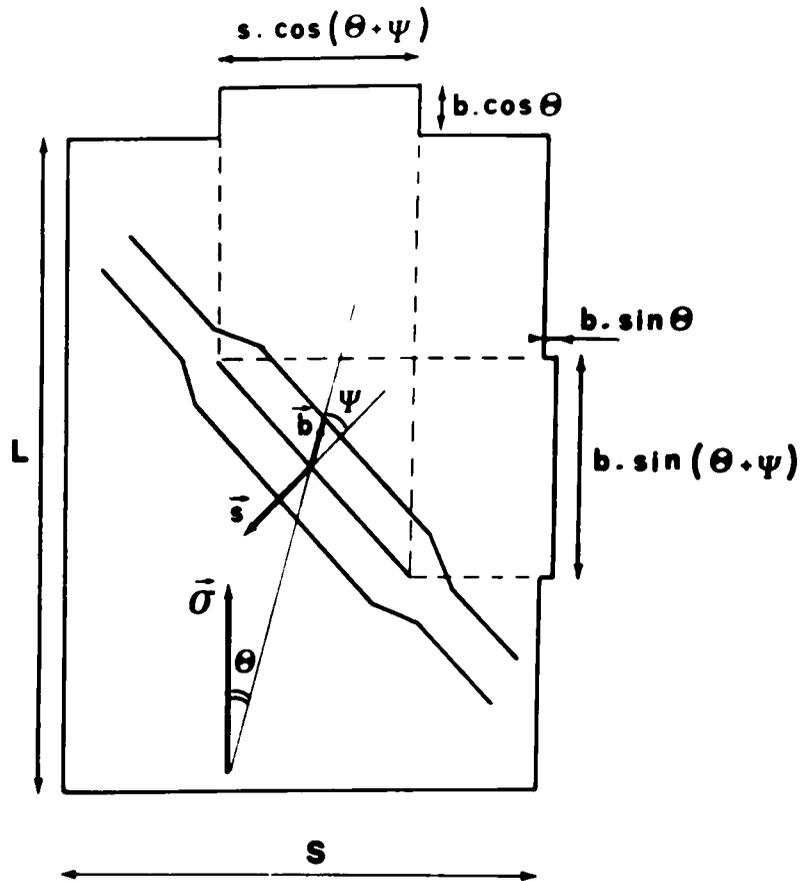
KEATING et GOLAND / 63 / ont montré que la dilatation due à une boucle coin est, dans la direction de son vecteur de Burgers, égale à la fraction  $c = \frac{n}{N_0}$  des défauts contenus dans la boucle :

$$\left| \frac{\Delta L}{L} \right|_{\vec{b}} = c$$

Ceci est une justification de l'image très répandue consistant à associer à chaque boucle une marche sur la surface. Utilisons cette représentation très commode dans le cas général d'une boucle de vecteur  $\vec{b}$  et de normale  $\vec{s}$  (figure 42).

La dilatation dans la direction  $\vec{\sigma}$  s'écrit :

$$\left| \frac{\Delta L}{L} \right|_{\vec{\sigma}} = \underbrace{|\vec{b}| \cos(\vec{b}, \vec{\sigma})}_{\text{Hauteur de la marche}} \cdot \overbrace{\frac{|\vec{s}| \cos(\vec{s}, \vec{\sigma})}{S}}^{\text{Surface de la marche}} \cdot \frac{1}{L}$$



**Fig.42:** Allongement dû à une boucle de dislocation.

Compte tenu de la relation  $\vec{b} \cdot \vec{s} = n \Omega$  , on a :

$$|\vec{b}| \cdot |\vec{s}| = \frac{n \Omega}{\cos(\vec{b}, \vec{s})}$$

Par conséquent :

$$\left| \frac{\Delta L}{L} \right|_{\vec{\sigma}} = \frac{\cos(\vec{b}, \vec{\sigma}) \cos(\vec{s}, \vec{\sigma})}{\cos(\vec{b}, \vec{s})} \cdot n \frac{\Omega}{S L}$$

Soit :

$$\left| \frac{\Delta L}{L} \right|_{\vec{\sigma}} = c \cdot \frac{\cos(\vec{b}, \vec{\sigma}) \cos(\vec{s}, \vec{\sigma})}{\cos(\vec{b}, \vec{s})} = c \cdot \beta$$

- Effet géométrique du basculement

Le facteur géométrique  $\beta$  ne dépend ni de la nature de la boucle, ni de la nature de la contrainte : en changeant de sens l'un des trois vecteurs  $\vec{b}$ ,  $\vec{\sigma}$ , ou  $\vec{s}$ , on change de signe deux des trois cosinus.

Pour une boucle coin,  $\beta$  vaut

$$\beta = \cos^2(\vec{b}, \vec{\sigma}) = \cos^2 \theta > 0$$

Si la boucle n'est pas coin, mais basculée d'un angle  $\psi$  par rapport à la position coin,  $\beta$  devient :

$$\beta' = \frac{\cos \theta \left| \cos(\theta \pm \psi) \right|}{\cos \psi}$$

ou encore

$$\beta' = \beta \left| 1 \mp \text{tg } \theta \text{ tg } \psi \right|$$

(dans ces expressions,  $\theta = (\vec{b}, \vec{\sigma})$  et  $\psi = (\vec{b}, \vec{s})$  sont définis comme des angles arithmétiques aigus).

Le signe  $\mp$  dépend à la fois de la nature de la boucle et de la contrainte.

On montre facilement que l'on peut écrire :

$$\beta' = \beta \left| 1 - \lambda \eta \text{tg } \theta \text{ tg } \psi \right|$$

avec les conventions suivantes :

$\lambda = \pm 1$  suivant que la boucle est lacunaire ou interstitielle,

$\eta = \pm 1$  suivant que la contrainte est de traction ou de compression.

**- Facteur géométrique associé à une population de boucles sous contrainte**

L'énergie d'interaction des boucles avec la contrainte dépend de leur taille ; l'angle d'équilibre  $\psi$  en dépend aussi.

A chaque rayon de boucle  $r$  correspond à un angle  $\psi(r)$  et un coefficient  $\beta'(r)$ . Si  $G(r)$  est la fraction des boucles de rayon  $r$  à  $dr$  près, l'allongement dû à une population de boucles ayant adopté leur position d'équilibre avec la contrainte se caractérise par un coefficient géométrique moyen  $\gamma$  :

$$\gamma = \beta \frac{\int_0^{+\infty} r^2 |1 - \lambda \eta \operatorname{tg} \theta \operatorname{tg} \psi(r)| G(r) dr}{\int_0^{+\infty} r^2 G(r) dr}$$

**- Angle de basculement à l'équilibre**

La boucle adopte la position d'équilibre qui minimise son énergie totale, somme de son énergie propre  $W_S$  et de son énergie d'interaction  $W_I$  avec la contrainte appliquée. L'angle  $\psi(r)$  s'obtient donc en résolvant l'équation

$$\frac{\delta}{\delta \psi} (W_S + W_I) = 0$$

$W_S$  et  $W_I$  étant calculées en fonction de  $\psi$  à nombre de défauts constants.

. Le calcul de  $W_S(\psi)$  a été effectué par BULLOUGH et FOREMAN / 64 / dans le cas d'une boucle circulaire faisant un angle  $\psi$  avec son vecteur de Burgers. Dans nos notations :

$$W_S = \frac{\mu b^2 r}{4(1-\nu)\sqrt{\cos\psi}} \left\{ (2 - \nu \sin^2\psi) \ln \left( \frac{8r}{r_0 \sqrt{\cos\psi}} \right) + \sin^2\psi \left[ \frac{3-2\nu}{4(1-\nu)} - 5 - 2\nu \right] - \cos^2\psi \cdot \frac{5-6\nu}{2(1-\nu)} \right\}$$

( $r_0$  est le rayon de coeur de la dislocation).

Lorsque l'on traite de la réorientation d'une boucle sous l'effet d'une modification de contrainte appliquée, il faut en toute rigueur tenir compte du changement de forme subi par la boucle basculant sur son cylindre de glissement / 65 , 66 /. Toutefois, comme l'ont souligné EYRE et BULLOUGH / 67 /, ce raffinement de calcul ne modifie pas sensiblement les résultats.

. L'énergie d'interaction d'une boucle avec une contrainte appliquée s'écrit dans le cas général / 68 / :

$$W_I = \bar{b} \cdot \bar{\sigma} \cdot \bar{S}$$

soit, dans le cas particulier d'une contrainte uniaxiale :

$$W_I = \lambda \eta \pi r^2 b \sigma \beta \left| 1 - \lambda \eta \operatorname{tg} \theta \operatorname{tg} \psi \right|$$

- Résultats

Sur la figure 43 a été porté l'angle de basculement en fonction du rayon de la boucle pour diverses contraintes. On constate que, même à contrainte nulle, les boucles très petites ne sont pas coin à l'équilibre. Pour des rayons plus grands, c'est l'énergie d'interaction avec la contrainte qui devient le moteur du basculement.

Le calcul du coefficient géométrique moyen  $\gamma$  relatif à une population de boucles a été effectué en adoptant un spectre de tailles  $G(r)$  sensiblement gaussien, correspondant aux observations faites par microscopie électronique (la partie de la courbe de Gauss correspondant aux rayons négatifs a évidemment été tronquée). La figure 44 montre l'accroissement du rapport  $\frac{\gamma}{\beta}$  avec la contrainte pour une population de boucles interstitielles  $\frac{a}{2} [111]$  ou  $\frac{a}{2} [11\bar{1}]$ , en traction suivant  $[110]$ ,  $G(r)$  étant caractérisée par une valeur moyenne  $80 \text{ \AA}$  et un écart-type  $40 \text{ \AA}$ .

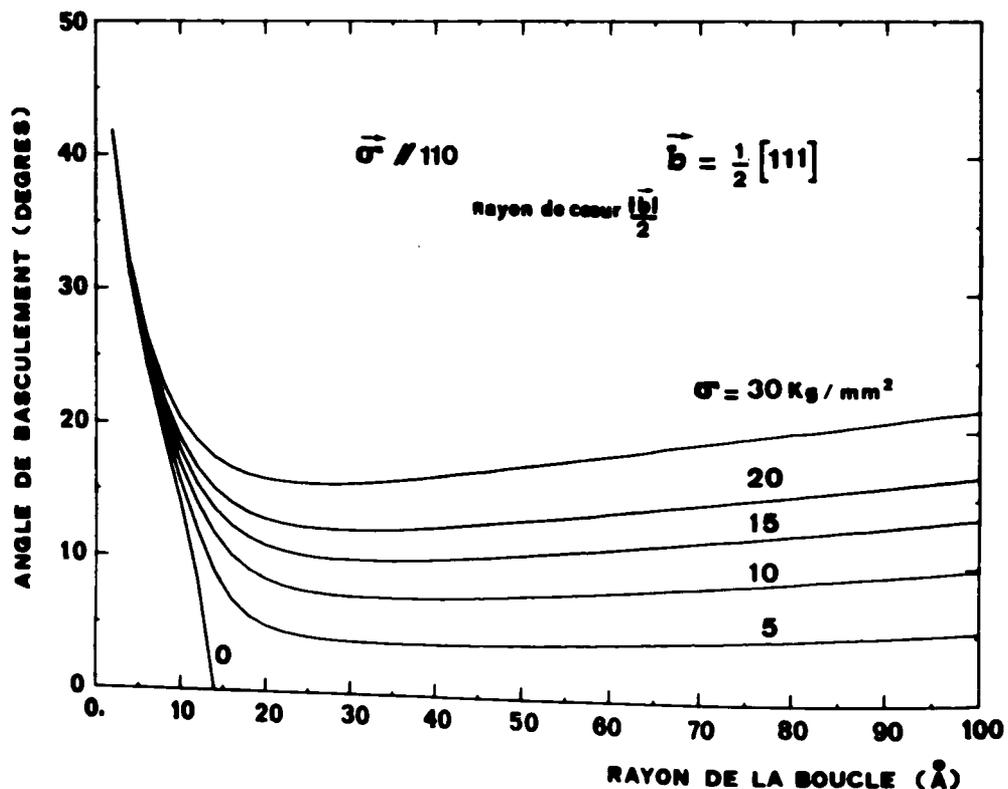
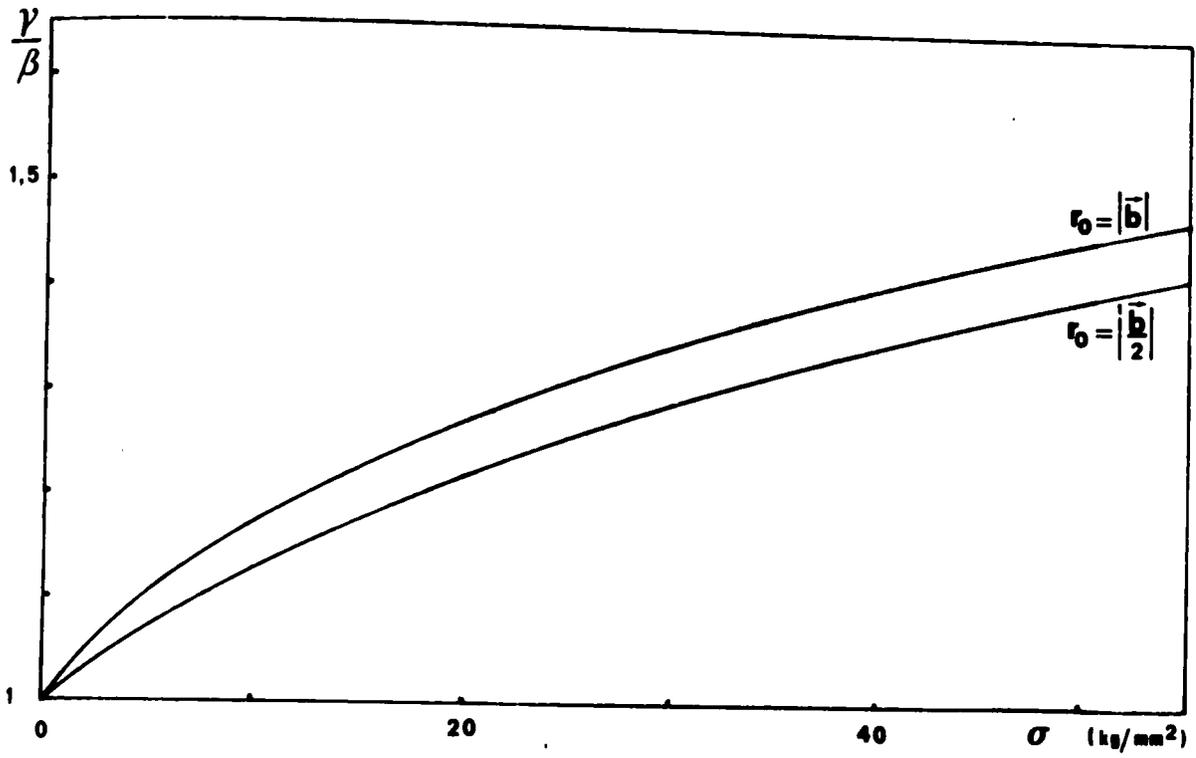


Fig.43: Angle de basculement en fonction du rayon de la boucle, pour diverses contraintes appliquées.



**Fig.44:** Evolution du rapport  $\frac{\gamma}{\beta}$  avec la contrainte appliquée.

## ANNEXE VIII

### DEFAUTS CRES PAR LES FRAGMENTS DE FISSION DANS LE MOLYBDENE A BASSE TEMPERATURE

L'analyse des mesures de vitesses initiales d'allongement et d'augmentation de résistivité repose sur les hypothèses suivantes :

- les lacunes créées par un fragment de fission en tout début d'irradiation ne se condensent pas, et subsistent à l'état de monolacunes.
- après une cascade de déplacements initiale, une fraction  $k$  des interstitiels créés subsiste à l'état isolé, cependant que la fraction  $(1 - k)$  se condense en petites boucles.
- on néglige la résistivité des boucles de dislocation devant celle des défauts ponctuels isolés.

En l'absence de contrainte, les boucles formées s'équi-répartissent entre les quatre vecteurs de Burgers  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ . La contribution à l'allongement d'une concentration  $c$  de défauts condensés en boucles est, suivant toute direction :

$$\left| \frac{\Delta L}{L} \right| = \frac{1}{3} c$$

Dans notre géométrie (figure 29), une forte contrainte de traction parallèle à  $[110]$  fait adopter aux boucles interstitielles les vecteurs  $\frac{a}{2} [111]$  et  $\frac{a}{2} [11\bar{1}]$ , de préférence aux deux autres. Nous avons vu (cf. Annexe VII) que des boucles de petite taille ne sont pas coin, quelle que soit la contrainte appliquée, mais que leur position d'équilibre est définie par un angle  $\psi = (\vec{b}, \vec{s})$  voisin de 45 degrés. Dans ces conditions, la contribution à l'allongement de  $c$  interstitiels condensés en petites boucles sous forte contrainte vaut

$$\frac{2}{3} \left( 1 + \frac{\text{tg } \psi}{\sqrt{2}} \right) c$$

soient :

$c$  la concentration atomique en paires de Frenkel créées,

$c_l = c$  la concentration atomique en lacunes libres,

$c_i = k c$  la concentration en interstitiels libres,

$c_i^0 = (1 - k) c$  la concentration en interstitiels condensés en boucles,

$V_{fl}$  le volume de formation d'une lacune (exprimé en fraction de volume atomique),

$V_{fi}$  le volume de formation d'un interstitiel,

$\Delta V_l = V_{fl} - 1$  le volume de relaxation autour d'une lacune,

$\Delta V_i = V_{fi} + 1$  le volume de relaxation autour d'un interstitiel.

A contrainte nulle, et pour les fissions initiales

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{3} [ \Delta V_l c_l + \Delta V_i c_i + c_i^0 ]$$

D'où

$$\frac{d}{dc} \left( \frac{\Delta L}{L} \right) = \frac{1}{3} [ \Delta V_l + k \Delta V_i + 1 - k ]$$

$$\frac{d}{dc} \left( \frac{\Delta L}{L} \right) = \frac{1}{3} \left[ V_{f1} + k V_{fi} \right]$$

A forte contrainte :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{3} \left[ \Delta V_1 c_1 + \Delta V_i c_i + 2 \left( 1 + \frac{\text{tg } \phi}{\sqrt{2}} \right) c_i^0 \right]$$

D'où

$$\frac{d}{dc} \left( \frac{\Delta L}{L} \right) = \frac{1}{3} \left[ \Delta V_1 + k \Delta V_i + 2 (1 - k) \left( 1 + \frac{\text{tg } \phi}{\sqrt{2}} \right) \right]$$

$$\frac{d}{dc} \left( \frac{\Delta L}{L} \right) = \frac{1}{3} \left[ V_{f1} + k V_{fi} + (1 - k) \left( 1 + \sqrt{2} \text{tg } \phi \right) \right]$$

soient d'autre part

$\rho_1$  la résistivité spécifique de 1 % de lacunes,

$\rho_i$  la résistivité spécifique de 1 % d'interstitiels,

$\rho_F = \rho_i + \rho_1$  la résistivité de 1 % de paires de Frenkel

$$q = \frac{\rho_i}{\rho_1}$$

Quelle que soit la contrainte appliquée, on a :

$$\frac{d}{dc} (\Delta \rho) = 100 (\rho_1 + k \rho_i) = 100 \rho_F \frac{1 + k q}{1 + q}$$

Sachant que pour des échantillons de molybdène de  $10 \mu$  d'épaisseur :

$$\frac{d c}{d \rho} = \frac{N}{6.10^{22}} \left( \text{FF/cm}^3 \right)^{-1}$$

où  $N$  est le nombre de paires de Frenkel créées par fragment de fission moyen, les relations précédentes fournissent, compte tenu des valeurs expérimentales, le système d'équations suivant :

$$N (V_{f1} + k V_{fi}) = 6\,300 \pm 3\,600$$

$$N (1 - k) (1 + \sqrt{2} \operatorname{tg} \psi) = 16\,200 \pm 9\,700$$

$$N \rho_F \frac{1 + k q}{1 + q} = 3.10^5 \quad (\rho_F \text{ en } \mu\Omega \text{ cm} / \%)$$

A ce système d'équations, nous pouvons ajouter la condition  $N < 45\,000$ , obtenue d'après le critère de KINCHIN et PEASE / 15 /.

Pour les petites boucles qui se forment au sein des premières cascades de déplacements,  $\psi$  est proche de 45 degrés (cf. Annexe VII) ;  $\operatorname{tg} \psi$  est donc voisin de 1. On obtient donc immédiatement le nombre d'interstitiels condensés en boucles par fragment de fission moyen en début d'irradiation :

$$N (1 - k) = 6\,700 \pm 4\,000$$

D'autre part, la résistivité de 1 % de paires de Frenkel dans le molybdène est très voisine de  $3 \rho_0$ , soit environ  $15 \mu\Omega \text{ cm} / \% / 30 /$ . On a donc :

$$N = 20\,000 \frac{1 + q}{1 + k q}$$

La valeur de  $q = \frac{\rho_i}{\rho_l}$  est probablement de l'ordre de 2 / 33 /, mais n'est pas connue avec certitude dans le molybdène. C'est pourquoi, ne souhaitant pas, dans un premier temps, faire d'hypothèse sur  $q$ , nous nous contenterons d'encadrer  $N$  par les valeurs extrêmes correspondant à  $q = 0$  et  $q = +\infty$  :

$$20\,000 < N < \frac{20\,000}{k}$$

Finalemment, on obtient ainsi :

- le nombre de paires de Frenkel créées initialement par fragment de fission moyen :

$$20\ 000 < N < 30\ 000 \begin{matrix} + 13\ 000 \\ - 7\ 000 \end{matrix}$$

(les signes d'inégalité représentent une ignorance complète sur  $q$  ; les signes  $\pm$  correspondent à la dispersion des résultats expérimentaux).

- la fraction d'interstitiels non condensés à l'issue d'une cascade de déplacements initiale :

$$67\ \% \bar{+} 20\ \% < k < 85\ \% \bar{+} 9\ \%$$

- la quantité  $V_{fl} + k V_{fi}$ , comprise dans la fourchette :

$$0,21 \begin{matrix} + 0,02 \\ - 0,09 \end{matrix} < V_{fl} + k V_{fi} < 0,31 \begin{matrix} + 0,14 \\ - 0,14 \end{matrix}$$

Si nous adoptons pour  $q$  la valeur  $q = 2$ , nous obtenons les valeurs suivantes :

$$N = 24\ 500 \begin{matrix} + 2\ 700 \\ - 2\ 600 \end{matrix}$$

$$k = 72\ \% \begin{matrix} - 12\ \% \\ + 15\ \% \end{matrix}$$

$$V_{fl} + k V_{fi} = 0,26 \begin{matrix} + 0,1 \\ - 0,14 \end{matrix}$$

Selon toute vraisemblance, le volume de relaxation autour d'une lacune est fortement négatif dans le molybdène :

- à l'aide d'un modèle de réseau discret, HEALD et al. prévoient une relaxation de - 0,3 volume atomique / 70, 71, 72 /.

- des mesures simultanées de longueur et de paramètre cristallin / 73 / permettent de proposer la valeur  $\Delta V_i \simeq -0,7$ .

- HANADA / 74 / prévoit à partir de quelques résultats expérimentaux / 73 , 75 / la valeur  $\Delta V_i = -0,55$ .

Si l'on admet par conséquent que  $-0,7 < \Delta V_i < -0,3$  c'est-à-dire que  $0,3 < V_{fi} < 0,7$ , on obtient l'inégalité :

$$-0,44 \begin{matrix} +0,1 \\ -0,14 \end{matrix} < k V_{fi} < -0,04 \begin{matrix} +0,1 \\ -0,14 \end{matrix}$$

D'où

$$-0,6 \begin{matrix} +0,03 \\ -0,07 \end{matrix} < V_{fi} < -0,055 \begin{matrix} +0,15 \\ -0,16 \end{matrix}$$

Le volume de formation de l'interstitiel dans le molybdène est donc sans aucun doute négatif. C'est dire que son volume de relaxation  $\Delta V_i$  est inférieur à l volume atomique. On le trouve défini par la fourchette :

$$0,4 \begin{matrix} +0,03 \\ -0,07 \end{matrix} < \Delta V_i < -0,95 \begin{matrix} +0,15 \\ -0,16 \end{matrix}$$

Ce résultat est conforme aux prévisions théoriques / 70 , 71 , 72 /, qui donnent  $\Delta V_i \simeq 0,6$ .

On trouve donc que le volume de formation d'une paire de Frenkel dans le molybdène est assez faible ; il se situe dans la fourchette :

$$0,1 \begin{matrix} +0,03 \\ -0,07 \end{matrix} < V_{fp} < 0,25 \begin{matrix} +0,15 \\ -0,16 \end{matrix}$$

## ANNEXE IX

### FLUAGE TRANSITOIRE LORS D'UN CHANGEMENT DE CONTRAINTE APPLIQUEE

Soit  $c(\vartheta_c)$  la concentration globale de défauts ponctuels condensés en boucles à la fluence  $\vartheta_c = 1,6 \cdot 10^{17}$  FF/cm<sup>3</sup>, à laquelle la contrainte est portée d'une valeur faible à la valeur  $\sigma = 30$  kg/mm<sup>2</sup>. Les boucles présentes à  $\vartheta_c$  se sont formées sous faible contrainte ; les quatre vecteurs de Burgers  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$  sont donc également représentés. Dans notre géométrie (figure 29), deux d'entre eux sont perpendiculaires à la contrainte appliquée et n'interagissent pas avec elle. Seuls,  $\frac{c(\vartheta_c)}{2}$  défauts condensés sont donc concernés par le basculement.

Dans notre géométrie, une boucle de vecteur  $\frac{a}{2} [111]$  ou  $\frac{a}{2} [1\bar{1}\bar{1}]$ , basculée d'un angle  $\psi$ , et représentant une concentration  $c$  de défauts ponctuels condensés, induit suivant  $[110]$  une variation de longueur :

$$\pm \frac{2}{3} \left( 1 \pm \frac{\sqrt{2}}{2} \operatorname{tg} \psi \right) c \quad \text{suivant sa nature.}$$

L'allongement transitoire ( $\delta \epsilon_\sigma = \epsilon_\sigma^* - 0,55 \epsilon_\sigma$ ) qui succède au changement de contrainte suit donc la loi :

$$\delta \epsilon_\sigma(\vartheta - \vartheta_c) = \frac{\sqrt{2}}{3} \frac{c}{2} \operatorname{tg} \psi \left\{ 1 - \exp - [v_\sigma(\vartheta - \vartheta_c)] \right\}$$

La variation de vitesse de fluage s'écrit par conséquent :

$$\delta \dot{\epsilon}_{\sigma} = \frac{\sqrt{2}}{3} \cdot \frac{c}{2} \cdot v_{\sigma} \cdot \text{tg } \psi \cdot \exp \{ -v_{\sigma} (\vartheta - \vartheta_c) \}$$

Ainsi en portant  $\ln \delta \dot{\epsilon}_{\sigma}$  en fonction de  $(\vartheta - \vartheta_c)$ , on accède :

- par la pente de la droite obtenue, au volume  $v_{\sigma}$  échauffé par chaque fragment de fission à la température  $T_{\sigma}^{\star}$  permettant le glissement facile des dislocations sous la contrainte  $\sigma$  ;
- par son ordonnées à l'origine, à la concentration  $c$  de défauts condensés en boucles au moment de la modification de contrainte appliquée.

Compte tenu des contraintes internes, l'application d'une contrainte de  $30 \text{ kg/mm}^2$  correspond à une contrainte effectivement ressentie par les boucles d'environ  $15 \text{ kg/mm}^2$ . L'angle  $\psi$  correspondant est de 10 à 15 degrés pour un large spectre de tailles de boucles (de 20 à 200 Å). On pourra donc prendre dans les applications numériques  $\text{tg } \psi$  compris entre 0,2 et 0,3. Les incertitudes données dans le texte tiennent compte de cette fourchette.

## ANNEXE X

### LES RECOMBINAISONS ENTRE BOUCLES

1 - Soit une concentration  $c$  de défauts condensés en boucles  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$  interstitielles et lacunaires, supposées de même taille, et susceptibles de se recombinaisonner à l'occasion de rencontres aléatoires.

Nous affecterons les boucles fournissant une déformation suivant  $\sigma$  des indices 1 et 2, et les boucles de vecteurs de Burgers perpendiculaires à  $\sigma$  des indices 3 et 4 (cf. figure 29).

Cette population initiale de boucles est caractérisée par les probabilités d'apparition  $p_I$  pour les boucles interstitielles  $I_1$  et  $I_2$ ,  $\frac{1 - 2 p_L}{2}$  pour les boucles  $I_3$  et  $I_4$ ;  $p_L$  pour les boucles lacunaires  $L_1$  et  $L_2$ ,  $\frac{1 - 2 p_I}{2}$  pour les boucles  $L_3$  et  $L_4$ .

Sa contribution à l'allongement est / 38 / :

$$\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_0 = \frac{4}{3} (p_I - p_L) c$$

(par simplification, on suppose dans cette analyse les boucles purement coin).

Les recombinaisons possibles au premier degré entre ces boucles sont les suivantes :

- Recombinaisons  $I_i - L_j$ , destructrices quels que soient  $i$  et  $j$ . Aux fluences élevées auxquelles se produit l'essentiel de ces recombinaisons, on peut admettre que les concentrations d'interstitiels et de lacunes condensés sont égales. Dans ce cas, les recombinaisons entre boucles de natures opposées se produisent statistiquement dans un cas sur deux. Si  $\alpha$  est le taux de recombinaison, elles concernent donc  $\frac{\alpha}{2} c$  défauts condensés.

- Recombinaisons  $I_1 - I_2$ ,  $L_1 - L_2$ ,  $I_3 - I_4$ ,  $L_3 - L_4$ , qui fournissent des boucles de vecteur  $a [001]$  ou  $a [00\bar{1}]$  ne contribuant pas à l'allongement suivant  $[110]$ .

- Recombinaisons  $I_1$  (ou 2) -  $I_3$  (ou 4),  $L_1$  (ou 2) -  $L_3$  (ou 4), donnant des boucles de vecteurs  $a [100]$  et  $a [010]$  contribuant individuellement à l'allongement suivant  $[110]$ .

- Recombinaisons de type  $I_i - I_i$  et  $L_j - L_j$  (quels que soient  $i$  et  $j$ ), qui laissent subsister des boucles  $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ , deux fois plus grosses que les boucles initiales, et susceptibles de se recombinaisonner au deuxième degré.

2 - Le problème est donc d'étudier l'effet des recombinaisons conduisant aux boucles  $a [100]$  et  $a [010]$ .

Ces recombinaisons résultent de la rencontre de boucles ayant des probabilités d'apparition  $p_I$  et  $\frac{1-2p_L}{2}$  ou  $p_L$  et  $\frac{1-2p_I}{2}$ . Elles ont donc les probabilités  $\frac{\alpha}{2} p_I \left( \frac{1-2p_I}{2} \right)$  et  $\frac{\alpha}{2} p_L \left( \frac{1-2p_L}{2} \right)$  de se réaliser. Pour une nature de boucles donnée, quatre recombinaisons de ce type sont possibles ; elles contribuent chacune pour  $\frac{1}{2}$ , par défaut condensé, à l'allongement (cf. Annexe VI).

L'effet global du réseau de boucles  $a [100]$  obtenu par recombinaisons au premier ordre est donc :

$$\frac{\alpha}{2} \cdot 4 \cdot \frac{1}{2} \left\{ p_I \left( \frac{1-2p_I}{2} \right) - p_L \left( \frac{1-2p_L}{2} \right) \right\}$$

soit, si les recombinaisons au premier degré sont complètes ( $\alpha = 1$ )

$$\left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{r_1} = p_I \left( \frac{1-2p_I}{2} \right) - p_L \left( \frac{1-2p_L}{2} \right)$$

### 3 - Recombinaisons au degré n

Elles proviennent de la recombinaison des boucles  $\frac{\alpha}{2} [111]$  formées au degré  $(n-1)$  par rencontres  $l_i - l_i$  et  $L_i - L_i$ . On montre facilement que la contribution à l'allongement des boucles  $a [100]$  et  $a [010]$  formées par rencontres au deuxième degré est :

$$\left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{r_2} = 2 \left\{ p_I^2 \left( \frac{1-2p_I}{2} \right)^2 - p_L^2 \left( \frac{1-2p_L}{2} \right)^2 \right\} c$$

De façon générale, au degré n :

$$\left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{r_n} = \sum_{n=1}^{\infty} q_n \left\{ p_I^{q_n} \left( \frac{1-2p_I}{2} \right)^{q_n} - p_L^{q_n} \left( \frac{1-2p_L}{2} \right)^{q_n} \right\} c$$

avec  $q_n = 2^{n-1}$

Cette relation montre que le réseau de boucles a [ 100 ] formé par recombinaisons ne contribue pas globalement au fluage dans trois cas :

- à contrainte nulle, lorsque  $p_I = p_L = \frac{1}{4}$
- à très forte contrainte, lorsque les populations de boucles lacunaires et interstitielles sont complètement différenciées ( $p_I = \frac{1}{2}$  et  $p_L = 0$ )
- si les tailles des germes des boucles lacunaires et interstitielles sont égales ( $p_I = \frac{1 - 2 p_L}{2}$ ).

#### 4 - Cas général au premier degré

. La valeur maximale de  $(\frac{\Delta L}{L})_{r_1}$  est  $\frac{c}{16}$ . Cette valeur est obtenue pour  $p_L = 0$  et  $p_I = \frac{1}{4}$ , ce qui représente le cas peu réaliste d'une polarisation complète des boucles lacunaires, et d'une répartition isotrope des boucles interstitielles. Même dans ce cas, l'allongement après recombinaisons reste faible devant celui de la population initiale de boucles ( $(\frac{\Delta L}{L})_0 = \frac{c}{3}$ ).

. Selon toute vraisemblance, les nombres de défauts constituant les germes des boucles lacunaires et interstitielles sont tels que  $N_I \geq 3$ ,  $N_L \leq 10$ , et  $N_I < N_L / 38,76$  /. Pour obtenir une majorante de l'allongement induit par les boucles après recombinaisons, on peut s'intéresser au cas extrême où  $N_I = 3$  et  $N_L = 10$ . On trouve que les contributions des boucles formées par recombinaisons sont très faibles :

- sous  $10 \text{ kg/mm}^2$ ,  $(\frac{\Delta L}{L})_{r_1} = 0,038 c$ , à comparer avec  $(\frac{\Delta L}{L})_0 = 0,47 c$  ;
- sous  $20 \text{ kg/mm}^2$ ,  $0,022 c$  à comparer avec  $0,6 c$  ;
- sous  $30 \text{ kg/mm}^2$ ,  $0,01 c$  à comparer avec  $0,64 c$ .

## ANNEXE XI

### FLUAGE PAR MONTEE D'UN RESEAU ISOTROPE SATURE EN DISLOCATIONS

La trame du calcul que nous présentons ici est due à HEALD et SPEIGHT / 54 /. Quelques inexactitudes amènent ces auteurs à trouver une vitesse de fluage trop forte de près d'un ordre de grandeur. Par suite, ils interprètent le fluage observé par J. PONSOYE / 4 / a des doses de quelques  $10^{-1}$  d.p.a. en termes de montée d'un réseau de dislocations (or nous savons bien qu'à ces doses, le fluage est principalement dû à la germination orientée de boucles de dislocation). Nous avons voulu préciser l'importance que peut avoir, aux fortes doses, ce mécanisme de montée. C'est dans ce but que nous avons repris, sous une forme un peu différente, le calcul de HEALD et SPEIGHT.

#### - Montée en l'absence de contrainte appliquée

En l'absence de contrainte appliquée, l'expérience montre que, dès que les défauts ponctuels ont atteint leur concentration de saturation, la longueur de l'échantillon n'évolue plus. C'est dire qu'en moyenne, chaque segment de dislocation ne monte pas, car il absorbe un nombre égal de lacunes et d'interstitiels.

Lors d'une irradiation à basse température, on peut, en première approximation, négliger la diffusion aléatoire des défauts ponctuels. Ceux-ci peuvent s'annihiler spontanément, au sein d'un volume de recombinaison de quelques centaines de volumes atomiques / 77 /. Une partie des défauts créés échappe à ces recombinaisons, et, subissant de la part des dislocations une interaction à longue distance, est attirée par le réseau.

Dans un modèle élastique simple, on peut écrire l'énergie d'interaction dislocation-défaut :

$$W_{int} = p \cdot \Delta V_i$$

où  $p$  est la pression hydrostatique exercée par la dislocation sur le défaut de type  $i$ , et  $\Delta V_i$  est la variation de volume locale associée à la création du défaut (ou volume de relaxation). Pour la lacune ( $i = L$ ),  $V_i$  est égal à  $V_{fL} - V_{at}$  ; pour l'interstitiel ( $i = I$ ),  $V_i$  vaut  $V_{fI} + V_{at}$ . ( $V_{fL}$  et  $V_{fI}$  représentent ici les volumes de formation de la lacune et de l'interstitiel).

La pression hydrostatique qu'exerce une dislocation coin à la distance  $r$  s'écrit / 78 / :

$$p = \frac{1}{3\pi} \frac{1+\nu}{1-\nu} \mu b \frac{\sin \theta}{r}$$

Si l'on néglige la variation angulaire en  $\sin \theta$ , l'énergie d'interaction dislocation-défaut  $i$  vaudra donc au maximum :

$$W_{int}^i = \pm \frac{1}{3\pi} \frac{1+\nu}{1-\nu} \frac{\mu b}{r} \Delta V_i$$

(le signe + correspond à un défaut situé dans le voisinage de la dislocation en compression).

Sous l'effet de la force  $-\frac{\delta W_{int}^i}{\delta r}$ , les défauts acquièrent une vitesse d'entraînement donnée par la relation d'Einstein :

$$v_i = - \frac{D_i}{kT} \frac{\delta W_{int}^i}{\delta r}$$

où  $D_i$  est le coefficient de diffusion du défaut de type  $i$ .

Le flux de défauts allant vers la dislocation est donc :

$$J_i = \left| - \frac{C_i D_i}{kT} \frac{\delta W_{int}^i}{\delta r} \right|$$

( $C_i$  est la concentration à l'état stationnaire en défauts  $i$ ).

Le nombre de défauts absorbés en une seconde par un cm de dislocation est :

$$\begin{aligned} \dot{Q}_i &= 2 \pi b J_i (r = b) \\ &= \frac{2}{3} \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \mu \Delta V_i \frac{C_i D_i}{kT} \end{aligned}$$

Puisqu'en l'absence de contrainte les dislocations absorbent un nombre égal de lacunes et d'interstitiels, on a :

$$\dot{Q}_I = \dot{Q}_L$$

D'où :

$$\Delta V_I C_I D_I = \Delta V_L C_L D_L$$

Si, par fragment de fission,  $N_i^*$  défauts de chaque type échappent aux recombinaisons et vont sur les dislocations, et si  $\phi$  est le flux en FF/cm<sup>3</sup>.s, les

dislocations absorbent, par unité de volume et de temps, un nombre  $\dot{N}_i$  de défauts, tel que :

$$\dot{N}_i = N_i^* \cdot \varphi = \dot{Q}_i \cdot \Lambda$$

où  $\Lambda$  représente la densité de dislocations (en  $\text{cm}/\text{cm}^3$ ).

La densité de dislocations à l'état stationnaire vaut donc :

$$\Lambda = \frac{3(1-\nu)}{2(1+\nu)} \frac{\dot{N}_i}{\mu \Delta V_i} \frac{kT}{C_i D_i}$$

### - Contrainte appliquée non nulle

Sous l'effet d'une contrainte appliquée, les interactions entre dislocations et défauts ponctuels vont être modifiées, ce qui va conduire à une préférence de certaines dislocations du réseau pour les lacunes, et à une préférence de certaines autres pour les interstitiels. Les dislocations vont ainsi monter de façon à induire un allongement dans la direction de la traction appliquée, et une contraction dans la direction transverse. Ceci est illustré schématiquement par la figure 33.

Notre problème consiste à évaluer la variation  $\delta W_{\text{int}}^i$  de l'énergie d'interaction dislocation-défaut sous l'effet d'une contrainte uniaxiale appliquée  $\sigma$ .

Nous pouvons, en première approximation, négliger la variation avec  $\sigma$  de la pression exercée par la dislocation. Dans ce cas, en utilisant un modèle d'inclusion élastique, la variation d'énergie d'interaction est due seulement aux inhomogénéités élastiques que constituent dans la matrice les défauts ponctuels. Plus précisément, si l'on assimile le défaut à une inclusion de constantes élastiques

différentes de celles de la matrice,  $\delta W_{int}^i$  provient de la déformation différentielle  $\frac{\delta V_i}{V_i}$  que subit, sous la contrainte  $\sigma$ , le défaut par rapport à la matrice. On a alors :

$$\delta W_{int}^i = p \cdot \delta V_i$$

Nous allons ici faire deux approximations qui majorent l'effet de la contrainte, et par conséquent de la vitesse de fluage. L'interstitiel est considéré comme une inclusion incompressible, définie par son volume  $V_I$  et son volume de relaxation  $\Delta V_I$ . La lacune est infiniment compressible, et son volume est

$$V_L = V_{at} + \Delta V_L$$

- En ce qui concerne l'interstitiel, il est alors facile d'évaluer  $\delta W_{int}^i$  : un volume  $V_I$  de matrice subirait sous la contrainte  $\sigma$  une variation

$$(1 - 2\nu) \frac{\sigma}{E} V_I$$

(E étant le module d'Young de la matrice). L'effet d'un interstitiel incompressible de volume  $V_I$  est donc, compte tenu des forces images (cf. / 79 /), d'imposer localement à la matrice une variation de volume :

$$\delta V_I = -3 \cdot \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \cdot (1 - 2\nu) \cdot \frac{\sigma}{E} V_I$$

La variation d'énergie d'interaction correspondante est donc :

$$\delta W_{int}^i = -3 \frac{(1 - \nu)(1 - 2\nu)}{1 + \nu} \frac{\sigma}{E} p \cdot V_I$$

En prenant  $\nu = 1/3$ , ceci s'écrit :

$$\delta W_{\text{int}}^I = \pm \frac{1}{8\pi} \frac{b\sigma}{r} V_I$$

où le signe + s'applique à un défaut situé dans une région mise en tension par la dislocation.

- Pour traiter le cas de la lacune, considérée comme une inclusion infiniment compressible, il faut faire usage des calculs de GOODIER / 80 / relatifs aux concentrations de contrainte autour d'une cavité sphérique. On tire de ces calculs que, dans un milieu infini, une cavité subit dans la direction de  $\sigma$  un allongement  $\epsilon_{//} = \frac{2\sigma}{E}$ , et dans la direction transverse une contraction  $\epsilon_{\perp} = -\frac{\sigma}{2E}$  (pour  $\nu = 1/3$ ). La déformation différentielle de la cavité par rapport à la matrice est donc, en milieu infini, caractérisée par :

$$\delta \epsilon_{//} = \frac{\sigma}{E}$$

et

$$\delta \epsilon_{\perp} = \nu \frac{\sigma}{E} - \frac{\sigma}{2E} = -\frac{\sigma}{6E}$$

En milieu fini, la variation différentielle de volume est donc :

$$\begin{aligned} \delta V_L &= 3 \cdot \frac{1-\nu}{1+\nu} \left( \frac{\sigma}{E} - \frac{2\sigma}{6E} \right) \cdot V_I \\ &= 2 \cdot \frac{1-\nu}{1+\nu} \cdot \frac{\sigma}{E} V_L \end{aligned}$$

D'où la variation d'énergie d'interaction dislocation-lacune sous l'effet de la contrainte :

$$\delta W_{\text{int}}^L = \mp \frac{2}{3\pi} \frac{\mu b}{r} \frac{\sigma}{E} V_L$$

Avec  $\nu = 1/3$ , ceci s'écrit :

$$\delta W_{int}^L = \mp \frac{1}{4\pi} \frac{\sigma b}{2} V_L$$

(le signe - s'applique à un défaut situé dans une région mise en tension par la dislocation). (+).

On peut maintenant calculer le flux net de défauts (lacunaires ou interstitiels) attirés préférentiellement vers un segment donné de dislocation. Il vaut :

$$J = |J_I - J_L| = \left| \frac{C_I D_I}{kT} \frac{\delta}{\delta r} (\delta W_{int}^I) + \frac{C_L D_L}{kT} \frac{\delta}{\delta r} (\delta W_{int}^L) \right|$$

soit :

$$J = \frac{1}{4\pi r^2} \frac{\sigma b}{kT} \left| \frac{C_I D_I V_I}{2} - C_L D_L V_L \right|$$

Le nombre d'atomes (ou de lacunes) absorbés par cm de dislocation en une seconde est donc :

$$\begin{aligned} \dot{Q}_i &= 2\pi b J (r=b) \\ &= \frac{\sigma}{2kT} \left| \frac{C_I D_I V_I}{2} - C_L D_L V_L \right| \end{aligned}$$

soient  $\Lambda^I$  et  $\Lambda^L$  les densités de dislocations attirent respectivement de façon préférentielles les interstitiels et les lacunes. Dans un réseau isotrope :

(+) On aurait trouvé les mêmes valeurs des déformations différentielles en appliquant à nos cas particuliers les relations établies par ESHELBY pour une inclusion de constantes élastiques quelconque / 81 /. Mais il nous semble qu'une telle présentation aurait, par trop d'abstraction, masqué le caractère assez intuitif du calcul, surtout dans le cas de l'interstitiel.

$$\Lambda^I = \Lambda^L = \frac{\Lambda}{2}$$

L'allongement suivant  $\sigma$  est proportionnel au nombre  $\dot{R}_i$  de défauts absorbés par  $\text{cm}^3$  et par seconde sur les dislocations de type  $i$  :

$$\dot{R}_i = \frac{\Lambda}{2} \dot{Q}_i$$

Avec  $\nu = 1/3$ ,  $\dot{R}_i$  s'écrit :

$$\dot{R}_i = \frac{3}{16} \frac{\sigma}{\mu} \frac{\dot{N}_i}{\Delta V_i C_i D_i} \left| \frac{C_i D_i V_i}{2} - C_L D_L V_L \right|$$

Or, nous avons montré que

$$\Delta V_i C_i D_i = \Delta V_I C_I D_I = \Delta V_L C_L D_L$$

Par conséquent :

$$\dot{R}_i = \frac{3}{16} \frac{\sigma}{\mu} \dot{N}_i \left| \frac{V_i}{2 \Delta V_i} - \frac{V_L}{\Delta V_L} \right|$$

Si  $N_i$  est le nombre de paires de Frenkel créées par fragment de fission en tout début d'irradiation, et  $\delta$  le taux de recombinaisons spontanées de ces paires à forte fluence, le nombre d'atomes absorbés par les dislocations dans  $1 \text{ cm}^3$  est alors, pour une fluence  $\varphi \cdot t$  exprimée en  $\text{FF}/\text{cm}^3$  :

$$\dot{R}_i \cdot t = \frac{3}{16} \frac{\sigma}{\mu} N_i (1 - \delta) \cdot \varphi \cdot t \left| \frac{V_i}{2 \Delta V_i} - \frac{V_L}{\Delta V_L} \right|$$

La montée correspondante des dislocations induit l'allongement :

$$\epsilon = \frac{\dot{R}_i \cdot t}{N_o}$$

(où  $N_o$  est le nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$ ).

La vitesse de fluage est donc (par  $\text{FF}/\text{cm}^3$ ) :

$$\dot{\epsilon} = \frac{1}{\varphi} \frac{d\epsilon}{dt} = \frac{3}{16} \frac{\sigma}{\mu} \frac{N_i (1 - \delta)}{N_o} \left| \frac{V_i}{2 \Delta V_i} - \frac{V_L}{\Delta V_L} \right|$$

ou :

$$\dot{\epsilon} = \frac{\sigma}{2 E} \frac{N_i (1 - \delta)}{N_o} \left| \frac{V_i}{2 \Delta V_i} - \frac{V_L}{\Delta V_L} \right|$$

En unités universelles, c'est-à-dire par unité de déformation élastique appliquée ( $\frac{\sigma}{E} = 1$ ) et pour une concentration d'atomes déplacés égale à

( $\frac{N_i}{N_o} = 1$ ), cette vitesse de fluage s'écrit :

$$\dot{\epsilon}_u = \frac{1 - \delta}{2} \left| \frac{V_i}{\Delta V_i} - \frac{V_L}{\Delta V_L} \right|$$

Pour le molybdène, il est raisonnable (cf. Annexe VIII) de prendre pour la lacune  $V_L \approx 0,5 V_{at}$  et  $\Delta V_L \approx -0,5 V_{at}$ . Pour l'interstitiel,  $V_i \approx 1 V_{at}$  et  $\Delta V_i \approx 0,5 V_{at}$  constituent des valeurs convenables.

La vitesse de fluage correspondant à la montée d'un réseau s'écrit donc :

- exprimée en  $(FF/cm^3)^{-1}$  :

$$\dot{\epsilon} = \frac{\sigma}{E} \frac{N_i (1 - \delta)}{N_0}$$

- en unités universelles (par d.p.a. et unité de déformation) :

$$\dot{\epsilon}_u = 1 - \delta$$

où  $\delta$  représente le taux de recombinaisons spontanées des défauts ponctuels.

#### - ADDITIF

Dans un article paru très récemment, BULLOUGH et WILLIS / 83 / reprennent également le problème du fluage lié à la montée d'un réseau, en utilisant de façon rigoureuse le modèle du continuum élastique / 81 /. Ils émettent quelques réserves quant à l'universalité de ce processus de fluage, soulignant qu'il dépend fondamentalement des rigidités respectives de la lacune et de l'interstitiel par rapport à la matrice. Ils insistent également sur le fait que ce mécanisme ne peut avoir d'efficacité qu'aux fortes doses d'irradiation, lorsque la densité du réseau formé par recombinaisons de boucles est élevée.

- 8 - E.K. HYDE  
The Nuclear Properties of the Heavy Elements. Vol. 3.  
Prentice Hall (1964).
- 9 - J. KNIPP et E. TELLER  
Phys. Rev., 59, 659 (1941).
- 10 - C.D. MOAK, H.O. LUTZ, L.B. BRIDWELL, L.C. NORTH CLIFFE  
et S. DATZ  
Phys. Rev., 176, 427 (1968).
- 11 - J. LINDHARD et P.V. THOMSEN  
Rad. Dam. in Solids, 1, 65 (1962).
- 12 - J. LINDHARD, M. SCHARFF et H.E. SCHIOTT  
Mat. Fys. Medd., 33, 14 (1963).
- 13 - J.P. GENTHON et P. CHABRY  
Rapport C.E.A. R-1 294 (1971).
- 14 - A.N. GOLAND et A. PASKIN  
J.A.P., 35, 2188 (1964).
- 15 - G.H. KINCHIN et R.F. PEASE  
Reports on Progress in Physics, 18, 1 (1955).
- 16 - R. RIZK, P. VAJDA, A. LUCASSON et P. LUCASSON  
Phys. Stat. Sol. (a), 18, 241 (1973).
- 17 - J.A. BRINKMAN  
J.A.P., 25, 961 (1954).

- 18 - J.R. BEELER  
Phys. Rev., 150 (2), 470 (1966).
  
- 19 - I.M. TORRENS, M.T. ROBINSON et D.K. HOLMES  
Proc. Battelle Colloq. on Interat. Potent. and Simul. of Lattice Defects,  
Plenum Press, N.Y. (1972).
  
- 20 - J.P. GENTHON  
Rapport C.E.A. R-3 712 (1967).
  
- 21 - J. LETEURTRE  
Rapport C.E.A. R-3 607 (1969).
  
- 22 - C. WEINBERG  
Rapport C.E.A. R-4 315 (1972).
  
- 23 - J. LETEURTRE, J.L. POUCHOU, J. SOULLARD et L. ZUPPIROLI  
J. of Nucl. Mat., 54, 254 (1974).
  
- 24 - J.L. POUCHOU, L. ZUPPIROLI et N. HOUSSEAU  
A paraître (1975).
  
- 25 - R.R. CONTE et J. DURAL  
Rev. Phys. Appl., 2, 1 (1967).
  
- 26 - R.R. CONTE  
Rapport C.E.A. R-3 910 (1969).
  
- 27 - R.R. CONTE, J. DURAL et C. WEINBERG  
Note C.E.A. N-1 315 (1970).

- 28 - J. VON STEBUT  
Rapport C.E.A. R-4 558 (1973).
  
- 29 - R.R. CONTE et J. VON STEBUT  
Rev. Phys. Appl., 4, 70 (1969).
  
- 30 - F. MAURY et P. VAJDA  
Communication personnelle, C.E.N.-FAR (1974).
  
- 31 - J. VON STEBUT, J.L. POUCHOU et L. ZUPPIROLI  
Comm. Journées de Printemps de la Société Allemande de Physique.  
Münster (1975).
  
- 32 - M.E. DOWNEY et B.L. EYRE  
Phil. Mag., 11, 53 (1965).
  
- 33 - R. RIZK  
Thèse Paris XI (1973).
  
- 34 - R. HANADA, S. TAKAMURA, S. OKUDA et H. KIMURA  
Trans. Jap. Inst. of Metals, 11, 434 (1970).
  
- 35 - S.N. BUCKLEY  
Properties of Reactor Materials and the Effect of Radiation Damage -  
Littler, p. 413 (1962).
  
- 36 - R.V. HESKETH  
Phil. Mag., 7, 1 417 (1962).
  
- 37 - J. LETEURTRE, J.L. POUCHOU, L. ZUPPIROLI, A. FRANCOIS,  
N. HOUSSEAU et J. DURAL  
Phys. Letters, 38 A, 6 (1972).

- 38 - J. LETEURTRE, J.L. POUCHOU et L. ZUPPIROLI  
Phil. Mag., 27, 1323 (1973).
- 39 - K. HERSCHBACH et W. SCHNEIDER  
J. Nucl. Mat., 51, 215 (1974).
- 40 - G.W. LEWTHWAITE  
Scripta Met., 7, 75 (1973).
- 41 - A.D. BRAILSFORD et R. BULLOUGH  
Phil. Mag., 18, 539 (1968).
- 42 - D. HARDIE et M.W. SHANAHAN  
J. Nucl. Mat., 55, 1 (1975).
- 43 - B.A. LOOMIS et S.B. GERBER  
Phil. Mag., 18, 539 (1968).
- 44 - H. KRONMÜLLER  
Vacancies and Interstitiels in Metals - North-Holland, p. 667 (1969).
- 45 - W. KÄNZIG  
Phys. Rev. Letters, 7, 304 (1961).
- 46 - R.A. JOHNSON  
Phys. Rev., 134, 1 329 (1964).
- 47 - C. ERGINSOY, G.H. VINEYARD et A. ENGLERT  
Phys. Rev., 133, 595 (1964).

- 48 - B. CAROLI  
Thèse Université de Paris (1961).
- 49 - L.D. WHITMIRE et F.R. BROTZEN  
Suppl. to Trans. of Jap. Inst. of Metals, 8, 867 (1968).
- 50 - R.S. NELSON  
Phil. Mag., 11, 219 (1965).
- 51 - J. SOULLARD  
Note C.E.A. N-1 637 (1973).
- 52 - D. LESUEUR  
Rad. Effects, 24, 101 (1975).
- 53 - M.F. ASHBY  
Scripta. Met., 6, 1 231 (1972).
- 54 - P.T. HEALD et M.V. SPEIGHT  
Phil. Mag., 29, 1075 (1974).
- 55 - R.V. HESKETH  
B.N.L. Report 50 083 (C-52), p. 389 (1968).
- 56 - H.R. BRAGER, E.R. GILBERT et J.L. STRAALSUND  
Rad. Effects, 21, 37 (1974).
- 57 - P.R. OKAMOTO et S.D. HARKNESS  
J. Nucl. Met., 48, 204 (1973).

- 58 - J. DELAPLACE, N. AZAM, L. LE NAOUR, M. LOTT et C. FICHE  
Journal de Physique, Suppl. n° 11-12, C 5 (1973).
- 59 - D. MOSEDALE, G.W. LEWTHWAITE et I. RAMSAY  
T.R.G. Report, 2 385 (D), (1973).
- 60 - J.P. FOSTER, W.G. WOLFER, A. BIANCHERIA et A. BOLTAX  
Europ. Conf. on Irrad. Embrittl. and Creep in Fuel Cladd. and  
Core Components. Conf. 721 115-6 - Londres (1972).
- 61 - B. HUDSON  
Phil. Mag., 10, 949 (1964).
- 62 - R.R. CONTE  
Elements de Cryogénie - Masson, p. 106 (1970).
- 63 - D.T. KEATING et A.N. GOLAND  
J.A.P., 39, 13 (1968).
- 64 - R. BULLOUGH et A.J.E. FOREMAN  
Phil. Mag., 9, 351 (1964).
- 65 - G.C.T. LIU et J.C.M. LI  
Phys. Stat. Sol., 18, 517 (1966).
- 66 - D.J. BACON  
Phil. Mag., 18, 561 (1968).
- 67 - B.L. EYRE et R. BULLOUGH  
Phil. Mag. 11, 31 (1965).

- 68 - J.P. HIRTH et J. LOTHE  
Theory of Dislocations - Mac Graw Hill, p. 94 (1968).
  
- 69 - J.L. POUCHOU, L. ZUPPIROLI et J. LETEURTRE  
A paraître (1975).
  
- 70 - P.N. KENNY, A.J. TROTT et P.T. HEALD  
J. Phys. F, 3, 513 (1973).
  
- 71 - P.N. KENNY et P.T. HEALD  
Phil. Mag., 29, 1 137 (1974).
  
- 72 - K.M. MILLER et P.T. HEALD  
Phys. Stat. Sol., 67 (a), 569 (1975).
  
- 73 - H.E. KISSINGER, J.L. BRIMHALL, B. MASTEL et T.K. BIERLEIN  
Intern. Conf. on Vacancies and Interst. in Metals - Jülich - Vol. II,  
p. 681 (1968).
  
- 74 - R. HANADA  
Trans. Jap. Inst. of Metals, 12, 192 (1971).
  
- 75 - D.L. GRAY et W.V. CUMMINGS Jr.  
Acta Met., 8, 446 (1960).
  
- 76 - J.Y. BOUNAUD  
Communication personnelle, C.E.N.-FAR (1975).
  
- 77 - P. VAJDA et M. BIGET  
Phys. Stat. Sol., 23 (a), 251 (1974).

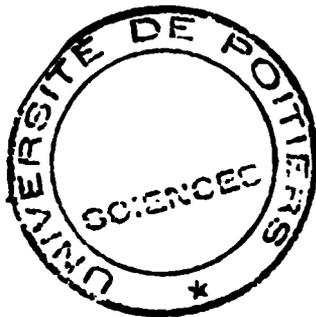
- 78 - J. FRIEDEL  
Dislocations - Pergamon Press (1964).
- 79 - Y. QUERE  
Défauts Ponctuels dans les Métaux - Masson (1967).
- 80 - J.N. GOODIER  
Trans. ASME, APM-55-7, 39 (1931).
- 81 - J.D. ESHELBY  
Proc. Roy. Soc. A, 241, 376 (1957).
- 82 - J. MORY  
Solid State Dosimetry - Gordon and Breach - p. 393 (1969).
- 83 - R. BULLOUGH et J.R. WILLIS  
Phil. Mag., 31, 855 (1975).

*Manuscrit reçu le 15 septembre 1975*

Vu et permis d'imprimer  
à POITIERS, le 20 juin 1975

p/Le Directeur de l'U.E.R.  
"Sciences Fondamentales et Appliquées"

Le Directeur adjoint  
J. BORZEIX



Vu et permis d'imprimer  
à POITIERS, le 20 juin 1975

p/Le Directeur de l'U.E.R.  
"Sciences Fondamentales et Appliquées"

Le Directeur adjoint  
J. BORZEIX

