

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université A.MIRA-BEJAIA



Faculté des Sciences Exactes

Département de PHYSIQUE

Mémoire de Master

Spécialité: Physique des matériaux

Thème

**Etude des Dommages induits par des Ions Lourds dans
L'alliage de zirconium et leurs effets sur la microdureté**

Présenté par :

Meddouri Amel et Bouzemboua Yasmina

Soutenu le 28/09/2021

Devant le Jury composé de:

SOUICI	Abdelhafid	Professeur	Président
BOUFALA	Khaled	MCA	Examineur
OULEBSIR	Nadia	MCA	Encadreur
MENCHI	Omar	Chef de département Technologie de combustible CRND	Co-encadreur

Année universitaire 2020/2021

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein de la division physique et applications nucléaires (DPAN) du Centre de Recherche Nucléaire de Draria (CRND) en collaboration avec la faculté des sciences exactes, département de physique de l'Université Abderrahmane Mira de Bejaia.

Nous remercions en premier lieu Dieu pour ce modeste travail.

Notre profonde gratitude à :

A Madame Oulebsir Nadia qui a été notre encadreur au sein de l'université A. Mira de Bejaia, nous la remercions pour son soutien, ses conseils et son aide précieuse.

A notre maître Mr Mahmoud Izzerouken directeur de recherche au centre de recherche nucléaire Draria (CRND), merci d'avoir été le phare qui nous a guidé le long de ce périple. Vous nous avez accompagnés tout au long de notre travail en nous apportant vos précieux et pertinents conseils et pour cela nous vous sommes infiniment reconnaissantes, et aussi à Mr Omar Menchi, notre Co-Encadreur au sein du CRND, chef de département de technologie de combustible au CRND, nous vous sommes reconnaissantes de l'honneur que vous nous avez fait en acceptant de nous confier ce travail. Nous vous remercions pour votre patience et votre soutien, et vos précieux conseils lors de la réalisation de ce projet de fin d'études.

A notre maître, président de jury Mr A. Hafid Suici, nous vous remercions de l'honneur que vous nous faites en acceptant de présider notre jury de projet de fin d'études.

Puisse ce travail témoigner de notre reconnaissance et de l'estime que nous portons à votre personne.

A notre maître, examinateur Mr Khaled Boufala.

C'est pour nous un honneur de vous voir siéger parmi le jury de ce projet de fin d'études. Nous tenons à vous exprimer nos sincères remerciements et notre profond respect.

En terminant, nous souhaitons démontrer notre plus sincère gratitude à toutes les personnes ayant participé de près ou de loin à la réalisation de ce mémoire.

Dédicaces

A mes chers parents que Dieu vous bénisse, à Yemma, la lumière de mes jours puisse-tu trouver en ce travail un gage de ma gratitude et le fruit de tes années de sacrifice, patience et présence, j'espère te rendre fière et te remercie infiniment pour ton soutien inébranlable et pour ta main qui est toujours là, et à mon renfort, cher père, ma source d'inspiration,

A la mémoire de mon grand-père maternel, mon humain préféré, la réincarnation de la bonté sur terre. « **Tu n'es plus là où tu étais mais tu es partout là où je suis** » Victor.Hugo

A mon frère et mon ami d'enfance Md Cherif, mes deux sœurs Imen et Nouna prunelles de mes yeux, et la bénédiction de Dieu.

A ma sœur du cœur Maissa.

Merci pour l'ambiance agréable créée autour de ce travail durant toutes ces années d'étude.

A ma très chère tante Nawel et mon oncle Mustapha.

A ma binôme et ma précieuse amie Yasmina, le monde est grand notre amitié est immense ! Merci pour cette expérience partagée.

A mon professeur Gharbi Hakim pour le savoir et la passion transmis.

A toute la promotion physique des matériaux 2021

A toute personne ayant contribué de près ou de loin à ce projet de fin d'étude.

*Notre vie est un voyage
Dans l'hiver et dans la Nuit,
Nous cherchons notre passage
Dans le Ciel où rien ne luit.*

Chanson des Gardes suisses, 1793.

Amel

Dédicaces

Merci Allah (mon dieu) de m'avoir donné la capacité d'écrire, de réfléchir, la force d'y croire et la patience d'aller jusqu'au bout de mes rêves.

Je dédie ce modeste travail :

A ma chère mère. Pour son amour, ses encouragements et ses sacrifices.

A mon cher père. Mon école de la vie, pour son soutien, ses conseils et à la confiance qu'il m'a accordée

A une personne unique au monde Azeddine mon cher frère qui a été toujours devant moi, ma source de joie, de bonheur et mon confident.

A mon fiancé qui n'a pas cessé de m'écouter et m'encourager et à son soutien moral et à l'aide qu'il m'a toujours accordée.

A toute ma famille et à ma belle-famille pour leur motivation et leur amour.

A ma chère binôme qui a été comme une sœur. On a passé des moments difficiles ensemble à préparer notre mémoire, on a réussi grâce à notre amitié, je remercie Dieu de t'avoir connue.

A tous mes amis du groupe et tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin pour la réalisation de ce travail et enfin ceux qui sont présents dans mon cœur.

C'est grâce à vous tous que je suis ce que je suis maintenant. Je ne pourrai vous remercier assezque Dieu vous protège tous.

Yasmina

Sommaire

Introduction générale.....	1
----------------------------	---

Partie A : partie théorique

Chapitre 1 : Zirconium et ses alliages

Introduction	
1.1 Zirconium	4
1.2 Formes cristallographiques	4
1.3 Propriétés zirconium	5
1.4 Définition d'alliage.....	6
1.4.1 Alliage de Zirconium	6
1.4.2 Principaux effets des alliages de Zirconium	6
1.4.3 Texture du zircaloy-4.....	7

Chapitre 2 : Interaction rayonnement matière

Introduction	
2.1 Différents rayonnements ionisants	8
2.1.1 Indirectement ionisants.....	8
2.1.2 Directement ionisants	8
2.2 Rayonnements directement ionisants (particules chargées)	9
2.3 Perte d'énergie électronique	9
2.4 Perte d'énergie nucléaire	10
2.5 Défauts induits par l'irradiation dans les matériaux.....	11

2.5.1 Défauts ponctuels	12
2.5.2 Défauts linéaires	13
2.5.3 Défauts surfaciques.....	14
2.5.4 Défauts volumiques	14
2.5.5 Défauts créés par irradiation	14

Partie B : partie expérimentale

Chapitre 3 : Irradiation et techniques d’analyses

Introduction	
3.1 Préparation de l’échantillon	16
3.1.1 Irradiation.....	16
3.2 Techniques de caractérisation	22
3.2.1 Traitement chimique	22
3.2.2 Microscope optique	23
3.2.3 Micro-dureté.....	25

Chapitre 4 : Résultats et discussions

Introduction	
4.1 Endommagement du zircaloy-4 par irradiation.....	29
4.2 Evolution de la microstructure.....	29
4.2.1 Effet de l’irradiation sur la microstructure.....	30
4.3 Effet de l’irradiation sur les propriétés mécaniques.....	32
4.4 Evolution de la microdureté du zircaloy-4 sous irradiations	34

Conclusions et perspectives	37
--	-----------

Bibliographiques	38
-------------------------------	-----------

Annexes

Résumé

Liste des figures

Chapitre1 : Introduction aux alliages de zirconium

Fig. 1 Microscope optique du zirconium non irradié, page 9

Fig. 2 Microstructure de zry4 par microscopie électronique à balayage, page 12

Chapitre2 : Interaction ion matière

Fig. 3 Une lacune dans une structure cristalline, page 17

Fig. 4 Atome- interstitiel au sien d'une structure cristalline, page 18

Fig. 5 Atome de substitution au sien d'une structure cristalline, page 18

Fig. 6 Dislocation de type coin, page 19

Fig. 7 (a) l'arrangement des atomes au niveau d'un joint de grain
(b) défaut d'empilement, page 19

Chapitre 3 : Irradiation et techniques d'analyses

Fig. 8 L'accélérateur du centre national de physique d'Islamabad, page 22

Fig. 9 Nombre de lacune de zircaloy-4 induits par des ions de Cu 700 Kev, page 23

Fig. 10 Nombre de lacune de Zr-4 induits par les ions de Cu 20 Mev, page 24

Fig. 11 Nombre de lacune de Zr induits par des ions de Au 20 Mev, page 24

Fig. 12 Evolution de la dose en dpa calculée pour les ions de Cu 20 Mev, page 25

Fig. 13 Nombre de lacune de Zirconium induits par des ions de Cu 20, page 25

Fig. 14 Micrographie de Zr-4 après irradiation par des ions Cu, page 26

Fig. 15 Forme de trace pour différents temps de traitement, page 28

Fig. 16 Microscope optique ZIESS. Crnd, page 29

Fig. 17 Micrographie du Zr-4 après irradiation par des ions Cu 0.7 Mev, page 30

Fig. 18 Dureté Vickers, page 31

Fig. 19 Instrument de la microdureté INNOVATEST. Crnd, page 32

Fig. 20 Empreinte d'un pénétrateur de type Vickers sur le Zr-4, page 33

Fig. 21 Micrographie de Zr-4 irradié par les ions de Cu de 7 Kev, page 35

- Fig. 22 Micrographe Zr-4 irradié par les ions de Cu de 7 Kev, page 36
- Fig. 23 Micrographe de zirconium non irradié, page 36
- Fig. 24 Micrographe Zr-4 irradié par les ions de Cu de 20 Mev, page 37
- Fig. 25 Micrographie de Zr-4 irradié par les ions de Cu de 7 Kev, page 37
- Fig. 26 Zr-4 irradié pas des ions Cu 20 Mev, page 38
- Fig. 27 Zr-4 irradié pas des ions Au 20 Mev, page 38
- Fig. 28 Image d'une empreinte obtenue par un échantillon de Zr-4 non irradié, page 39
- Fig. 29 Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 700 keV montrant les empreintes obtenus sur la zone contenant la bosse et sur une zone claire, page 40
- Fig. 30 Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 20 MeV obtenues sur deux zones différentes, page 40
- Fig. 31 Zircaloy-4 irradié avec des ions de Au de 20 MeV montrant les empreintes obtenus sur la zonr contenant la bosse et sur une zone claire, page 41

Liste des tableaux

Chapitre1 : Introduction aux alliages de zirconium

Tableau1 : Paramètres de maille des deux structures cristallines

Tableau2 : Propriétés de Zirconium

Chapitre 3 : Irradiation et techniques d'analyses

Tableau 3 : Paramètres d'irradiations

Introduction générale :

Pendant la durée de vie des centrales nucléaires, l'irradiation peut causer des dommages permanents à leurs matériaux structurels. Dans les réacteurs nucléaires, l'un des plus importants composants est la gaine du combustible qui, outre son rôle principal de transfert de la chaleur du combustible au liquide de refroidissement, retient dans son volume les produits de fission radioactifs.

Dès le début de l'aventure industrielle du nucléaire, s'est imposée la nécessité de développer des matériaux nucléaires, qui puissent résister, à la température très élevée, mais aussi à des flux intenses de rayonnement nucléaire et leur résistance à la corrosion.

Plusieurs études ont été alors entamées depuis plusieurs années dans différents instituts dans le monde consacrées en particulier à l'analyse microstructurale et les propriétés mécaniques des composants irradiés dans un réacteur nucléaire. Les résultats permettront de prédire le comportement des réacteurs vieillissants et de renforcer ceux en construction.

Actuellement dans le monde on compte 670 réacteurs de recherche dont 170 en démantèlement et 250 en stand-by. Parmi les réacteurs de recherche actuellement opérationnels, plus de 50% ont plus de 40 ans de fonctionnement. Plusieurs pays alors ont effectué des travaux de rénovation de leurs réacteurs de recherche à cause principalement de l'obsolescence des moyens informatiques et équipements utilisés. D'autres pays, vu la demande en matière de radio-isotopes et autres applications ont procédé à l'augmentation de la puissance de leurs réacteurs, d'où l'importance d'établir une base de données concernant le comportement des matériaux de structure en général sous irradiation afin de prévoir leurs comportements à long terme.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à l'étude d'un alliage de Zirconium en particulier le zircaloy-4, ce dernier est intensivement utilisé dans l'industrie nucléaire comme matériau de gainage du combustible dans les réacteurs nucléaires, par conséquent il présente la première barrière de protection de fragment de fission, il est donc soumis à différents types de radiation.

Le comportement de ce matériau sous irradiations dans les conditions de fonctionnement des réacteurs de recherche (température $< 100\text{ }^{\circ}\text{C}$) est très étudié et plusieurs résultats ont été déjà réalisés au sein du Centre de Recherche Nucléaire de Draria (CRND) où plusieurs mémoires de Master et Doctorat ont été soutenus. Plusieurs radiations ont été utilisées (protons et plusieurs types d'ions lourds) pour induire des défauts dans ce matériaux. Ceci dans le but de simuler l'endommagement induit par les neutrons rapides. Les mesures de diffraction X des échantillons de zircaloy-4 après irradiation ont révélé, que les déplacements d'atomes sont privilégiés dans certaines directions précises par rapport à d'autres indiquant que l'énergie seuil de déplacement varie d'une direction à une autre. [Mémoire Master Djerourou, USTHB, 2016] [J. Radioanal Nucl Chem, ...]. Les résultats ont révélé également que la microdureté a diminué légèrement après irradiation avec des protons à très faible dose (0.017 dpa) [Mémoire Master Djerourou, 2016]. Alors que la microdureté et la densité de dislocation augmentent après irradiation et atteint une saturation au-delà d'une dose d'environ 0.15 dpa [Thèse de Doctorat Naceri Salah Eddine, U. Oran, 2020].

Nous nous sommes intéressés dans ce travail, particulièrement à l'étude d'évolution de l'état de surface du matériau zircaloy-4 après irradiation avec différents types d'ions et différentes énergies. Nous avons utilisé pour cela la révélation de traces d'ions en utilisant le traitement chimique. Après cela nous avons également effectué des mesures de microdureté pour avoir une idée sur les propriétés mécanique après irradiation.

Ce mémoire est composé de deux parties, la partie A est théorique, elle est divisée en deux chapitres ; Dans le premier chapitre, nous allons discuter sur le Zirconium et ses alliages, et dans le deuxième chapitre, nous aborderons l'interaction ions matière.

La partie B est expérimentale, elle est divisée aussi en deux chapitres ; un chapitre sera consacré à une étude sur l'irradiation et les méthodes d'analyses et le quatrième chapitre portera sur la discussion des résultats expérimentaux.

Enfin une conclusion générale résumera le travail et on clôturera avec des perspectives

Introduction

Les alliages de zirconium ont une large application dans le domaine nucléaire, essentiellement pour la fabrication des gaines du combustible [1]. Ils présentent plusieurs propriétés intéressantes telles que la faible section efficace de capture des neutrons thermiques, l'excellente tenue à la corrosion dans l'eau et la vapeur sous pression, la résistance mécanique suffisante aux températures de fonctionnement et la bonne stabilité de ces caractéristiques sous irradiation.

1.1 Zirconium

C'est un élément de transition, de numéro atomique 40 et de masse atomique 91.22. Sa configuration électronique est la suivante : $1S^2 2S^2 2P^6 3S^2 3P^6 4S^2 3d^{10} 4P^6 4d^4$

La figure 1 montre la microstructure de l'échantillon de zircaloy-4 utilisé dans ce travail.

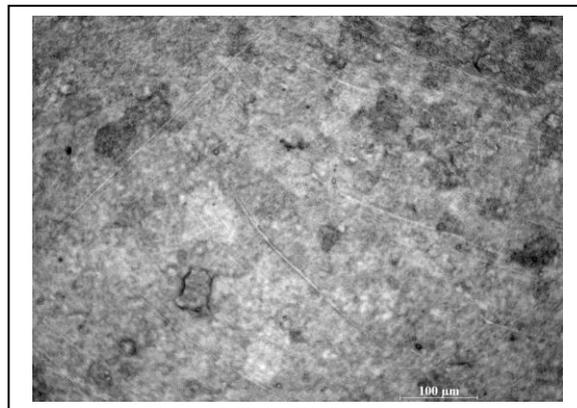


Figure1 : Echantillon de zircaloy-4 utilisé dans ce travail.

1.2 Formes cristallographiques

Le Zirconium peut exister sous deux formes cristallographiques à une pression atmosphérique :

- La phase ALPHA de structure hexagonal compact(HC) stable à une température ambiante
- la phase BETA de structure cubique centrée (CC) stable à partir de 865°C [2].

Les caractéristiques cristallographiques de ces deux phases sont décrites dans le tableau1:

Tableau 1 : Paramètres de maille des deux structures cristallines de zirconium

Phase	Paramètres de maille élémentaire
α -Zr (HC)	a=323.2pm à 25C° c=514.7pm à 25 C°
β -Zr (CC)	a = 354 pm à 870 °C

1.3 Propriétés du zirconium

Le Zirconium est choisi comme matériau nucléaire à cause des propriétés suivantes :

- Il a une faible section efficace de capture des neutrons thermiques (0.18 barn) (1barn= 10^{-24}cm^2) [3]. Le matériau de gainage de combustible nucléaire doit satisfaire cette condition pour éviter l'absorption des neutrons résultants de la fission.
- Il a une bonne résistance à la corrosion, comme c'est l'eau qui est généralement utilisée pour le refroidissement du réacteur d'où l'importance d'avoir un matériau résistant à la corrosion.
- Il a une température de fusion très élevée ($T_f = 1850\text{ °C}$) [4]
- Il présente une bonne résistance à l'irradiation.

Le tableau 2 résume quelques propriétés du Zirconium

Tableau 2: Propriétés du Zirconium [4]

Nom	Zirconium Zr 40
Série chimique	Métaux de transition
Conductivité thermique	16.7 W/m.K
Dureté Vickers	150 HV
Module d'élasticité	94.5Gpa
Résistivité électrique	4 10^{-5} ohm*cm
Electronégativité	1.33

Dans le but d'améliorer les propriétés du zirconium et le rendre adéquat aux applications dans le domaine nucléaire, plusieurs alliages ont été proposés. Dans ce qui suit, nous donnerons les différents alliages utilisés.

1.3.1 Définition d'alliage

Un alliage est un mélange de deux ou plusieurs métaux purs, il est obtenu lors de la cristallisation d'un mélange de deux métaux liquides ou plus dans le but d'obtenir des propriétés mécaniques précises [4]. Les alliages binaires sont des alliages à deux composants (Nb-Ti 4.65% de Ti [5]) et les alliages ternaires sont des alliages à trois composants (duralium Al-Cu 4 Mg Si 4% de cuivre, 0.7% de magnésium et 0.5% de silicium [6]).

1.4.1 Alliages de Zirconium

Les alliages de zirconium sont partagés principalement en deux grandes familles selon l'élément principal de l'alliage:

- Celui qui contient l'étain (Sn) est constituée du Fer, Nickel et chrome sous forme de précipités.
- L'autre contient du niobium (Nb) Zr-Nb

Les alliages les plus répandus sont :

Zircaloy-1 (Zry-1) : Il se corrode avec le temps ce qui présente un obstacle pour son utilisation.

Zircaloy-2 (Zry-2) : alliage de zirconium composé d'étain, du fer, du nickel et de chrome. Il est utilisé principalement dans les réacteurs à eau bouillante REB.

Zircaloy-4 (Zry-4) : avec les mêmes éléments d'addition que le zry-2 mais de pourcentage massique différent. Il est développé pour les matériaux de gainage des réacteurs REP et des CAND.

ZrNb : composé des éléments additifs dont le principal est le niobium, ces alliages présentent des caractéristiques d'élasticité, de résistance à la rupture ou au fluage plus élevées que les autres alliages de zirconium [2].

1.4.2 Principaux effets des éléments d'alliage

Les différents éléments cités plus haut conduisent à l'amélioration des propriétés physiques et mécaniques du zirconium pure. L'insertion d'oxygène avec de faibles proportions dans la matrice rend le zirconium plus dur [2]. Par ailleurs, l'introduction en position substitutionnelle de l'étain (Sn) améliore sa résistance mécanique et sa résistance à la corrosion [2].

Le fer, le chrome et le nickel qui forment des précipités intra et inter granulaires d'environ 200 nm améliorent la résistance à la corrosion. Nous citons par exemple les précipités de Zr (Cr, Fe)₂ dans le Zircaloy-4 [7]. Certains alliages de zirconium tel que l'alliage appelé ZIRLO et Zr2.5Nb contiennent le niobium (Nb). Ceci est dans le but d'avoir un meilleur contrôle de transformation de phase α - β .

1.4.3 Texture du zircaloy-4 :

La figure 2 représente la microstructure de Zircaloy 4 prise par un microscope électronique à balayage (MEB). La partie droite de la figure montre bien les phases de Laves (précipités noirs)

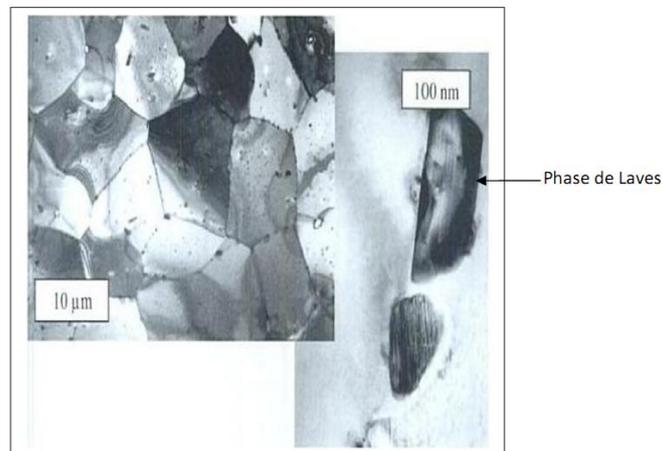


Figure 2 : Microstructure de zry4 par microscopie électronique à balayage [8]

Introduction

Un rayonnement est défini comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme d'ondes électromagnétiques ou de particules. Les rayonnements ne peuvent être détectés et caractérisés que grâce à leurs interactions avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu qu'ils traversent, la totalité ou une partie de leur énergie au cours de ces interactions. Les mécanismes d'interaction avec la matière diffèrent d'un rayonnement à l'autre, on distingue trois types de rayonnements : rayonnement électromagnétique ou photons, particules chargées et particules non-chargées neutres comme les neutrons. Parmi ces rayonnements, on distingue ceux qui sont directement ionisants, particules chargées, de ceux qui sont dits indirectement ionisants car n'étant pas chargés.

2.1 Différents rayonnements ionisants

2.1.1 Indirectement ionisants

Ils comprennent les neutrons et les rayonnements électromagnétiques (photons X, et γ) qui déposent l'énergie au milieu par deux étapes [9]:

- Dans un premier temps une particule chargée est libérée dans le milieu absorbant (le photon libère un électron ou une paire électron/positron, et le neutron libère des particules chargées)
- Dans la deuxième étape les particules libérées déposent l'énergie dans le milieu absorbant par des interactions coulombiennes avec les électrons orbitales des atomes ou bien par les collisions élastiques directement avec les noyaux des atomes.

2.1.2 Directement ionisants

Un rayonnement est dit ionisant quand il est susceptible à arracher des électrons à la matière, ils comprennent les particules chargées légères (les électrons) et les particules chargées lourdes (les protons, les particules α , et les ions lourdes) qui déposent l'énergie au milieu par une seule étape, par le processus d'interaction coulombienne entre la particule incidente et les électrons orbitales [9] [10]

2.2 Interaction ion-matière

Lors d'irradiation des particules chargées, ces dernières transfèrent progressivement leur énergie au milieu traversé par une succession d'interactions pouvant conduire à un endommagement de la cible. Une analyse complète de l'irradiation implique alors l'étude de l'ensemble des interactions particule-matière, considérant aussi bien les électrons et le noyau du projectile que ceux de la cible. Le ralentissement d'un ion dans la matière peut être décrit par deux processus [11].

- **Les collisions élastiques**

L'ion incident transmet de façon élastique l'énergie cinétique au noyau de l'atome cible. Le processus dominant pour les ions de basse énergie (<100 keV /u). Au cours de ces collisions nucléaires, l'interaction est de type coulombienne. Ces transferts directs d'énergie conduisent au endommagement (déplacement d'atome) pour tous les types de cible (isolants, métaux, supraconducteurs, semi-conducteurs, etc.....) [11].

- **Les collisions inélastiques :**

Dans ce cas l'interaction s'effectue entre l'ion incident de façon inélastique avec les électrons du cortège électronique des atomes du milieu. Ce mécanisme est dominant à haute énergie (>100 keV/u) [11].

Les paramètres adaptés à l'interaction ion-matière permettant de définir une irradiation sont:

- Le pouvoir d'arrêt (dE/dx) qui dépend des collisions élastiques (perte d'énergie nucléaire) et inélastiques (perte d'énergie électronique).
- Le parcours de l'ion dans la matière (R_p) qui dépend de l'énergie de l'ion.

2.3 Perte d'énergie électronique

La perte d'énergie électronique résulte de la collision inélastique. Dans le cas des ions énergétiques (>100 keV/u), l'interaction s'effectue essentiellement avec des électrons du cortège électronique des atomes. Ils conduisent à l'excitation, l'ionisation et le transfert ou l'échange d'électrons dans la cible. Les pertes électroniques ne se produisent bien sûr que dans le cas de particules chargées. La perte d'énergie est donc appelée électronique [12] [13]. Elle est donnée par la formule de Bethe suivante :

$$-\left(\frac{dE}{dX}\right) = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} N Z_2 \ln \frac{2m_e V_1^2}{I} \quad (1)$$

Avec :

$-\frac{dE}{dX}$ Pouvoir d'arrêt massique

Z_1 Et Z_2 sont respectivement les charges du projectile et de la cible

A : Est le nombre de masse

V_1 : La vitesse de projectile

m_e : La masse d'électron

N : Densité atomique

ϵ_0 : Permittivité du vide

I : l'énergie minimale d'excitation sur tous les électrons atomiques

2.4 Perte d'énergie nucléaire

Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible sont traitées comme des chocs élastiques de deux particules, dans ce cas l'ion est moins énergétique (<100 keV/u), l'ion incident dissipe son énergie par des chocs élastiques avec les noyaux de la cible, dans ce domaine d'énergie [14][15].

Elle est donnée par la formule :

$$-\left(\frac{dE}{dX}\right)_n = N Z_2^2 \left(\frac{q_1 e}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{M_2 v_1^2} \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (2)$$

T_{max} représente l'énergie maximale transférée dans le cas d'un choc frontal ;

T_{min} représente l'énergie minimale.

L'expression T_{max} est donnée par : $T_{max} = \frac{4 M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E$

M_1 : la masse du projectile d'énergie E et de vitesse V_1

M_2 : la masse de la particule cible, supposée au repos.

E : Energie cinétique

La perte d'énergie totale est donnée par la somme de la perte d'énergie électronique et la perte d'énergie nucléaire. Elle est donnée par :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{Total}} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{e^+} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (3)$$

La perte d'énergie permet d'évaluer le parcours réel de l'ion projectile dans la matière. Au cours de l'interaction, la vitesse de l'ion projectile diminue et l'ion se trouve piégé dans le solide. Il est alors possible de déterminer par intégration de l'inverse de la perte d'énergie totale, la distance totale réelle parcourue (R_l) par un ion à l'intérieur de la cible [16] [17].

$$R_l = \int_0^E - \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} E \quad (4)$$

L'énergie perdue par le passage d'un ion est transférée soit aux atomes ou bien aux électrons de la cible. Ceci engendre des défauts dans le milieu traversé, conduisant au changement de ses propriétés mécaniques, électriques, structurales...etc. Dans ce qui suit nous décrirons les différents types de défauts qui peuvent se former après irradiation.

2.5 Les défauts induits par l'irradiation dans les matériaux

De manière générale, l'irradiation entraîne la formation de divers types de défauts dans le matériau, par exemple :

- Défauts ponctuels
- Défauts linéaires (1D)
- Défauts surfaciques
- Défauts volumiques

2.5.1 Défauts ponctuels

Les défauts ponctuels correspondent à la présence d'atomes étrangers dans le matériau de base, il déforme localement le réseau cristallin [18]. On distingue trois principaux types de défauts ponctuels :

a. Les lacunes

Dans un cristal à l'équilibre thermodynamique, il y a toujours des nœuds du réseau inoccupés qui constituent des lacunes ou un atome est absent de son site normal dans la structure cristalline. Leur nombre dépend principalement de la température. (Photo a) sur la figure 3 [18].

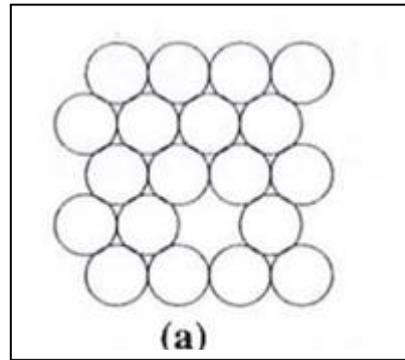


Figure 3 : Une lacune dans une structure cristalline, Figure extraite du livre « Bases physique de la plasticité des solides » par j-c tolédona

b .Les atomes interstitiels

Un atome étranger de petite taille peut s’insérer dans un espace vide du réseau cristallin (dans les interstices), l’atome est alors dit en insertion dans le cas où l’atome constitutif du cristal est placé en insertion, on a affaire à un auto-interstitiel. (Photo b) figure 4 [18].

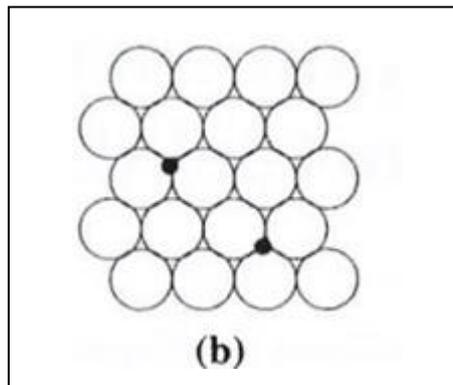


Figure 4 : Atome -interstitiel au sein d'une structure cristalline, Figure extraite du livre « Bases physique de la plasticité des solides » par j-c tolédona

c. Les atomes de substitution

La position régulière d’un atome constitutif du cristal peut être occupée par un atome étranger (impuretés ou éléments d’alliage). On dit alors que l’atome étranger est en substitution. (Photo c) Figure 5 [19].

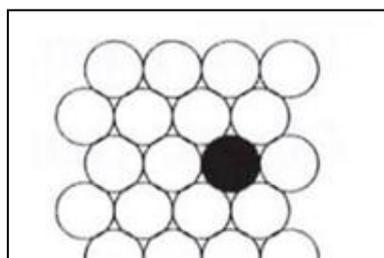


Figure 5 : Atome de substitution au sein d'une structure cristalline, Figure extraite du livre « Bases physique de la plasticité des solides » par j-c tolédona

2.5.2 Défauts linéaires (1D) Les dislocations

Les défauts linéaires, ou dislocations, sont des perturbations de la structure cristalline le long d'une ligne d'atomes, les défauts linéaires observés dans les cristaux sont appelés dislocations (Figure6). Les dislocations sont obtenues par le glissement d'une partie du cristal le long d'un plan. La ligne de dislocation proprement dite correspond à la ligne du plan de glissement séparant la partie du cristal qui a glissé de celle qui est restée immobile. Le vecteur de glissement \vec{B} est appelé vecteur de Burgers de la dislocation. On distingue les dislocations coin, pour lesquelles b est perpendiculaire à la ligne de dislocation, et les dislocations vis, pour lesquelles \vec{B} est parallèle à la ligne de dislocation [18].

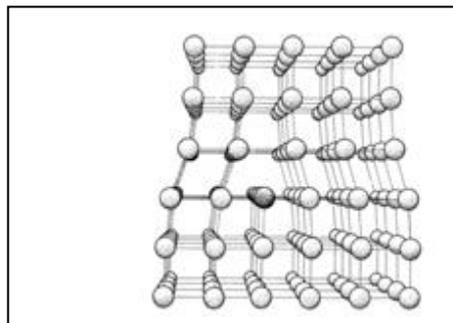


Figure 6 : Dislocation de type coin, Figure extraite du livre « physique des matériaux » par M .Gerlet et J-P .Issi .

2.5.3 Défauts surfaciques (2D)

Ces défauts s'étalent sur la surface, on peut citer :

- Les surfaces libres qui limitent un échantillon cristallin réel.
- Les défauts d'empilement sont également courants dans les structures compactes formées par les métaux (Figure 7 b).
- Les joints de grains et d'interfaces: Le joint de grain, zone située entre deux cristallites adjacentes, c'est un défaut qui correspond à la fois à une

discontinuité d'orientation cristalline et à une zone dans laquelle les positions relatives des atomes ne correspondent pas aux positions d'équilibre. ils sont de très faible épaisseur. les joints d'interfaces, séparant deux phases différentes (Figure 7a) [19].

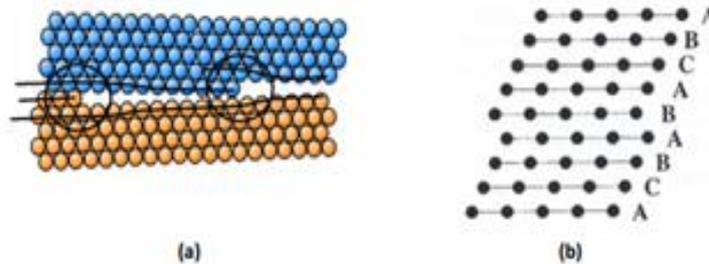


Figure 7 :

- (a) : représente l'arrangement des atomes au niveau d'un joint de grain
- (b) : défaut d'amplement produit par l'absence d'un plan

2.5.4 Défauts volumiques (3D)

Les défauts volumiques les plus courants sont les précipités, ils sont formés par l'inclusion d'une phase cristalline au sein d'une autre.

2.5.5 Défauts créés par irradiation

Comme signalé précédemment, le passage d'un ion à travers la matière conduit au déplacement d'atomes due à la perte d'énergie. Si l'énergie transférée est très importante, dans ce cas une cascade de déplacement d'atomes conduit à la formation de plusieurs types de défauts cités plus haut.

Le nombre de déplacement par atomes (dpa)

Le nombre des déplacements par atome est utilisé comme un rapport pour d'écrire le nombre total d'atomes déplacés. Le premier atome frappé est connu comme : (PKA) (*primary knock-on atom*). Le nombre de PKA induits par une particule chargée d'énergie T_d est donné par, Le modèle de Kinchin et Pease [20]. Il est donné par :

$$0 \quad \text{Si } T_d < E_d$$

$$N_d (T_d) = 1 \quad \text{Si } E_d < T_d < 2E_d$$

$$\frac{T_d}{2E_d} \quad \text{SI } T_d \gg 2E_d$$

T_d : Est l'énergie de particule incidente

E_d : C'est l'énergie nécessaire pour déplacer un atome de son site cristallin

Si l'énergie transférée à l'atome primaire du réseau est inférieure à l'énergie seuil de déplacement, l'atome ne se déplace pas de son site, plutôt il vibre autour d'une position d'équilibre, transférant l'énergie à travers les atomes voisins, et finalement se dissipe sous forme de chaleur.

Si ($T > E_d$), il déplace un autre atome de son site dans la structure cristalline et forme une cascade de déplacements. Ces derniers conduits à la formation des boucles de dislocation connues [20].

Introduction

Dans ce chapitre nous décrivons le dispositif d'irradiation et les techniques de caractérisations utilisées dans ce travail pour étudier les défauts induits après irradiation sur le zircaloy-4 : microscope optique, micro-dureté, révélation chimique

3.1 Préparation de l'échantillon

L'échantillon étudié dans ce travail est le zircaloy-4 de dimension 10 mm x 10 mm travaillé à froid avec une épaisseur d'environ 2 mm et une composition chimique des principaux éléments est : 1,6 % de Sn, 0,21 % de Fe et 0,08% de Cr, 0,1% de O, et 97,7% de Zr. Ils ont été découpés à partir d'une plaque utilisée comme grille d'un élément combustible.

Opération importante

Avant l'irradiation les échantillons de Zry-4 ont subi un polissage poussé jusqu'à l'obtention d'une surface miroir. Le polissage est réalisé par une polisseuse en utilisant des papiers abrasifs en carbure de silicium de granulométries décroissantes (120 jusqu'à 1000 grains par cm²) suivi par un polissage sur un tissu feutre lubrifié avec une pate diamantée de granulométrie décroissante (9 à 0,25 micromètres).

3.1.1 Irradiation

Les irradiations avec des ions de différents espèces et énergies ont été réalisées auprès de l'accélérateur de particule d'Islamabad, Pakistan. L'accélérateur est un tandem (pelletron) de 5MV de National Center of Physics, Islamabad, Pakistan. Il est équipé de deux types de sources d'ions :

- Source d'ions radiofréquence (alphantross) qui fournit des faisceaux d'alpha et de protons
- Source d'ions négatifs par pulvérisation au césium (SNICS). Elle fournit plusieurs types d'ions tels que le carbone, silicium, nickel, cuivre et l'or.



Figure 8 : l'accélérateur du centre Nationale de physique d'Islamabad

Les irradiations ont été effectuées à température ambiante dans une chambre à vide à 3×10^{-7} mbarn en utilisant deux types d'ions :

- Ion de cuivre, Cu avec deux énergies : 20 MeV et 700 keV.
- Ion d'Or, Au avec une énergie de 20 MeV et 3 MeV.

Il faut noter que durant l'irradiation une partie de chaque échantillon a été cachée avec une feuille de cuivre épaisse. Cette partie servira de référence. Ainsi pour chaque échantillon nous avons une partie irradiée et une partie non irradiée.

Fluence des ions est convertie en dose (dpa) en utilisant la formule suivante [21].

$$D = \frac{\phi N_d M_r}{\rho d N_A} \quad (5)$$

Ou:

D : dpa (déplacement par atome)

ϕ : est La fluence des ions incidents

Fluence : d'écrit l'intensité avec laquelle un matériau a été traversé par un flux de particules ou flux de rayonnement ionisant

N_d : Nombre de déplacement par ion et par unité de parcours (Å).

M_r : La masse moléculaire de la cible $M_r = 91.36 \text{ g/mole}$

ρ : La densité de la cible $\rho = 6.497 \text{ g/cm}^3$

d : la profondeur en Angstrom (A)

N_A : Le nombre d'Avogadro

Le nombre de déplacement par atome par unité de parcours est déterminé en utilisant le code SRIM 'the stopping and range of ions in matter'. L'évolution du nombre de déplacement par atome par Angstrom en fonction du parcours des deux types d'ions Cu, 700 keV et 20 MeV ainsi que les ions de Au de 20MeV obtenus sont montrés respectivement sur les figure 9, 10 et 11 respectivement. Le calcul est effectué en utilisant le mode « *Quick Kinchin and Pease damage calculation* ». Nous avons fixé pour cela une énergie seuil de déplacement de 40 eV.

Nous constatons que le pic d'endommagement est observé autours de la profondeur d'environ 0.2 μm pour les ions de Cu de 700 keV et 4 μm pour les ions de Cu et 2.5 μm Au de 20 MeV.

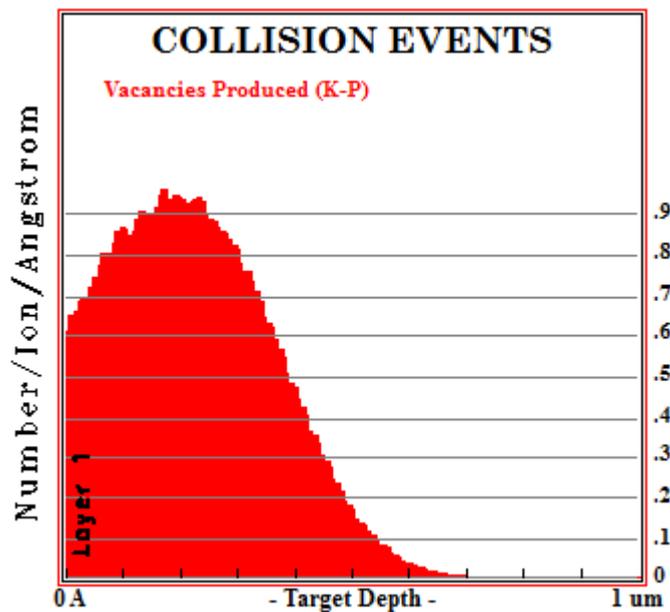


Figure 9 : Nombre de lacunes de zirconium induits par des ions de Cu de 700 keV

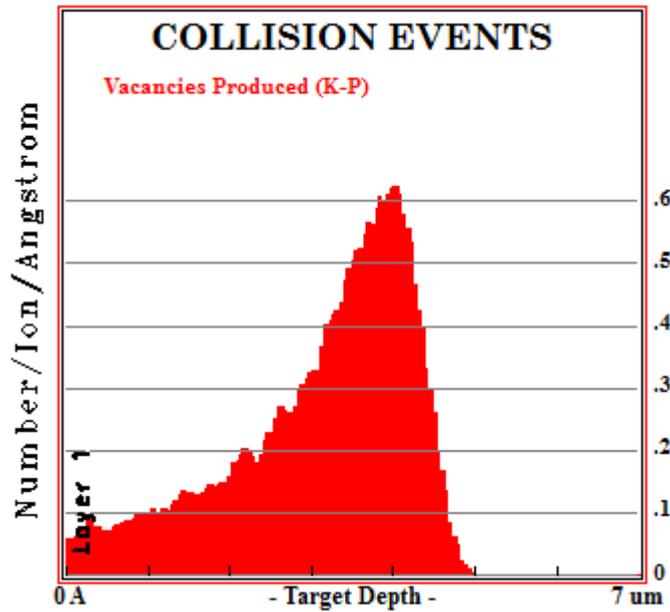


Figure 10 : Nombre de lacunes de zirconium induits par des ions de Cu de 20 MeV

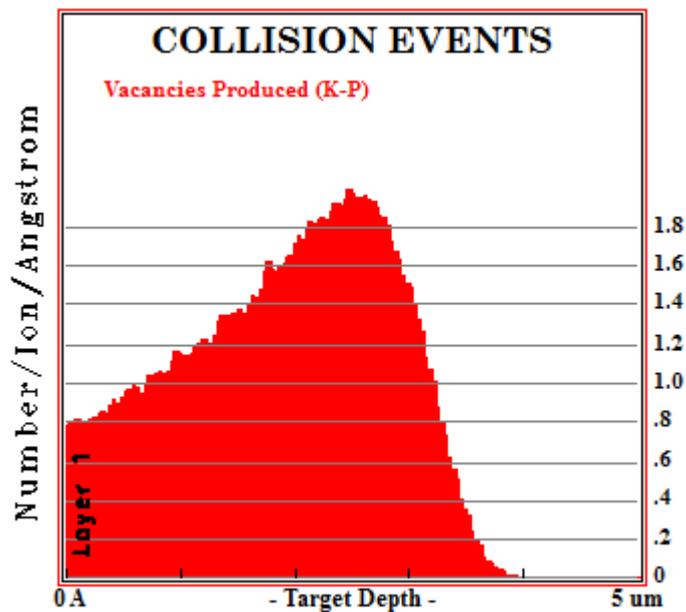


Figure 11 : Nombre de lacunes de zirconium induits par des ions de Au de 20 MeV

L'évolution du nombre de déplacement par atome (dpa) calculé en utilisant l'équation (5) pour les ions de Cu de 700 keV, Cu de 20 MeV et Au de 20 MeV sont présentées respectivement dans les figures 12, 13 et 14.

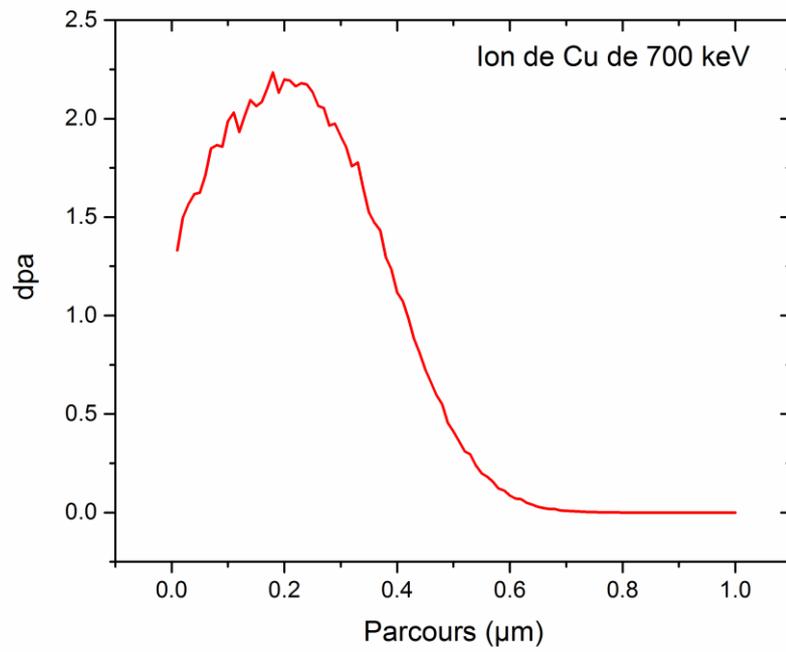


Figure 12 : Evolution de la dose en dpa calculée pour les ions de Cu de 700 keV

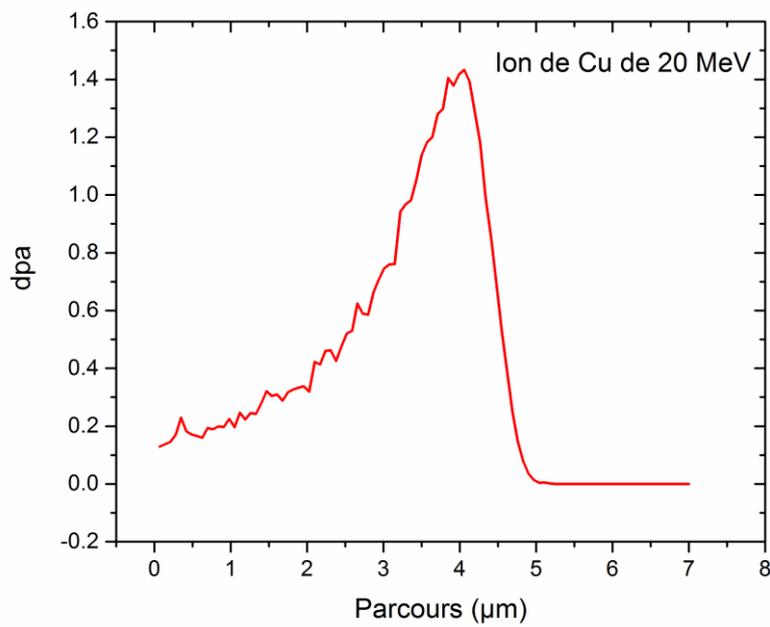


Figure 13 : Evolution de la dose en dpa calculée pour les ions de Cu de 20 MeV

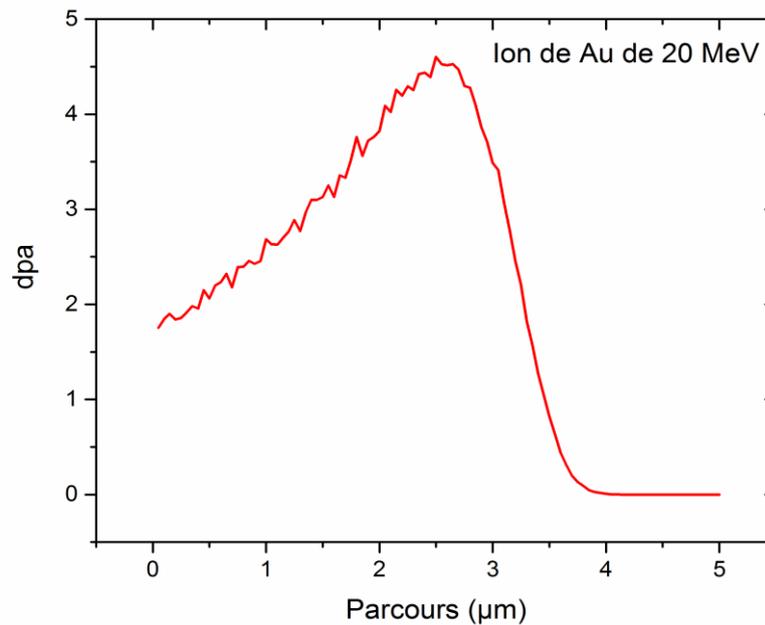


Figure14 : Evolution de la dose en dpa calculée pour les ions de Au de 20 Mev

Les paramètres d’irradiation notamment la perte d’énergie électronique, la perte d’énergie nucléaire, le parcours des différents ions dans le zircaloy-4 ainsi que la dose correspondante à la fluence de 1×10^{15} ions/cm² sont reportés sur le Tableau3. Les calculs ont été effectués en utilisant le code SRIM. Nous signalons que la dose en dpa est calculée en utilisant l’équation (5) pour la valeur de N_d (nombre de déplacement) maximale.

Tableau3 : paramètres d’irradiation

ions	Energie d’ion (keV)	S_e (keV/μm)	S_n (keV/μm)	Pouvoir d’arrêt Totale (keV/μm)	Parcours (μm)	dpa
						Avec $\Phi = 10^{15}$ ion/cm ²
Cu	700 keV	$6.778 \cdot 10^2$	$8.989 \cdot 10^2$	$15.767 \cdot 10^2$	0.32	3
	20MeV	$9.136 \cdot 10^3$	$1.125 \cdot 10^2$	$92.48 \cdot 10^2$	4.11	2
Au	3MeV	$2.89 \cdot 10^3$	$4.05 \cdot 10^3$	$69.4 \cdot 10^2$	0.39	12
	20MeV	$5.24 \cdot 10^3$	$1.57 \cdot 10^3$	$68.1 \cdot 10^2$	2.86	7.0

3.2 Technique de caractérisation

Dans ce travail, nous avons d'abord utilisé le traitement chimique pour révéler les défauts ainsi que les joints de grain ensuite nous avons effectué des mesures de micro dureté.

3.2.1 Traitement chimique

Le traitement chimique c'est une technique classique qui consiste à immerger des échantillons irradiés dans des solutions d'attaque aqueuse.

Pour notre échantillon, nous avons utilisé une solution chimique de composition :

- 47 ml d'acide nitrique (HNO_2).
- 3 ml d'acide fluodrique (HF).
- 50 ml d'eau (H_2O)

Pour révéler les traces des ions, la durée de l'attaque est de 15 secondes.

Comme nous l'avons signalé dans le chapitre 2, une particule chargée traversant la matière perd de l'énergie générant le déplacement d'atomes. Donc une zone perturbée est laissée par le passage d'un ion. Cette zone est très étroite. Son diamètre est de l'ordre de quelques dizaines d'angströms suivant le pouvoir ionisant de la particule incidente.

Il a été constaté qu'un réactif chimique progresse plus rapidement dans la zone perturbée (endommagée) que dans le reste de la masse du détecteur. Nous décrivons dans ce qui suit les techniques de traitement les plus utilisées pour la révélation des traces nucléaires. Après chaque attaque chimique, on fait un rinçage avec de l'eau du robinet. Ce réactif chimique dégrade plus rapidement le matériau le long de la trace plus endommagée par l'irradiation par rapport à sa masse. Au fur et à mesure que le temps d'attaque chimique augmente de T_0 à T_4 , un trou sous forme de cône se développe le long de la trajectoire de la particule comme l'illustre la figure 15.

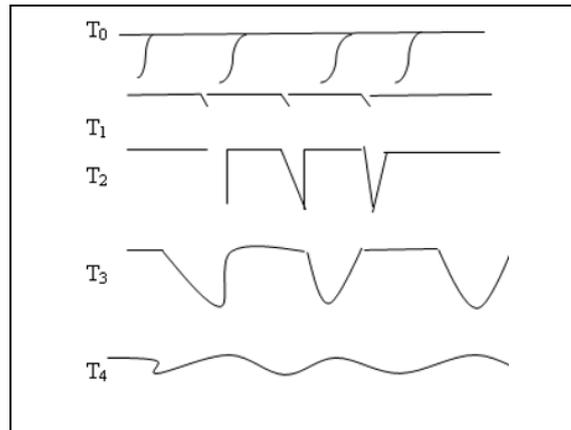


Figure 15 : forme de trace pour différents temps de traitement

Pour les temps de traitement élevés les cônes s'élargissent en même temps, la surface non endommagée est aussi attaquée mais à un taux plus faible. Une fois que la trace a perdu sa forme pointue elle devient moins claire et difficile à distinguer des traces dues aux défauts de surface. Elle peut disparaître complètement si le traitement est très élevé. Afin de suivre l'évolution des traces des ions en fonction du temps d'attaque, nous effectuons successivement des observations avec un microscope optique et des photos seront enregistrées.

3.2.2 Microscope optique

Le microscope optique est un instrument d'optique qui permet de grossir l'image d'un objet de petite dimension. Il est doté de deux lentilles, l'objectif pour agrandir et l'oculaire pour que le rayon arrive à l'œil de manière parallèle et un diaphragme pour régler la quantité de la lumière. La résolution du microscope optique ne peut être supérieure à 0.2 micromètre.



Figure 16 : Microscope optique (ZEISS)- Crnd

La **figure 17** montre la micrographie de Zircaloy-4 étudié dans ce travail obtenue en utilisant un microscope optique ZEISS (figure 16). L'image est obtenue après un polissage et une attaque chimique dans une solution qui contient l'acide nitrique, l'acide fluorhydrique et l'eau. L'image montre bien les grains et les joins de grains.

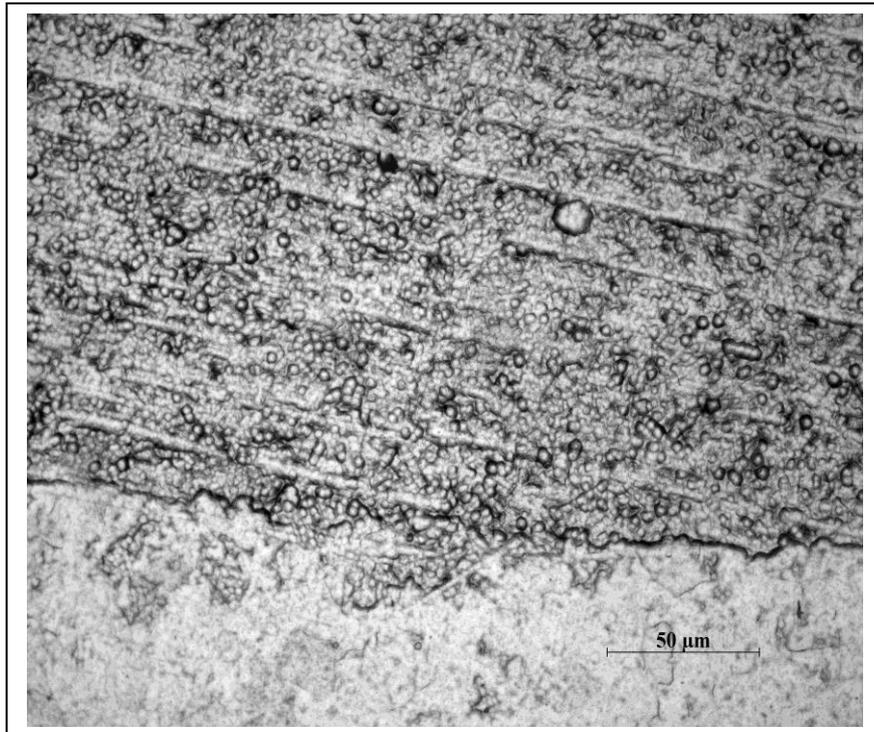


Figure 17 : micrographie du Zircaloy-4 après irradiation par des ions Cu 0.7MeV

3.2.3 Microdureté

La dureté (H) d'un matériau est la résistance d'un matériau à la déformation par indentation de surface d'un matériau. La méthode permet d'obtenir une valeur de dureté et de mesurer la profondeur d'une empreinte laissée par un indenteur d'une forme spécifique avec une charge appliquée pendant un temps donné.

La valeur de la dureté est obtenue par le rapport de la force normale (F) et l'aire déformée (A)

$$H = \frac{F}{S} \quad (6)$$

Il existe trois principales méthodes d'essai normalisées pour exprimer la relation entre la dureté et la taille de l'impression : Brinell, Vickers et Rockwell. La méthode utilisée dans notre travail est l'essai d'indentation 'dureté Vickers'.

3.2.3.1 Dureté Vickers

L'essai de dureté Vickers utilise un indenteur sous forme d'une pyramide en diamant à base carré, d'un angle au sommet de l'indenteur et entre deux faces opposées de la pyramide égale à 136° . Il permet des mesures de dureté sur tous types de matériaux comme été illustré dans la figure19

L'essai de dureté Vickers consiste à appliquer une charge en douceur, sans impact, en poussant un pénétrateur en diamant dans l'échantillon, comme le montre la Figure18. Le diamant Vickers laisse une empreinte de forme pyramidale avec une base carrée et une profondeur d'environ 1/7ème de la longueur de la diagonale. Le pénétrateur est maintenu en place pendant 10 à 15 secondes avant d'être relâché complètement. Le contrôle de la qualité physique du pénétrateur et de l'exactitude de la charge appliquée (définie dans la norme E 384) est impératif pour garantir la justesse des résultats.

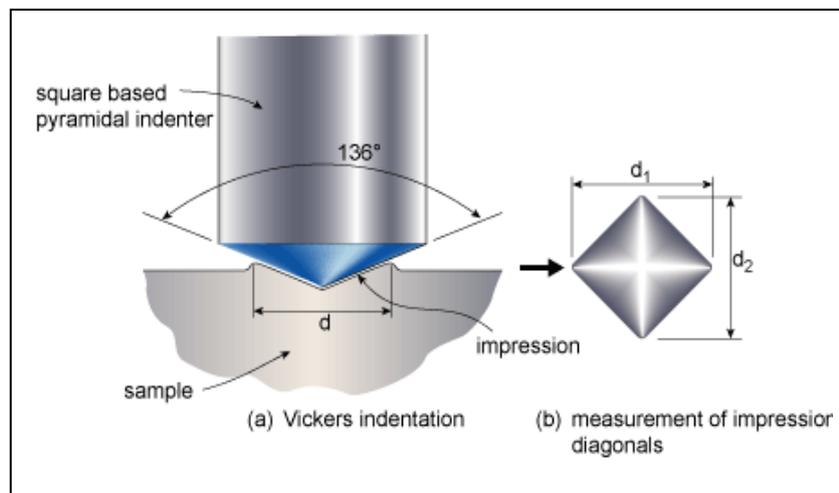


Figure 18: Dureté Vickers

On mesure les deux diagonales de l'empreinte, en arrondissant en général au $0,1 \mu\text{m}$ le plus proche et on fait la moyenne des deux valeurs. La dureté Vickers (= hardness Vickers = HV) est calculée selon la formule :

$$HV = \frac{2F \sin\left(\frac{136^\circ}{2}\right)}{9,80665 d^2} \cong 0.1891 \frac{F}{d^2} \quad (7)$$

F : Force appliquée [N]

d : Moyenne des diagonales de l'empreinte [mm]

9,80665 : facteur de conversion entre newton et kilogramme-force

Dans le cadre de ce travail, les tests de la micro-dureté ont été réalisés au Centre de Recherche Nucléaire Draria (CRND) division physique appliquée nucléaire (DPAN). Les mesures de la micro-dureté ont été réalisées à l'aide d'un instrument INNOVATEST équipé d'un indenteur de diamant Berkovich. Les résultats des mesures sont enregistrés sous forme de rapport où on trouve toutes les valeurs de micro-dureté ainsi que la photo des empreintes correspondantes.



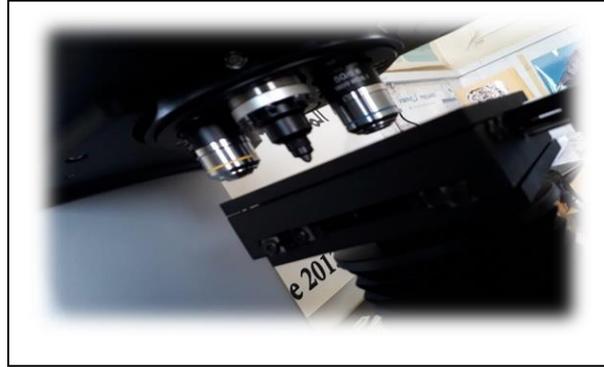


Figure 19: Instrument de la microdureté INNOVATEST au CRND (DPAN).

L'image de la **figure 20** montre l'empreinte d'un pénétrateur de type Vickers sur le Zircloy-4. La micro-dureté Hv est obtenue à partir de la mesure de la diagonale de chaque empreinte. Pour chaque échantillon 07 empreintes ont été prises, afin de mieux comparer l'évolution de la microdureté du Zircaloy-4 après irradiation.

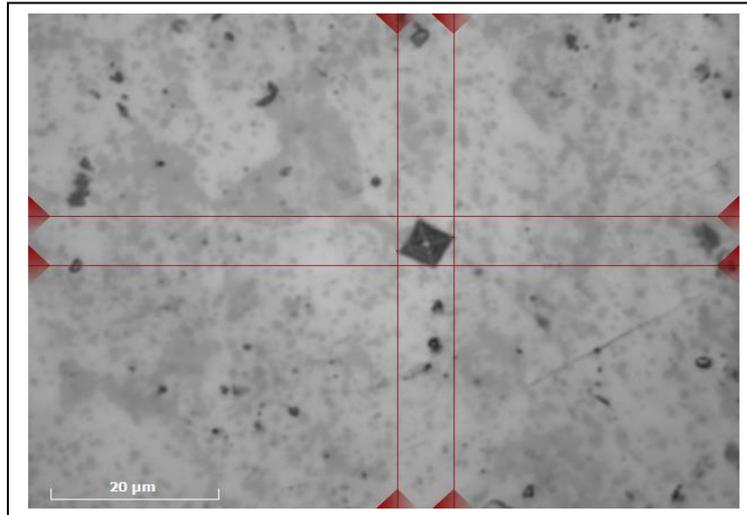


Figure 20 : empreinte d'un pénétrateur de type Vickers sur le Zircaloy

Introduction

Dans ce qui suit, nous discutons de la manière dont l'irradiation endommage le matériau, aussi nous reportons l'évolution des propriétés structurales et mécaniques du Zircaloy-4 après irradiation.

4.1 Endommagement du Zircaloy-4 par irradiation

Dans ce chapitre, nous rapportons l'évolution de la microstructure et la dureté des échantillons de zircaloy-4 après irradiations. L'objectif principal du travail est de voir l'évolution de l'état de surface du zircaloy-4 après irradiation avec des ions. Pour cela nous avons utilisé l'attaque chimique suivie successivement des observations avec un microscope optique. Des tests de micro-dureté sont ensuite effectués sur différentes zones de l'échantillon endommagé et non endommagé. Avant d'entamer le travail sur nos échantillons, nous avons d'abord commencé par le traitement chimique d'un échantillon blanc non irradié (échantillon témoin) afin de bien maîtriser cette méthode de révélation de joints de grains et de traces nucléaires.

4.2 Evolution de la microstructure

Comme nous l'avons décrit au chapitre 3, le traitement chimique consiste à émerger l'échantillon dans une solution chimique pendant un temps de traitement fixe. La solution chimique attaque rapidement les zones endommagées le long du parcours de l'ion. Au fur et à mesure que le temps de traitement augmente la trace de l'ion s'élargit et devient observable avec un microscope optique.

L'Attaque chimique est réalisée selon les étapes suivantes :

Dans notre cas, l'échantillon n'est pas émergé dans la solution chimique, nous avons procédé comme suit :

- Essuyer la face de l'échantillon avec un coton tige émergé dans la solution d'attaque pendant quelques secondes. L'échantillon est ensuite rincé avec de l'eau du robinet, et rapidement séché avec de l'air comprimé pour supprimer toute trace d'eau (éviter l'oxydation).

La procédure est répétée plusieurs fois jusqu'à révélation de la microstructure du matériau dans la partie irradiée et l'endommagement subit par la partie irradiée (cavités et autre).

- Après chaque attaque, nous avons effectué des observations au microscope optique.

La procédure a été répétée également pour la révélation des joints de grains. Néanmoins, pour cette étape, une autre solution a été encore préparée. Avant le traitement, nous avons effectué un léger polissage en utilisant le papier abrasif.

4.2.1 Effet de l'irradiation sur la microstructure

La figure 21 montre un exemple d'image obtenue avec des grossissements différents. L'image montre bien le contraste entre la partie irradiée et non irradiée. Nous pouvons facilement distinguer entre les joints de grains dans la partie non irradiée. Par contre ils sont invisibles dans le cas de la partie endommagée. Il est clair d'après l'image que l'irradiation a induit un endommagement très important de la partie irradiée. La microstructure de la partie irradiée a subi un changement drastique. Il semble qu'il y a un gonflement de la partie irradiée.

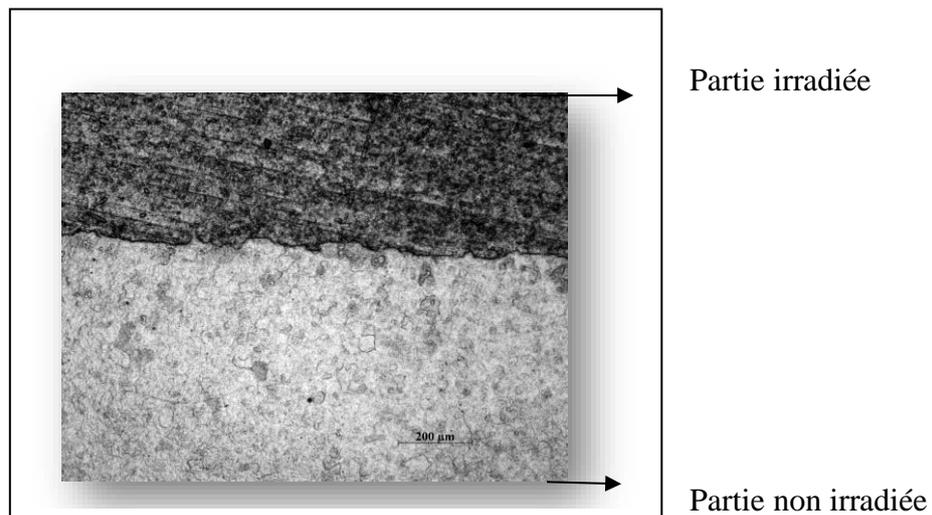


Figure 21: Micrographie du Zircaloy-4 irradié par les ions de Cu de 0.7MeV

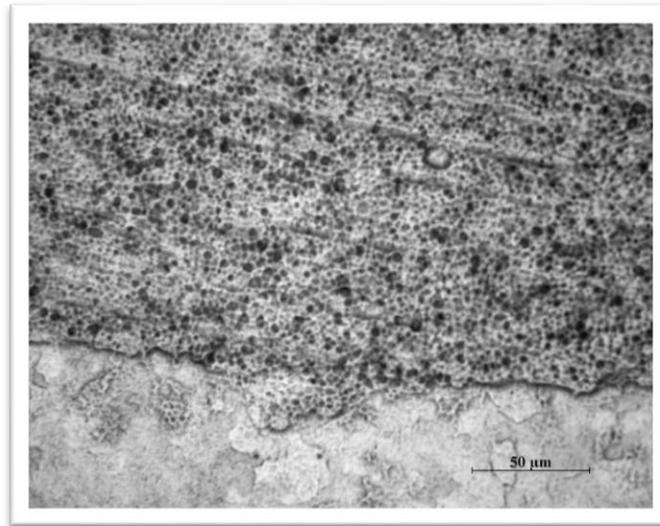


Figure 22 : Autre micrographie du Zr irradié avec des ions Cu 0.7MeV

Les images des figures 23 et 24 révèlent la différence entre la microstructure de la partie irradiée par rapport à celle non irradiée. Il est clair que la partie irradiée montre une surface nette avec quelques traces attribuées aux défauts intrinsèques. Par contre la partie irradiée montre des zones obscures attribuées aux traces des ions. Ceci indique que la zone le long du parcours de l'ion est devenue fragile à cause des défauts induits par l'irradiation avec des ions. Il s'agit notamment des dislocations qui sont à leurs tours induites par l'agglomération des lacunes et interstices. Il faut noter le chevauchement des traces des ions dû à la fluence élevée des ions (10^{15} ions/cm²).

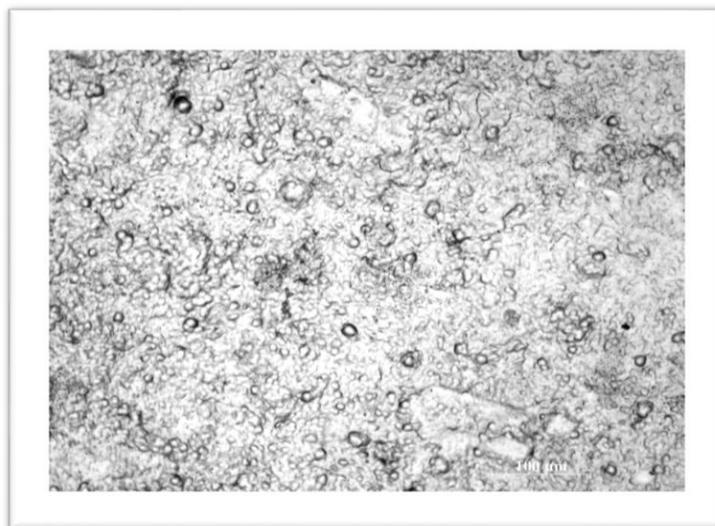


Figure 23 : micrographie de zircaloy-4 non irradiée

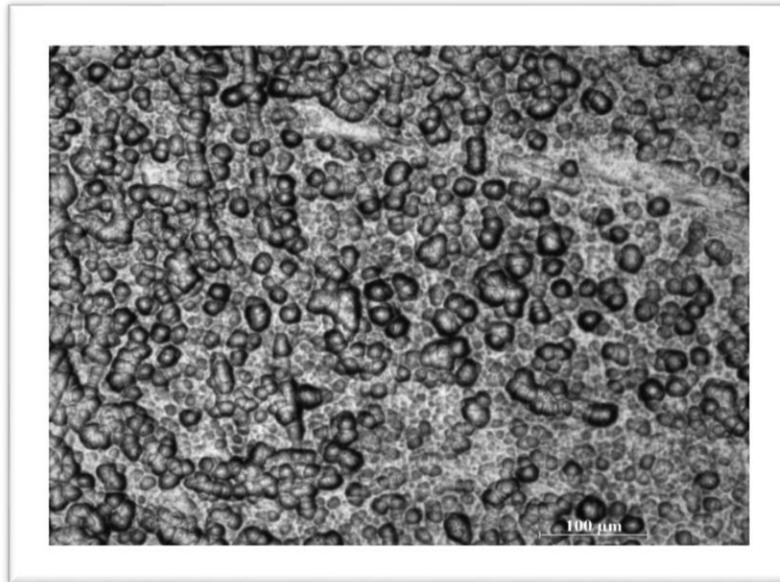


Figure 24: micrographie de zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu- 20 de MeV

4.3 Effet de l'irradiation sur les propriétés mécaniques

Lors des mesures de la microdureté, nous sommes attirés par les images obtenues par le microscope du microduromètre avec un plus fort grossissement. Ces dernières ont révélé l'état catastrophique de la surface de zircaloy-4 irradié avec des ions. Les images montrent l'apparition des bosses à la surface des échantillons irradiés avec des ions et avec des doses élevées (supérieure à 2 dpa). Nous avons reporté sur les figures 25, 26 et 27 les images observées respectivement pour les échantillons de zircaloy-4 irradiés avec des ions de Cu de 700 keV, Cu de 20 MeV et Au de 20 MeV.

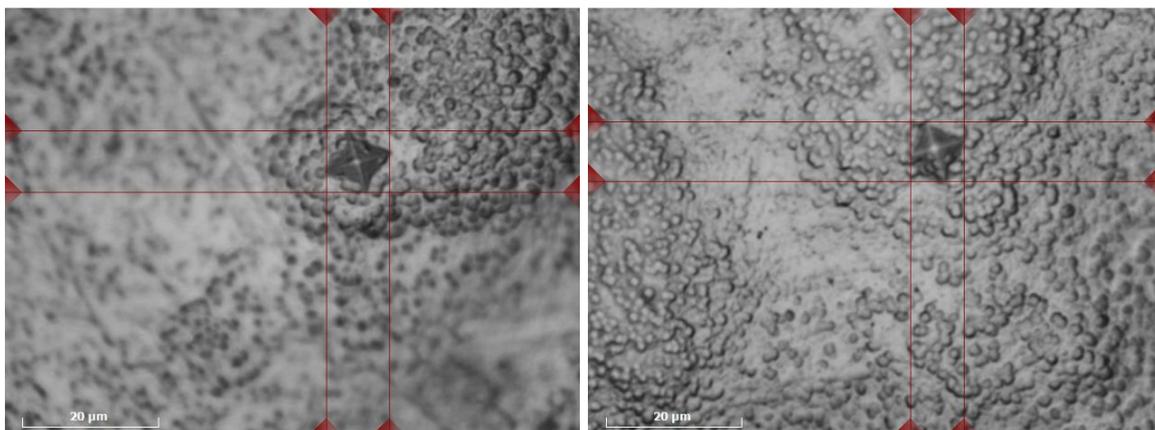


Figure 25 : Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 700 keV

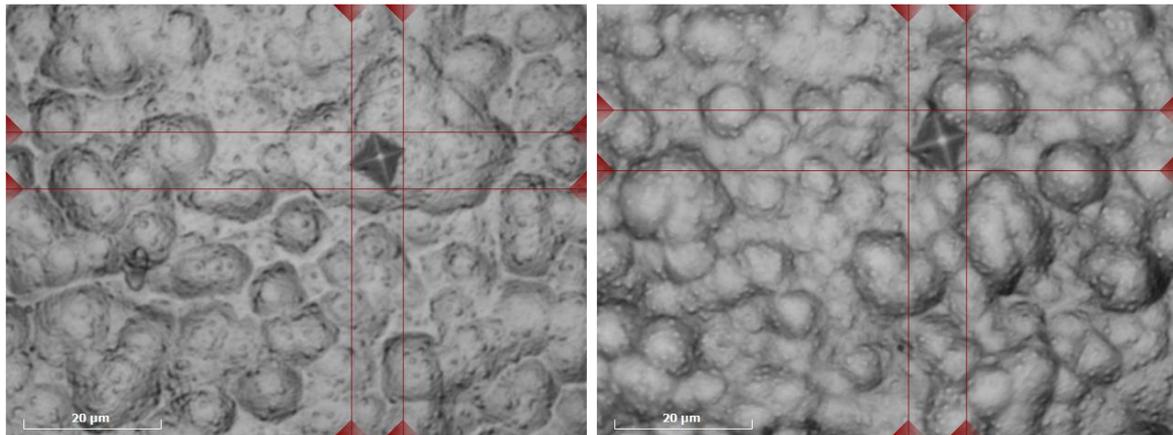


Figure 26 : Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 20 MeV (échelle : 20 µm)

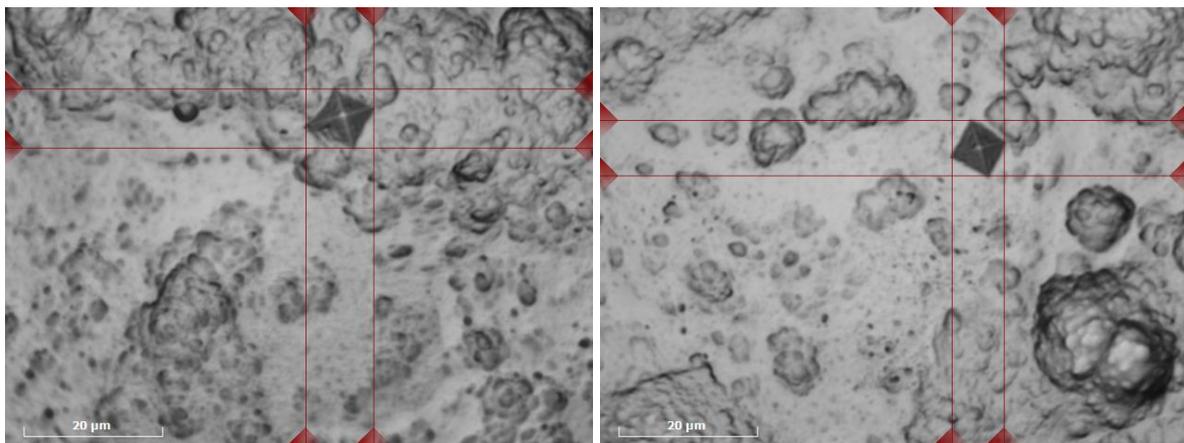


Figure 27 : Zircaloy-4 irradié avec des ions de Au de 20 MeV (échelle : 20 µm)

Ce résultat indique que la couche de zircaloy-4 avec une épaisseur correspondant au parcours de l'ion est complètement endommagée. Cet endommagement peut se propager à l'intérieur de la masse du matériau conduisant à la rupture de la gaine du combustible.

La formation des bosses peut être interprétée le détachement de la matière, probablement due à la pulvérisation (*sputtering*) du matériau. En effet, le phénomène de pulvérisation est observé dans les matériaux irradiés avec des ions lourds. Certains modèles théoriques, notamment le modèle de pointe thermique, expliquent bien ce phénomène (**les modèles de formation de défauts sortent du cadre de ce mémoire de Master 2**). Néanmoins, des travaux supplémentaires sont nécessaires pour mieux expliquer l'évolution de la microstructure de zircaloy-4 irradié avec des ions lourds avec des doses élevées supérieures à 2 dpa.

4.4 Evolution de la microdureté du Zircaloy-4 sous irradiation

Des mesures de microdureté ont été effectuées avant et après irradiation avec les deux types d'ions Au et Cu. Les résultats sont enregistrés sous forme des rapports dans les annexes 1, 2, 3, 4 correspondants respectivement aux échantillons non irradié, irradié avec Cu de 700 keV, Cu de 20 MeV et Au de 20 MeV.

La figure 28 montre un exemple de microdureté d'un échantillon de zircaloy-4 non irradié. Nous constatons que l'empreinte de l'indenteur à une forme pyramidale avec les diagonales bien nettes. La valeur moyenne de la microdureté est de 226 ± 22 HV

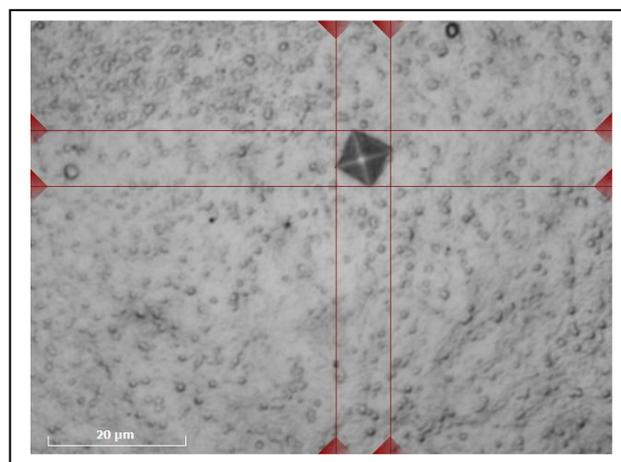


Figure 28 : image d'une empreinte de l'indenteur obtenu pour un échantillon de zircaloy-4 non irradié. (échelle : 20 μ m)

Dans le cas des échantillons irradiés, nous avons effectué des mesures de microdureté sur différentes zones pour le même échantillon ; des zones contenant la bosse et des zones claires. Les figures 25, 26 et 27 montrent des exemples obtenus pour le zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu 700 keV, Cu 20 MeV et Au 20 MeV respectivement.

Il est clair que les tests de microdureté effectués sur la bosse montrent des empreintes complètement distordues d'où la difficulté d'effectuer la mesure. Alors que celle effectuée sur la zone claire montre des empreintes nettes. Ceci indique que la microdureté a changé après irradiation. Par conséquent, l'irradiation avec des ions lourds avec des doses élevées supérieures à 2 dpa affecte les propriétés mécaniques de zircaloy-4. Ce résultat permet d'estimer la durée de vie du zircaloy-4 utilisé dans les installations nucléaires, notamment en tant que gaine d'un élément combustible.

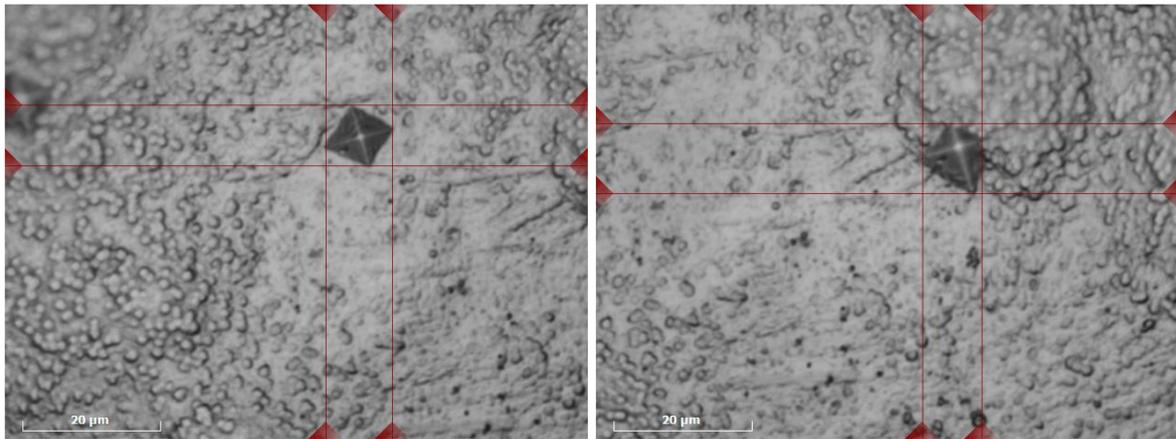


Figure 29 : Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 700 keV montrant les empreintes obtenus sur la zone contenant la bosse et sur une zone claire. (échelle : 20 µm)

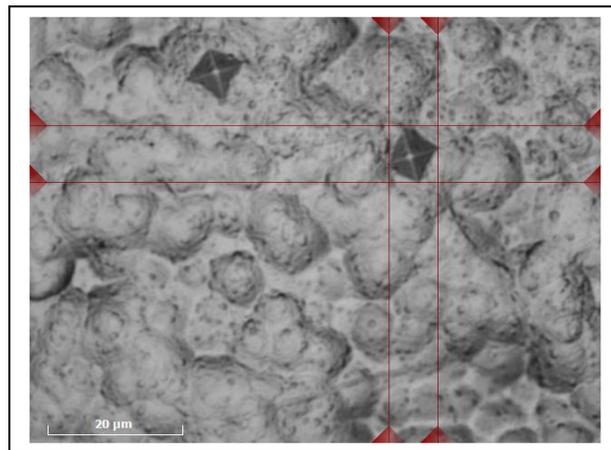


Figure 30: Zircaloy-4 irradié avec des ions de Cu de 20 MeV obtenues sur deux zone différentes.

(échelle : 20 µm)

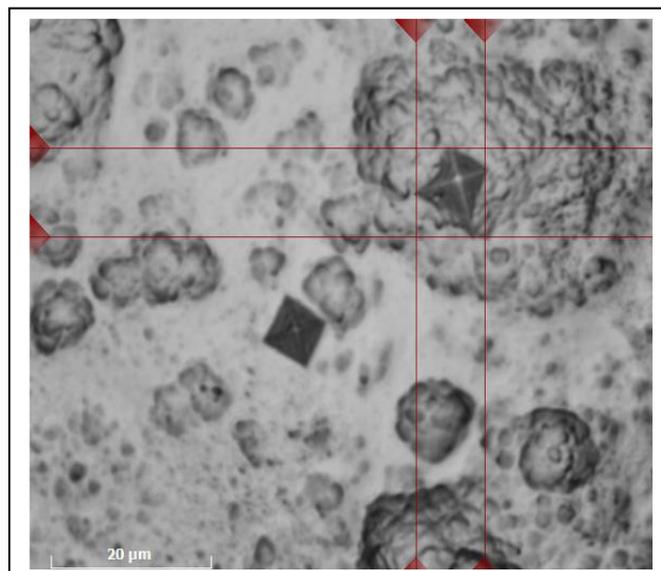


Figure 31: Zircaloy-4 irradié avec des ions de Au de 20 MeV montrant les empreintes obtenus sur la zone contenant la bosse et sur une zone claire. (échelle : 20 μm)

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le travail de recherche rédigé dans ce mémoire a été destiné à l'étude des dommages induits par irradiation avec des ions lourds dans le Zircaloy-4, l'alliage de zirconium qui est très utilisé comme matériau de gainage du combustible dans les réacteurs à puissance (réacteurs utilisés pour la production de l'électricité).

Les échantillons de zircaloy-4 utilisés dans ce travail ont été découpés à partir d'une plaque utilisée comme grille d'un élément combustible. Ils ont ensuite subi un polissage jusqu'à avoir une surface miroir. Les irradiations ont été effectuées avec des ions de cuivre (Cu) et l'or (Au) avec une énergie de 20 Me. Après irradiation, nous avons effectué un traitement chimique afin de révéler d'une part les traces des ions et la morphologie de la surface d'autre part. Les tests de microdureté ont été ensuite réalisés sur plusieurs zones des échantillons irradiés.

La première étape du traitement chimique a pu révéler les traces des ions. L'observation à l'aide d'un microscope optique a montré des zones obscures attribuées aux traces des ions. Ceci indique que la zone le long du parcours de l'ion est devenue fragile du au nombre important de lacunes et interstices formées après irradiation.

Par ailleurs, nous avons constaté en utilisant le microscope optique du microduremètre des zones sous forme de bosse. Probablement elles sont formées suite à la pulvérisation du matériau durant l'irradiation. Les tests de la microdureté sur ces zones ont montré des empreintes complètement distordues indiquant le changement de propriétés mécaniques du matériau. Ce résultat est très utile afin de comprendre le vieillissement de zircaloy-4 sous irradiation. En effet, les produits de fission en fin de cycle d'un élément combustible peuvent atteindre la gaine. Par conséquent engendré des dégâts catastrophiques conduisant à la rupture de la gaine.

Comme perspective, une étude plus approfondie est nécessaire pour bien comprendre le mécanisme responsable de la formation de ces zones.

Bibliographies

- [1]. Paul Buttin ; Modélisation de la corrosion des alliages de Zirconium par l'eau : Applications aux éléments de combustibles nucléaires HAL Id : tel-00647292 site Web http://tel.archives_ouvertes.fr/tel-00647292 (1 Décembre 2011).
- [2]. Nathanoel Mozzani ; Amorçage de fissures de corrosion sous contraintes du Zircaloy-4 Recristalliser en milieu méthanol iodé, université de Toulouse. 17 juin 2013
- [3]. Christable Evans ; Micromechanisms and micromechanics of Zircaloy-4 January 2014
- [4]. Mokrane Abdelkader ; étude des matériaux métalliques sous irradiation. Dommages et effets université El-Hadj Lakhdar Batna 2013
- [5]. Elaboration et transformation d'alliages binaires à base de niobium à l'état de grande pureté
- [6]. www.universalis.fr/encyclopédie/Aluminium/8-lesalliages-d-Aluminium
- [7]. X. T. Zu; K. Sun; M. Atzmon; L. M. Wang; L. P. Yon; F. R. Wan Effet of proton and Ne⁺ Irradiation on the microstructure of Zircaloy-4 philosophical magazine (2005)
- [8]. Bouffioux P., Legras L. 'Effect of hydriding on the residual cold work recovery and creep of Zircaloy-4 cladding tubes', ANS International topic Meeting on light water Reactor Fuel Performance, park city, Utah, (April 10-13 2000).
- [9]. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
"Radiation oncology physics: a handbook for teachers and students", ISBN 92-0-107304-6 (Vienna, 2005).
- [10]. ERVIN. B. PODGORSK
"Radiation Physics for Medical Physicists". Edition: Springer, 978-3-642-00874-0.), ISBN (2010)
- [11]. Ahmed Hafid Belbachir, Interaction rayonnement – matière, université l'USTO, Oran Algérie ,2010/2011
- [12]. B. Gervais, Thèse de Doctorat de l'Université de Caen (1993).
- [13]. Nguyen Duythuy ; Développement d'algorithme de reconstruction tomographique pour l'analyse pixe d'échantillons biologiques
- [14] C. Lehman, Interaction of Radiation with Solids and Elementary Defects Production. Amsterdam : North- Holland (1977).
- [15] A. C. Chami, cours IRM2 faculté de physique (USTHB)

- [LIN 61] J. Lindhard et M. Scharff, Phys. Rev. 124, 128 (1961)
- . [LIN 63a] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 3, 10 (1963).
- [16] CHRISTINE JIMONET ET HENRI METIVIER
. "Personne compétente en radioprotection". Principes de radioprotection-réglementation. EDP Sciences. France. ISBN : 978-2-86883-948-0. 2007
- [17] J. P. Biersack, L. G. Haggmark, Nucl. Instr. And Meth. B 174, 257 (1980).
- [18] Claire laulhé, Cours L3 physique et application –structure de la matière
- [19] Ait AMOKHTAR.H, Cours M1 physique des matériaux, université A .Mira Béjaia, 2020
- [20] M. L.Gagnaire , Modélisation des phénomènes de corrosion du Zircaloy-4 sous mélanges oxygène-azote à haute température. France. 2013
- [21] E. M. Francis et al, Nucl, Mater, 454,2014
- [22] R.L Ficher, P.B. Price, RM Walker, Nuclear Tracks in Solids,
(University of California Press, Berkeley 1975).