

Université de Lille 1

Habilitation à Diriger les Recherches

Discipline : Sciences Physiques

présentée par

Thomas JOURDAN

Modélisation des microstructures d'irradiation aux temps longs

soutenue publiquement le 14 novembre 2016

Composition du jury

M.	Alain Barbu	Rapporteur
M.	Yann Le Bouar	Rapporteur
M.	Pär Olsson	Rapporteur
M.	Fabien Onimus	Examineur
M.	Laurent Pizzagalli	Président
Mme	Charlotte Becquart	Garante

REMERCIEMENTS

Je tiens en premier lieu à remercier les membres du jury, qui ont gentiment accepté d'évaluer ce travail : Alain Barbu, Charlotte Becquart, Yann Le Bouar, Pär Olsson, Fabien Onimus et Laurent Pizzagalli. Je sais que les emplois du temps des chercheurs sont bien remplis, je remercie donc tout particulièrement les rapporteurs d'avoir pris le temps d'examiner mon manuscrit dans les moindres détails.

Je tiens également à exprimer ma gratitude envers François Willaime, qui m'a fait confiance en me recrutant au SRMP fin 2008. Je n'avais à l'époque qu'une vague idée des phénomènes d'irradiation, ayant effectué ma thèse dans un autre domaine de la science des matériaux.

Après 8 années passées au SRMP, je mesure la chance que j'ai eue d'être recruté dans ce service : la diversité des thèmes de recherche, des méthodes utilisées, et la facilité avec laquelle il est possible de nouer des collaborations ou tout simplement de discuter en font un endroit où il fait bon chercher. Sans désir d'exhaustivité, je remercie donc Jean-Paul Crocombette, Cosmin Marinica, Frédéric Soisson, Chu Chun Fu, Emmanuel Clouet, Estelle Meslin, Hélène Lefaix-Jeuland, Manuel Athènes et Maylise Nastar, mais aussi les « anciens » du service avec qui j'ai eu plaisir à discuter : Jean-Louis Bocquet et Georges Martin. La connaissance d'Alain Barbu sur les effets d'irradiation m'a été d'une grande aide à mon arrivée dans le service, qu'il en soit remercié.

Parmi celles que j'ai nouées avec mes collègues du SRMA, les collaborations avec Fabien Onimus et Joël Malaplate m'ont beaucoup apporté sur la compréhension des « vrais » alliages.

Une partie du travail présenté dans ce manuscrit n'aurait pas pu être effectuée sans les doctorants et post-doctorants que j'ai encadrés, co-encadrés ou avec qui j'ai collaboré. Un grand merci à Marco Gherardi, Nesrine Gharbi, Bertrand Michaut et Sandra Moll.

Enfin, je remercie Patricia Matysiak, secrétaire du SRMP, pour sa disponibilité et sa capacité à résoudre les problèmes administratifs...

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	1
1 Méthodes de simulation pour les cinétiques aux temps longs	5
1.1 Dynamique d'amas	5
1.1.1 Présentation du formalisme : précipitation homogène	5
1.1.2 Dynamique d'amas sous irradiation	8
1.2 Monte Carlo cinétique sur objets et sur événements	10
2 Aspects numériques de la dynamique d'amas	13
2.1 Formulation continue de la dynamique d'amas	13
2.2 Schémas numériques pour l'équation de Fokker-Planck	15
2.3 Couplage discret-continu et conservation de la matière	19
2.4 Résolution déterministe	20
2.5 Résolution hybride déterministe–stochastique	26
3 Changements d'échelles pour l'E/OKMC et la dynamique d'amas	31
3.1 Modèle de bulle d'hélium	31
3.2 Terme source pour la dynamique d'amas	34
3.3 Forces de puits d'interfaces	37
4 Simulations aux temps longs par dynamique d'amas	45
4.1 Évolution du système Fe-He	45
4.2 Vers les matériaux « industriels » : alliages de zirconium, aciers austénitiques	51
4.2.1 Effet de la contrainte sur la microstructure de boucles dans les alliages de zirconium	52
4.2.2 Effet des irradiations aux ions sur la microstructure d'aciers austénitiques	55
Conclusion et perspectives	65
Bibliographie	69

INTRODUCTION

Ce mémoire présente mes travaux de recherche depuis mon arrivée au Service de Recherches de Métallurgie Physique (SRMP) au CEA Saclay fin 2008. Mon activité est centrée sur le développement et l'utilisation de modèles cinétiques pour étudier les évolutions microstructurales dans les métaux, principalement sous irradiation. L'irradiation est responsable d'une modification des propriétés mécaniques (durcissement, fragilisation, fluage) et de variations dimensionnelles (gonflement, croissance des matériaux anisotropes). Les causes de ces changements, qui peuvent parfois limiter la durée de vie des composants dans les centrales, sont à chercher dans l'évolution microstructurale provoquée par la sur-saturation importante en défauts ponctuels (mono-lacunes, mono-interstitiels). Certains mécanismes sont simplement accélérés par l'irradiation, tandis que d'autres ne trouvent pas leur analogue en conditions de vieillissement thermique. Par exemple, il est connu que le fluage sous irradiation n'est pas de même nature, d'un point de vue microscopique, que le fluage thermique. Ceci justifie des études spécifiques, expérimentales et théoriques, sur les mécanismes se produisant sous irradiation.

Je m'intéresse principalement aux méthodes permettant d'atteindre des temps comparables aux temps expérimentaux. Selon le type d'expériences (irradiations aux particules chargées ou aux neutrons), les durées peuvent aller de quelques heures à quelques dizaines d'années. Pour atteindre ces temps longs, il est bien souvent nécessaire de s'affranchir de la description à l'échelle atomique des mécanismes de diffusion des défauts, ou tout au moins de la simplifier. Ceci exclut les calculs dits *ab initio* ou utilisant des potentiels empiriques, ainsi que le Monte Carlo cinétique atomique (AKMC) dans la plupart des cas. Deux méthodes, reposant sur ce type d'approximation, ont été développées au SRMP : le Monte Carlo cinétique sur événements (EKMC), qui est une variante moins répandue du Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC), et la dynamique d'amas. Historiquement, l'EKMC, avec le code JERK, a été utilisé dès le début des années 1970 pour simuler la formation d'amas de défauts ponctuels. Pour parer aux limitations de l'approche EKMC, un code OKMC a été développé depuis 2014. La dynamique d'amas, qui repose sur un formalisme en champ moyen et peut s'avérer beaucoup plus efficace que l'E/OKMC, a été développée par Alain Barbu à partir des années 1990. Ce sont principalement les deux méthodes que j'utilise pour mes modélisations.

Avant tout, disposer de codes efficaces me paraît particulièrement important. Un code dont le formalisme semble a priori bien adapté pour simuler des temps longs, mais dont les aspects numériques ont été négligés, peut s'avérer moins efficace qu'un code plus précis et porté par de bons algorithmes ! Ainsi, le choix de tel ou tel modèle physique dépend parfois plus de considérations numériques que de la qualité du modèle, ce qui est regrettable étant donné la puissance des machines de calcul actuelles. Passer du temps sur les aspects numériques peut s'apparenter à un crève-cœur pour le physicien. Pourtant, pour la dynamique d'amas cela me semble être une étape indispensable. En effet, selon les méthodes numériques utilisées, les temps de calcul peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur. À titre d'exemple, suite aux développements qui ont été effectués dans le code de dynamique d'amas CRESCENDO, nous pouvons désormais effectuer des calculs en introduisant une dépendance spatiale dans les équations, pour un temps de calcul identique à un calcul complètement homogène avec l'ancienne version du code. Cela rend possible la simulation d'irradiations aux ions, pour lesquelles les profils de dommage sont fortement hétérogènes.

L'E/OKMC et la dynamique d'amas nécessitent la connaissance d'un certain nombre de paramètres : coefficients de diffusion des espèces, énergie de formation des amas, etc. Les calculs à l'échelle atomique permettent de plus en plus de donner ce type d'informations. Dans certains cas, comme pour paramétrer les propriétés des plus gros amas ou pour introduire des contributions entropiques, les simulations à l'échelle atomique ne suffisent pas. La construction de modèles est alors nécessaire. Ces dernières années, une partie de mon activité a consisté à mieux paramétrer les codes cinétiques, en particulier la dynamique d'amas, en effectuant des calculs aux échelles inférieures et en construisant des modèles permettant le changement d'échelle. J'ai commencé cette activité sur le système Fe-Cu avec le calcul de propriétés d'amas (énergies libres, rayons effectifs), qui m'ont permis d'améliorer l'accord entre la dynamique d'amas et les simulations AKMC, mais aussi d'identifier certains problèmes des codes E/OKMC pour simuler la précipitation. Je n'aborde pas la thématique Fe-Cu dans ce mémoire et je renvoie le lecteur aux publications [1, 2]. Une autre partie de mon activité a été dédiée au système Fe-He, pour lesquels les développements nécessaires sont présentés ici. Ils concernent la description des cascades en dynamique d'amas et un modèle de bulle d'hélium.

Une fois les modèles de dynamique d'amas et d'E/OKMC paramétrés, nous pouvons espérer simuler des expériences réalisées sur des matériaux modèles : matériaux purs comme le fer- α , avec éventuellement des atomes de gaz ou un nombre limité de solutés. Je présente dans ce mémoire l'étude effectuée sur le système Fe-He, en lien étroit avec les observations expérimentales. Ce système est représentatif des aciers ferritiques utilisés pour la fusion. La simulation de matériaux plus complexes, « industriels », est rendue difficile par le nombre d'éléments chimiques présents. Une possibilité est de simuler uniquement les autodéfauts et de prendre en compte les solutés de manière effective, par leur effet sur les autodéfauts. On dit parfois que le système est modélisé comme un alliage « gris ». En pratique, cela revient à modifier les coefficients de diffusion des autodéfauts, l'énergie des amas, etc. Il n'est pas possible d'adopter une approche multiéchelle dans ce cas et la comparaison à l'expérience est essentielle pour trouver les jeux de paramètres adéquats. Même s'il n'est pas toujours possible de certifier que la physique du système est bien captée par le modèle, il est envisageable d'appréhender l'effet de certains mécanismes. Par exemple, nous avons pu modéliser l'effet des interstitiels injectés lors d'irradiations aux ions dans des aciers

austénitiques. Le rôle de la contrainte sur la microstructure des alliages de zirconium en est un autre exemple.

Dans ce mémoire nous abordons successivement les différents aspects qui viennent d'être mentionnés :

- Dans une première partie, nous rappelons les méthodes utilisées, à savoir la dynamique d'amas et l'E/OKMC. Ces méthodes, bien que simples, ne sont pas très répandues en dehors de la communauté de l'irradiation. Il m'est donc apparu intéressant d'en donner une description succincte. Les spécificités du code de dynamique d'amas CRESCENDO sont en partie abordées.
- Le deuxième chapitre est dédié aux aspects numériques de la dynamique d'amas. Nous montrons comment simuler des systèmes plus complexes, en accroissant l'efficacité des résolutions en temps et en envisageant des méthodes pour réduire le nombre d'équations.
- La construction de modèles pour transférer des informations à la dynamique d'amas depuis les échelles inférieures est abordée dans le chapitre 3.
- Enfin, le chapitre 4 est consacré la simulation du système Fe-He, à l'effet de la contrainte sur les alliages de zirconium et à la modélisation des irradiations aux ions d'aciers austénitiques.

1

MÉTHODES DE SIMULATION POUR LES CINÉTIQUES AUX TEMPS LONGS

Sommaire

1.1	Dynamique d'amas	5
1.1.1	Présentation du formalisme : précipitation homogène	5
1.1.2	Dynamique d'amas sous irradiation	8
1.2	Monte Carlo cinétique sur objets et sur événements	10

Le but de ce chapitre est de présenter les outils développés pour étudier les cinétiques et d'expliquer comment les différents travaux exposés dans les chapitres suivants s'articulent autour de ces outils. Le choix de mettre en avant les outils vient en partie du fait qu'ils sont peu répandus en dehors de la communauté des chercheurs travaillant sur les effets d'irradiation. Il vient également du temps que j'ai investi dans le développement de ces outils, en particulier pour les rendre les plus génériques possibles et utilisables par le plus grand nombre de personnes. Ceci est surtout vrai pour le code de dynamique d'amas CRESCENDO¹ [3, 4], co-développé avec EDF R&D depuis 2009 et utilisé actuellement par une dizaine de chercheurs et de doctorants. Il est issu des codes développés par Alain Barbu pour la précipitation homogène [5], la formation de microstructures d'amas de défauts ponctuels dans les matériaux cubiques [6] et hexagonaux [7] et la précipitation en présence d'amas de défauts ponctuels [8]. Les codes EKMC JERK et le code OKMC sont complémentaires de CRESCENDO : bien qu'ils donnent des résultats très semblables à la dynamique d'amas quand la distribution d'amas est homogène dans l'espace, ils permettent en plus de traiter les corrélations spatiales entre amas.

1.1 Dynamique d'amas

1.1.1 Présentation du formalisme : précipitation homogène

La dynamique d'amas est une approche en champ moyen, dans laquelle seule l'évolution des concentrations d'amas est considérée. Dans son formalisme le plus simple, celui

1. Le nom de ce code vient de son abréviation musicale *cresc.*, pour Chemical Rate Equations for the Simulation of Clustering.

de la précipitation homogène d'une seconde phase par condensation de monomères, les équations régissant l'évolution des amas sont celles d'un processus « de naissance et de mort » entre classes d'amas (n) (fig. 1.1) :

$$\frac{dC_n}{dt} = J_{n-1,n} - J_{n,n+1} \quad n \geq 2 \quad (1.1)$$

$$\frac{dC_1}{dt} = -2J_{1,2} - \sum_{n \geq 2} J_{n,n+1}, \quad (1.2)$$

avec

$$J_{n,n+1} = \beta_n C_n C_1 - \alpha_{n+1} C_{n+1}. \quad (1.3)$$

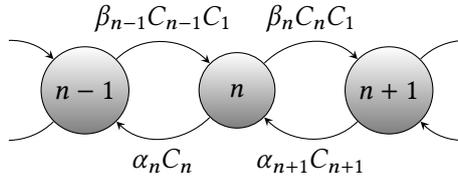


FIGURE 1.1 – Représentation schématique d'un processus de naissance et de mort, tel qu'utilisé en dynamique d'amas.

Dans ces équations, C_n est la concentration des amas de n monomères, β_n est le coefficient d'absorption d'un monomère et α_n est le coefficient d'émission. Par définition, le flux $J_{n,n+1}$ est le flux d'amas entre les classes (n) et ($n+1$), dû uniquement à la mobilité de l'amas ($n+1$) - (n) = (1).

Historiquement, ces équations sont apparues pour traiter l'aspect cinétique de la théorie classique de la germination (TCG) [9–12], c'est-à-dire les fluctuations hétérophases, ce qui permet d'accéder au flux de germination stationnaire et au temps d'incubation. En dynamique d'amas, ces fluctuations sont bien sûr également présentes mais on ne fait pas de distinction entre la matrice, où se créent ces fluctuations, et la phase précipitée. Le système est traité de manière unique, comme un gaz d'amas qui peuvent migrer dans le solvant, s'associer et se dissocier [13, 14]. En conséquence, le potentiel chimique du monomère dans la matrice, qui donne la force motrice de germination dans la TCG, n'est pas présent en dynamique d'amas. Toute la thermodynamique est contenue dans les coefficients d'émission α_n .

La détermination de ces coefficients se fait en écrivant qu'à l'équilibre, pour une solution solide sous-saturée, le flux entre classes d'amas doit s'annuler² :

$$J_{n,n+1}^e = \beta_n C_n^e C_1^e - \alpha_{n+1} C_{n+1}^e = 0. \quad (1.4)$$

La concentration d'équilibre est donnée par la minimisation de l'énergie libre du gaz d'amas,

$$F = \sum_{n \geq 1} N_n F_n - kT \ln \Omega, \quad (1.5)$$

2. Le même argument est utilisé en TCG, mais pour une solution sur-saturée (existence d'un équilibre contraint) [11], ce qui conduit à la même expression du taux d'émission. L'utilisation des concentrations d'équilibre dans la solution sursaturée permet d'introduire le potentiel chimique dans le flux de germination. À noter que Katz et Wiedersich ont présenté une dérivation du flux de germination qui n'utilise pas cet équilibre contraint [15].

où N_n est le nombre d'amas de taille n et F_n représente l'énergie libre d'amas, qui est une propriété intrinsèque de l'amas, dans le sens où elle ne dépend pas de la solution solide. Dans l'hypothèse d'un gaz d'amas dilué, qui est très souvent utilisée en dynamique d'amas, le terme entropique s'écrit

$$\Omega = \frac{N!}{(N - \sum_{n \geq 1} N_n)! \prod_{n \geq 1} N_n!}, \quad (1.6)$$

avec N le nombre total de sites. Les zones d'exclusion, négligées dans l'équation (1.6), ont été prises en compte dans les travaux de Lépinoux [16, 17] et de Berthier *et al.* [18], dans le but de généraliser la dynamique d'amas aux cas concentrés.

La concentration d'équilibre d'amas (n) est déduite de la minimisation de l'énergie libre. Pour des espèces dont le nombre est conservé, comme les solutés, la minimisation doit se faire en imposant une contrainte sur leur nombre total, ce qui se traduit par l'introduction du multiplicateur de Lagrange μ :

$$\frac{\partial}{\partial N_n} \left(F - \mu \sum_{n \geq 1} n N_n \right) = 0. \quad (1.7)$$

Cela conduit à l'expression des concentrations d'équilibre dans la limite diluée :

$$C_n^e = \frac{1}{V_{\text{at}}} \exp \left(-\frac{F_n - n\mu}{kT} \right), \quad (1.8)$$

avec V_{at} le volume atomique. Les équations (1.4) et (1.8) conduisent alors à

$$\alpha_{n+1} = \frac{\beta_n}{V_{\text{at}}} \exp \left(-\frac{F_1 + F_n - F_{n+1}}{kT} \right). \quad (1.9)$$

Nous remarquons que μ , qui est en fait le potentiel chimique, n'intervient pas dans l'expression finale de α_n , et que la thermodynamique du système est décrite uniquement par les énergies libres d'amas F_n . Plus précisément, il s'agit de l'énergie libre de liaison, définie comme :

$$F_n^b = F_1 + F_{n-1} - F_n. \quad (1.10)$$

Une description précise des énergies libres d'amas est donc essentielle pour une bonne prédiction des cinétiques. Ce point est détaillé dans la partie 3.1 et dans la référence [1], où nous calculons ces énergies libres pour des bulles d'hélium et pour des amas de cuivre dans le fer.

Bien que ce coefficient α_n ait été calculé pour une solution sous-saturée à l'équilibre, une hypothèse de la dynamique d'amas est que cette quantité est intrinsèque à l'amas, de sorte que l'expression de α_n reste valide pour une solution sursaturée hors équilibre. Notons que ceci n'est plus vrai dans le cas d'un système concentré [18].

Diverses expressions existent pour les coefficients d'absorption β_n [19, 20] : elles dépendent de la forme des amas, de la présence d'interactions à longue portée entre l'amas et le monomère (élastiques généralement, mais également électrostatiques pour les défauts chargés dans les semi-conducteurs ou les isolants [21]), de la présence d'une barrière pour l'association entre deux amas proches [22]. L'expression de β_n est déduite du calcul du flux

de monomères vers l'amas, après résolution de l'équation de diffusion, généralement en régime stationnaire, avec éventuellement un terme de dérive dû aux interactions [23]. Pour des autodéfauts, on peut également y ajouter un terme source [24] et un terme de recombinaison entre lacunes et interstitiels [25]. Dans le cas le plus simple d'un amas sphérique de rayon r_n , avec marche aléatoire du monomère sans barrière de dernier saut et conditions aux limites en concentration imposées près de l'amas ($c(r = r_n) = 0$)³ et à l'infini ($c(r \rightarrow \infty) = C_1$), on obtient

$$\beta_n = 4\pi r_n D_1, \quad (1.11)$$

avec D_1 le coefficient de diffusion du monomère.

Dans les études de précipitation en condition de vieillissement thermique, il a été montré que les résultats dépendent peu de l'expression précise des coefficients β_n [1, 26]. Le respect du bilan détaillé (1.9), qui n'est pas présent dans l'E/OKMC, ainsi que l'utilisation de valeurs correctes des énergies libres F_n , sont beaucoup plus importants.

Pour l'instant, le formalisme de la dynamique d'amas a été décrit pour un seul type d'espèce. Cependant, les expressions (1.1)–(1.3) peuvent être généralisées aisément au cas d'amas contenant plusieurs types d'espèces [27] et au cas d'amas mobiles pour $n > 1$ [28]. Dans le code CRESCENDO, il est possible actuellement de prendre en compte deux types d'espèces dans un amas, des autodéfauts (lacunes, auto-interstitiels) et un soluté. Les amas peuvent également être mobiles si leur taille est « suffisamment » faible pour que l'intégration numérique des équations se fasse dans des temps acceptables (chapitre 2).

1.1.2 Dynamique d'amas sous irradiation

Sous irradiation, la situation est plus complexe que celle présentée dans la partie précédente. Outre la présence éventuelle de solutés qui peuvent précipiter, des autodéfauts (lacunes, auto-interstitiels) sont créés en grand nombre. Ces autodéfauts peuvent s'agglomérer et former des cavités, des boucles de dislocations, des tétraèdres de fautes d'empilement. Il est pratique d'identifier les amas interstitiels par des indices $n > 0$ et les amas lacunaires par des indices $n < 0$, c'est la convention utilisée dans le code CRESCENDO, que nous adoptons dans la suite. Si des solutés sont également présents, un amas est représenté par un couple $\nu = (n, p)$, avec $p \geq 0$.

Pour rendre compte de la création de défauts ponctuels, il est nécessaire d'ajouter un terme source G_n à l'équation (1.1). En général, les résultats obtenus par dynamique d'amas sont extrêmement sensibles aux valeurs des termes sources, qui sont malheureusement mal connues pour des irradiations aux ions ou aux neutrons. Afin de définir ce terme de la manière la plus précise possible, il est tentant de transférer à la dynamique d'amas le dommage extrait de simulations de cascades réalisées en dynamique moléculaire « exacte » [29] ou

3. On peut également imposer la concentration d'équilibre au niveau de l'amas, qui peut être déterminée simplement par l'égalité des potentiels chimiques dans l'amas et dans la matrice à proximité de l'amas (effet Gibbs-Thomson) : $C_1^c(r_n) = C_1 \exp\left(\frac{2\gamma V_{at}}{r_n kT}\right)$, avec γ l'énergie d'interface. Le flux s'écrit alors $4\pi r_n D_1 (C_1 - C_1^c(r_n))$. Le terme négatif n'est autre que l'approximation au premier ordre, pour r_n suffisamment grand, de $\alpha_{n+1} (\approx \alpha_n)$, en utilisant $F_n = n\mu^c + 4\pi r_n^2 \gamma$. L'utilisation de la condition $c(r = r_n) = 0$ n'a donc pas d'incidence sur la valeur de β_n , elle permet juste de simplifier le problème en s'affranchissant de la composante d'émission. Incidemment, le fait que l'effet Gibbs-Thomson soit présent dans les équations de la dynamique d'amas la rend particulièrement adaptée pour la simulation du mûrissement d'Ostwald lors de recuits. Voir à ce sujet la partie 4.1.

« simplifiée » [30,31], ou avec des codes de collisions binaires comme SRIM [32] ou MARLOWE [33]. Cependant, le dommage généré par des ions ou des neutrons est très corrélé spatialement [29]. Le transfert des données vers la dynamique d'amas se heurte au fait que le terme G_n ne peut décrire qu'un dommage homogène. Le passage des codes de dommage primaire à la dynamique d'amas est traité plus en détail dans la partie 3.2.

Contrairement aux microstructures de précipités en vieillissement thermique, les microstructures d'amas d'auto-défauts se formant sous irradiation sont très sensibles aux coefficients β_n . En effet, le taux de croissance de ces amas dépend du flux net d'interstitiels et de lacunes qu'ils absorbent. Comme à quelques exceptions près, les interstitiels et les lacunes sont créés en quantités égales⁴, la croissance des amas résulte de différences de flux d'interstitiels et de lacunes très faibles (quelques pourcents par rapport aux flux des deux espèces). Ces différences, cruciales pour expliquer certains phénomènes comme le gonflement par cavités, la croissance et le fluage, sont expliquées essentiellement par les effets élastiques pris en compte dans les coefficients β_n , qui favorisent l'absorption des interstitiels par les dislocations, et donc, par conservation du nombre de défauts, de lacunes par les cavités. J'ai effectué un travail sur ces coefficients d'absorption pour les boucles et les dislocations [34], où j'ai pu montrer qu'ils ont aussi une influence notable sur les taux de germination.

Pour les faibles doses (quelques fractions de dpa⁵), les puits j autres que les amas (dislocations, joints de grains, surfaces) sont caractérisés par leur seule force de puits $k_{j,n}^2$ [19] pour l'amas mobile (n), supposée indépendante du temps⁶ (un exemple de calcul de force de puits est donné dans la partie 3.3). L'équation (1.2) devient :

$$\frac{dC_n}{dt} = G_n + \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ n-m \neq 0}} J_{n-m,n} - \sum_{m \in \mathcal{M}} J_{n,n+m} - \sum_{m \in \mathbb{Z} \setminus \{0\}} J_{m,n+m} - \sum_j k_{j,n}^2 D_n (C_n - C_{n,j}^e). \quad (1.12)$$

Dans cette équation, \mathcal{M} est l'ensemble des amas mobiles ($\mathcal{M} = \{-1, 1\}$ si seuls les monomères sont mobiles). Aux plus fortes doses, les boucles de dislocations deviennent si grandes qu'il devient nécessaire de traiter leur interaction mutuelle ou avec les dislocations du réseau préexistantes. Le modèle utilisé dans CRESCENDO pour les fortes doses est décrit succinctement dans la section 4.2.2 et présenté plus en détail dans la référence [34]. Il permet de simuler la saturation de la taille des boucles avec la dose, ainsi que l'évolution de la densité de dislocations.

Bien que les surfaces puissent être prises en compte de manière effective, par les forces de puits, il est parfois nécessaire de les décrire explicitement. Pour cela, on introduit une

4. Notons le cas des irradiations avec des auto-ions, qui provoquent un excès d'interstitiels dans la zone d'implantation ayant des conséquences sur la germination et la croissance des amas, en particulier les cavités (partie 4.2.2).

5. Déplacements par atome : nombre de fois qu'un atome est déplacé de son site au cours d'une irradiation.

6. Inversement, il est possible de regrouper les termes relatifs aux amas dans une force de puits globale. Cette approche est celle des toutes premières versions de la cinétique chimique homogène (« rate theory ») [35]. En général, et de manière très approchée, la force de puits des amas est supposée constante. Seules deux équations sont résolues, une sur les mono-interstitiels et une sur les mono-lacunes. Cette approche a été très fructueuse pour expliquer les phénomènes de gonflement, croissance, fluage, pour interpréter les expériences de diffusion sous irradiation, etc. Elle met clairement en évidence le rôle fondamental des flux des autodéfauts vers les différents puits de la microstructure, qui dépendent finement des forces de puits (notamment des β_n , comme discuté plus haut).

dépendance des équations en fonction de l'espace, en supposant que le système reste localement homogène, ce qui justifie l'utilisation du formalisme de la dynamique d'amas. Cela se traduit par l'ajout d'un terme de Fick dans l'équation (1.12). Les surfaces correspondent aux extrémités du système, auxquelles on applique les conditions aux limites adéquates (par exemple, la concentration d'équilibre en autodéfauts). Notons que cette approche ne permet pas de traiter des hétérogénéités apparaissant sur des distances inférieures à quelques nanomètres, comme par exemple des cascades. À cette échelle, il n'est généralement plus possible d'utiliser le formalisme de la dynamique d'amas. Dans CRESCENDO, la dépendance spatiale est selon une direction de l'espace. Cela permet de simuler le profil de dommage lors d'une irradiation aux ions ou l'irradiation d'une lame mince. Deux exemples de simulations réalisées avec cette dépendance spatiale sont décrits dans le chapitre 4 (sections 4.1 et 4.2.2).

Pour terminer, arrêtons-nous sur le nombre d'équations à résoudre en dynamique d'amas. Il est courant de considérer des amas sphériques de quelques dizaines de nanomètres de rayon. Par exemple, une cavité sphérique de 10 nm dans le fer contient environ 3.5×10^5 lacunes, ce qui signifie qu'il faut traiter au moins 3.5×10^5 équations pour simuler la formation de cette cavité. Si l'on considère que les amas d'autodéfauts contiennent aussi des solutés (par exemple de l'hélium), il faut traiter environ $(3.5 \times 10^5)^2 \approx 10^{11}$ équations. Ajoutons à cela un facteur 2 pour le traitement des boucles et un facteur égal au nombre de couches (typiquement de 10 à 100) si le système est discrétisé dans l'espace. Nous voyons que le nombre d'équations à résoudre peut atteindre 10^{13} , ce qui est largement supérieur à ce qu'il est possible de résoudre numériquement, même avec des solveurs adaptés (section 2.4). Il devient donc indispensable de procéder à certaines approximations pour réduire le nombre d'équations à résoudre, en les « regroupant » (parties 2.1 et 2.2). L'espace des amas, avec ce regroupement, est schématisé figure 1.2.

1.2 Monte Carlo cinétique sur objets et sur événements

Comme la dynamique d'amas, le Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC) [36] et sur événements (EKMC, code JERK) [37] sont deux approches qui considèrent la microstructure comme un gaz d'amas. En outre, la position des différents amas est prise en compte. Contrairement au Monte Carlo cinétique atomique (AKMC), les mécanismes élémentaires de diffusion ne sont pris en compte que de manière effective, par les valeurs des fréquences de sauts des amas (OKMC) ou de leur coefficient de diffusion (EKMC). Il en résulte souvent un gain de temps, puisqu'on évite de réaliser tous les sauts atomiques successifs qui ne participent pas forcément à la mobilité des amas, et un gain en mémoire, puisqu'on ne stocke pas des données pour chaque position atomique. En revanche, cette description en amas conduit à un certain nombre d'approximations :

- Il est nécessaire de pouvoir définir des amas, ce qui n'est pas toujours facile, en particulier quand la concentration en solutés est importante. Comme la dynamique d'amas, l'OKMC et l'EKMC sont donc limités à des cas relativement dilués (concentrations inférieures à quelques pourcents).
- Avec cette description en amas, il n'est pas possible de prendre en compte les phénomènes de couplage de flux, qui dépendent de manière fine des fréquences de sauts atomiques. Cette constatation est également vraie pour la dynamique d'amas.

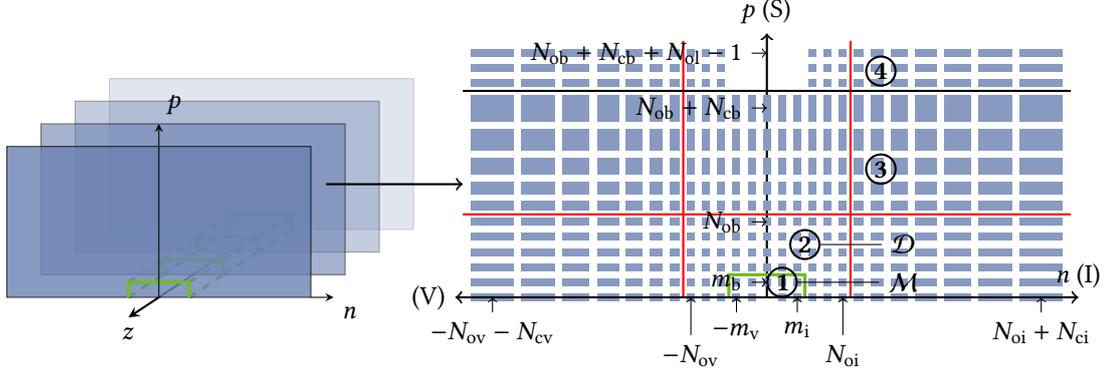


FIGURE 1.2 – Espace des amas dans le code CRESCENDO. Les amas (n, p) peuvent contenir des autodéfauts (interstitiels si $n > 0$, lacunes si $n < 0$) et un type de soluté. Le système peut avoir une dépendance en espace selon une direction z , les couches étant couplées entre elles par les amas potentiellement mobiles, supposés de petite taille (région 1 délimitée par les traits verts, $\mathcal{M} = [-m_v, m_i] \times [0, m_b]$). Dans chaque couche, on distingue la région de l'espace des tailles où toutes les classes d'amas sont traitées explicitement (région 2, \mathcal{D}), des autres régions où un regroupement est opéré (région 3). Des classes d'amas supplémentaires sont ajoutées pour $p > N_{ob} + N_{cb}$ pour dupliquer l'axe des autodéfauts et considérer d'autres types d'amas ne contenant pas de solutés (boucles de différents types par exemple, voir la section 4.2.1).

- Comme en dynamique d'amas, les taux de dissociation α_n dépendent des énergies libres des amas F_n . Cependant, une difficulté est de construire ces taux pour imposer un bilan détaillé correct, donnant lieu aux concentrations d'équilibre attendues. Cela ne peut pas être fait aussi simplement qu'en dynamique d'amas, en imposant une égalité du type (1.9). Ce point est crucial pour les études de précipitation [2].

Bien que les temps simulés soient plus faibles qu'en dynamique d'amas, l'E/OKMC s'avère un outil complémentaire particulièrement intéressant quand les corrélations spatiales entre amas sont importantes, comme dans les cascades. Un exemple de couplage entre l'E/OKMC et la dynamique d'amas, pour introduire de manière effective les corrélations spatiales dans la dynamique d'amas, est décrit dans la partie 3.2. Nous montrons aussi l'intérêt de l'OKMC pour l'étude des forces de puits de la dynamique d'amas, notamment quand les mécanismes de diffusion sont trop complexes pour être traités simplement par des équations aux dérivées partielles (section 3.3).

L'évolution du temps en E/OKMC repose sur un algorithme à temps de résidence [38,39], ou une variante de cet algorithme [37], qui consiste à réaliser des événements selon leur probabilité d'apparition. La différence entre l'EKMC et l'OKMC réside essentiellement dans la définition des événements de diffusion. En EKMC, ces événements correspondent à la réaction d'absorption entre deux amas, en supposant qu'il ne se produit que des collisions binaires. Leur taux de réalisation dépend donc du coefficient de diffusion des deux amas, de la distance entre ces amas et d'un rayon d'interaction [37,40]. En OKMC, un événement de diffusion est un saut vers une position atomique proche voisine [36]. Il a été montré que ces deux méthodes conduisent à des résultats très similaires [41].

Selon les conditions de simulation, il peut être plus avantageux d'utiliser l'une ou l'autre de ces deux méthodes. Si les amas doivent faire un grand nombre de sauts avant d'interagir, l'EKMC s'avère particulièrement efficace, car on évite de simuler explicitement ces événements de diffusion. À l'inverse, quand le nombre d'objets dans la boîte est important et que les distances à parcourir sont faibles, il est plus intéressant d'utiliser l'OKMC. Notons au passage l'existence d'une troisième méthode appelée FPKMC (First Passage KMC) [42], introduite plus récemment. Elle reprend l'idée de l'EKMC de faire des macro-sauts de diffusion, mais introduit des domaines de protection entre les particules afin d'éviter de recourir à l'approximation des collisions binaires.

Un avantage de l'OKMC par rapport à l'EKMC et au FPKMC est sa très grande flexibilité concernant les mécanismes de migration. Comme la migration se fait par sauts élémentaires, il est facile d'introduire des mécanismes plus complexes qu'une diffusion isotrope. On peut par exemple simuler des migration d'amas selon une direction (cas des crowdfions et des boucles), avec un éventuel changement de direction. Pour l'EKMC, il est nécessaire de construire une distribution de probabilité, ce qui peut s'avérer difficile pour des mécanismes de diffusion complexes. La prise en compte des interactions élastiques sur la diffusion est également directe en OKMC, comme discuté dans la partie 3.3. Là encore, la transposition à l'EKMC et au FPKMC est plus délicate [43].

2

ASPECTS NUMÉRIQUES DE LA DYNAMIQUE D'AMAS

Sommaire

2.1	Formulation continue de la dynamique d'amas	13
2.2	Schémas numériques pour l'équation de Fokker-Planck	15
2.3	Couplage discret-continu et conservation de la matière	19
2.4	Résolution déterministe	20
2.5	Résolution hybride déterministe–stochastique	26

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, le nombre d'équations à résoudre en dynamique d'amas peut être très élevé. Sans approximation, certaines simulations sont impossibles à réaliser, non seulement pour des raisons de temps de calcul, mais aussi pour des questions de stockage mémoire. Nous abordons dans ce chapitre l'approximation de l'équation maîtresse (1.1) par une équation de Fokker-Planck (partie 2.1). La discrétisation de cette équation sur un maillage large permet de diminuer le nombre d'équations à résoudre. Les problèmes du schéma de discrétisation et du couplage avec l'équation maîtresse sont discutés dans les parties 2.2 et 2.3. La question de la résolution en temps est abordée dans la section 2.4. Enfin, nous discutons brièvement d'une autre technique de résolution, non déterministe (section 2.5).

2.1 Formulation continue de la dynamique d'amas

Par souci de simplicité, nous considérons un système où les amas sont constitués d'un seul type d'espèce et où seuls les monomères sont mobiles (éq. (1.1) et (1.3)). Par un développement de Taylor, en supposant $n \gg 1$, on montre [10, 44, 45] que l'équation maîtresse peut être approchée par une équation de Fokker-Planck de la forme

$$\frac{\partial}{\partial t} C(x, t) = -\frac{\partial}{\partial x} [F(x, t)C(x, t)] + \frac{\partial^2}{\partial x^2} [D(x, t)C(x, t)], \quad (2.1)$$

avec $x_n = n$, $C(x_n, t) \approx C_n(t)$ et

$$F(x, t) = \beta(x)C_1(t) - \alpha(x), \quad (2.2)$$

$$D(x, t) = \frac{1}{2} [\beta(x)C_1(t) + \alpha(x)]. \quad (2.3)$$

Une formulation équivalente à (2.1), utile pour les schémas numériques, est la formulation en flux, dite conservative :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{\partial J}{\partial x} = -\frac{\partial J^a}{\partial x} - \frac{\partial J^d}{\partial x}, \quad (2.4)$$

avec

$$J^a(x, t, C(x, t)) = F(x, t)C(x, t) \quad (2.5)$$

$$J^d(x, t, C(x, t)) = -\frac{\partial}{\partial x} [D(x, t)C(x, t)]. \quad (2.6)$$

Les flux J^a et J^d sont des flux d'advection et de diffusion dans l'espace des amas.

La transformation en équation de Fokker-Planck est intéressante en tant que telle, car elle permet de mettre clairement en évidence les deux mécanismes physiques présents dans l'équation maîtresse. Nous voyons que l'évolution de la distribution d'amas est donnée par deux termes. Le premier est un terme de dérive (F), relatif à la croissance des amas (différence entre l'absorption et l'émission de monomères). Il peut être négatif, c'est le cas pour des tailles inférieures à la taille critique donnée par x^* tel que $F(x^*, t) = 0$. Le deuxième terme est un terme de diffusion (D) dans l'espace des amas, il rend compte des fluctuations de tailles d'amas dues à l'absorption et à l'émission aléatoires de monomères. Pour la taille critique, le flux entre classes d'amas n'est donc pas nul à cause de ce terme de fluctuations¹.

Pour un système à d types d'espèces, nous obtenons une équation de Fokker-Planck à d dimensions. Il est possible de montrer que des termes croisés ($\partial^2/\partial x \partial y$, etc.) apparaissent si des amas contenant plusieurs types d'espèces sont mobiles [3]. Si ces termes sont absents, le raisonnement que nous développons dans les sections 2.2 et 2.3 se généralise directement au cas multidimensionnel. Dans le cas contraire, il n'est pas encore possible de simuler les systèmes sans perte de matière.

En général il n'existe pas de solution analytique pour l'équation de Fokker-Planck, mais elle peut être discrétisée en espace et résolue numériquement comme un jeu d'équations différentielles ordinaires (EDO), comme l'équation maîtresse. L'avantage par rapport à l'équation maîtresse est qu'un pas de discrétisation bien supérieur à 1 peut être généralement utilisé, de sorte que le nombre d'équations différentielles à résoudre est moins élevé que si toutes les classes sont prises en compte. Cependant, l'approximation par Fokker-Planck n'est valide que pour $n \gg 1$. Pour des petites valeurs de n , seule l'équation maîtresse peut décrire de manière suffisamment précise les distributions d'amas. Cela est d'autant plus vrai que pour n faible, les paramètres énergétiques peuvent varier beaucoup d'une classe à l'autre : on observe souvent des nombres « magiques » pour lesquels des configurations particulièrement stables existent, avec des énergies de liaison F_n^b élevées et donc des coefficients α_n faibles. Les distributions d'amas étant très sensibles à ces paramètres [46], utiliser une approche continue n'est clairement pas valide dans ce cas. Nous adoptons donc l'approche hybride suivante [47] : pour des amas de petite taille, l'équation maîtresse est

1. Le flux de germination s'écrit donc $J^{\text{nucl}} = -\left. \frac{\partial DC}{\partial x} \right|_{x^*}$. C'est l'expression utilisée dans CRESCENDO même si l'équation de Fokker-Planck n'est pas utilisée. Elle a l'avantage d'être une expression locale : nous pourrions aussi utiliser $J^{\text{nucl}} = \beta_{n^*-1}C_{n^*-1}C_1 - \alpha_{n^*}C_{n^*}$ ou $J^{\text{nucl}} = \beta_{n^*}C_{n^*}C_1 - \alpha_{n^*+1}C_{n^*+1}$ (qui ne sont pas nuls, seul $\beta_{n^*}C_1 - \alpha_{n^*}$ l'est), mais ils peuvent différer légèrement.

utilisée (région « discrète »), tandis qu'au delà d'une certaine taille, nous avons recours à l'équation de Fokker-Planck (région « continue », voir figure 1.2). Deux points sont particulièrement délicats :

- La discrétisation de l'équation de Fokker-Planck, qui, si elle n'est pas convenablement effectuée, peut donner lieu à une déformation des distributions d'amas, voire à des instabilités avec l'apparition de concentrations négatives.
- Le couplage entre la région discrète et la région continue.

Ces deux points sont traités dans les deux sections suivantes.

2.2 Schémas numériques pour l'équation de Fokker-Planck

Publications [3, 48]

Dans le contexte de la dynamique d'amas, la résolution directe de l'équation de Fokker-Planck par discrétisation dans l'espace des amas n'est pas très répandue. D'autres méthodes ont d'abord été utilisées, comme les méthodes de groupement à l'origine desquelles on trouve la méthode de Kiritani [49]. L'idée est de regrouper les classes de l'équation maîtresse en groupes, pour lesquels des équations sur les concentrations moyennes dans les groupes sont résolues. La méthode de Kiritani a été améliorée par Golubov *et al.* [50–52] pour mieux reproduire les distributions d'amas, en incluant des équations sur les moments d'ordre zéro et un de la distribution dans les groupes.

L'utilisation d'une discrétisation spatiale de l'équation de Fokker-Planck a été proposée par Ghoniem et Sharafat [47, 53]. Les auteurs procèdent à un changement de variable du type $u = \ln(x)$, de sorte que l'équation (2.1) s'écrit

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{1}{e^u} \frac{\partial FC}{\partial u} - \frac{1}{e^{2u}} \frac{\partial DC}{\partial u} + \frac{1}{e^{2u}} \frac{\partial^2 DC}{\partial u^2}. \quad (2.7)$$

Cette équation est discrétisée par différences finies avec un schéma centré sur un maillage constant en u . Ce changement de variable a également été utilisé dans les codes de cinétique chimique développés au SRMP par Alain Barbu [6] puis en collaboration avec EDF R&D [54]. Le schéma de discrétisation utilisé dans ces codes diffère cependant de celui utilisé par Ghoniem et Sharafat. En effet, lorsque le terme d'advection F est fort (par exemple sous irradiation), le schéma centré donne lieu à des oscillations dans les distributions d'amas, avec éventuellement l'apparition de concentrations négatives [55]. Ces instabilités ont été supprimées en prenant un schéma décentré (*upwind*) qui tient compte du sens du flux d'advection [54–56]. Bien que ce schéma soit stable, il introduit de la diffusion numérique, qui entraîne un élargissement des distributions d'amas [56].

Discrétiser l'équation (2.1) ou l'équation (2.7) par différences finies ne permet pas de conserver la matière, bien que la perte reste faible en général [54]. Pour des problèmes physiques où la quantité de matière totale dans les amas est importante, comme le gonflement sous irradiation qui est directement relié à la quantité totale de lacunes, nous souhaitons disposer d'un schéma qui conserve la matière. Dans CRESCENDO, nous utilisons pour cela une approche en volumes finis et nous partons donc de l'équation de Fokker-Planck exprimée en flux (2.4), qui s'écrit, sous sa forme discrétisée :

$$\frac{dC_n}{dt} = -\frac{J_{n+1/2} - J_{n-1/2}}{\Delta x_n}, \quad (2.8)$$

où C_n représente la concentration moyenne dans la classe de largeur Δx_n et $J_{n+1/2}$ est le flux d'amas de la classe n à la classe $n+1$ (fig. 2.1), somme du flux d'advection $J_{n+1/2}^a$ et du flux de diffusion $J_{n+1/2}^d$.

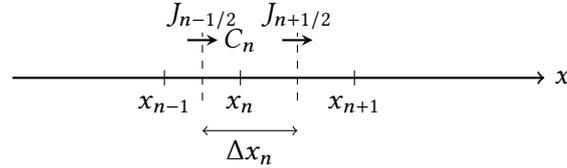


FIGURE 2.1 – Exemple de maillage dans l'espace des amas

La discrétisation du flux de diffusion ne pose pas de problème particulier, elle s'écrit simplement

$$J_{n+1/2}^d = -\frac{D_{n+1}C_{n+1} - D_n C_n}{x_{n+1} - x_n}, \quad (2.9)$$

avec $D_n = D(x_n, t)$. Comme mentionné précédemment, la discrétisation du flux d'advection est plus délicate et peut donner lieu à des instabilités ou à de la diffusion numérique. Dans le cadre d'une collaboration avec Gabriel Stoltz, Frédéric Legoll et Laurent Monasse, chercheurs au CERMICS (École des Ponts ParisTech), nous avons testé des méthodes dites « haute résolution » qui sont stables et plus précises que le schéma décentré [57]. Les détails de cette étude sont décrits dans la référence [48] et seuls quelques points importants sont abordés ici.

De manière générale, nous écrivons le flux advectif sous la forme suivante :

$$J_{n+1/2}^a = J^a(x_{n+1/2}, C_{n+1/2}^-) = F(x_{n+1/2})C_{n+1/2}^- \quad \text{si } F(x_{n+1/2}) \geq 0 \quad (2.10)$$

$$J_{n+1/2}^a = J^a(x_{n+1/2}, C_{n+1/2}^+) = F(x_{n+1/2})C_{n+1/2}^+ \quad \text{si } F(x_{n+1/2}) < 0, \quad (2.11)$$

où $C_{n+1/2}^-$ et $C_{n+1/2}^+$ sont des valeurs « à gauche » et « à droite » des concentrations en $x_{n+1/2}$ « reconstruites » à partir des valeurs $\{C_j\}_{j \in \mathbb{N}}$. L'étape de reconstruction est essentielle dans les schémas haute résolution : elle vise à augmenter l'ordre de la méthode dans les régions où la solution présente peu de variations, tandis qu'elle doit limiter les oscillations au voisinage de discontinuités ou de gradients forts. À titre d'exemple, la reconstruction la plus simple, correspondant au schéma décentré, s'écrit

$$C_{n+1/2}^- = C_n \quad (2.12)$$

$$C_{n+1/2}^+ = C_{n+1}. \quad (2.13)$$

La signification de ce schéma est relativement simple et intuitive : le flux traversant l'abscisse $x_{n+1/2}$ est principalement donné par la valeur de la concentration en amont de $x_{n+1/2}$, par rapport au sens de propagation de l'information [57]. Ce principe permet d'assurer la stabilité du schéma. Le schéma de Chang-Cooper [58–60], que j'ai adapté pour CRES-CENDO en 2010 [3], avant le travail sur les méthodes de haute résolution, est basé sur ce principe. Il s'écrit :

$$J_{n+1/2}^a = (1 - \delta_n)(FC)_{n+1} + \delta_n(FC)_n, \quad (2.14)$$

avec

$$\delta_n = -\frac{1}{\exp(-w_n) - 1} - \frac{1}{w_n} \quad (2.15)$$

et

$$w_n = \frac{(F_n + F_{n+1})(x_{n+1} - x_n)}{D_n + D_{n+1}}. \quad (2.16)$$

Nous voyons que si le flux advectif est très fort et positif, $w_n \gg 1$ et $\delta_n \rightarrow 1$, alors que si le flux est fortement négatif, $w_n \ll -1$ et $\delta_n \rightarrow 0$. Nous retrouvons donc le schéma décentré. Par contre, ce schéma assure une transition continue entre les cas extrêmes $\delta_n = 1$ et $\delta_n = 0$, et on retrouve le schéma centré si $\delta_n = 1/2$ (mais dans ce cas le flux advectif est nul). La présence d'une composante centrée fait que la précision est en théorie meilleure qu'avec un schéma décentré. Les tests effectués avec CRESCENDO montrent en fait que dans la majorité des cas, le flux advectif est si fort que le schéma se réduit au schéma décentré.

Revenons aux schémas haute résolution. En général, on parle de schéma haute résolution si la reconstruction de $C_{n+1/2}^+$ et $C_{n+1/2}^-$ utilise une fonction au moins affine sur l'intervalle $[x_n, x_{n+1}]$ avec une pente qui peut être non nulle (une pente nulle correspond au schéma décentré, où la fonction prend simplement les valeurs C_n ou C_{n+1}). De nombreuses reconstructions plus précises que (2.12)–(2.13) ont été proposées dans la littérature [57]. L'approche que nous avons adoptée est celle de Suresh et Huynh [61], que nous avons généralisée pour un maillage non uniforme [48]. Le schéma, appelé MP5 (pour « Monotonicity Preserving 5 »), est basé sur une reconstruction d'ordre 5, qui s'écrit par exemple sur un maillage uniforme :

$$C_{n+1/2}^- = \frac{1}{60} (2C_{n-2} - 13C_{n-1} + 47C_n + 27C_{n+1} - 3C_{n+2}) \quad (2.17)$$

$$C_{n+1/2}^+ = \frac{1}{60} (-3C_{n-1} + 27C_n + 47C_{n+1} - 13C_{n+2} + 2C_{n+3}). \quad (2.18)$$

La valeur de $C_{n+1/2}^-$ ou de $C_{n+1/2}^+$ est ensuite modifiée (l'ordre de la reconstruction est abaissé) si les gradients de concentration sont trop forts, afin d'assurer la stabilité du schéma. Ces modifications étant assez complexes, elles ne sont pas décrites ici mais peuvent être trouvées dans la référence [61].

Pour comparer les différents schémas numériques, nous envisageons le cas test proposé par Koiwa [62]. Il correspond aux équations (1.1)–(1.3), les coefficients d'absorption et d'émission étant donnés par

$$\beta_n = \beta \quad \text{pour } n \geq 2, \quad (2.19)$$

$$\beta_1 = \eta\beta, \quad (2.20)$$

$$\alpha_n = 0 \quad \text{pour } n \geq 2. \quad (2.21)$$

Le paramètre η est égal à 10^{-4} . Les conditions initiales sont $C_1(t=0) = C_q$ et $C_n(t=0) = 0$ pour $n \geq 2$. Ce cas test peut donc correspondre physiquement à l'agglomération de lacunes de trempe par exemple. Le terme d'émission étant nul pour tous les amas, les lacunes s'agglomèrent jusqu'à ce que la concentration C_1 soit nulle. À partir de cet instant, la distribution d'amas n'évolue plus. L'absence de terme d'émission fait que le terme d'advection est

prépondérant dans le flux (éq. (2.2)–(2.3)), ce qui constitue un cas favorable pour tester la stabilité et la précision des schémas.

Les distributions d'amas stationnaires, normalisées par C_q , sont présentées figure 2.2. Comme attendu, le schéma de Chang-Cooper (qui se réduit ici au schéma décentré) est stable, mais introduit de la diffusion numérique (fig. 2.2-a). Le schéma centré, quant à lui, introduit des oscillations dans la distribution d'amas (fig. 2.2-b). Il s'avère donc clairement inapproprié pour les simulations avec des termes advectifs forts, comme les simulations sous irradiation. La figure 2.2-c correspond à la méthode de groupement développée par Golubov *et al.* [50]. L'accord avec la distribution de référence est remarquable, mais des concentrations négatives apparaissent en queue de distribution, vers $x_n \approx 180$. Enfin, le schéma MP5 reproduit parfaitement la distribution (fig. 2.2-d). Quand une description fine de la distribution est nécessaire, ce schéma s'avère donc très intéressant.

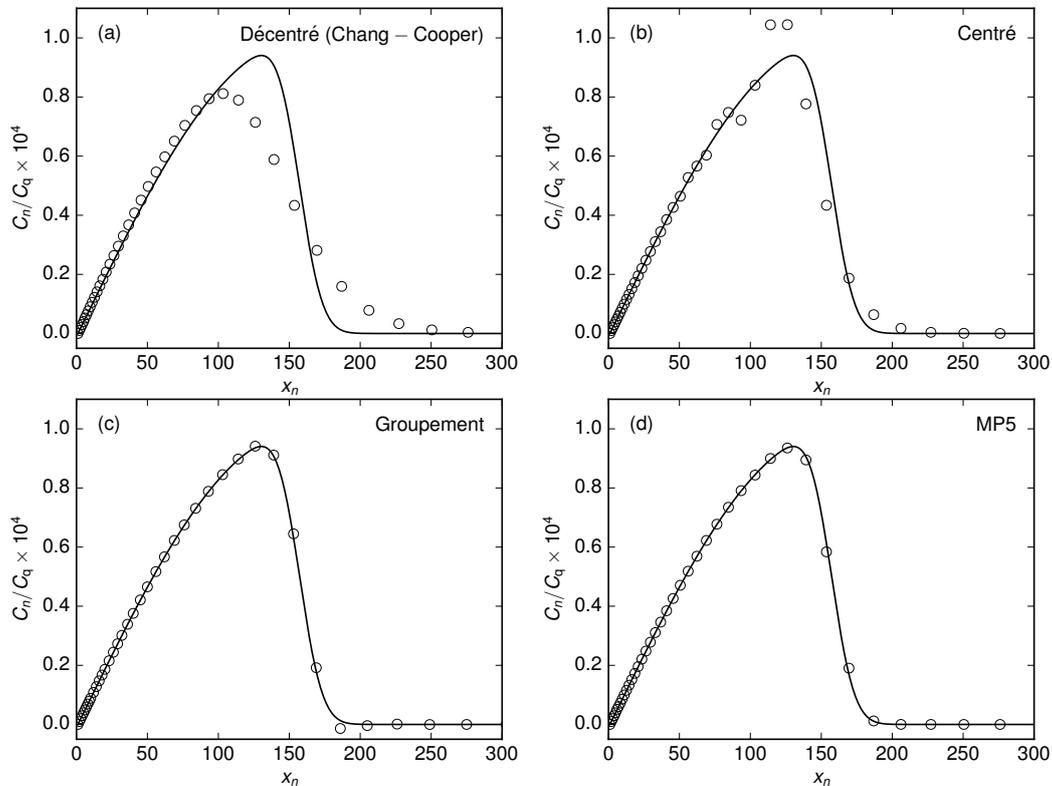


FIGURE 2.2 – Distributions d'amas stationnaires normalisées du cas test proposé par Koiwa (agglomération de lacunes de trempe) [62], obtenues avec différentes approximations (cercles) : (a) schéma Chang-Cooper (décentré), (b) schéma centré, (c) méthode de groupement, (d) schéma (2.10)–(2.11) avec reconstruction MP5. Le calcul exact, prenant en compte toutes les classes d'amas, est représenté par la courbe noire.

La conclusion naturelle de cette partie est donc de recommander d'utiliser le schéma MP5 pour tous les calculs. Cependant, comme nous le verrons dans la section 2.4, les temps de calcul avec ce schéma sont plus importants qu'avec des schémas plus simples comme le schéma de Chang-Cooper. Bien que la distribution soit déformée avec le schéma de

Chang-Cooper, les moments d'ordre zéro et un de la distribution sont bien reproduits sur le cas test de Koiwa : l'erreur sur la densité d'amas est d'environ 5 %, tandis que celle sur le nombre moyen de lacunes par amas est de 2 %. La résolution en temps étant très rapide, il peut être intéressant d'utiliser le schéma de Chang-Cooper quand la forme précise de la distribution d'amas n'est pas importante ou quand une étude paramétrique, nécessitant de nombreux calculs, est menée. Le schéma MP5 peut ensuite être utilisé pour affiner les distributions.

2.3 Couplage discret-continu et conservation de la matière

Publication [3]

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, la discrétisation que nous utilisons pour l'équation de Fokker-Planck, basée sur une approche en flux, assure la conservation de la matière. En réalité, la conservation du flux d'amas n'est qu'une condition nécessaire : il faut également s'assurer que les taux de variation des espèces mobiles, qui sont responsables de ces flux, sont cohérents avec eux. Pour s'en convaincre, il suffit d'écrire le taux de variation de matière dans un intervalle $[x_{i_1}, x_{i_2}]$ dans la région continue :

$$\frac{dS}{dt} = \sum_{n=i_1}^{i_2} x_n \frac{x_{n+1} - x_{n-1}}{2} \frac{dC_n}{dt} \quad (2.22)$$

$$= \sum_{n=i_1}^{i_2} x_n [J_{n-1/2} - J_{n+1/2}] \quad (2.23)$$

$$= x_{i_1} J_{i_1-1/2} - x_{i_2} J_{i_2+1/2} + \sum_{n=i_1+1}^{i_2} \Delta x_{n-1} J_{n-1/2}. \quad (2.24)$$

Considérons le cas où seule l'espèce $n = 1$ est mobile, comme dans le cas test de Koiwa. Les flux entre classes d'amas sont donc entièrement dus à l'absorption ou à l'émission de monomères. Les deux premiers termes de l'équation (2.24) sont les flux de matière liés aux amas qui « traversent » les interfaces en $n = i_1$ et $n = i_2$ en absorbant des monomères. Le troisième terme représente le taux de variation de matière dû à l'absorption et à l'émission de monomères par des amas qui restent dans l'intervalle $[x_{i_1}, x_{i_2}]$. Pour assurer la conservation de matière, il est donc nécessaire d'ajouter à l'équation sur les monomères le terme suivant :

$$\frac{dC_1}{dt} = - \sum_n \Delta x_{n-1} J_{n-1/2} - \dots \quad (2.25)$$

Si plusieurs espèces sont mobiles, ce raisonnement se généralise en décomposant les flux $J_{n-1/2}$ comme une somme de flux partiels $J_{n-1/2}^m$ dus aux différentes espèces mobiles, puis en remplaçant $J_{n-1/2}$ par $J_{n-1/2}^m/m$ dans l'expression (2.25) [3].

Une deuxième difficulté, pour conserver la matière, apparaît pour le couplage entre l'équation de Fokker-Planck et l'équation maîtresse à la frontière entre la région discrète et la région continue. L'équation de Fokker-Planck est une approche locale (dépendant de $C(x, t)$ et de ses dérivées en x), tandis que l'équation maîtresse est non-locale (l'expression des flux fait intervenir les classes $n - 1$, n et $n + 1$ dans le cas le plus simple). Si l'on veut assurer la continuité des flux à l'interface entre les deux régions, il est donc nécessaire de

modifier les expressions des flux dans au moins un des deux formalismes pour les rendre compatibles. En réalité, il faut rendre compatible la *discrétisation* de l'équation de Fokker-Planck (non locale) avec l'équation maîtresse.

Comme précédemment, le cas le plus simple est celui où seuls les monomères sont mobiles. Si l'on utilise un schéma centré à 3 points sur un maillage de largeur constante $\Delta x = 1$, il est facile de montrer que l'on retrouve l'équation maîtresse [63]. La continuité des flux est assurée sans aucune modification : il suffit juste d'utiliser un schéma centré au niveau de l'interface sur un maillage unité. Quand des amas de plus grande taille sont mobiles, le schéma centré à 3 points pour Fokker-Planck fait toujours intervenir les trois points $n - 1$, n et $n + 1$, alors qu'il existe dans l'équation maîtresse des couplages aux amas $n - 2$, $n + 2$, etc. L'idée est alors d'identifier, dans les flux discrétisés de l'équation de Fokker-Planck, les termes qui représentent un couplage avec la région discrète, et de remplacer ces flux locaux par les flux non-locaux de l'équation maîtresse. Cette modification de l'équation de Fokker-Planck se fait sur une région de transition, sur laquelle un schéma centré et un pas de discrétisation unité sont imposés. Les détails de cette approche sont donnés dans la référence [3].

Pour conclure sur ce couplage discret-continu, nous quantifions la conservation de la matière sur le test de Koiwa. L'erreur sur la conservation de la matière, dans ce cas, est simplement donnée par

$$\epsilon(t) = \left| \frac{\sum_n x_n \Delta x_n C_n(t) - \sum_n x_n \Delta x_n C_n(0)}{\sum_n x_n \Delta x_n C_n(0)} \right| = \left| \frac{\sum_n x_n \Delta x_n C_n(t)}{C_q} - 1 \right| \quad (2.26)$$

Nous donnons figure 2.3 l'évolution en temps des quantités de matière normalisées par C_q dans la région discrète (S_{disc}) et dans la région continue (S_{cont}), ainsi que l'erreur ϵ . Les données sont représentées en fonction du temps réduit $\tau = t/(\beta C_q)$. Nous observons que l'erreur reste de l'ordre de la précision machine ($\sim 10^{-16}$) tout au long de la simulation, y compris quand la distribution traverse l'interface discret/continu et quand elle est majoritairement dans la partie continue.

Dans le cas général, la conservation de la matière est également très satisfaisante [3]. Notons que pour une équation de Fokker-Planck multidimensionnelle avec des termes croisés $\partial^2/\partial x \partial y$, etc., le couplage n'est plus aussi évident. Pour l'instant, le code CRES-CENDO ne conserve pas la matière dans ce cas.

2.4 Résolution déterministe

En utilisant l'équation maîtresse (1.12) éventuellement couplée à une discrétisation de l'équation de Fokker-Planck (2.8), nous aboutissons à un système d'EDO non linéaires. Ce jeu d'équations est en général très raide [64] : qualitativement, cela signifie qu'il contient des temps caractéristiques très différents. Cela se traduit par l'utilisation de pas de temps faibles pour maintenir la stabilité avec un schéma explicite. Pour être efficace, la résolution d'un système raide doit être effectuée par des méthodes implicites. Un moyen pour appréhender la raideur d'un système est d'analyser les valeurs propres de la matrice jacobienne

$$J_{ij} = \frac{\partial \dot{C}_i}{\partial C_j}, \quad (2.27)$$

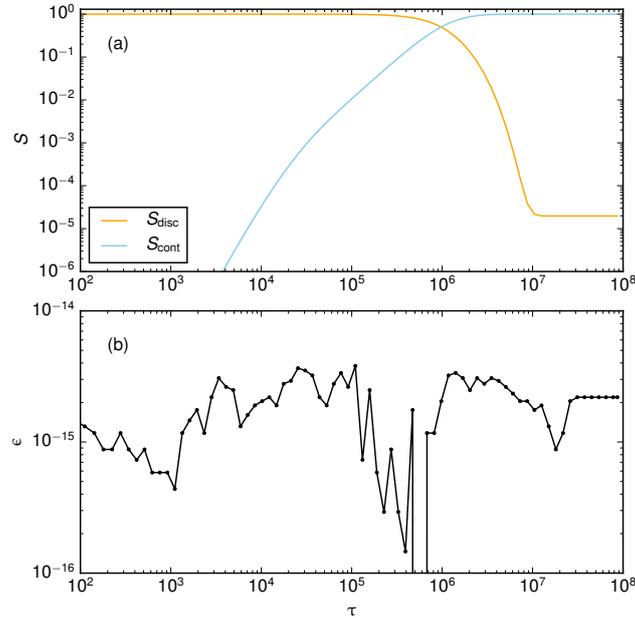


FIGURE 2.3 – Conservation de la matière pour le cas test de Koiwa, en fonction du temps réduit $\tau = t/(\beta C_q)$: (a) Quantités de matière normalisées par C_q dans la région discrète (S_{disc}) et dans la région continue (S_{cont}) (b) Erreur sur la conservation ϵ (éq. (2.26)). Pour minimiser l'erreur due à l'intégration temporelle, les tolérances du solveur CVODES sont choisies très faibles ($\text{atol} = 10^{-30}$, $\text{rtol} = 10^{-10}$).

avec $\dot{C}_i = dC_i/dt$. Pour un système raide, la matrice J a un spectre très large de valeurs propres. Un exemple de valeurs propres pour un cas test sous irradiation (fer irradié aux neutrons) [65] est présenté figure 2.4. Nous voyons qu'il y a un peu plus de 12 ordres de grandeur entre les parties réelles de la plus petite et de la plus grande valeur propre !

Deux grandes classes de méthodes implicites sont utilisées couramment pour les systèmes raides [64] : les méthodes de type Runge-Kutta et les méthodes « multipas », en particulier les méthodes BDF (*backward differentiation formulas*). Ces dernières ont été, et sont toujours, largement utilisées dans le domaine de la dynamique d'amas [6, 47] grâce aux solveurs développés depuis les années 1970 au laboratoire national de Lawrence Livermore (LLNL) : GEAR [66], mais surtout LSODE [67] et ses variantes. Dans CRESCENDO nous utilisons le solveur CVODES qui fait partie de la famille de codes SUNDIALS [68], également développée au LLNL. Ce code est plus modulaire que LSODE, permet facilement l'intégration de solveurs linéaires supplémentaires et possède une fonctionnalité d'analyse de sensibilité.

Réécrivons le système à résoudre sous une forme condensée :

$$\frac{d\tilde{C}}{dt} = f(t, \tilde{C}), \quad (2.28)$$

où \tilde{C} est le vecteur contenant les concentrations et f est non linéaire dans notre cas. Pour simplifier, nous considérons le schéma d'Euler implicite, qui correspond à la méthode BDF

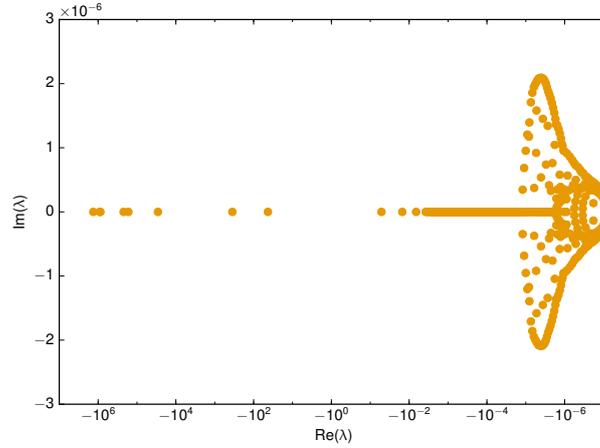


FIGURE 2.4 – Parties réelle et imaginaire des valeurs propres de la matrice jacobienne pour un cas test représentant une irradiation d'un échantillon de fer aux neutrons [65]. La matrice jacobienne correspond aux distributions d'amas (interstitiels et lacunaires) à 0.1 dpa.

d'ordre 1 (Pour des ordres supérieurs, les valeurs précédentes \tilde{C}^{n-2} , etc. sont utilisées) :

$$\tilde{C}^n = \tilde{C}^{n-1} + h_n f(t_n, \tilde{C}^n), \quad (2.29)$$

où $h_n = t_n - t_{n-1}$ est le pas de temps et \tilde{C}^n est le vecteur de concentrations au temps t_n , c'est-à-dire une approximation de $\tilde{C}(t_n)$. La valeur de \tilde{C}^n est donc obtenue en résolvant le système non linéaire suivant :

$$G(\tilde{C}^n) = \tilde{C}^n - h_n f(t_n, \tilde{C}^n) - \tilde{C}^{n-1} = 0. \quad (2.30)$$

Le code CVODES utilise pour cela une méthode de Newton. En partant d'une estimation initiale $\tilde{C}^{n(0)}$, il procède par itérations successives pour trouver de manière approximative le zéro de la fonction G et donc \tilde{C}^n :

$$\left. \frac{\partial G}{\partial \tilde{C}} \right|_{\tilde{C}^{n(m-1)}} (\tilde{C}^{n(m)} - \tilde{C}^{n(m-1)}) + G(\tilde{C}^{n(m-1)}) = 0, \quad (2.31)$$

soit

$$(I - h_n J) (\tilde{C}^{n(m)} - \tilde{C}^{n(m-1)}) = -G(\tilde{C}^{n(m-1)}). \quad (2.32)$$

Dans cette équation, I représente la matrice identité. Nous voyons donc qu'il faut résoudre un système linéaire, dans lequel la matrice jacobienne J (éq. (2.27)) intervient. Par défaut, cette matrice est générée par CVODES par différences finies, en utilisant l'approximation

$$J_{ij} \approx \frac{\dot{C}_i(C_j + \delta C_j) - \dot{C}_i(C_j)}{\delta C_j}, \quad (2.33)$$

avec δC_j une « petite » modification de C_j , choisie par CVODES en fonction des tolérances d'intégration.

Utiliser une approximation par différences finies a un avantage certain : cela évite de calculer analytiquement la matrice jacobienne et de coder son expression. Cette tâche peut en effet s'avérer complexe et très fastidieuse, surtout en présence de termes multipuits (joints de grains, termes β_n et α_n dépendant des concentrations). Une seule erreur peut entraîner des problèmes de convergence et dégrader significativement les performances de l'intégration en temps, en provoquant des chutes de pas de temps. Dans CRESCENDO, les parties relatives à la matrice jacobienne représentent un peu moins de 20000 lignes de code, soit 25% du code total.

Pour des systèmes de plus de quelques milliers d'équations, l'évaluation par différences finies devient trop coûteuse en temps de calcul et la matrice jacobienne exacte doit être fournie. À titre d'illustration, les temps de calcul des étapes de résolution les plus importantes sont données figures 2.5-a et 2.5-b quand la matrice jacobienne est évaluée par différences finies ou calculée analytiquement. Nous voyons que dans le premier cas, le temps de calcul est dominé par le calcul de la matrice jacobienne.

Si la matrice jacobienne exacte est fournie, la résolution du système linéaire (2.32) et plus précisément la factorisation LU de la matrice $I - h_n J$ est responsable de la plus grande partie du temps de calcul (fig. 2.5-b). Cette étape demande de l'ordre de N^3 opérations où N est le nombre d'équations, si la matrice $I - h_n J$ est pleine. Considérer des systèmes de plus de quelques milliers d'équations peut alors devenir problématique.

Heureusement, la matrice jacobienne est souvent creuse. En effet, dans une tranche d'espace donnée, seules les espèces mobiles sont couplées à toutes les espèces. Les tranches ne sont également couplées entre elles que par le terme de diffusion des espèces mobiles. Si les espèces mobiles ne représentent qu'un sous-ensemble réduit de l'ensemble des classes d'amas, comme supposé figure 1.2, de nombreux termes dans la matrice jacobienne sont nuls.

Dans le cadre de l'ANR ParMat, Guy Bencteux (département SINETICS, EDF R&D) a implémenté dans CRESCENDO un solveur linéaire basé sur le complément de Schur. Sans entrer dans les détails, ce solveur, développé initialement par David Guibert, exploite le fait qu'une petite partie seulement des espèces sont couplées à toutes les autres [69]. Son efficacité augmente si les amas immobiles ne sont couplés qu'à des classes stockées à proximité en mémoire, car on peut alors profiter de la structure bande de la matrice. Le cas optimal est celui pour lequel une classe (n) est couplée seulement aux classes ($n - 1$), (n) et ($n + 1$). L'efficacité du solveur décroît si le nombre d'espèces mobiles augmente, ou si un soluté est présent. Dans ce dernier cas, un amas (n, p) est couplé non seulement aux amas (n, p), ($n - 1, p$), ($n + 1, p$), mais aussi ($n, p + 1$) et ($n, p - 1$). Si l'indice variant le plus vite en mémoire est n , les classes ($n, p - 1$) et ($n, p + 1$) sont stockées relativement loin de la classe (n, p), la bande de la matrice jacobienne s'élargit, ce qui rend la factorisation LU plus coûteuse (fig. 2.5-c).

Pour cette raison nous avons également introduit dans CRESCENDO une interface pour utiliser le solveur linéaire MUMPS [70, 71]. L'intérêt de ce solveur est qu'il utilise une méthode générale (méthode multifrontale), qui ne dépend pas d'une structure précise de la matrice jacobienne. Dans les tests que nous avons effectués, nous avons observé qu'il est généralement très robuste et rend l'intégration en temps par CVODES plus efficace que le solveur dense utilisé par défaut et le solveur Schur (fig. 2.5-d). Utilisé avec les bibliothèques METIS [72] ou SCOTCH [73] (ou leur équivalent parallèle, ParMETIS et PT-SCOTCH) as-

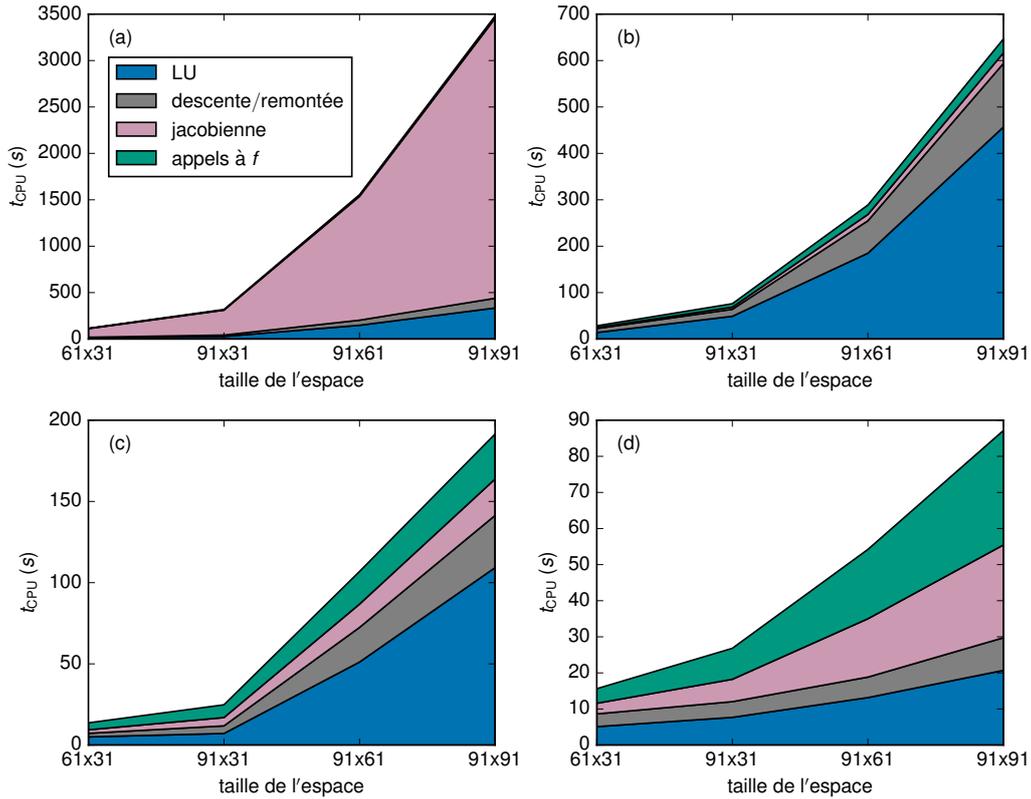


FIGURE 2.5 – Temps de calcul des principales étapes de la résolution du système d'EDO pour des systèmes de différentes tailles (données sous la forme $N_n \times N_p$, où N_n le nombre d'équations selon l'axe des autodéfauts et N_p selon l'axe des solutés) : factorisation LU, descente et remontée pour la résolution des systèmes linéaires, évaluation de la matrice jacobienne, appels à la fonction f . (a) Matrice jacobienne évaluée par différences finies et solveur linéaire dense (b) Matrice jacobienne exacte et solveur linéaire dense (c) Matrice jacobienne exacte et solveur linéaire Schur (d) Matrice jacobienne exacte et solveur linéaire MUMPS. Le cas test correspond à l'implantation d'ions hélium de 60 keV dans du fer sans spatialisation, pour un temps de $t = 0.05$ s. Les paramètres sont données dans la référence [3].

surant une renumérotation des équations, il s'avère particulièrement performant pour des systèmes jusqu'à quelques centaines de milliers d'équations.

Pour l'instant nous n'avons abordé que les méthodes de résolution directes du système (2.32). Une perspective serait de tester des méthodes de résolution itératives, qui ne nécessitent pas de calculer la matrice jacobienne mais seulement de savoir calculer le produit matrice-vecteur [74]. Les performances de ces méthodes dépendent néanmoins du spectre de valeurs propres de la matrice jacobienne. En particulier, certaines méthodes sont bien adaptées si les grandes valeurs propres sont peu nombreuses et bien séparées des plus petites (systèmes dits « raides séparables ») [64, 75–77]. Il serait intéressant de voir si de telles méthodes se comportent bien dans notre cas, avec des spectres comme ceux de la figure 2.4. En général, il semble utile de préconditionner la matrice pour assurer une bonne convergence de la méthode [78]. Comme le spectre de la matrice jacobienne évolue avec le temps, il n'est pas simple a priori de construire une méthode robuste basée sur ces méthodes itératives.

Pour les systèmes raides séparables, une autre perspective est de procéder au découplage entre les parties raides et non raides en scindant le vecteur concentration \tilde{C} en deux vecteurs \tilde{C}_i et \tilde{C}_e (variant rapidement et lentement), au lieu de le faire au niveau de l'algèbre linéaire comme dans le paragraphe précédent. On peut ensuite coupler un solveur explicite pour l'évolution de \tilde{C}_e à un solveur implicite pour \tilde{C}_i [79]. L'avantage est que la taille de la matrice jacobienne est réduite. Ce partitionnement, directement sur les équations, n'est cependant pas toujours possible. Une analyse plus fine de la raideur des équations de la dynamique d'amas permettrait de mieux cerner la pertinence de ce type d'algorithme.

Les méthodes de partitionnement offrent d'autres avantages. Au lieu de scinder le vecteur concentration \tilde{C} , il est aussi possible d'écrire la fonction f comme

$$f(t, \tilde{C}) = f_e(t, \tilde{C}) + f_i(t, \tilde{C}), \quad (2.34)$$

où f_e contient les termes variant lentement, tandis que f_i contient ceux qui varient rapidement. Ce partitionnement, sur les *termes* et non plus sur les *équations*, ne permet pas de réduire la taille de la matrice jacobienne, mais peut éventuellement augmenter le pas de temps d'intégration en utilisant des méthodes d'intégration additives [80]. Nous avons en effet observé qu'avec CVODES, l'utilisation du schéma MP5 pour l'équation de Fokker-Planck, décrit dans la section 2.2, conduit en général à des pas de temps d'intégration beaucoup plus faibles que le schéma Chang-Cooper (fig. 2.6). Il est connu que les méthodes implicites ne sont pas très utiles pour les termes d'advection ; en outre, la complexité des schémas pour ces termes peut même entraîner des changements rapides de la matrice jacobienne et réduire les pas de temps. Nous avons effectué des tests avec le solveur ARKODE [81], qui fait partie de SUNDIALS et qui utilise des méthodes de Runge-Kutta additives. En traitant le terme d'advection de l'équation de Fokker-Planck en explicite et le reste en implicite, nous n'avons pas obtenu des résultats aussi bons qu'avec CVODES. Probablement la raideur est trop importante pour les schémas Runge-Kutta implicites utilisés. Il serait intéressant cependant d'approfondir cette étude.

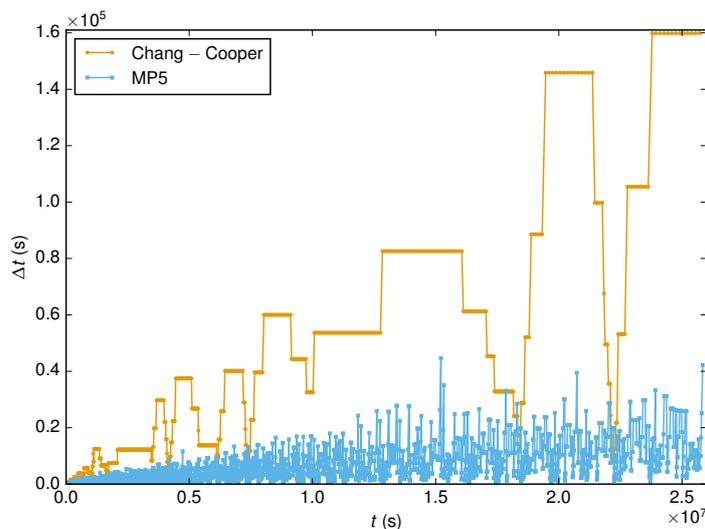


FIGURE 2.6 – Pas de temps Δt utilisé par le solveur CVODES pour intégrer le système d'équations du cas test de la référence [65], pour deux discrétisations du terme d'advection de l'équation de Fokker-Planck (Chang-Cooper et MP5). Pour donner un ordre de grandeur, les temps de calcul sont de 30 s pour le schéma de Chang-Cooper et 170 s pour le schéma MP5.

Publication [82] 2.5 Résolution hybride déterministe–stochastique

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, les méthodes déterministes implicites sont très efficaces quand la résolution des systèmes linéaires est rapide. Les pas de temps sont élevés (jusqu'à 1.6×10^5 s sur le cas test de la figure 2.6 !). Nous pouvons néanmoins identifier deux inconvénients :

- Elles nécessitent un travail d'écriture de code (matrice jacobienne) et un travail numérique (solveurs linéaires) importants. À chaque modification de la physique du code, il est nécessaire d'adapter la matrice jacobienne et les solveurs linéaires. Des solveurs linéaires très efficaces sur un cas, exploitant au mieux la structure de la matrice jacobienne (par exemple le solveur Schur avec un seul type d'espèce), peuvent s'avérer décevants voire inefficaces si l'espace des amas change.
- Si le nombre d'espèces augmente, la taille du vecteur concentration \tilde{C} et celle de la matrice jacobienne augmentent et des problèmes de résolution numérique, voire de stockage mémoire, apparaissent. Sauf à utiliser les méthodes itératives, la résolution déterministe devient impossible.

Pour ces raisons, nous avons étudié la possibilité de réaliser une résolution stochastique des équations de la dynamique d'amas. Cette idée, proposée récemment par Bulatov [83], correspond à la méthode utilisée par Gillespie (SSA, pour *stochastic simulation algorithm*) pour la résolution d'équations de cinétique chimique [39]. Il s'agit de considérer un volume V et de suivre l'évolution du nombre d'amas de chaque espèce ($X_n = C_n V$) dans ce volume en utilisant un algorithme à temps de résidence. Bien que la méthode puisse ressembler au premier abord à l'E/OKMC, il est important de noter que les positions des amas ne sont pas prises en compte. Les réactions entre amas dans le volume V se font en fonction des

taux de réaction donnés par les équations de la dynamique d'amas ($\alpha_n X_n, \beta_n X_n X_1/V$, etc.). L'avantage de cette approche est qu'il n'est pas nécessaire de calculer la matrice jacobienne, ce qui rend la méthode très flexible et très facile à implémenter.

Le pas de temps moyen étant égal à l'inverse de la somme de tous les taux de réaction, il peut être très faible si le volume V est grand (X_n augmente) ou si les taux de réaction sont élevés. Ce dernier cas arrive fréquemment en dynamique d'amas, où certains taux sont très importants par rapport à d'autres et imposent un pas de temps faible. Nous retrouvons ici les problèmes de raideur évoqués précédemment pour la résolution déterministe. Dans la communauté des biochimistes, ce problème est bien connu et de nombreuses améliorations de la méthode SSA ont été proposées : optimisation de l'algorithme [84], regroupement des réactions par paquets (τ -leaping) [85], séparation entre réactions lentes et rapides [86, 87], etc. En dynamique d'amas, seul le τ -leaping a été envisagé [88].

Partant du constat que la résolution déterministe implicite d'un problème raide de petite dimension est très efficace, nous nous sommes orientés vers des approches couplant résolution déterministe et résolution stochastique [86, 89]. L'idée est d'introduire une composante déterministe dans la résolution stochastique, pour traiter les réactions qui se produisent fréquemment et éviter la réduction du pas de temps imposée par l'algorithme à temps de résidence. Une méthode intéressante est celle proposée par Alfonsi *et al.* [89], qui a l'avantage de coupler de manière exacte une résolution déterministe à une résolution stochastique. Une fois la partition entre réactions « déterministes » et « stochastiques » effectuée, le système contenant uniquement les réactions déterministes est résolu en y adjoignant une équation supplémentaire, qui dépend des taux de réaction stochastiques et qui indique le prochain temps auquel une réaction stochastique doit se produire. Quand ce temps est atteint par la résolution déterministe, celle-ci est arrêtée. La réaction stochastique est réalisée, les populations sont mises à jour et la résolution déterministe reprend. Remarquons que si cette méthode permet bien de réduire le nombre de réactions traitées de manière stochastique, elle ne diminue pas la taille du système d'équations déterministes, ce qui peut poser problème en dynamique d'amas.

Dans le cadre de l'ANR ParMat, Marco Gherardi (post-doctorant au SRMP de 2009 à 2011) est parti de cette méthode pour proposer un couplage déterministe – stochastique pertinent pour la dynamique d'amas. Nous avons utilisé pour cela comme base un code écrit par Solène Le Bourdieu (EDF R&D) [90] implémentant l'algorithme SSA de Gillespie. Nous avons apporté deux modifications principales à la méthode proposée par Alfonsi *et al.* [89] :

- Le partitionnement des réactions résulte d'un partitionnement des amas, c'est-à-dire des équations. Un domaine Δ est choisi dans l'espace total des amas, et seules les réactions n'impliquant que des classes dans Δ sont traitées de manière déterministe. Cela permet de limiter les équations intervenant dans la résolution déterministe aux classes dans Δ , et donc de diminuer la taille du système à résoudre. En pratique, nous avons imposé que Δ englobe les petits amas afin d'intégrer les réactions entre espèces mobiles dans la résolution déterministe.
- À chaque réaction stochastique, la modification brutale de certaines valeurs X_n peut perturber la résolution déterministe. Pour limiter ce problème, certaines valeurs X_n ne sont pas mises à jour lors d'une réaction stochastique. Pour ces variables, nous introduisons un terme source/puits qui mime l'effet des réactions stochastiques. La

méthode n'est plus exacte, mais cette approximation permet d'accélérer considérablement le calcul tout en maintenant une très bonne précision.

À titre d'exemple nous montrons figure 2.7 une distribution d'amas obtenue par l'algorithme hybride [82] pour une irradiation de fer pur aux neutrons à 300°C. La zone déterministe est $\Delta = [-450, 600]$ et le volume est $V = 10^{-13} \text{ cm}^3$, c'est-à-dire qu'un amas en concentration inférieure à 10^{13} cm^{-3} ne peut pas exister. Pour comparer à la distribution obtenue avec une résolution purement déterministe, qui contient des concentrations plus faibles, un regroupement des amas dans des classes de largeur 1000 est effectué. L'accord entre les deux calculs est très bon, et pourrait être amélioré en faisant une moyenne sur plusieurs réalisations. Nous notons également que les concentrations des petits amas sont très semblables, ce qui valide l'approximation sur l'utilisation d'un terme source/puits effectif (sa mise à jour est effectuée ici toutes les 1000 réactions).

Le temps de calcul pour une simulation hybride est indiqué figure 2.8. Il varie en fonction du volume V et de la zone déterministe Δ . En choisissant ces paramètres de manière optimale, il est possible de réduire le temps de calcul d'un à deux ordres de grandeur par rapport à une simulation SSA ou une simulation déterministe. Notons cependant que pour cette dernière simulation, un solveur linéaire dense a été utilisé (les solveurs Schur et MUMPS n'étaient pas encore disponibles). Exploiter la structure creuse de la matrice jacobienne rendrait l'approche déterministe beaucoup plus efficace et profiterait également à l'approche hybride.

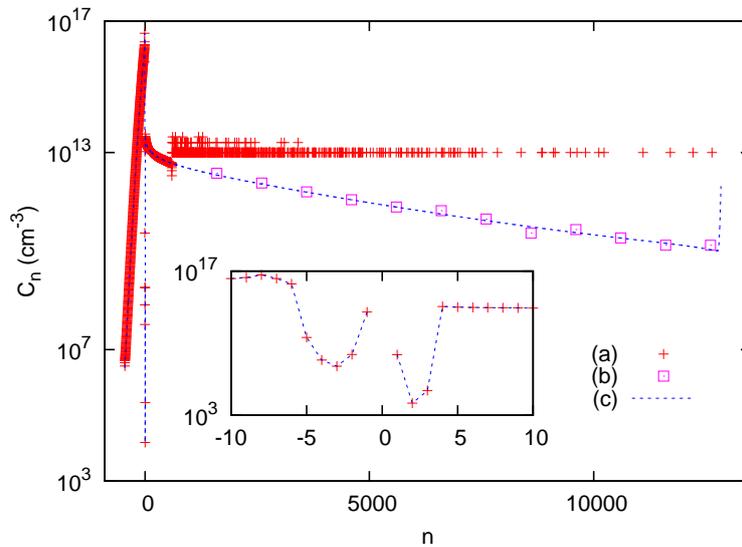


FIGURE 2.7 – Distribution d'amas à $t = 4 \times 10^5 \text{ s}$ pour une paramétrisation fer pur à 300°C. Les croix rouges (a) correspondent à la solution avec la méthode hybride déterministe–stochastique, pour un domaine déterministe $\Delta = [-450, 600]$ et un volume $V = 10^{-13} \text{ cm}^3$ [82]. Les carrés roses (b) sont issus d'un groupement des données dans la zone stochastique, par classes de largeur 1000. La ligne bleue en traits tiretés (c) est obtenue par la méthode déterministe.

Cette activité sur la résolution hybride n'a pas été poursuivie après le départ de Marco Gherardi. Étant donné les résultats encourageants obtenus et les travaux effectués depuis sur les solveurs déterministes, il pourrait être intéressant de la redémarrer. Une autre piste

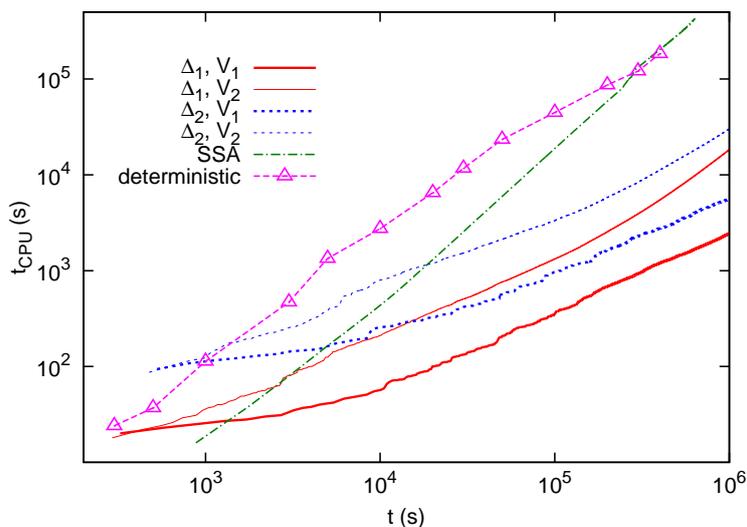


FIGURE 2.8 – Temps de calcul t_{CPU} en fonction du temps physique (fer pur à 300°C) pour différentes méthodes et différents choix de paramètres : $\Delta_1 = [-300, 300]$, $\Delta_2 = [-450, 600]$, $V_1 = 10^{-14} \text{ cm}^3$, $V_2 = 10^{-13} \text{ cm}^3$ [82]. Les triangles roses correspondent à la solution déterministe et la ligne verte à l’algorithme SSA. Les quatre courbes restantes sont obtenues par l’algorithme hybride.

est en cours d’étude par Pierre Terrier, qui fait une thèse avec Manuel Athènes (SRMP) dirigée par Gabriel Stoltz (CERMICS), en collaboration avec Gilles Adjanor (EDF R&D). Elle consiste à utiliser l’équation de Langevin associée à l’équation de Fokker-Planck (2.1) et à coupler une résolution déterministe pour les petites tailles à la résolution de l’équation différentielle stochastique [91].

3

CHANGEMENTS D'ÉCHELLES POUR L'E/OKMC ET LA DYNAMIQUE D'AMAS

Sommaire

3.1	Modèle de bulle d'hélium	31
3.2	Terme source pour la dynamique d'amas	34
3.3	Forces de puits d'interfaces	37

Nous décrivons dans ce chapitre quelques études qui ont permis de déterminer certains paramètres pour l'E/OKMC ou la dynamique d'amas : énergie des amas (section 3.1), terme source en présence de cascades de déplacements (section 3.2) et forces de puits pour des interfaces (section 3.3). Les deux premières études ont été utilisées pour simuler l'évolution de la microstructure du fer implanté en hélium (section 4.1). Deux études supplémentaires ont été réalisées, mais elles ne sont pas reportées ici. La première concerne le calcul d'énergies libres d'amas de cuivre dans le fer, en utilisant la méthode des recouvrements de distributions [92, 93], et de rayons effectifs d'amas. La seconde avait pour but de déterminer des formules analytiques pour les forces de puits de boucles et de dislocations [34].

3.1 Modèle de bulle d'hélium

Publication [94]

Comme nous le verrons dans le chapitre suivant pour le système Fe-He (section 4.1), les microstructures des aciers irradiés aux neutrons ou aux ions présentent parfois des bulles d'hélium. Bien que la mesure de la quantité d'hélium dans les bulles soit difficile [95], en particulier pour les plus petites [96, 97], il est avéré qu'elle est importante dans certaines conditions expérimentales. C'est le cas si le dommage d'irradiation est directement créé par l'implantation d'hélium [95], surtout à faible énergie où le rapport des concentrations hélium/lacune (He/ν) peut être supérieur à un. La simulation de telles conditions expérimentales par dynamique d'amas ou E/OKMC nécessite un modèle de bulle d'hélium, qui permette d'évaluer rapidement les énergies de liaison des lacunes, auto-interstitiels et atomes d'hélium pour une gamme de rapports He/ν la plus large possible.

Les modèles de bulles existants sont basés sur une décomposition de l'énergie d'une bulle en différents termes [98–101]. Par exemple, dans le modèle de Trinkaus [98], dont s'inspirent les autres modèles, l'énergie libre est écrite sous la forme suivante :

$$F = F_{\text{He}}^V + F_{\text{He}}^S + F_{\text{Fe}}^S + F_{\text{rel}} + F_{\text{He-Fe}}^S. \quad (3.1)$$

Dans cette expression, F_{He}^V correspond à l'énergie libre de l'hélium dans le volume, qui est reliée à une équation d'état, à laquelle on ajoute une correction de taille finie F_{He}^S (liaisons He-He absentes à l'interface He-métal). Les termes F_{Fe}^S et F_{rel} décrivent l'énergie de surface et l'énergie de relaxation élastique de la matrice. Enfin, l'interaction entre l'hélium et le métal est prise en compte dans le terme $F_{\text{He-Fe}}^S$. Dans ce modèle et dans les modèles plus récents [101], il est supposé que cette interaction, fortement répulsive, se traduit par une réduction du volume disponible pour le gaz $\Delta V_{\text{He}} = -S\delta_{\text{He}}$ (S étant la surface de la cavité) indépendante de la pression, de sorte qu'on peut écrire simplement

$$F_{\text{He-Fe}}^S = p\delta_{\text{He}}S. \quad (3.2)$$

Récemment, des calculs en potentiels empiriques dans le fer ont clairement mis en évidence la présence d'un espace δ_{He} entre les atomes d'hélium et les atomes de fer dû à la forte répulsion Fe-He [102]. Celle-ci confine les atomes d'hélium et augmente la pression d'hélium, surtout pour les petites bulles pour lesquelles les effets d'interface ont des contributions importantes à l'énergie totale. Il a été observé que pour des rapports He/ v supérieurs à un, cet espace tend à disparaître, car la pression d'hélium agit contre la répulsion Fe-He. Négliger cette évolution dans les modèles revient à supposer que l'interaction Fe-He est infiniment répulsive pour des distances inférieures à δ_{He} . Cela explique, au moins en partie, pourquoi les modèles de bulles ne peuvent pas reproduire les énergies obtenues en potentiels empiriques pour les fortes densités d'hélium [101].

Pour construire et paramétrer un modèle de bulle valide aux densités d'hélium élevées, nous avons effectué, avec Jean-Paul Crocombette, des calculs d'énergie de bulles en potentiels empiriques. Les bulles contiennent de 5 à 201 lacunes, avec un rapport He/ v allant jusqu'à trois¹. Les détails des simulations et la paramétrisation complète du modèle sont exposés dans la référence [94]. Nous donnons ici seulement le principe général et quelques résultats importants.

Pour une bulle contenant n lacunes et m atomes d'hélium, nous écrivons l'énergie libre de formation comme une somme de trois termes, dus aux interactions He-He, Fe-Fe et Fe-He :

$$F(n, m) = F_{\text{He-He}}(n, m) + F_{\text{Fe-Fe}}(n, m) + F_{\text{Fe-He}}(n, m). \quad (3.3)$$

Nous supposons que $F(n, m)$ est le minimum d'une fonction $\Phi(n, m, r_{\text{He}}, r_V)$ par rapport aux variables r_{He} et r_V , sous la contrainte $r_{\text{He}} < r_V$. Nous supposons également que cette fonction peut s'écrire sous la forme

$$\Phi(n, m, r_{\text{He}}, r_V) = \Phi_{\text{He-He}}(m, r_{\text{He}}) + \Phi_{\text{Fe-Fe}}(n, r_V) + \Phi_{\text{Fe-He}}(m, r_V - r_{\text{He}}). \quad (3.4)$$

Le modèle est illustré schématiquement sur la figure 3.1. Le gaz est confiné dans la sphère de rayon r_{He} , séparée par un espace $r_V - r_{\text{He}}$ de la surface de la cavité. Chaque terme de

1. Pour des rapports trop élevés, la pression excessive d'hélium peut provoquer la formation d'auto-interstitiels dans la matrice, de segments de dislocation ou de boucles (*loop punching*) [102–105].

l'équation (3.4) est paramétré séparément et validé sur les calculs en potentiels empiriques. Le terme $\Phi_{\text{He-He}}(m, r_{\text{He}})$ s'écrit, comme dans le modèle de Trinkaus, comme la somme d'une contribution de volume et d'une contribution de surface. Pour la contribution de volume, nous utilisons l'équation d'état de Trinkaus, validée sur des mesures expérimentales pour des fortes pressions d'hélium [106]. La contribution de surface est paramétrée sur les calculs atomistiques, en extrayant la contribution des atomes « de surface » à l'énergie totale He-He. Le terme $\Phi_{\text{Fe-Fe}}(n, r_V)$ est donné par une contribution d'énergie de surface et une contribution de relaxation élastique. Enfin, le terme Fe-He, qui dépend de la distance $r_V - r_{\text{He}}$, fait intervenir explicitement la forme analytique du potentiel de paires Fe-He.

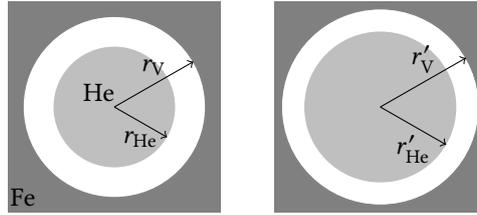


FIGURE 3.1 – Illustration schématique du modèle de bulle dans le cas de deux bulles contenant le même nombre de lacunes mais un nombre d'atomes d'hélium différents ($m' > m$).

La minimisation de la fonction $\Phi(n, m, r_{\text{He}}, r_V)$ donne l'énergie $F(n, m)$, mais aussi, par différences, les énergies de liaison. Nous comparons sur la figure 3.2 les énergies de liaison des lacunes et des atomes d'hélium à 0 K obtenues par simulations en potentiels empiriques et données par le modèle. Nous remarquons le très bon accord entre les deux approches jusqu'à des rapports He/v de l'ordre de trois. L'accord s'avère bon pour des amas lacunaires contenant au minimum 5 lacunes. Pour des amas plus petits, le modèle n'est plus valide et des calculs atomistiques peuvent être directement utilisés dans les modèles cinétiques.

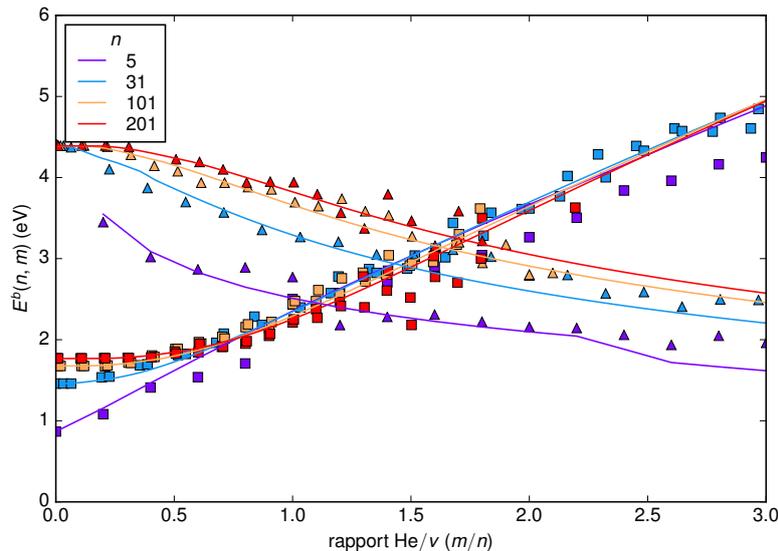


FIGURE 3.2 – Énergies de liaison d'une lacune (carrés) et d'un atome d'hélium (triangles) à des cavités de différentes tailles (en nombre de lacunes n), pour différents rapports He/v.

Quelle que soit la taille, nous retrouvons des tendances identifiées pour les petits amas simulés en potentiels empiriques [107, 108] ou par DFT (*density functional theory*) [109]. Quand le rapport He/ ν augmente, l'énergie de liaison d'un atome d'hélium diminue à cause de l'augmentation de pression. En revanche, celle d'une lacune augmente. On peut le comprendre en remarquant que l'émission d'une lacune diminue le volume de la cavité et contribue à augmenter la pression d'hélium, ce qui est de moins en moins favorable à mesure que le rapport He/ ν augmente. En utilisant la relation

$$F_i^b(n, m) = F_i + F_\nu - F_\nu^b(n + 1, m), \quad (3.5)$$

avec $F_i^b(n, m)$ et $F_\nu^b(n, m)$ les énergies libres de liaison d'un auto-interstitiel et d'une lacune et F_i et F_ν les énergies libres de formation d'un auto-interstitiel et d'une lacune, on montre que $F_i^b(n, m)$ diminue avec le rapport He/ ν . Pour un rapport suffisamment élevé, il peut devenir favorable d'émettre des auto-interstitiels.

Notre modèle permet de mettre en évidence un effet de taille finie sur la forme des courbes de la figure 3.2. Dans les études précédentes en potentiels empiriques sur les petits amas ($n \leq 15$) [108], l'énergie de liaison de la lacune varie linéairement avec le rapport He/ ν . À l'inverse, les modèles analytiques prédisent une pente nulle pour des rapports He/ ν faibles [101]. Nous montrons avec notre modèle que la variation linéaire aux faibles rapports He/ ν ne se produit que pour les petits amas, et qu'à partir d'environ 30 lacunes la pente est clairement nulle. La variation linéaire est due aux interactions Fe-He, qui sont significatives même pour les rapports He/ ν faibles dans le cas de petits amas. Dans les modèles précédents, ce terme est traité comme une correction à l'énergie de volume (éq. (3.2)) avec δ_{He} constante, donc l'énergie de liaison est proportionnelle à la pression d'hélium, qui varie peu pour des rapports He/ ν faibles. Ceci explique la pente faible et donc la différence avec les calculs atomistiques.

Publication [110] 3.2 Terme source pour la dynamique d'amas

Dans cette partie nous nous intéressons à la définition du terme source G_n pour la dynamique d'amas sous irradiation (éq. (1.12)). Nous avons discuté dans le chapitre 1 de la difficulté de définir ce terme : le dommage, déterminé par des calculs en dynamique moléculaire ou avec l'approximation des collisions binaires, est en général corrélé spatialement, alors que la dynamique d'amas, de par son formalisme en champ moyen, ne peut traiter explicitement ces corrélations. Ce problème n'existe pas en E/OKMC : les cascades obtenues par les codes de dommage primaire peuvent être directement introduites dans les simulations cinétiques. Par contre, les doses atteintes sont relativement limitées (inférieures à environ 0.1 dpa). Il est donc important de disposer d'une méthode permettant de définir un terme source pour la dynamique d'amas.

Pour cela, une étape intermédiaire peut être utilisée : elle consiste à vieillir chaque cascade individuellement en E/OKMC [36]. La migration des défauts entraîne une répartition plus homogène des défauts à la fin de la simulation, qui se prête donc bien à un transfert vers la dynamique d'amas [111, 112]. Elle est aussi responsable d'agglomérations et de recombinaisons. Le terme source effectif, obtenu en comptant les défauts à la fin de la modélisation E/OKMC et en moyennant les populations d'amas sur plusieurs simulations,

est en général très différent du terme source issu des calculs de dommage primaire. Les agglomérations augmentent la proportion de gros amas dans les cascades, ce qui peut avoir une influence majeure sur la densité d'amas dans les simulations de dynamique d'amas². Les recombinaisons, quant à elles, diminuent la quantité totale de défauts ponctuels créés. Par exemple, pour simuler une irradiation aux électrons, qui crée uniquement des paires de Frenkel, il suffit de multiplier le taux de création G des interstitiels et des lacunes par un facteur $\eta < 1$ (de l'ordre de 0.3 à 0.4 pour une distance typique de $4a$ séparant les interstitiels et les lacunes lors de leur création, avec a le paramètre de maille).

La difficulté dans le vieillissement des cascades par E/OKMC est de trouver le bon temps de simulation. En général, les interstitiels sont beaucoup plus mobiles que les lacunes et s'homogénéisent donc plus vite [113, 114]. Augmenter le temps pour permettre aux lacunes de s'homogénéiser peut biaiser le terme source, car les interstitiels vont diffuser à longue distance et participer à des réactions qui devraient être prises en compte en dynamique d'amas, pas en E/OKMC. Pour cette raison, nous avons introduit une méthode d'homogénéisation basée sur un critère spatial plutôt qu'un critère temporel.

Comme pour les méthodes de vieillissement de cascades, les cascades sont homogénéisées une à une dans une boîte E/OKMC. Après qu'une cascade est introduite dans la boîte de simulation, chaque particule est entourée d'une sphère de rayon r_d , dont la position reste fixe au cours du temps (fig. 3.3). Ce rayon est un paramètre du modèle, dont la valeur correspond à la moitié de la distance moyenne entre défauts dans la dynamique d'amas :

$$r_d = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\sum_n C_n} \right)^{1/3}. \quad (3.6)$$

Une fois ces sphères créées, nous procédons à la simulation Monte Carlo. Les défauts diffusent dans la boîte, s'agglomèrent ou se recombinent, comme dans une simulation E/OKMC normale. Cependant, si un défaut atteint la sphère qui lui est associée, il est retiré de la boîte de simulation et compté dans le terme source pour la dynamique d'amas. Le fait qu'il ait parcouru la distance r_d signifie qu'il est libre de toute corrélation spatiale avec ses voisins de la cascade, et qu'il doit donc être traité en dynamique d'amas. À l'issue de la simulation E/OKMC, les défauts restant dans la boîte sont comptés et intégrés dans le terme source.

Quelques remarques peuvent être faites sur cette méthode :

- Le rayon r_d étant donné par la dynamique d'amas, le couplage avec l'E/OKMC se fait dans les deux sens : la dynamique d'amas fournit le rayon r_d à l'E/OKMC, tandis que l'E/OKMC donne à la dynamique d'amas le terme source associé G_n . Cela diffère des approches de vieillissement des cascades, pour lesquelles seul l'E/OKMC donne des informations à la dynamique d'amas.
- Comme les concentrations C_n évoluent avec le temps, en général r_d est aussi fonction du temps. Cela signifie que même si le flux et l'énergie des particules demeurent inchangés dans une expérience, le terme source de la simulation associée varie au cours du temps. Nous avons montré qu'il est crucial de prendre en compte cette évolution temporelle [110], en particulier pour que les densités d'amas interstitiels soient correctes. Si l'on garde un rayon r_d grand à mesure que la dose augmente, les

2. Cela est d'autant plus vrai pour les amas du terme source de taille supérieure à la taille critique, car ils sont stables et croissent sous irradiation.

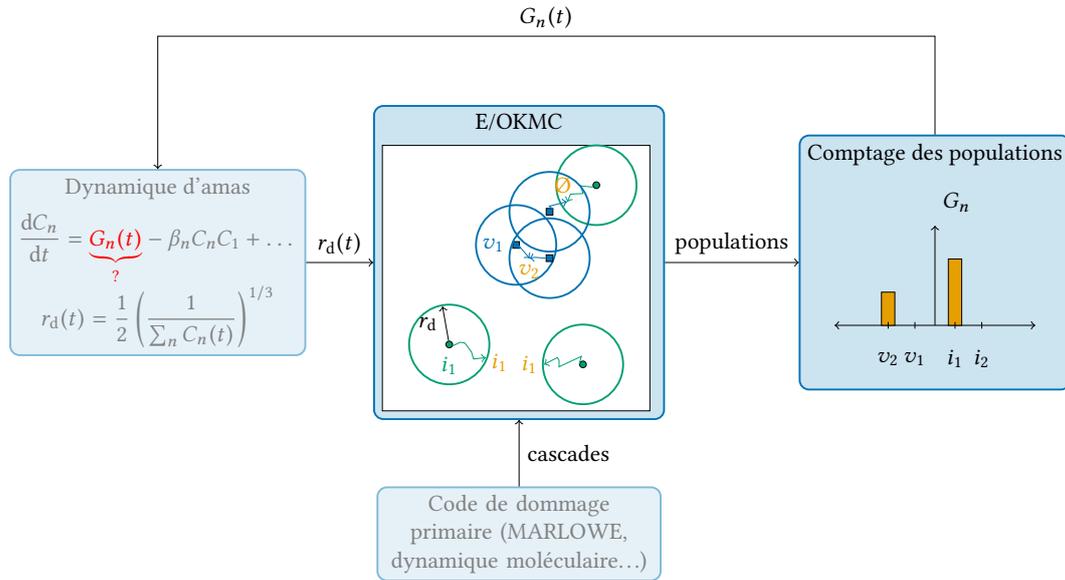


FIGURE 3.3 – Schéma de principe de la méthode d'homogénéisation du dommage primaire.

agglomérations d'interstitiels au sein d'une cascade sont surestimées : dans un calcul E/OKMC complet, des réactions se produiraient avec des amas venant d'autres cascades avant que la réaction intracascade n'ait lieu. Notons que pour prendre en compte dans le code de dynamique d'amas la variation en temps de G_n , il est pratique de réaliser une série d'homogénéisations avec différentes valeurs de r_d , puis d'interpoler le terme source dans la dynamique d'amas à partir des termes sources générés.

- Nous avons observé que le temps de calcul dans la procédure d'homogénéisation joue peu, à condition qu'il soit « suffisamment » grand pour que les espèces aient le temps de s'homogénéiser. En pratique, dans les calculs que nous avons effectués, les temps d'homogénéisation étaient de l'ordre de 0.1 s.

À titre d'exemple, nous montrons figure 3.4 les distributions d'amas interstitiels et lacunaires dans le fer pur irradié à 10^{-3} dpa avec des atomes déplacés (PKA, pour *primary knock-on atoms*) ayant une énergie de 20 keV. Des ions d'énergie supérieure donnant généralement lieu à des sous-cascades d'énergie plus faible [115], le choix de cette énergie permet donc d'avoir un dommage représentatif d'irradiations aux neutrons ou aux ions d'énergie élevée. Les cascades ont été calculées avec le code de collisions binaires MARLOWE [33]. Seuls des mono-interstitiels et des mono-lacunes sont créés avec ce type d'approche, mais des amas produits dans les cascades peuvent être ensuite identifiés en réalisant un recuit à temps nul avec un code E/OKMC, ce qui permet de se rapprocher des simulations par dynamique moléculaire. Pour obtenir une cinétique de référence, des cascades ont été accumulées dans une simulation EKMC réalisée avec le code JERK. La distribution d'amas obtenue est comparée aux distributions calculées en dynamique d'amas avec différents termes sources. Les détails concernant la paramétrisation sont donnés dans la référence [110].

Nous notons en premier lieu que si le terme source ne contient que des mono-lacunes et

des mono-interstitiels créés avec le même taux que dans la simulation de référence, les distributions d'amas sont radicalement différentes (fig. 3.4-a). Même en effectuant un recuit à temps nul en EKMC pour identifier les amas dans les cascades et produire un terme source plus réaliste, le désaccord est significatif, ce qui prouve qu'une procédure d'homogénéisation est nécessaire (fig. 3.4-b). Les figures 3.4-c et 3.4-d, obtenues avec un terme source issu du vieillissement des cascades jusqu'à $t = 10^{-6}$ s et 10^{-1} s respectivement, montrent que les distributions d'amas dépendent assez sensiblement du temps de recuit. À mesure que le temps de recuit augmente, les petits amas interstitiels réagissent entre eux dans la simulation EKMC et la concentration d'amas de grande taille (immobiles) dans le terme source augmente. Ceci explique l'augmentation de la densité d'amas dans la simulation en dynamique d'amas. Le meilleur accord avec la simulation de référence sur la distribution d'amas interstitiels est obtenu pour $t = 10^{-5}$ s (fig. 3.4-e). Nous voyons cependant que les concentrations en lacunes et bi-lacunes sont surestimées, ce qui montre la difficulté de trouver un temps de vieillissement approprié pour toutes les espèces. A contrario, la simulation qui utilise la procédure d'homogénéisation décrite précédemment donne lieu à un bon accord pour les amas lacunaires et interstitiels, sans ajustement de paramètres (fig. 3.4-f). Notons au passage que les termes sources sont très différents. En particulier, la proportion de mono-interstitiels est plus élevée car ceux-ci atteignent rapidement leur sphère. Cette concentration importante accroît la recombinaison avec les lacunes en dynamique d'amas, ce qui diminue leur concentration, en accord avec les simulations de référence.

En comptant les défauts dans des tranches de la boîte E/OKMC, il est possible de générer un terme source pour la dynamique d'amas dépendant de l'espace [110]. Cette approche a été utilisée pour simuler l'implantation d'hélium dans du fer pur (section 4.1). Notons pour terminer cette partie que récemment, une équipe du Georgia Tech a abordé le problème des corrélations spatiales par une voie différente. Le principe est de considérer une dynamique d'amas spatialisée en trois dimensions avec un maillage suffisamment fin pour garder une information sur la localisation des défauts dans la cascade [116]. Les calculs étant trop lourds pour une résolution déterministe, les équations sont résolues par l'algorithme SSA.

3.3 Forces de puits d'interfaces

Publication [117]

L'agglomération des défauts ponctuels en amas peut provoquer une dégradation des propriétés mécaniques des matériaux et induire des changements dimensionnels (deux d'entre eux sont abordés dans la section 4.2). Pour limiter ces effets d'agglomération, une méthode consiste à élaborer des matériaux avec des densités de puits importantes [118]. L'absorption des défauts par ces puits entraîne un appauvrissement de la matrice en défauts et donc une diminution du flux de germination des amas. Les puits peuvent être des inclusions, comme dans les aciers renforcés par dispersion d'oxydes (ODS, pour *oxide dispersion-strengthened*) [119, 120], des joints de grains [121] ou des interfaces hétéro-phases [122].

Selon leur type, les puits sont plus ou moins efficaces pour éliminer les défauts d'irradiation. Dans le formalisme en champ moyen de la dynamique d'amas, l'efficacité d'un type de puits est résumée par la seule force de puits k^2 (éq. (1.12)). À l'échelle atomique, on peut distinguer deux facteurs jouant sur l'efficacité d'un puits :

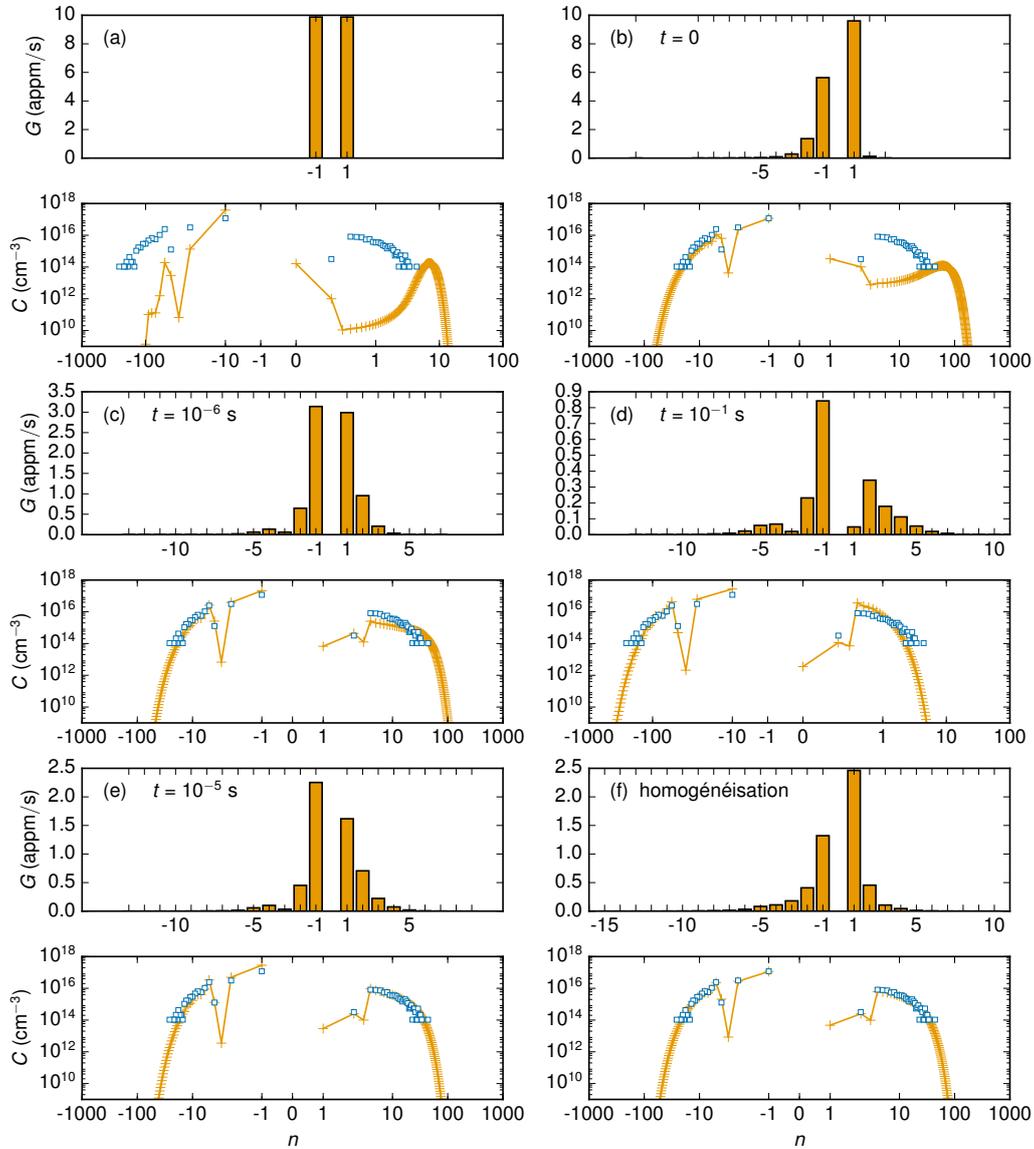


FIGURE 3.4 – Termes sources et distributions d’amas associées (en orange) obtenues en dynamique d’amas à 300 K à une dose de 10^{-3} dpa, pour une irradiation de fer pur aux ions fer de 20 keV créant un dommage de 10^{-4} dpa/s. (a) Mono-interstitiels et mono-lacunes uniquement (b) Vieillessement des cascades « à temps nul », pour induire des agglomérations sans diffusion (c, d, e) Vieillessements à $t = 10^{-6}$, 10^{-1} et 10^{-5} s respectivement (f) Méthode d’homogénéisation. Les points bleus correspondent à un calcul complet en EKMC et servent de référence.

- Sa capacité à éliminer les défauts quand ils sont piégés, sans subir de trop grandes modifications structurales qui pourraient altérer les propriétés du puits. Si le défaut disparaît de manière quasi-instantanée, par migration rapide vers un cran ou un décrochement par exemple, on parle de puits « parfait » [123]. Par exemple, une surface peut souvent être traitée comme un puits parfait vis-à-vis des défauts ponctuels. De même, il a été montré expérimentalement et théoriquement que les interfaces Cu-Nb peuvent être considérées comme des puits quasi-parfaits [124, 125].
- Sa capacité à attirer les défauts ponctuels à longue distance, en générant un champ élastique.

Contrairement aux dislocations, boucles de dislocations et cavités, pour lesquelles l'effet du champ élastique a été largement traité (notamment à cause de son rôle dans le mécanisme de gonflement par cavités), les interfaces n'ont été que peu étudiées de ce point de vue. Les seules études existantes, qui portent sur des joints de grains, traitent de manière simplifiée l'interaction entre le défaut et l'interface. Le système est modélisé en élasticité isotrope et le défaut est considéré comme une inclusion sphérique de même volume de relaxation ΔV au point stable et au point col [126–128]. L'énergie d'interaction s'écrit dans ce cas [129]

$$E(\mathbf{r}) = p(\mathbf{r})\Delta V, \quad (3.7)$$

avec

$$p(\mathbf{r}) = -\frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 \sigma_{ii}(\mathbf{r}). \quad (3.8)$$

Dans l'expression (3.8), les σ_{ij} sont les composantes du champ de contraintes généré par l'interface, obtenu dans les études précédentes comme la superposition des champs générés par les dislocations constitutives des joints de grains de faible désorientation [130].

En général, considérer les défauts ponctuels comme des inclusions sphériques est une approximation, même dans les matériaux cubiques (sauf pour la lacune dans sa position stable). De plus, la plupart des matériaux d'intérêt (Cu, Nb, Fe, Cr, etc.) sont fortement anisotropes élastiquement. Dans cette étude initiée par Michael Demkowicz (MIT), en collaboration avec Hepeng Ding (MIT), Aurélien Vattré (CEA/DAM) et Cosmin Marinica (SRMP), nous avons déterminé les forces de puits d'interfaces en n'ayant pas recours à ces approximations [117].

Nous considérons dans la suite des interfaces semi-cohérentes, c'est-à-dire des interfaces dont les contraintes de cohérence sont diminuées par l'introduction de dislocations d'interface [131]. Loin de l'interface, la contrainte totale est nulle, tandis que près de l'interface, la compensation des deux contributions n'est pas parfaite, ce qui donne lieu à une énergie d'interaction non nulle avec le défaut. Deux interfaces sont considérées : une interface hétérophase (001) Cu-Ag présentant un désaccord de maille ($a_{\text{Ag}} = 4.086 \text{ \AA}$, $a_{\text{Cu}} = 3.615 \text{ \AA}$) et un joint de grains de torsion dans Ag de faible désorientation, dans un plan (001).

Les champs élastiques sont calculés par une méthode développée par Aurélien Vattré et Michael Demkowicz, qui prend en compte l'anisotropie élastique des deux solides en contact et les différences de constantes élastiques entre ces solides [132, 133]. Elle permet en outre de caractériser complètement les dislocations (vecteurs de Burgers et directions, espacements entre dislocations). Dans les deux cas considérés ici, nous obtenons deux

ensembles de dislocations perpendiculaires (fig. 3.5), avec les spécificités suivantes :

- Pour l'interface Ag-Cu, les dislocations sont purement coin et distantes de 2.2 nm.
- Pour l'interface Ag-Ag, les dislocations sont purement vis. L'angle de désorientation a été fixé à $\theta = 7.5^\circ$ pour donner le même espacement entre dislocations que pour l'interface Ag-Cu.

Le fait que les dislocations aient des caractères différents a des implications importantes sur les champs élastiques : par exemple, les contraintes générées par le joint de grains sont purement déviatoriques, alors que la composante hydrostatique est significative pour l'interface Ag-Cu.

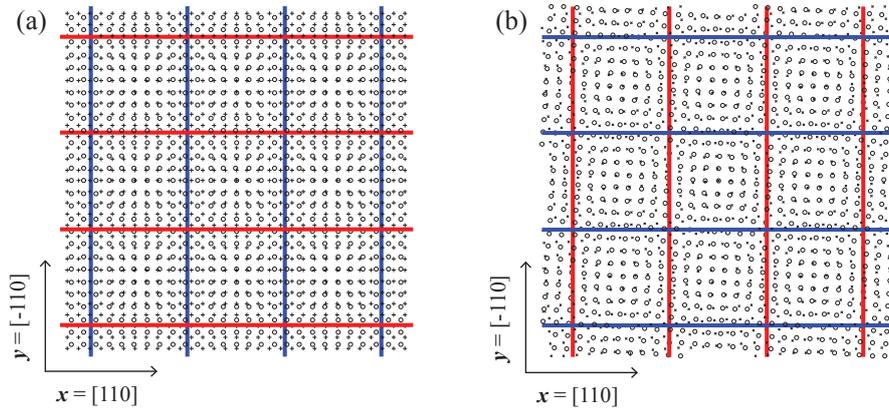


FIGURE 3.5 – Interfaces semi-cohérentes et dislocations d'interface (en rouge et bleu) : (a) interface hétérophase Cu-Ag (dislocations coin) (b) joint de grains de torsion dans Ag (dislocations vis).

Concernant les défauts ponctuels, nous considérons la migration des mono-lacunes et des mono-interstitiels sous leur forme d'haltère (*dumbbell*) $\langle 100 \rangle$. En représentant un défaut par un ensemble de forces de Kanzaki [134] et en développant le champ de déplacement généré par l'interface par rapport à la position du défaut, on montre que l'énergie d'interaction entre le défaut et un champ de déformation ϵ s'écrit au premier ordre [135, 136]

$$E = - \sum_{i,j} \epsilon_{ij} P_{ij}, \quad (3.9)$$

où P est le dipôle élastique du défaut³. Il existe plusieurs méthodes pour calculer le dipôle élastique d'un défaut par des approches atomistiques [138–140]. Cosmin Marinica et Heping Ding ont utilisé celle qui déduit le dipôle des contraintes générées par le défaut sur la boîte de calcul [140]. Les dipôles pour les lacunes et les interstitiels aux points stables et cols sont indiqués dans le tableau 3.1 pour Cu (pour Ag, voir la référence [117]). Ces résultats sont en bon accord avec les données expérimentales [141, 142]. En particulier, nous remarquons que l'interstitiel est presque isotrope au point stable, ce qui semble être une propriété commune aux interstitiels des métaux cubiques à faces centrées [143]. Au point col, la lacune est fortement anisotrope [138]. L'interstitiel comporte également une composante déviatorique non nulle au point col.

3. Si le défaut est une inclusion sphérique, on a $P_{ij} = K\Delta V \delta_{ij}$ avec K le module d'élasticité isostatique, d'où $E = -K\Delta V \sum_i \epsilon_{ii} = -K\Delta V \sum_i \sigma_{ii}/(3K) = p\Delta V$ [137].

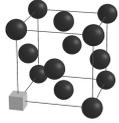
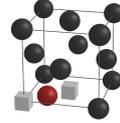
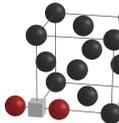
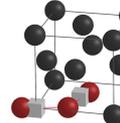
	Position stable		Position col	
Lacune	$\begin{bmatrix} -3.19 & 0 & 0 \\ 0 & -3.19 & 0 \\ 0 & 0 & -3.19 \end{bmatrix}$		$\begin{bmatrix} -3.61 & -0.37 & 0 \\ -0.37 & -3.61 & 0 \\ 0 & 0 & 2.12 \end{bmatrix}$	
Interstitiel	$\begin{bmatrix} 17.46 & 0 & 0 \\ 0 & 17.66 & 0 \\ 0 & 0 & 17.66 \end{bmatrix}$		$\begin{bmatrix} 18.01 & 1.78 & 0 \\ 1.78 & 18.04 & 0 \\ 0 & 0 & 18.46 \end{bmatrix}$	

TABLE 3.1 – Dipôles élastiques (en eV) d'une lacune et d'un interstitiel [100] dans le cuivre en position stable et en position col. La position col correspond à un saut dans la direction [110], avec réorientation de l'interstitiel en [010]. Les détails des calculs sont donnés dans la référence [117].

Pour déterminer les forces de puits, nous réalisons des calculs OKMC en prenant en compte les mécanismes de migration à l'échelle atomique, en particulier la réorientation des interstitiels. Les énergies aux points stables et aux points cols sont calculées en utilisant l'équation (3.9), où ϵ est donné par l'approche en élasticité anisotrope et P est le dipôle élastique qui dépend de l'orientation du défaut [144, 145]. Seuls des lacunes ou des interstitiels, créés uniformément avec un taux G , sont présents dans la boîte de simulation. Comme nous nous intéressons seulement à l'effet de l'interface, les réactions d'agglomération ne sont pas permises. La boîte contient deux interfaces de normale \mathbf{e}_z et des conditions aux limites périodiques sont utilisées (fig. 3.6). Dans cette étude nous considérons uniquement l'effet du champ élastique sur la force de puits : l'interface se comporte comme un puits parfait, qui élimine instantanément tous les défauts qui s'y piègent.

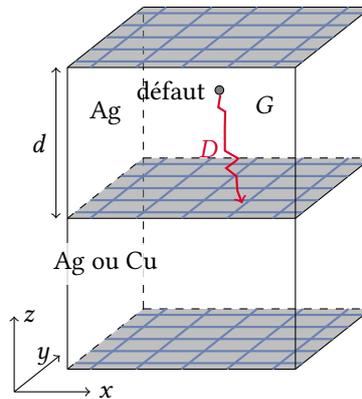


FIGURE 3.6 – Représentation schématique de la simulation OKMC.

La présence du champ élastique créé par l'interface conduit à des chemins préférentiels de diffusion pour les défauts [117]. En outre, les profils de concentration des défauts ponctuels dans la boîte sont significativement modifiés (fig. 3.7). Une zone d'environ 2 nm, qui correspond à la portée des champs élastiques, ne contient quasiment pas de défauts. Pour une couche de 10 nm, l'effet des interactions élastiques est clairement visible dans toute l'épaisseur.

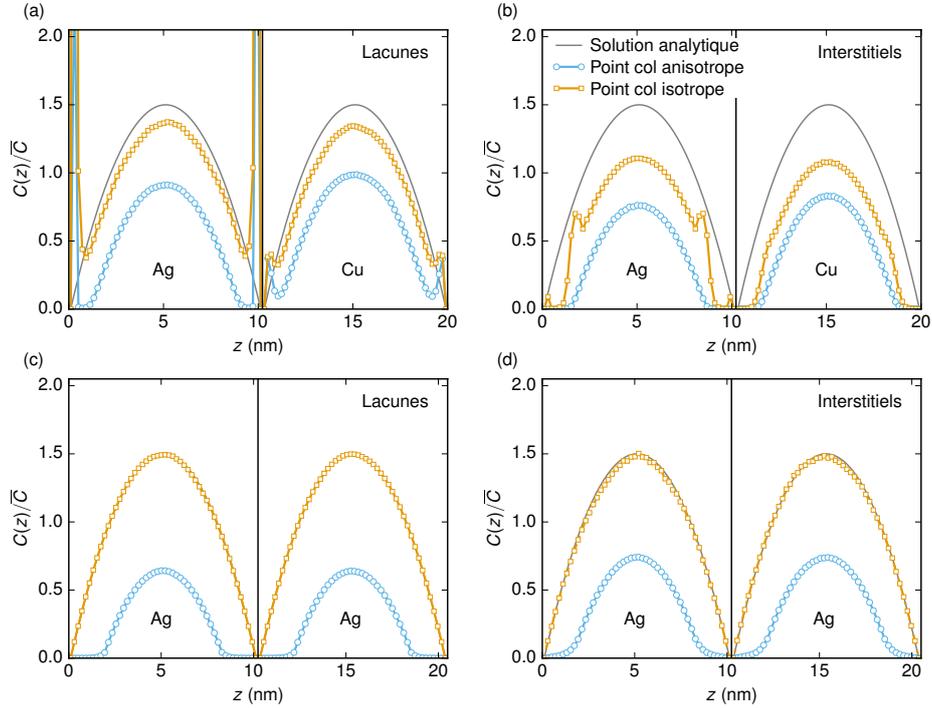


FIGURE 3.7 – Profils de concentration en défauts ponctuels en fonction de la distance aux interfaces, simulés par OKMC à $T = 300$ K. Les lignes noires représentent les plans d'interface. Les courbes grises correspondent à la solution analytique sans interactions élastiques. Les résultats en OKMC sont donnés pour des configurations aux points cols isotropes (en orange) et anisotropes (en bleu) (a, b) profils des lacunes et des interstitiels près de l'interface Ag-Cu (c, d) profils des lacunes et des interstitiels près du joint de grains de torsion dans Ag. Les concentrations sont normalisées par la concentration moyenne \bar{C} obtenue quand les interactions ne sont pas prises en compte.

Afin de déterminer les paramètres jouant sur la force de puits, nous avons effectué le même type de calcul, en modifiant uniquement les propriétés des défauts aux points cols, données par le dipôle $P^{\text{col,ani}}$. Nous prenons un dipôle élastique isotrope, tel que

$$P_{ij}^{\text{col,iso}} = \frac{1}{3} \sum_{k=1}^3 P_{kk}^{\text{col,ani}} \delta_{ij}. \quad (3.10)$$

Le fait de considérer le défaut comme une inclusion sphérique au point col modifie profondément les profils de concentration (fig. 3.7). En particulier, dans le cas du joint de grains, le profil des lacunes est superposé au profil obtenu sans prendre en compte l'interaction élastique. De même, le profil des interstitiels est très proche de cette courbe. Ce résultat s'explique par l'absence de composante hydrostatique dans le champ généré par le joint de grains, de sorte que seules les composantes déviatoriques des dipôles peuvent interagir avec ce champ (éq. (3.9)). La lacune n'a pas de composante déviatorique au point stable, l'énergie d'interaction est donc nulle. La composante déviatorique de l'interstitiel au point stable est très faible et l'énergie est donc négligeable. En prenant un dipôle pu-

rement hydrostatique au point col, les interactions élastiques ne modifient pas l'énergie de migration, ce qui explique pourquoi les profils de concentration sont identiques au cas sans interactions. Nous trouvons donc que pour ces interfaces et les défauts envisagés, l'élastodiffusion, c'est-à-dire la modification du tenseur de diffusion due à l'anisotropie des défauts au point col [146], joue un rôle primordial sur les profils de concentration.

Connaissant les concentrations moyennes \bar{C} , il est possible de déterminer les forces de puits de ces interfaces. En champ moyen, l'équation d'évolution de \bar{C} s'écrit

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = G - k^2 D \bar{C}, \quad (3.11)$$

où D est le coefficient de diffusion dans le volume, loin de l'interface. La force de puits est déduite de la mesure de la concentration moyenne en OKMC, à l'état stationnaire, par la relation

$$k^2 = \frac{G}{D\bar{C}}. \quad (3.12)$$

Dans tous les cas, la force de puits augmente de manière significative quand les interactions élastiques sont prises en compte (fig. 3.8). Cet effet est évidemment d'autant plus important que les couches sont minces, car le champ élastique s'étend sur une plus grande fraction de la couche. Nous voyons que la prise en compte de l'anisotropie des défauts aux points cols conduit à une augmentation des forces de puits pouvant atteindre un ordre de grandeur.

Nous présentons également sur cette figure les biais, déduits des forces de puits pour les interstitiels (k_i^2) et pour les lacunes (k_v^2) par

$$B = \frac{k_i^2 - k_v^2}{k_i^2}. \quad (3.13)$$

Les biais ont un rôle important dans la modélisation des microstructures en champ moyen. Par exemple, l'absorption préférentielle des interstitiels par des puits biaisés ($B > 0$) tels que les dislocations et les boucles de dislocations conduit à un flux net de lacunes vers les puits neutres, comme les cavités⁴. Il s'agit d'une des explications communément admises pour le gonflement sous irradiation. Les valeurs des biais des dislocations et des boucles de dislocations ne sont pas précisément connues : leur valeur varie d'environ 0.01 à 0.3 selon les méthodes utilisées [147, 148]. Nous voyons cependant que les interfaces étudiées peuvent présenter des valeurs du même ordre de grandeur, voire supérieures. Elles pourraient donc entrer en compétition avec les dislocations et les boucles, et modifier profondément l'évolution microstructurale du matériau⁵. Notons enfin que pour le joint de grains dans Ag, le biais est négatif, c'est-à-dire qu'il absorbe préférentiellement des lacunes. De tels joints de grains pourraient donc diminuer le taux de germination des cavités dans la matrice.

4. En réalité les cavités ne sont neutres que si le matériau est élastiquement isotrope et si les lacunes et les interstitiels peuvent être considérés comme des inclusions sphériques aux points stables et aux points cols.

5. Par exemple, une des premières explications du faible gonflement des aciers ferritiques était l'existence de deux puits présentant des biais différents, à savoir les boucles $\langle 100 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ [149].

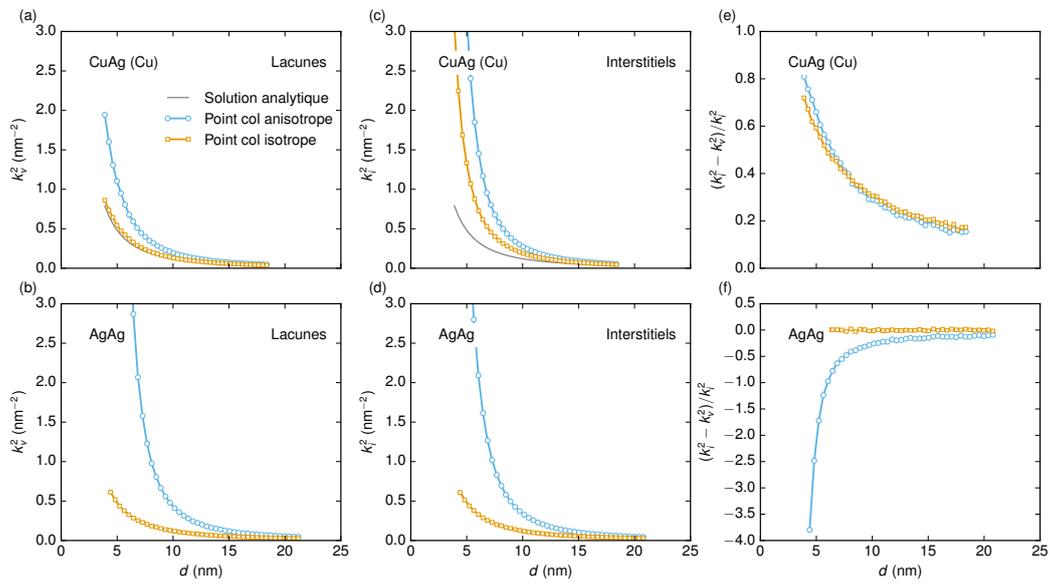


FIGURE 3.8 – Forces de puits et biais de l'interface Ag-Cu (côté Cu) et du joint de grains de torsion dans Ag, à $T = 300$ K, en fonction de l'épaisseur de la couche d . (a, b) Force de puits pour les lacunes (c, d) Force de puits pour les interstitiels (e, f) Biais. La courbe grise donne la solution analytique sans interaction élastique ($k^2 = 12/d^2$). Les courbes bleues et orange correspondent aux calculs OKMC avec et sans anisotropie au point col, respectivement.

4

SIMULATIONS AUX TEMPS LONGS PAR DYNAMIQUE D'AMAS

Sommaire

4.1	Évolution du système Fe-He	45
4.2	Vers les matériaux « industriels » : alliages de zirconium, aciers austénitiques	51
4.2.1	Effet de la contrainte sur la microstructure de boucles dans les alliages de zirconium	52
4.2.2	Effet des irradiations aux ions sur la microstructure d'aciers austénitiques	55

Ce chapitre est dédié à l'utilisation de la dynamique d'amas pour les systèmes modèles et les matériaux « industriels ». La méthodologie est différente dans les deux cas : dans le premier, le paramétrage du modèle est essentiellement réalisé par des calculs à l'échelle atomique, éventuellement complété par des modèles. Ceci nous permet de tester le caractère prédictif de la modélisation en dynamique d'amas en comparant à l'expérience. Cette approche est suivie ici pour le système Fe-He (section 4.1). Dans le second cas, les calculs à l'échelle atomique peuvent difficilement fournir des données pertinentes, notamment parce qu'il faudrait explorer beaucoup de configurations atomiques. Certaines expériences, comme les recuits de résistivité ou les mesures de croissance de boucles sous irradiation dans un microscope électronique à transmission (MET), permettent d'extraire des données sur les défauts. Le reste des paramètres est ajusté pour reproduire les expériences. En général on ne peut garantir que le modèle sera prédictif, mais on peut tester la sensibilité du modèle à certains paramètres ou à des effets physiques additionnels. Ici nous envisageons l'effet de la contrainte dans les alliages de zirconium et les effets de surface et d'interstitiels injectés dans des irradiations aux ions d'aciers austénitiques (section 4.2).

4.1 Évolution du système Fe-He

Publications [150],
[151]

L'irradiation neutronique des matériaux est responsable, par réactions de transmutation (n, α), de la production d'hélium. La quantité d'hélium est relativement faible si on la

compare au dommage créé : dans les structures internes des réacteurs à eau pressurisée (REP) actuels et dans les aciers de structure de première paroi des futurs réacteurs de fusion de type DEMO, elle est de l'ordre de 10 appm/dpa, tandis que pour les tubes hexagonaux et le gainage des réacteurs à neutrons rapides (RNR) de génération IV de type ASTRID, elle est d'environ 0.2 appm/dpa [152]. Cependant, le rôle de l'hélium sur la germination et la croissance des cavités a été démontré à haute température [153–155], dans des conditions RNR et de fusion, et il est suspecté dans les conditions REP [156–158]. La formation des cavités produit un gonflement macroscopique, qui peut être problématique pour le dimensionnement des structures internes des réacteurs (section 4.2). De plus, l'hélium, en ségrégeant aux joints de grains, est responsable d'une fragilisation intergranulaire [159]. De manière générale, une bonne compréhension du rôle de l'hélium dans les métaux, en particulier dans le fer, est importante pour comprendre l'évolution des microstructures sous irradiation.

Des travaux expérimentaux sont menés au SRMP et au SRMA depuis quelques années sur le système modèle Fe-He, notamment dans le cadre des thèses de Daniel Brimbal (2008-2011), Arunodaya Bhattacharya (2011-2014), Sofia Gorondy-Nowak (2013-2016) et des post-doctorats de Sandra Moll (2011-2013) et d'Anne Duchateau (2015-2016). Les simulations effectuées avec le code CRESCENDO viennent en appui de ces études. Nous présentons ici les simulations correspondant aux expériences de Sandra Moll (ANR HSyn-ThEx).

Dans ces expériences, des ions $^4\text{He}^+$ de 60 keV ont été implantés à température ambiante dans des échantillons de fer 99.95 at.% avec un flux de 5.5×10^{12} He $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ jusqu'à une fluence de 10^{16} He cm^{-2} . Ces échantillons possèdent des gros grains (environ 100 μm) et une faible densité de dislocations (de l'ordre de 10^8 cm^{-2}). Il s'agit d'une fluence assez élevée, qui permet de créer des défauts visibles en MET : des boucles de dislocations ainsi que des petites bulles, réparties de manière homogène, peuvent être clairement identifiées (fig. 4.1-a et 4.1-d).

Un recuit isochrone à 3K/min dans le microscope donne lieu à une évolution des bulles et des boucles décrite figures 4.1 et 4.2. Les bulles évoluent peu jusqu'à environ 900 K, puis à haute température leur migration thermiquement activée entraîne leur coagulation et donc une augmentation de leur taille moyenne. Cette évolution laisse penser que de l'hélium est bien présent dans ces bulles et diminue fortement leur taux de dissociation : des cavités sans gaz devraient en effet se dissocier aux températures atteintes ici [160, 161]. La taille moyenne des boucles évolue différemment avec la température : après une augmentation faible, elle croît très fortement autour de 800 K. Leur taille est telle que les boucles finissent par interagir et former un réseau de dislocations (fig. 4.1-f).

Pour expliquer la cinétique du système, nous avons simulé l'évolution de la microstructure lors des phases d'implantation et de recuit. La fluence étant relativement élevée, il est difficile de simuler le système par E/OKMC. Nous avons donc utilisé le code CRESCENDO. Un autre intérêt d'utiliser un code de dynamique d'amas est le respect du bilan détaillé « par construction », qui assure une évolution correcte lors des recuits (effet Gibbs-Thomson en particulier).

La paramétrisation complète du code est donnée dans les références [3, 151], nous ne mentionnons ici que quelques éléments qui seront discutés dans la suite. Nous utilisons le modèle de bulle détaillé dans la partie 3.1, complété par des résultats de calculs DFT

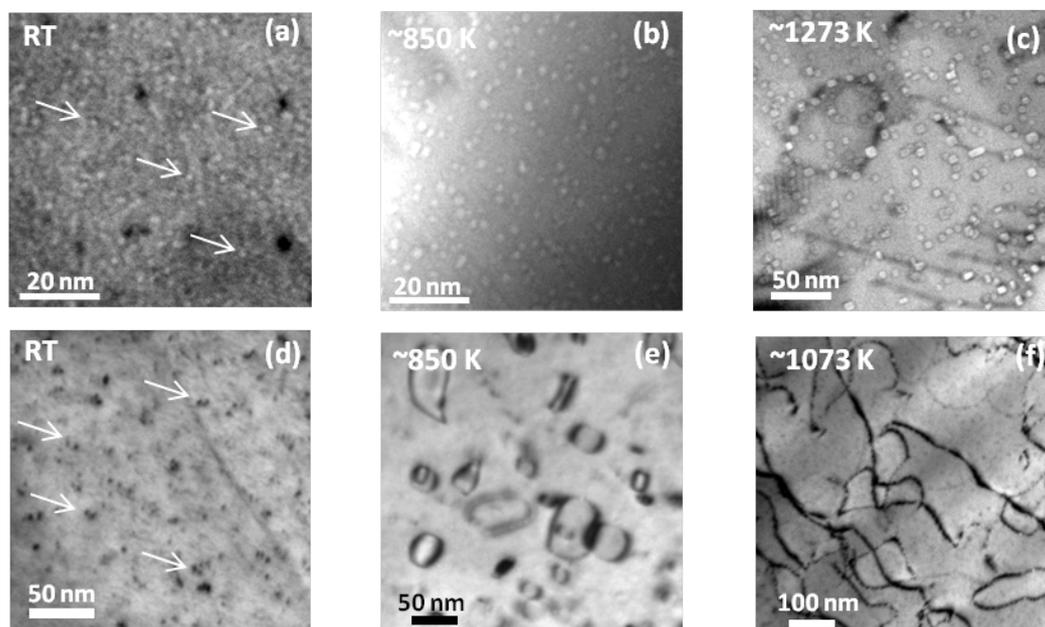


FIGURE 4.1 – Images MET des microstructures de bulles et de boucles dans du fer 99.95 at.% implanté aux ions hélium : (a) bulles à température ambiante, (b, c) bulles après recuit isochrone jusqu'à 850 K et 1273 K, (d) boucles à température ambiante, (e, f) boucles après recuit isochrone jusqu'à 850 K et 1073 K.

(*density functional theory*) à température nulle pour les amas contenant moins de 5 lacunes [109]. Nous supposons que les boucles de dislocations ont un vecteur de Burgers $\langle 100 \rangle$. Bien que la détermination du vecteur de Burgers n'ait pas pu être faite dans notre étude, il a été montré que dans des conditions expérimentales similaires, les boucles sont bien $\langle 100 \rangle$ [162]. Les énergies des boucles de dislocations sont données par une loi analytique ajustée sur des calculs atomistiques en potentiels empiriques [163], qui prend en compte l'évolution des constantes élastiques du matériau avec la température. Les boucles ont été supposées immobiles, en accord avec les observations expérimentales.

L'implantation d'hélium à 60 keV donne lieu à des profils d'hélium et de dommage non uniformes, avec un pic d'implantation à environ 200 nm de la surface. La microstructure de cavités et de boucles dépend donc elle aussi de la profondeur. Pour prendre en compte cette dépendance spatiale, nous découpons le système en tranches, couplées entre elles par la diffusion des espèces mobiles. Le terme source est issu de 10^5 homogénéisations de cascades produites par le code MARLOWE. Un nombre aussi élevé est nécessaire pour introduire une bonne statistique sur la quantité d'amas produits dans les cascades, en particulier les plus gros qui se forment moins fréquemment que les petits. L'utilisation de calculs de dynamique moléculaire, qui donnerait des résultats plus précis, s'avère impossible ici étant donné la distance parcourue par les ions hélium et le nombre de cascades à générer.

Nous donnons figure 4.3 une représentation des distributions d'amas à 180 nm de la surface à l'issue de l'implantation. De cette distribution d'amas, nous obtenons pour les rayons moyens des bulles et des boucles 0.53 nm et 1.73 nm, en bon accord avec les valeurs

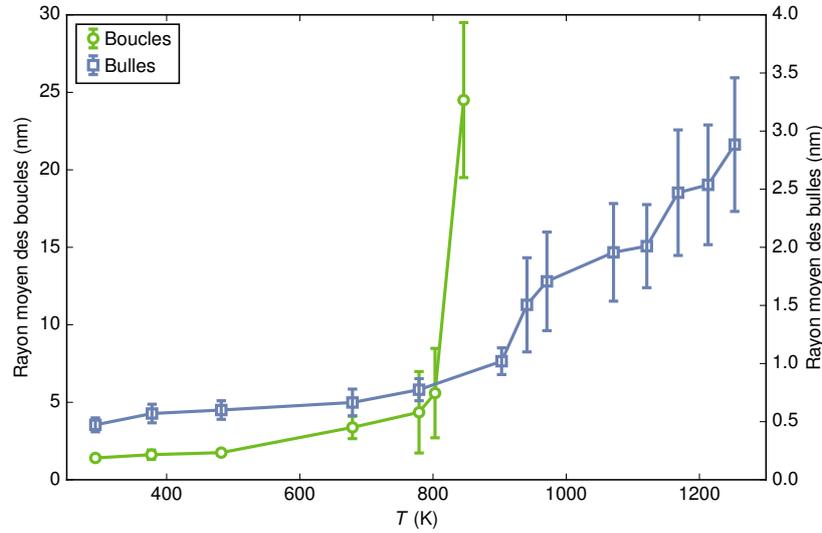


FIGURE 4.2 – Évolution du rayon des bulles d'hélium et des boucles de dislocations pendant un recuit isochrone à 3K/min.

expérimentales (environ 0.5 nm et 1.5 nm respectivement). L'accord sur les densités de bulles est un peu moins bon, avec $3.4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ pour la distribution simulée et environ $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ expérimentalement. Des incertitudes sur l'énergétique et les coefficients de diffusion des petits amas peuvent expliquer cette différence.

Sur cette figure, nous avons également tracé la courbe qui identifie les amas à l'équilibre thermique vis-à-vis des lacunes. Il s'agit des amas à proximité desquels le potentiel chimique des lacunes μ_v^m est nul. En supposant l'équilibre local au niveau de l'amas, le potentiel chimique dans l'amas μ_v^c est égal à μ_v^m et il est donc nul également. La relation $\mu_v^c = \partial F(n,p)/\partial n = 0$ permet, en utilisant le modèle de bulle qui donne l'énergie libre $F(n,p)$, de tracer la courbe d'équilibre. Nous remarquons qu'une grande partie de la distribution se situe au dessus de cette courbe : les bulles sont donc surpressurisées. Le taux d'émission des lacunes est par conséquent très faible, ce qui explique la grande stabilité des bulles lors des recuits.

Nous avons également indiqué sur la figure 4.3 les bulles vers lesquelles les flux nets d'hélium et d'interstitiels sont nuls (la courbe analogue pour les lacunes n'est pas visible après implantation). Nous remarquons que la distribution est très peuplée juste en dessous de la courbe correspondant aux interstitiels et peu peuplée juste au dessus. Cette forte variation autour de la ligne de flux nul indique que l'émission d'interstitiels par les bulles est significative. Pour ces conditions d'implantation, ce qui limite en grande partie la pression d'hélium dans les bulles est donc l'émission d'interstitiels. Incidemment, nous remarquons ici l'importance de disposer d'un modèle de bulles valide pour des rapports He/v importants.

La figure 4.4 donne l'évolution simulée du rayon des boucles et des bulles lors du recuit isochrone. Cette évolution est en accord qualitatif avec les expériences. Les boucles évoluent peu, puis à une température de transition nous observons une augmentation brutale

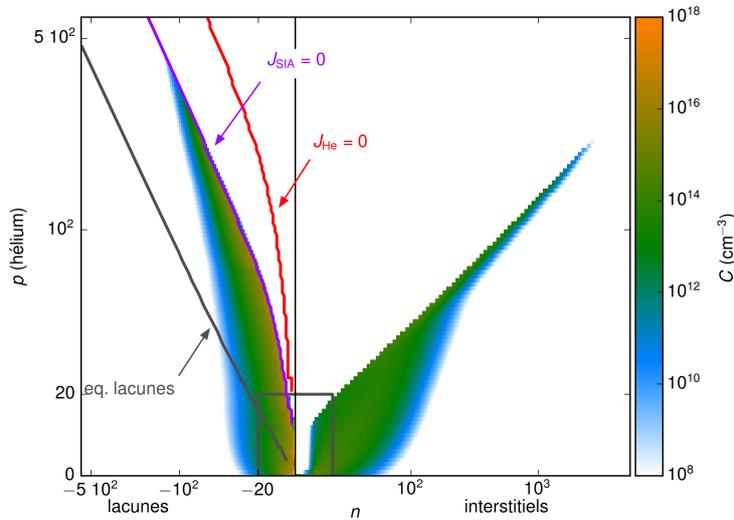


FIGURE 4.3 – Distribution d’amas à 180 nm de la surface après implantation. L’approximation de Fokker-Planck sur un maillage à progression géométrique est utilisée pour les amas contenant plus de 20 lacunes, interstitiels ou atomes d’hélium (zone en dehors du rectangle gris). Pour cette région, la distribution d’amas est tracée en fonction de l’indice de l’équation, et non en fonction du nombre de défauts dans l’amas, ce qui conduit à l’échelle logarithmique. La ligne grise correspond aux amas à l’équilibre thermique vis-à-vis des lacunes (pas d’effet Gibbs-Thomson). Sur les lignes rouges et violettes, les flux nets d’hélium et d’auto-interstitiels vers les amas s’annulent.

de leur rayon. Cependant, cette température de transition est bien supérieure à la valeur expérimentale (autour de 1000 K, contre 800 K expérimentalement). Les bulles évoluent également peu sur la plage de température simulée. La très faible augmentation de leur taille est liée à l’émission d’interstitiels, qui fait croître légèrement les boucles interstitielles. Quand le rayon des boucles augmente fortement, le rayon des bulles augmente également. Pour les températures plus élevées, les bulles sont mobiles et le modèle de dynamique d’amas, qui n’inclut pas cette mobilité, n’est plus valide.

Les calculs montrent que la forte croissance du rayon moyen des boucles est due à l’émission de lacunes. L’énergie de liaison d’une lacune à une boucle interstitielle est d’autant plus faible que la boucle est grande (pour une boucle infiniment grande, c’est-à-dire une dislocation rectiligne, elle tend vers l’énergie de formation de la lacune). L’augmentation du rayon moyen correspond donc à un mécanisme de mûrissement d’Ostwald : les grosses boucles croissent au détriment des plus petites, qui reçoivent un flux net de lacunes. En général, le mûrissement d’Ostwald est dû à l’émission et à la capture de particules constitutives des amas [164]. Même pour les boucles, les quelques cas d’observation de coalescence, dans le silicium, correspondent à l’émission d’interstitiels par des boucles interstitielles [165, 166]. Ici, la situation est un peu atypique : bien que les boucles soient interstitielles, l’énergie de formation de l’interstitiel est si élevée que le mécanisme ne peut se produire que par émission et absorption de lacunes.

En principe, l’observation de ce phénomène dans le fer est rendue impossible par la présence des amas lacunaires. L’énergie de liaison d’une lacune à un amas lacunaire est

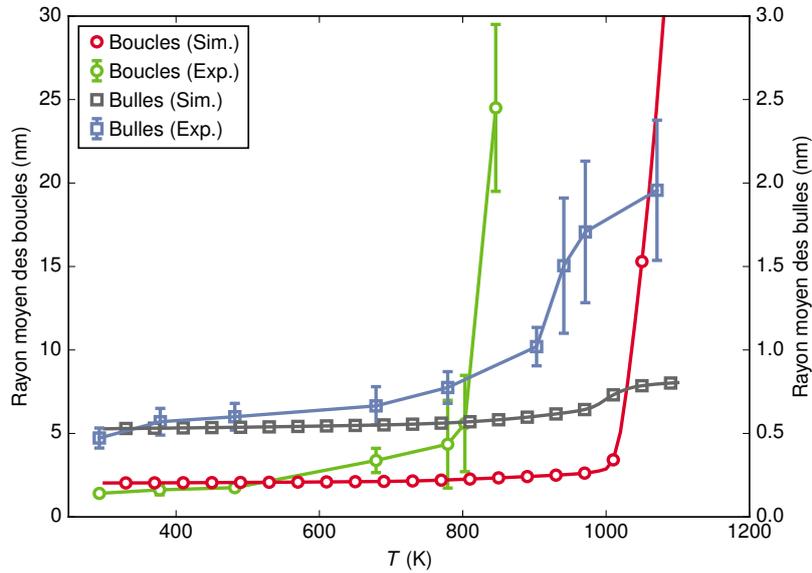


FIGURE 4.4 – Simulation par dynamique d’amas de l’évolution des bulles d’hélium et des boucles de dislocations lors d’un recuit isochrone à 3K/min. Les données expérimentales sont celles de la figure 4.2.

inférieure à l’énergie de formation de la lacune. De ce fait, les amas lacunaires constituent une source importante de lacunes, qui migrent vers les boucles et les font disparaître lors d’un recuit (fig. 4.5). Ici, la présence d’hélium dans les bulles supprime l’émission des lacunes, et rend possible l’observation du mûrissement. Une simulation dans laquelle les bulles ont été enlevées pour le recuit montre qu’elles n’ont que peu d’influence sur l’évolution des boucles (fig. 4.5).

Une incertitude persiste cependant sur l’identification du mécanisme, étant donné le décalage en température d’environ 200 K entre les expériences et les simulations. Une analyse de sensibilité montre que la température à laquelle les boucles évoluent ne dépend fortement que de la somme de l’énergie libre de formation F_v^f et de migration F_v^m de la lacune. Les énergies considérées dans le modèle, issues de calculs DFT, ne prennent pas en compte les entropies de formation et de migration. Ces entropies sont difficiles à calculer, notamment à cause du magnétisme [167–169]. Cependant, l’ajustement de la somme $F_v^f + F_v^m$ sur des expériences d’autodiffusion montre que les contributions entropiques sont importantes [170]. Bien que l’attribution de valeurs aux termes de migration et de formation soit arbitraire, nous avons pris $S_v^f = 4 k_B$ et $S_v^m = 2.2 k_B$, en bon accord avec les calculs de la littérature [171, 172]. Nous voyons figure 4.5 que la prise en compte des entropies de formation et de migration de la lacune décale la courbe d’environ 150 K vers les basses températures. Le meilleur accord avec l’expérience tend à confirmer que le mécanisme identifié est le bon.

La température à laquelle les boucles évoluent est très peu sensible à l’énergétique des boucles. Le fait que nous ayons supposé que les boucles ont un vecteur de Burgers $\langle 100 \rangle$ au lieu de $\langle 111 \rangle$ n’a donc pas d’incidence sur le résultat. Cependant, il est possible que la forme

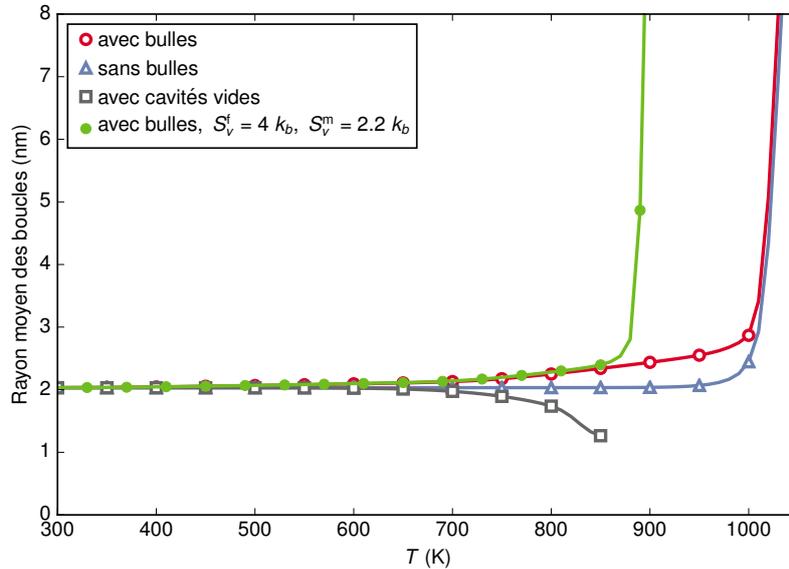


FIGURE 4.5 – Simulation du recuit en partant du même état implanté que le cas de référence (en rouge), mais en faisant différentes hypothèses sur les bulles et les lacunes. La simulation « sans bulles » correspond à un recuit en supprimant les bulles. Dans le cas « avec cavités vides », les bulles sont vidées de leur contenu en hélium au début du recuit. La courbe verte correspond à la simulation de référence dans laquelle on a introduit une estimation des entropies de formation et de migration de la lacune.

de la distribution d'amas dépend de l'énergétique des boucles, donc en particulier du type de boucle. Il serait intéressant de vérifier ce point par dynamique d'amas, pour aller plus loin que les modèles analytiques reposant sur un modèle de tension de ligne [173, 174].

4.2 Vers les matériaux « industriels » : alliages de zirconium, aciers austénitiques

La simulation de l'évolution microstructurale de matériaux « industriels » par dynamique d'amas ou par E/OKMC est un véritable défi. Le nombre d'éléments chimiques présents dans ces alliages (typiquement une dizaine) rend la prise en compte explicite des solutés très compliquée, voire impossible dans le cas de la dynamique d'amas. Le nombre d'équations serait en effet beaucoup trop important, et certains mécanismes mettant en jeu des couplages de flux ne peuvent pas être décrits par un formalisme en objets. Notons également la présence fréquente d'hétérogénéités spatiales, qui ne peuvent pas être traitées en champ moyen. Seules quelques tentatives peuvent être relevées dans la littérature, par AKMC, dans le cas des aciers de cuve pour lesquels des modèles énergétiques relativement simples peuvent être paramétrés, étant donné la faible concentration en solutés [175]. A contrario, les aciers austénitiques de type 304 et 316 utilisés dans les structures internes contiennent des concentrations de nickel et de chrome supérieures à 10 %, de sorte que l'approximation d'un système dilué utilisée en dynamique d'amas n'est pas valide.

Eu égard à ces difficultés, les ambitions d'une modélisation par dynamique d'amas de tels matériaux sont nécessairement limitées. Une méthode consiste à considérer le matériau comme un alliage « gris », c'est-à-dire en modélisant explicitement les défauts d'irradiation dont les propriétés thermodynamiques et cinétiques sont modifiées pour rendre compte d'un effet de composition. Dans ce cas, il faut garder à l'esprit que le modèle ne peut être complètement prédictif. Il peut cependant être utile pour donner certaines tendances (influence du flux, de la température, etc.) ou pour mettre en évidence certains mécanismes, bien souvent en appui d'études expérimentales.

Je présente dans cette partie deux études par dynamique d'amas réalisées dans le cadre de thèses essentiellement expérimentales menées au CEA/SRMA. La logique est la même pour les deux études : le code CRESCENDO est adapté pour incorporer le plus simplement possible, dans une approche d'alliage gris, la physique observée expérimentalement, puis le modèle est ajusté sur certains résultats expérimentaux. Une fois le jeu de paramètres identifié, certains effets sont examinés en dynamique d'amas.

4.2.1 Effet de la contrainte sur la microstructure de boucles dans les alliages de zirconium

Ce travail a été effectué par Nesrine Gharbi (CEA/SRMA) dans le cadre d'une thèse encadrée par Fabien Onimus (CEA/SRMA) et dirigée par Xavier Feugas (Université de La Rochelle/LaSIE), en collaboration avec AREVA [176]. Un des objectifs de la thèse était d'améliorer la compréhension, à l'échelle de la microstructure, des mécanismes de déformation se produisant sous irradiation dans les assemblages combustibles. La déformation des assemblages est due à deux principaux mécanismes :

- Le fluage d'irradiation, qui aux températures de fonctionnement masque le fluage thermique. Plusieurs modèles de fluage d'irradiation ont été proposés dans la littérature. Un modèle assez populaire repose sur la différence de vitesse de montée des populations de boucles ou de dislocations, selon leur orientation par rapport à la contrainte (mécanisme SIPA, pour *stress-induced preferred absorption*). Deux facteurs expliquent cette montée différentielle. Le premier est la polarisabilité des défauts au point stable [177–179], c'est-à-dire que le dipôle élastique des défauts dépend de la déformation imposée ϵ^{ext} :

$$P_{ij}(\epsilon^{\text{ext}}) = P_{ij}^0 + \sum_{k,l} \alpha_{ijkl} \epsilon_{kl}^{\text{ext}}, \quad (4.1)$$

avec α le tenseur de polarisabilité. En reprenant l'équation (3.9), nous voyons que cette polarisabilité induit un terme de couplage du second ordre (en $\epsilon_{ij}^d \epsilon_{kl}^{\text{ext}}$) entre le champ de la dislocation ϵ^d et le champ appliqué ϵ^{ext} . Il en résulte que l'énergie d'interaction d'un défaut dépend de l'orientation de la dislocation et de son vecteur de Burgers par rapport à la contrainte. On parle dans ce cas simplement de SIPA ou de SIPA-I. L'autre facteur est l'anisotropie des défauts au point col, qui par un mécanisme d'élastodiffusion (voir partie 3.3) se traduit également par des efficacités d'absorption différentes selon l'orientation des dislocations [146, 180–182]. On parle parfois dans ce cas de SIPA-AD (pour *anisotropic diffusion*) ou de SIPA-SAPSE (pour

saddle-point shape effect)¹.

- La croissance, qui est observée même si aucune contrainte n'est appliquée. Elle correspond à une contraction selon l'axe $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale et à un allongement dans le plan basal à volume constant. À forte dose, la croissance s'accélère à cause de la formation de boucles lacunaires à composante $\langle c \rangle$ [184, 185]. Différents modèles ont été proposés pour expliquer la croissance. Une des difficultés est de rendre compte de la croissance des boucles $\langle c \rangle$ lacunaires, qui possèdent un biais pour les interstitiels quand on ne considère que l'effet de taille dans l'énergie d'interaction (éq. (3.7)). Parmi ces modèles, celui reposant sur l'anisotropie de diffusion de l'interstitiel (DAD, pour *diffusion anisotropy difference*) a été le premier à expliquer la croissance des boucles $\langle c \rangle$ [186] et d'autres résultats expérimentaux [187]. Il repose sur une diffusion isotrope de la lacune et plus rapide dans le plan basal pour l'interstitiel. Les calculs DFT tendent cependant à nuancer ces affirmations, en particulier pour la lacune [188–191]. Introduit plus récemment, le modèle SAS (*shape anisotropy of SIAs*) fournit une autre explication : c'est l'anisotropie du dipôle élastique de l'interstitiel au point stable qui induit un biais des boucles $\langle c \rangle$ pour les lacunes.

Dans les modèles de prédiction du comportement des alliages de zirconium sous irradiation, il est généralement supposé que ces deux composantes de déformation sont indépendantes et additives. Cependant, le fluage par un mécanisme SIPA comme la croissance des boucles à composante $\langle c \rangle$ font intervenir l'absorption des défauts ponctuels aux dislocations, qu'elles soient rectilignes ou sous forme de boucles. Il est donc possible qu'en appliquant une contrainte, la microstructure de boucles $\langle c \rangle$ soit modifiée, entraînant un couplage entre fluage et croissance.

La composante expérimentale de la thèse a été dédiée à l'étude des boucles $\langle c \rangle$ sous différents historiques de chargement lors d'irradiations aux ions d'alliages Zircaloy-4 et M5. Les microstructures de boucles $\langle c \rangle$ ont été ensuite observées par MET.

Pour modéliser ces expériences, deux principaux développements ont été nécessaires dans CRESCENDO :

- L'axe des autodéfauts a été dupliqué afin de simuler les boucles prismatiques interstitielles et lacunaires (boucles $\langle a \rangle$) et les boucles basales lacunaires à composante $\langle c \rangle$ (voir l'espace des amas, figure 1.2). Il est en effet connu que dans le zirconium et ses alliages, ces deux types de boucles coexistent.
- L'effet d'une contrainte sur l'efficacité d'absorption des boucles de dislocation, par le mécanisme SIPA-I, a été introduit². Les expressions dans la littérature étant valides pour des boucles infinitésimales [193], elles sont peu adaptées pour les boucles $\langle c \rangle$ dont la taille peut atteindre plusieurs dizaines de nanomètres. Nous avons donc préféré intégrer l'expression pour un segment de boucle le long de la boucle pour donner l'efficacité globale d'une boucle en fonction de la contrainte. L'expression

1. L'anisotropie du défaut au point col donne lieu à un effet du second ordre en $\epsilon_{ij}^d \epsilon_{kl}^{\text{ext}}$, comme le SIPA-I [146], mais également à un effet du premier ordre, dans lequel seul le champ extérieur ϵ^{ext} apparaît [182]. Selon certains calculs, l'amplitude du SIPA-AD du premier ordre serait significativement plus importante que celle du SIPA-I [182, 183].

2. Nous n'avons pas considéré l'influence du mécanisme SIPA-AD sur l'efficacité d'absorption [183, 192], car elle est difficile à estimer. En effet, les propriétés des défauts aux points cols sont mal connues dans le zirconium et les interstitiels peuvent adopter plusieurs configurations.

pour un segment est approximée par celle d'une dislocation rectiligne [194].

Pour le reste, le modèle est celui proposé par Frédéric Christien et Alain Barbu [7]. En particulier, il repose sur le modèle de la DAD pour expliquer la croissance des boucles $\langle c \rangle$. Bien que des questions se posent sur la validité du modèle DAD étant donné les récents calculs DFT, nous notons que d'un point de vue de la dynamique d'amas, les modèles DAD et SAS se traduisent tous les deux par un biais d'absorption des boucles $\langle a \rangle$ supérieur à celui des boucles $\langle c \rangle$ ³. Les efficacités d'absorption n'étant pas précisément connues, le choix d'un modèle ou de l'autre présente un certain degré d'arbitraire.

La paramétrisation est en grande partie effectuée sur des calculs DFT réalisés dans le zirconium [190, 195]. Seuls les préfacteurs de diffusion sont ajustés pour reproduire des expériences d'irradiation aux électrons où des boucles $\langle a \rangle$ sont observées à 450°C [196]. L'intérêt des expériences d'irradiation aux électrons est d'éviter les complications dues au terme source (partie 3.2). Lors de cet ajustement, le facteur d'anisotropie de diffusion reste fixé à la valeur donnée par des simulations KMC paramétrées sur des calculs DFT [191]. La paramétrisation a ensuite été validée sur les mêmes expériences menées à d'autres températures, et sur les mesures d'autodiffusion. La prise en compte des effets d'alliage s'est faite en modifiant les énergies de migration des interstitiels et des lacunes et l'énergie de faute d'empilement des boucles $\langle c \rangle$, qui ont été ajustées sur des expériences d'irradiations aux électrons à forte dose de Zircaloy-4, où des boucles $\langle c \rangle$ ont été observées [197]. Enfin, le terme source pour des irradiations aux ions Zr^+ de 600 keV a été déterminé en reproduisant au mieux les expériences réalisées dans la thèse.

Les résultats obtenus sont indiqués figure 4.6. Nous voyons que les ordres de grandeur sont corrects, mais que le diamètre des boucles est surestimé. De plus, l'augmentation de la densité avec la dose est plus rapide que dans les expériences. L'absence de dose d'incubation pour l'apparition des boucles $\langle c \rangle$ vient probablement de la non-prise en compte des solutés dans la matrice et des précipités [197–199].

Malgré ces limitations, il est intéressant de regarder quel est l'effet de la contrainte sur la microstructure de boucles, en lien avec les expériences. Pour introduire l'effet de la contrainte sur les boucles par le mécanisme SIPA-I, nous avons besoin des polarisabilités des défauts, qui ne sont pas connues pour le zirconium. Nous avons donc utilisé quelques arguments simples [200] et nous nous sommes appuyés sur les valeurs dans d'autres métaux pour trouver des ordres de grandeur raisonnables [137].

Les valeurs expérimentales et simulées de la densité linéique de boucles sont présentées figure 4.7 en fonction de la composante selon l'axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes. Les résultats expérimentaux indiquent une faible décroissance de la densité linéique de boucles $\langle c \rangle$ avec la composante selon $\langle c \rangle$ du déviateur. Cependant, la dispersion grain à grain est importante. Des effets de voisinage peuvent en partie expliquer cette dispersion, la contrainte locale dans un grain étant certainement différente de la contrainte appliquée. Dans les simulations, la contrainte est appliquée soit selon l'axe $\langle c \rangle$, soit dans le plan basal. Nous observons la même tendance que pour les observations expérimentales,

3. Des différences apparaissent si l'on considère d'autres puits dans la microstructure : par exemple, par rapport à des joints de grains ayant un faible biais élastique, les boucles $\langle c \rangle$ ont un biais supérieur dans le modèle SAS, alors qu'il peut être inférieur pour le modèle DAD si l'anisotropie de diffusion est suffisamment prononcée. Dans ce cas le modèle SAS ne peut expliquer la formation de boucles $\langle c \rangle$ par des arguments portant sur les biais.

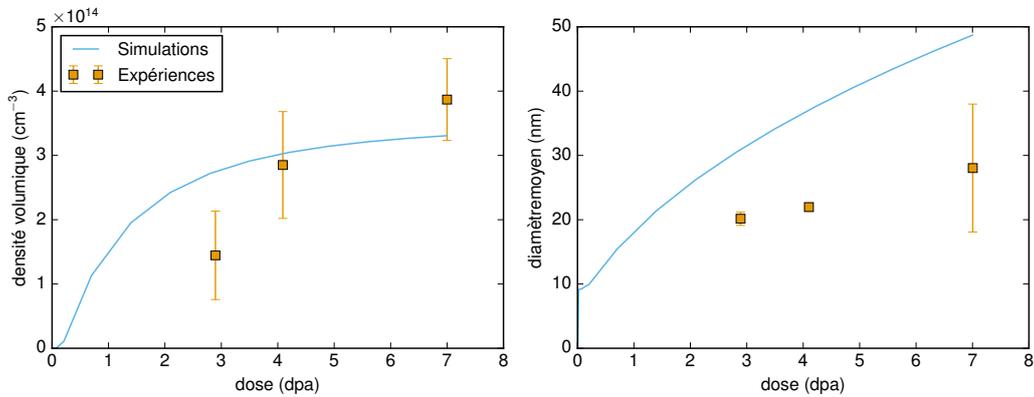


FIGURE 4.6 – Densités volumiques et diamètres moyens des boucles $\langle c \rangle$ mesurés expérimentalement dans du Zircaloy-4 irradié aux ions Zr^+ de 600 keV à 300°C et simulés en dynamique d’amas.

mais l’effet est plus prononcé. Quand la contrainte est appliquée selon l’axe $\langle c \rangle$, le biais des boucles $\langle c \rangle$ augmente, ce qui réduit leur vitesse de croissance. À l’inverse, une contrainte appliquée dans le plan basal induit un biais plus faible et donc une croissance des boucles plus importante. Notons que dans notre cas, le mécanisme SIPA-I a essentiellement un effet sur la croissance des boucles, la densité des boucles étant moins sensible à l’application de la contrainte.

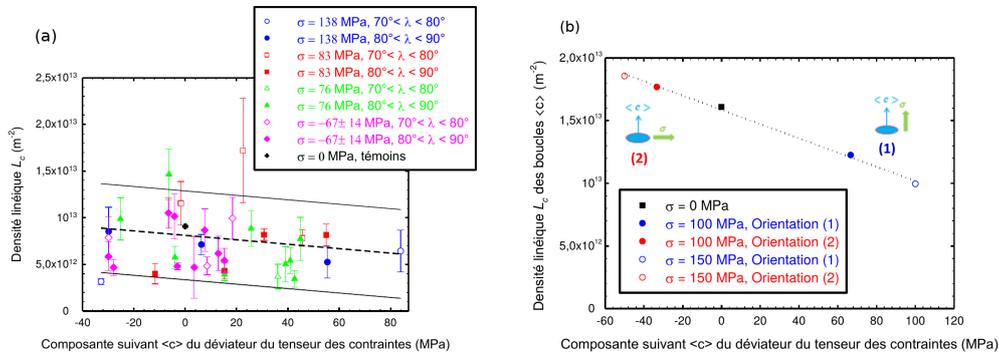


FIGURE 4.7 – Densité linéique des boucles $\langle c \rangle$ (en m^{-2}) en fonction de la composante selon l’axe $\langle c \rangle$ du déviateur du tenseur des contraintes : (a) valeurs mesurées expérimentalement dans du Zircaloy-4; chaque point correspond à plusieurs mesures dans un même grain, la dispersion est indiquée par les barres d’erreur. La ligne en traits tiretés représente la régression linéaire et les lignes noires correspondent à l’écart type du résidu de la régression. Les mesures portent sur 19067 boucles réparties dans 41 grains. (b) Évolution simulée par dynamique d’amas.

4.2.2 Effet des irradiations aux ions sur la microstructure d’aciers austénitiques Publication [34]

Dans cette partie, nous nous intéressons à la modélisation de la microstructure de boucles et de cavités dans des aciers austénitiques irradiés. Les simulations ont été effec-

tuées par Bertrand Michaut (CEA/SRMA) pendant sa thèse, encadrée par Joël Malaplate (CEA/SRMA) et dirigée par Brigitte Décamps (CNRS/CSNSM), en collaboration avec EDF R&D. Les simulations présentées ici ont nécessité des développements réalisés antérieurement, dans le cadre du projet international GONDOLE (impliquant l'EPRI, AREVA NP, SUEZ-Tractebel et EDF R&D) et du projet ANR CoIrrHeSim (avec le CSNSM et EDF R&D), tous deux axés sur le gonflement des aciers austénitiques.

Le but de la thèse de Bertrand Michaut est d'étudier l'évolution microstructurale des aciers austénitiques irradiés aux ions jusqu'à des fortes doses (100 dpa) dans des conditions représentatives des REP. Dans le cadre de la prolongation de la durée de vie des REP jusqu'à 60 ans, des questions se posent en effet sur le gonflement potentiel⁴ des structures internes en aciers austénitiques. Le gonflement dans les RNR est bien documenté mais pour les REP, les données sont plus éparées. Les conditions sont très différentes : la température est plus basse (entre 280°C et 380°C, alors qu'elle est supérieure à 400°C pour les RNR), les débits de dose sont plus faibles (environ 5×10^{-8} dpa/s contre 5×10^{-7} dpa/s en RNR) et la quantité d'hélium produite par transmutation est plus importante (10 appm/dpa contre 0.2 appm/dpa, cf. partie 4.1). Certains résultats expérimentaux indiquent la présence de petites cavités, qui pourraient grossir avec la dose d'irradiation et induire un gonflement macroscopique significatif [156–158]. Une meilleure compréhension du gonflement en conditions REP, en particulier à forte dose, est donc essentielle. L'intérêt des irradiations aux ions est d'accélérer considérablement la cinétique, sans activer le matériau. Des doses de l'ordre de 100 dpa peuvent ainsi être atteintes en quelques jours.

Des aciers 304 et 304L (bas carbone) ont été irradiés avec des ions Fe^{5+} de 10 MeV, donnant un débit de dose moyen de 5.6×10^{-4} dpa/s. Pour obtenir des microstructures représentatives des conditions REP, l'effet du flux a été compensé par une augmentation de la température à 450°C [201–203]. Les profils de dommage et d'implantation des ions, calculés par le logiciel SRIM [32], sont indiqués figure 4.8. Après irradiation, des lames minces sont prélevées à 650 nm sous la surface et observées en MET. Cette profondeur permet de minimiser les effets potentiels de surface libre et d'ions Fe^{5+} injectés (communément appelés « interstitiels injectés »). Ce sont ces effets qui sont étudiés par dynamique d'amas, après ajustement de certains paramètres du code sur les observations MET à 650 nm de l'acier 304L. En particulier, notons que pour l'instant, seuls des modèles simples de germination ou de croissance existent pour quantifier l'effet des interstitiels injectés [204–208].

Le formalisme de la dynamique d'amas, tel qu'il a été présenté jusqu'à maintenant, ne permet pas de simuler des doses supérieures à quelques dpa. En effet, à ces doses les boucles de Frank sont si grandes qu'elles interagissent entre elles et avec le réseau de dislocations préexistant. Le diamètre et la densité des boucles saturent et la densité de dislocations du réseau atteint un état stationnaire sous l'effet du mécanisme d'alimentation par les boucles et de la restauration. Cet état stationnaire ne dépend pas de l'état métallurgique initial (écroui ou hypereffort) [209, 210].

Le traitement de l'interaction des boucles entre elles et avec le réseau de dislocations n'est pas simple en champ moyen. Des approches prenant en compte explicitement l'espace, comme la dynamique des dislocations ou la dynamique moléculaire, sont plus appropriées. Néanmoins, des modèles simples ont été proposés pour reproduire qualitativement

4. Dans cette partie nous parlons simplement de « gonflement » pour le gonflement lié à la présence de cavités (*void swelling*).

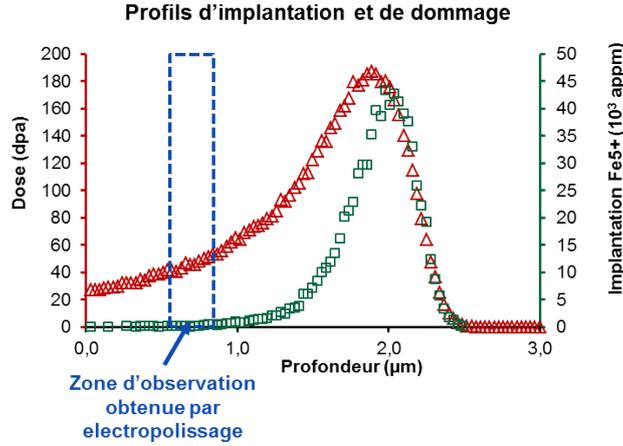


FIGURE 4.8 – Profils de dommage et d’implantation des ions Fe^{5+} de 10 MeV pour une irradiation à 40 dpa dans la zone d’intérêt, à 650 nm sous la surface.

les observations expérimentales [211, 212]. Ils sont construits en prenant comme formalisme de départ une dynamique d’amas « simplifiée », très communément utilisée sous irradiation (*rate theory*, voir note 6 p. 9). Notons qu’ils ont également été utilisés récemment en dynamique d’amas pour simuler la microstructure d’aciers austénitiques [213]. Dans le formalisme simplifié, deux équations principales sont résolues : celle sur les mono-lacunes et celle sur les mono-interstitiels. Les concentrations obtenues donnent la vitesse de montée des dislocations et donc également la vitesse de croissance des boucles. La vitesse de croissance des boucles permet de déterminer un temps caractéristique pour que les boucles atteignent un certain rayon maximal, au delà duquel elles s’incorporent dans le réseau. Ce rayon maximal est supposé égal à $1/\sqrt{\pi\rho_t}$, où $\rho_t = \rho + \rho_l$ est la densité de dislocations totale (réseau et boucles) qui est également une variable du problème. La vitesse de montée est également utilisée dans le terme de restauration : en supposant que l’annihilation des dipôles est limitée par la montée, un temps caractéristique d’annihilation est calculé en fonction de l’espacement entre dipôles (proportionnel à $1/\sqrt{\pi\rho}$).

Nous avons adapté ces modèles aux équations de la dynamique d’amas « complète ». Au lieu d’utiliser pour le terme d’incorporation des boucles un temps caractéristique déduit de la vitesse de montée des dislocations du réseau

$$v_c = \frac{V_{\text{at}}}{b} \left| \sum_{m \in \mathcal{M}} n Z_n D_n (C_n - C_n^e) \right|, \quad (4.2)$$

où b est le vecteur de Burgers et Z_n sont les efficacités d’absorption, nous exploitons les flux entre classes d’amas $J_{n,n+m}$ (éq. (1.3)). Pour chaque transition entre deux classes de boucles (n) et ($n+m$), nous décomposons le flux en un flux de croissance et un flux de décroissance. Le premier correspond à l’absorption d’interstitiels et à l’émission de lacunes, tandis que le second correspond à l’absorption de lacunes et à l’émission d’interstitiels. L’équation (1.12) est donc réécrite sous la forme suivante (les termes d’irradiation et de puits sont omis et

l'amas (n) est supposé immobile) :

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} + \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \leq 0}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \geq 0}} J_{n,n+m} - \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \leq -1}} J_{n,n+m}. \quad (4.3)$$

La somme du premier et du dernier terme représente le flux net qui alimente la classe (n) depuis les boucles plus petites. Une fraction de ce flux doit partir dans le réseau de dislocations, car certaines boucles, en croissant, vont entrer en contact avec d'autres boucles ou avec des dislocations du réseau. En première approximation, nous supposons que cette fraction f_n ne dépend que de la densité totale de dislocations $\rho_t = \sum_{n>0} 2\pi r_n C_n + \rho$, et non de chaque concentration de boucle⁵. L'équation (4.3) devient :

$$\frac{dC_n}{dt} = (1 - f_n(\rho_t)) \left[\sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \leq -1}} J_{n,n+m} \right] + \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \leq 0}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \geq 0}} J_{n,n+m}. \quad (4.4)$$

La densité de dislocations évolue selon l'équation suivante :

$$\frac{d\rho}{dt} = \sum_{n>0} f_n(\rho_t) \left[\sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in \mathcal{M} \\ m \leq -1}} J_{n,n+m} \right] 2\pi r_n - a_c \frac{\rho}{\tau_c(\rho)}. \quad (4.5)$$

Le deuxième terme est le terme d'annihilation des dipôles par montée, il est identique à celui des modèles précédents [211,212]. Le temps $\tau_c(\rho)$ est relié à la vitesse de montée (4.2). La constante multiplicative peut être ajustée sur les expériences de restauration [214,215] ou sur des mesures de densité de dislocations sous irradiation. Les autres détails du modèle et son adaptation à la présence d'une région continue sont décrits dans la référence [34].

Les observations MET à 5, 40 et 100 dpa des lames minces révèlent une microstructure composée de boucles, cavités et dislocations. En outre, des précipités sont présents à partir de 40 dpa, en plus grand nombre dans le 304 que dans le 304L. Des cavités semblent associées à ces précipités et la distribution des cavités devient bimodale à 100 dpa. Comme attendu, les densités et les tailles de boucles saturent relativement rapidement avec la dose (fig. 4.9).

La simulation par dynamique d'amas en considérant un système homogène, sans effet des surfaces libres et sans interstitiels injectés, est présentée figure 4.9. Parmi les paramètres du modèle susceptibles d'être déterminés expérimentalement, la valeur de η , qui pondère le terme de création G_n et permet de rendre compte de la population de défauts libres de migrer à longue distance, est prise égale à 0.01, en accord avec les valeurs déduites de mesures de ségrégation induite par irradiation [216,217]. Les valeurs des énergies de migration utilisées pour les interstitiels ($E_i^m = 0.85$ eV) et les lacunes ($E_v^m = 1.2$ eV) sont compatibles avec les recuits de résistivité [218]. L'énergétique des boucles est obtenue par une loi élastique reproduisant les résultats de calculs en potentiels empiriques dans un alliage FeNiCr [219]. Le reste des paramètres est ajusté sur les résultats expérimentaux. En

5. Cette approximation permet de simplifier beaucoup les équations, mais aussi de garder une matrice jacobienne creuse.

particulier, l'efficacité d'absorption des dislocations et des boucles pour les interstitiels Z_i est fixée à 1.08, tandis que pour les lacunes on prend $Z_v = 1$.

Nous remarquons que le jeu de paramètres reproduit de manière satisfaisante les résultats expérimentaux, sauf l'évolution de la taille des cavités. Nous n'obtenons pas de saturation de taille comme observé expérimentalement. En effet, cette saturation est due à l'apparition d'une population de petites cavités à forte dose, liée à la formation des précipités. Comme le modèle actuel de dynamique d'amas n'inclut pas l'effet de la précipitation, il n'est pas surprenant qu'il ne puisse pas reproduire les résultats au delà de 40 dpa.

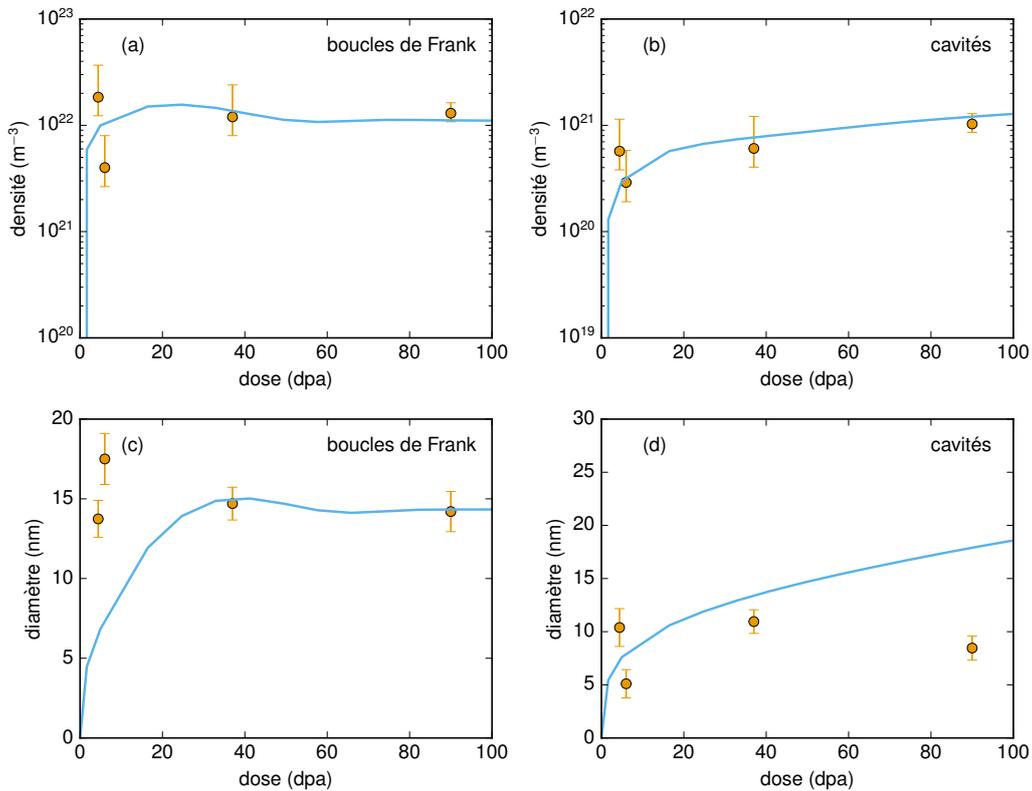


FIGURE 4.9 – Observations MET à 650 nm sous la surface et simulation homogène par dynamique d'amas d'un acier austénitique 304L irradié aux ions Fe⁵⁺ 10 MeV à 450°C.

Le bon accord entre les simulations et les expériences pour des doses inférieures à 40 dpa indique que les flux des interstitiels et des lacunes vers les différents puits de la microstructure sont corrects dans les simulations. Nous pouvons donc maintenant étudier l'effet des surfaces et des interstitiels injectés sur la microstructure simulée. Pour cela nous introduisons une dimension spatiale dans CRESCENDO. Le terme source en fonction de la profondeur est donné par SRIM (fig. 4.8). Les résultats sont donnés figure 4.10 à 40 dpa, avec et sans interstitiels injectés. Ils sont comparés à des observations de coupes transverses usinées par sonde ionique focalisée (FIB, pour *focused ion beam*).

L'évolution des boucles et des cavités en fonction de la profondeur est relativement bien reproduite dans les simulations, sauf les tailles de cavités qui sont surestimées, en

4. SIMULATIONS AUX TEMPS LONGS PAR DYNAMIQUE D'AMAS

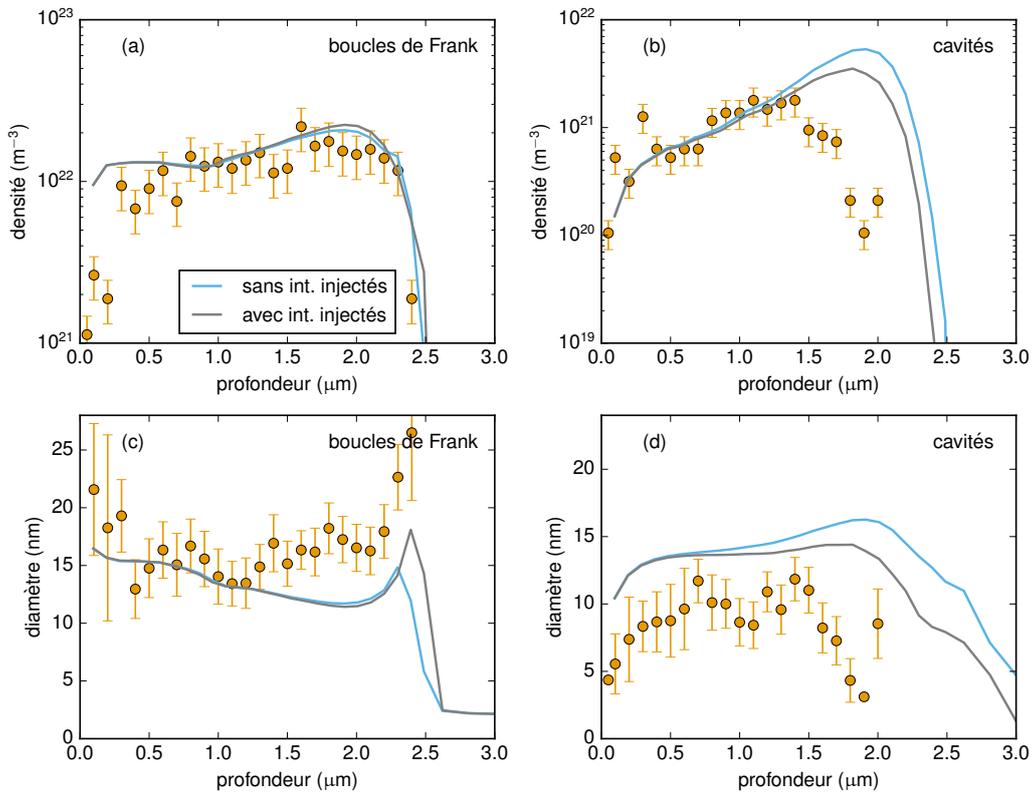


FIGURE 4.10 – Observations MET de lames FIB et simulations par dynamique d'amas en fonction de la profondeur pour un acier austénitique 304L irradié aux ions Fe^{5+} 10 MeV à 450°C à une dose de 40 dpa. Les calculs sont effectués avec et sans interstitiels injectés.

cohérence avec les résultats des lames minces à 650 nm (fig. 4.9-d). Nous remarquons une chute de la densité et de la taille des cavités à proximité de la surface sur environ 200 nm dans les expériences et les simulations, ce qui tend à valider les énergies de migration dans notre modèle. Nous pouvons donc conclure que les effets de surface libre sont très faibles à 650 nm, où les observations précédentes ont été réalisées. Bien que le diamètre des boucles soit bien reproduit près de la surface dans les simulations, la densité est surestimée. Il a été montré expérimentalement que les boucles parfaites peuvent migrer selon leur cylindre de glissement même dans les alliages austénitiques industriels [220, 221]. Il est possible que des effets de forces images accentuent ce phénomène et provoquent la disparition des boucles à la surface [222]. L'augmentation de la taille des boucles de Frank en limite de zone irradiée est qualitativement reproduite. À cette dose la taille des boucles est limitée par le mécanisme d'incorporation dans le réseau, qui dépend de la densité totale de dislocations. Nous voyons que la taille est bien corrélée à la densité : plus la densité de boucles est importante, moins les boucles peuvent grossir.

Une différence notable entre les simulations et les expériences porte sur la profondeur maximale à laquelle les cavités sont observées. Expérimentalement, aucune cavité ne peut être distinguée au delà de 2 μm , alors que les simulations prédisent des cavités jusqu'à environ 2.5 μm . Les interstitiels injectés, bien qu'ayant un effet notable sur les densités et les tailles des cavités, ne corrigent que partiellement cette différence (fig. 4.10-b et 4.10-d), en accord avec une étude récente [208]. Nous remarquons également que la prise en compte des interstitiels injectés améliore l'accord pour les diamètres des boucles en limite de zone irradiée. Le désaccord résiduel semble davantage porter sur la densité des cavités que sur leur taille, et donc sur la description de la germination dans les simulations. Il se peut que certains phénomènes qui ne sont pas pris en compte dans les simulations, comme les corrélations spatiales dans les cascades qui peuvent varier avec la profondeur ou la précipitation observée au niveau du pic de dommage, aient un rôle important sur la formation des cavités.

Une manière simple, mais partielle, d'appréhender une variation spatiale du type de dommage créé est de comparer les spectres de PKA pondérés à différentes profondeurs. Le spectre de PKA pondéré pour une particule incidente d'énergie E s'écrit [223]

$$W(P) = \frac{1}{\sigma_d(E)} \int_{E_d}^P N(P') \frac{d\sigma(P', E)}{dP'} dP', \quad (4.6)$$

où E_d est l'énergie de seuil de déplacement, $N(P)$ est le nombre de défauts créés par un PKA d'énergie P , $d\sigma(P, E)/dP$ est la section efficace différentielle pour la production de PKA d'énergie P et $\sigma_d(E)$ est une constante de normalisation qui correspond à la section efficace de production de défauts :

$$\sigma_d(E) = \int_{E_d}^E N(P') \frac{d\sigma(P', E)}{dP'} dP'. \quad (4.7)$$

Le spectre de PKA pondéré peut être extrait à différentes profondeurs d'un calcul SRIM, il est donné figure 4.11 à 650 nm et à 1.85 μm . Bien que les différences soient relativement faibles, nous observons qu'il y a plus de dommage créé par des PKA de faible énergie à 650 nm qu'à 1.85 μm . Les PKA de forte énergie créant du dommage plus corrélé spatialement, il est raisonnable de penser que le facteur η évolue avec la profondeur. Pour tester

4. SIMULATIONS AUX TEMPS LONGS PAR DYNAMIQUE D'AMAS

la sensibilité des résultats à ce facteur, nous avons divisé par 2 la valeur de η au delà de $1.5 \mu\text{m}$. Les résultats sont indiqués figure 4.12. Nous remarquons qu'ils sont en meilleur accord avec les données expérimentales. L'effet de l'interstitiel injecté est également plus fort. Il est en effet possible de montrer qu'en régime d'élimination aux puits, ce qui est le cas ici, l'effet de l'interstitiel injecté est inversement proportionnel à la force de puits totale, qui est plus faible dans ces nouvelles simulations (à cause de la baisse des densités et des tailles moyennes d'amas, voir les courbes bleues des figures 4.10 et 4.12).

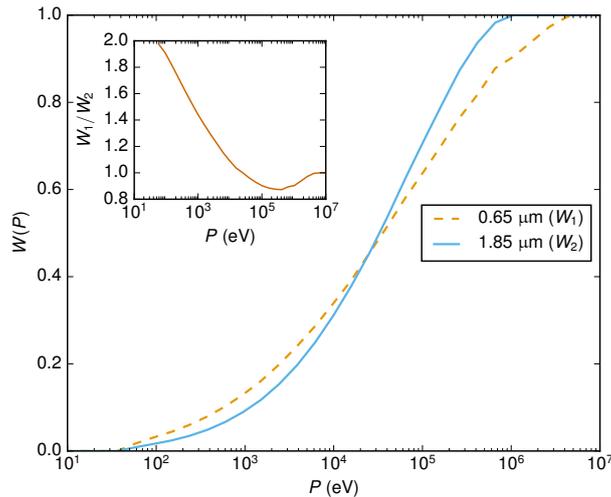


FIGURE 4.11 – Spectres de PKA pondérés extraits d'un calcul SRIM avec l'option Kinchin-Pease pour des ions Fe^{5+} de 10 MeV, à 650 nm et à $1.85 \mu\text{m}$ de profondeur.

Bien que l'accord soit meilleur avec ces dernières simulations, changer la valeur de η n'est pas la seule manière de décrire l'évolution du dommage primaire en fonction de la profondeur. La réalité est beaucoup plus complexe, et le résultat obtenu ici doit avant tout être pris comme une mesure de sensibilité plus que la mise en évidence d'un mécanisme précis.

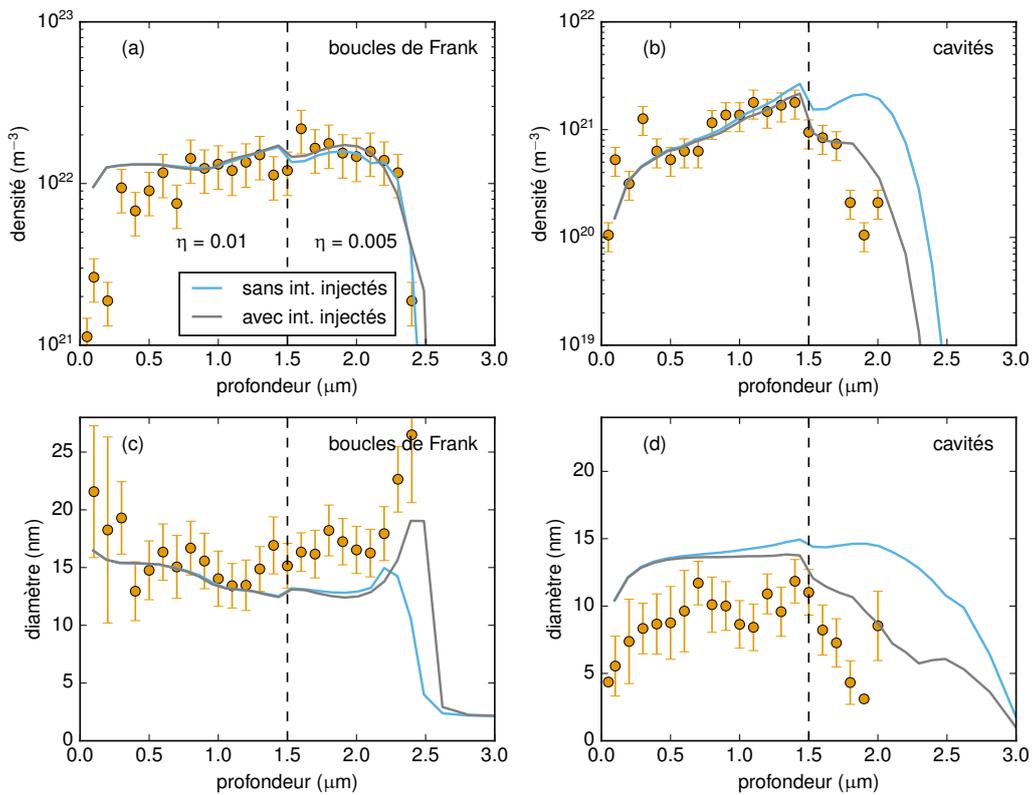


FIGURE 4.12 – Observations MET de lames FIB et simulations par dynamique d'amas en fonction de la profondeur pour un acier austénitique 304L irradié aux ions Fe^{5+} 10 MeV à 450°C à une dose de 40 dpa. Une variation de η en fonction de la profondeur est imposée pour rendre compte de l'évolution du type de dommage.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Dans ce mémoire j'ai essayé de montrer que mon travail de recherche sur les cinétiques sous irradiation s'articule autour de trois grands axes : le développement de méthodes de simulation efficaces pour atteindre des temps longs, le développement de modèles pour transférer des informations obtenues à l'échelle atomique vers des modèles en champ moyen, et la comparaison à l'expérience. Ces études, dont je rappelle ici les principaux résultats, ouvrent un certain nombre de perspectives à plus ou moins long terme.

Méthodes numériques

La majorité des développements numériques a été réalisée pour le code de dynamique d'amas CRESCENDO. En effet, contrairement à l'OKMC, qui se prête assez mal aux optimisations, la dynamique d'amas peut être plus ou moins efficace selon les méthodes numériques utilisées. Nous avons vu qu'avec une résolution déterministe appropriée, il est possible de simuler en quelques minutes un matériau pur ou un alliage « gris » sous irradiation jusqu'à des temps longs (plusieurs années), ou, de manière équivalente, jusqu'à des doses élevées (100 dpa). L'utilisation de l'équation de Fokker-Planck discrétisée est une des spécificités de CRESCENDO héritée des codes développés par Alain Barbu depuis la fin des années 1990. L'implémentation des schémas de Chang-Cooper puis MP5 a permis de gagner en précision, en conservant la matière et en reproduisant fidèlement les distributions d'amas. L'utilisation des solveurs linéaires creux adaptés à la matrice jacobienne du système s'avère indispensable pour simuler des systèmes avec des solutés ou avec une dépendance spatiale. Ces développements facilitent aussi les études de sensibilité et l'ajustement de paramètres. Le « coût d'entrée » en termes de développements explique peut-être pourquoi la dynamique d'amas, malgré un formalisme très simple, reste une approche assez peu utilisée actuellement.

Le code CRESCENDO pourrait être amélioré sur un certain nombre d'aspects. Il ne peut actuellement être utilisé avec l'équation de Fokker-Planck si des amas comportant plusieurs types d'espèces sont mobiles, car ces derniers donnent lieu à des termes croisés $\partial^2/\partial x \partial y$. Bien que des schémas existent pour ces termes [224], le traitement de l'interface discret-continu reste problématique. Concernant la résolution en temps, l'utilisation

de schémas implicite-explicite devrait être approfondie. Les schémas itératifs pour la résolution des systèmes linéaires semblent également intéressants, car ils permettent d'éviter le stockage de la matrice jacobienne. Enfin, la question qui m'est parfois posée sur CRESCENDO, et qui pourrait donc constituer une perspective majeure du code, est bien sûr la suivante : « Quand CRESCENDO pourra-t-il traiter tous les solutés des aciers utilisés dans les REP ? ». La réponse à cette question contient un aspect numérique et un aspect physique. D'un point de vue numérique, j'ai débuté il y a maintenant trois ans l'implémentation d'une version de CRESCENDO qui accepte un nombre arbitraire de solutés et qui ne considère que les classes d'amas de concentration non nulle, dans le but de diminuer au maximum le nombre d'équations à résoudre. Malheureusement, je n'ai pas pu la maintenir en parallèle de la version « classique » de CRESCENDO qui a continué à prendre de l'embonpoint au gré des différentes études. Il sera certainement nécessaire de réactiver cette version multisolutés à l'occasion de la thèse de Pierre Terrier portant sur l'utilisation de l'équation différentielle stochastique associée à l'équation de Fokker-Planck. Quelle que soit l'approche choisie (déterministe ou stochastique), il est peu probable que nous puissions simuler plus de deux ou trois solutés pour des raisons d'empreinte mémoire. Nous pourrions par exemple envisager le système Fe-He-H et étudier des effets de synergie éventuels entre l'hélium et l'hydrogène sur le gonflement [225], ou certains alliages binaires et ternaires dilués. Les aciers industriels resteront quant à eux inaccessibles.

Changements d'échelles

Les modèles de dynamique d'amas sont très sensibles à certains paramètres : énergétique des amas, terme source, forces de puits, etc. Nous avons montré dans le chapitre 3 comment déterminer certains de ces paramètres. Il serait intéressant d'aller plus loin dans la détermination des forces de puits.

À court terme, nous envisageons, avec Aurélien Vattré, d'élargir l'étude présentée dans la partie 3.3 à d'autres types d'interfaces : cubique face centré / cubique centré comme Cu/Nb, ou cubique centré / cubique centré comme les joints de grains dans le fer. Pour ce dernier cas, une étude systématique en fonction des types de joints serait intéressante. Pour approfondir l'étude sur les forces de puits, il est nécessaire de traiter l'évolution des défauts de manière plus précise quand ils sont absorbés à l'interface. Pour l'instant, l'interface est un puits parfait. En réalité, l'efficacité du puits dépend de la réémission possible du défaut, de sa migration le long de l'interface avant qu'il ne perde son identité [123]. Il pourrait être intéressant de traiter explicitement cette cinétique au niveau des interfaces [226].

La modélisation des défauts dans l'OKMC pourrait elle aussi être affinée. Il est relativement aisé d'introduire la polarisabilité des défauts (éq. (4.1)) dans le code OKMC. Il a été montré que la prise en compte de cette interaction permet d'améliorer l'accord entre les énergies données par un modèle élastique et les simulations à l'échelle atomique [227]. Pour l'instant, les tenseurs de polarisabilité ont été peu calculés [228]. Je souhaiterais dans le futur collaborer avec Emmanuel Clouet et Cosmin Marinica pour évaluer l'influence de la polarisabilité des défauts sur les forces de puits. Notons que d'autres termes devraient en toute rigueur être inclus [136, 229–231]. La complexité augmenterait cependant significativement. Il est probable qu'une approche utilisant directement les énergies calculées avec des (bons) potentiels empiriques, incluant tous ces effets de manière naturelle, serait

plus simple [232].

Obtenir des valeurs précises de forces de puits avec la meilleure description possible de l'interaction entre les défauts et les puits est certes important, mais il ne faut pas oublier que les calculs de forces de puits dépendent aussi de la géométrie du système simulé et de la microstructure environnante. Ainsi, une cavité à proximité d'une dislocation a certainement une force de puits différente d'une cavité isolée. Cette variabilité des efficacités d'absorption n'est pour l'instant pas prise en compte en dynamique d'amas, ce qui est une des causes de la grande sensibilité de cette méthode aux forces de puits. Dans le cadre de la thèse de Denise Carpentier, dirigée par Yann Le Bouar et qui a débuté fin 2015, nous allons étudier l'influence de la microstructure environnante sur les forces de puits de dislocations, boucles et cavités. Le but est de proposer des modifications du formalisme de la dynamique d'amas pour rendre compte de la dispersion sur les forces de puits.

Le modèle d'évolution du réseau de dislocations présenté dans la partie 4.2.2 est très simple. Il pourrait être intéressant de confronter les évolutions de dislocations avec celles obtenues en dynamique des dislocations. Une collaboration avec Laurent Dupuy sur cette thématique me semble utile pour mieux paramétrer le modèle et le modifier si nécessaire.

Comparaison à l'expérience

Revenons à la question mentionnée précédemment : « Quand CRESCENDO pourra-t-il traiter tous les solutés des aciers utilisés dans les REP ? ». Nous avons vu que d'un point de vue numérique, il y a peu de chances de parvenir à cet objectif. D'un point de vue physique, ce n'est guère mieux. Le formalisme de la dynamique n'est clairement pas adapté pour simuler ces alliages industriels, comme discuté en introduction de la partie 4.2. Dès lors, il paraît raisonnable de se limiter dans les années à venir aux matériaux modèles : matériaux purs, certains alliages binaires voire ternaires dilués.

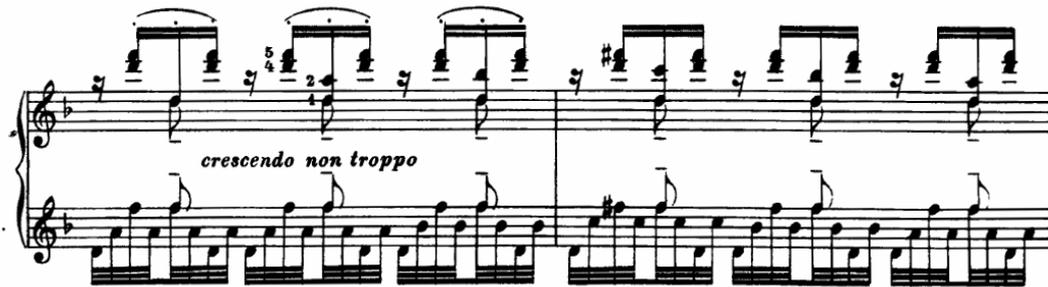
Il y a déjà beaucoup à apprendre de l'étude de ces matériaux. Concernant les alliages ferritiques, le système Fe-He a déjà été bien étudié. Nous souhaitons néanmoins approfondir l'étude en réalisant des recuits isothermes dans le MET en complément des recuits isochrones présentés dans ce mémoire. Des premières expériences ont été réalisées par Anne Duchateau dans le cadre de l'ANR EPiGRAPH. L'idée est de quantifier plus précisément la cinétique du mûrissement en se plaçant à des températures proches de la température de transition, et de comparer les distributions d'amas à celles obtenues par dynamique d'amas. Nous pourrions par exemple mieux estimer l'énergie d'activation pour l'autodiffusion et vérifier le modèle énergétique pour les boucles.

Parallèlement, je souhaite développer une activité sur les alliages à base nickel, modèles des aciers austénitiques. En particulier, le titane constitue un élément essentiel de l'alliage AIM1 (ou « 15/15 Ti ») proposé pour le gainage du combustible dans les réacteurs de génération IV. Le titane peut agir à la fois en solution solide, où il est suspecté de modifier le biais des dislocations en formant des atmosphères de Cottrell, et dans les précipités qui peuvent stabiliser le réseau de dislocations. Dans le cadre du projet pilote européen MARACAS, nous essaierons de construire un modèle de dynamique d'amas pour simuler les systèmes Ni et Ni-Ti, en partant de données à l'échelle atomique. Le but est de s'affranchir, dans une première étape, de l'effet des carbures de titane pour se concentrer sur l'effet du titane en solution solide. Parallèlement aux simulations, la vitesse de montée des

dislocations dans Ni et dans Ni-Ti sera mesurée dans le microscope électronique à haute tension du CEA/SRMA et lors d'irradiations à JANNUS Orsay. Des mesures par sonde atomique tomographique au GPM devraient permettre de confirmer les enrichissements en Ti au niveau des dislocations.

Je pense poursuivre mes activités sur la modélisation en alliage gris des matériaux industriels, en collaboration avec mes collègues du SRMA. La prochaine étape sera de considérer de manière qualitative l'effet de la précipitation sur les cinétiques de gonflement.

Enfin, il serait injuste de limiter l'OKMC à un outil permettant de déterminer des paramètres pour la dynamique d'amas. La physique qui peut être explorée avec ce type d'approche est riche, et je pense donc développer cette méthode dans les années à venir. Par exemple, des controverses existent encore sur les mécanismes de fluage sous irradiation. Des calculs OKMC, prenant en compte la polarisabilité des défauts, permettraient de mieux hiérarchiser les phénomènes conduisant au fluage : SIPA (montée pure), glissement assisté par la montée, élastodiffusion, etc. La comparaison avec des expériences modèles [233] nous permettrait certainement de contribuer à l'identification des mécanismes.



BIBLIOGRAPHIE

- [1] T. Jourdan *et al.* Acta Mater. **58**, p. 3400 (2010). 2, 7, 8
- [2] T. Jourdan, J.-L. Bocquet et F. Soisson. Acta Mater. **58**, p. 3295 (2010). 2, 11
- [3] T. Jourdan, G. Bencteux et G. Adjanor. J. Nucl. Mater. **444**, p. 298 (2014). 5, 14, 15, 16, 19, 20, 24, 46
- [4] T. Jourdan et G. Adjanor. *User Documentation for CRESCENDO v3.1*. Rap. tech. DEN/DANS/DMN/SRMP/NT-SRMP-2015-02, CEA Saclay (2015). 5
- [5] M. H. Mathon *et al.* J. Nucl. Mater. **245**, p. 224 (1997). 5
- [6] A. Hardouin-Duparc *et al.* J. Nucl. Mater. **302**, p. 143 (2002). 5, 15, 21
- [7] F. Christien et A. Barbu. J. Nucl. Mater. **346**, p. 272 (2005). 5, 54
- [8] F. Christien et A. Barbu. J. Nucl. Mater. **324**, p. 90 (2004). 5
- [9] L. Farkas. Z. Phys. Chem. **125**, p. 236 (1927). 6
- [10] N. N. Tunitskii. Zh. Fiz. Khim. **15**, p. 1061 (1941). 6, 13
- [11] J. B. Zeldovich. Acta Physicochim. (URSS) **18**, p. 1 (1943). 6
- [12] J. Feder *et al.* Adv. Phys. **15**, p. 111 (1966). 6
- [13] G. Martin. Adv. Eng. Mater. **8**, p. 1231 (2006). 6
- [14] E. Clouet. Dans D. U. Furrer et S. L. Semiatin, éditeurs, *Fundamentals of Modeling for Metals Processing*, t. 22A de *ASM Handbook*, p. 203. ASM International (2009). 6
- [15] J. L. Katz et H. Wiedersich. J. Colloid Interface Sci. **61**, p. 351 (1977). 6
- [16] J. Lépinoux. Philos. Mag. **86**, p. 5053 (2006). 7
- [17] J. Lépinoux. Acta Mater. **57**, p. 1086 (2009). 7
- [18] F. Berthier *et al.* Acta Mater. **58**, p. 2387 (2010). 7
- [19] F. A. Nichols. J. Nucl. Mater. **75**, p. 32 (1978). 7, 9
- [20] A. D. Brailsford et R. Bullough. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **302**, p. 87 (1981). 7
- [21] E. Kotomin et V. Kuzovkov. Rep. Prog. Phys. **55**, p. 2079 (1992). 7
- [22] T. R. Waite. J. Chem. Phys. **28**, p. 103 (1958). 7

- [23] K. Schroeder et K. Dettmann. *Z. Phys. B* **22**, p. 343 (1975). 8
- [24] R. Bullough *et al.* Dans M. F. Ashby *et al.*, éditeurs, *Dislocation Modelling of Physical Systems*, p. 116. Pergamon (1981). ISBN 978-0-08-026724-1. 8
- [25] A. D. Brailsford, J. R. Matthews et R. Bullough. *J. Nucl. Mater.* **79**, p. 1 (1979). 8
- [26] E. Clouet *et al.* *Acta Mater.* **53**, p. 2313 (2005). 8
- [27] H. Reiss. *J. Chem. Phys.* **18**, p. 840 (1950). 8
- [28] P. Miold et K. Binder. *Acta Metall.* **25**, p. 1435 (1977). 8
- [29] A. F. Calder et D. J. Bacon. *J. Nucl. Mater.* **207**, p. 25 (1993). 8, 9
- [30] J.-M. Delaye et D. Ghaleb. *Phys. Rev. B* **71**, p. 224203 (2005). 9
- [31] J.-P. Crocombette et T. Jourdan. *Nucl. Instrum. Meth. B* **352**, p. 9 (2015). 9
- [32] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler et J. P. Biersack. *Nucl. Instrum. Meth. B* **268**, p. 1818 (2010). 9, 56
- [33] M. T. Robinson. *Phys. Rev. B* **40**, p. 10717 (1989). 9, 36
- [34] T. Jourdan. *J. Nucl. Mater.* **467**, p. 286 (2015). 9, 31, 55, 58
- [35] R. Sizmann. *J. Nucl. Mater.* **69 & 70**, p. 386 (1968). 9
- [36] C. Domain, C. S. Becquart et L. Malerba. *J. Nucl. Mater.* **335**, p. 121 (2004). 10, 11, 34
- [37] J. M. Lanore. *Radiat. Eff.* **22**, p. 153 (1974). 10, 11
- [38] A. B. Bortz, M. H. Kalos et J. L. Lebowitz. *J. Comput. Phys.* **17**, p. 10 (1975). 11
- [39] D. T. Gillespie. *J. Comput. Phys.* **22**, p. 403 (1976). 11, 26
- [40] J. Dalla Torre *et al.* *Philos. Mag.* **85**, p. 549 (2005). 11
- [41] A. Barbu *et al.* *Philos. Mag.* **85**, p. 541 (2005). 11
- [42] T. Opplestrup *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **97**, p. 230602 (2006). 12
- [43] A. J. Mauro *et al.* *J. Comput. Phys.* **259**, p. 536 (2014). 12
- [44] F. C. Goodrich. *Proc. R. Soc. Lond. A* **277**, p. 167 (1964). 13
- [45] W. G. Wolfer, L. K. Mansur et J. A. Sprague. Dans M. L. Bleiberg et J. W. Bennett, éditeurs, *Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials*, p. 479 (1977). 13
- [46] R. A. Johnson. *J. Nucl. Mater.* **75**, p. 77 (1978). 14
- [47] N. M. Ghoniem et S. Sharafat. *J. Nucl. Mater.* **92**, p. 121 (1980). 14, 15, 21
- [48] T. Jourdan *et al.* accepté dans *Comput. Phys. Commun.* (2016). 15, 16, 17
- [49] M. Kiritani. *J. Phys. Soc. Jpn* **35**, p. 95 (1973). 15
- [50] S. I. Golubov *et al.* *Philos. Mag. A* **81**, p. 643 (2001). 15, 18
- [51] A. M. Ovcharenko *et al.* *Comput. Phys. Commun.* **152**, p. 208 (2003). 15
- [52] S. I. Golubov *et al.* *J. Nucl. Mater.* **361**, p. 149 (2007). 15
- [53] N. M. Ghoniem. *Radiat. Eff. Defects Solids* **148**, p. 269 (1999). 15
- [54] V. Duwig. *Notice théorique et informatique du code MFVIC2*. Rap. tech., EDF R&D (2005). HI-23/05/019/A. 15

- [55] C. A. J. Fletcher. *Computational Techniques for Fluid Dynamics 1 : Fundamental and General Techniques*. Springer-Verlag, Berlin (1991). 15
- [56] G. Ozkan et P. Ortoleva. *J. Chem. Phys.* **112**, p. 10510 (2000). 15
- [57] R. J. Leveque. *Finite-Volume Methods for Hyperbolic Problems*. Cambridge University Press (2004). 16, 17
- [58] J. S. Chang et G. Cooper. *J. Comput. Phys.* **6**, p. 1 (1970). 16
- [59] J. Y. Rempel, M. G. Bawendi et K. F. Jensen. *J. Am. Chem. Soc.* **131**, p. 4479 (2009). 16
- [60] T. Vetter *et al.* *Cryst. Growth Des.* **13**, p. 4890 (2013). 16
- [61] A. Suresh et H. T. Huynh. *J. Comput. Phys.* **136**, p. 83 (1997). 17
- [62] M. Koiwa. *J. Phys. Soc. Jpn* **37**, p. 1532 (1974). 17, 18
- [63] A. A. Turkin et A. S. Bakai. *Probl. At. Sci. Tech.* **3**, p. 394 (2007). 20
- [64] E. Hairer et G. Wanner. *Solving Ordinary Differential Equations II : Stiff and Differential-Algebraic Problems*. Springer (1996). 20, 21, 25
- [65] E. Meslin *et al.* *J. Nucl. Mater.* **382**, p. 190 (2008). 21, 22, 26
- [66] A. C. Hindmarsh et R. J. Gelinas. *GEAR : Ordinary differential equation system solver*. Rap. tech. UCID-30001, Lawrence Radiation Laboratory (1971). 21
- [67] K. Radhakrishnan et A. C. Hindmarsh. *Description and Use of LSODE, the Livermore Solver for Ordinary Differential Equations*. Rap. tech. UCRL-ID-113855, Lawrence Livermore National Laboratory (1993). 21
- [68] A. C. Hindmarsh *et al.* *ACM Trans. Math. Softw.* **31**, p. 363 (2005). 21
- [69] D. Guibert et D. Tromeur-Dervout. Dans U. Langer *et al.*, éditeurs, *Domain Decomposition Methods in Science and Engineering XVII*, t. 60 de *Lecture Notes in Computational Science and Engineering*, p. 535. Springer Berlin Heidelberg (2008). 23
- [70] P. R. Amestoy *et al.* *SIAM J. Matrix Anal. A.* **23**, p. 15 (2001). 23
- [71] P. R. Amestoy *et al.* *Parallel Comput.* **32**, p. 136 (2006). 23
- [72] G. Karypis et V. Kumar. *SIAM J. Sci. Comput.* **20**, p. 359 (1998). 23
- [73] C. Chevalier et F. Pellegrini. *Parallel Comput.* **34**, p. 318 (2008). 23
- [74] Y. Saad. *Iterative Methods for Sparse Linear Systems*. SIAM (2003). 25
- [75] C. W. Gear et Y. Saad. *SIAM J. Sci. Stat. Comput.* **4**, p. 583 (1983). 25
- [76] D. S. Watkins et R. W. Hansonsmith. *ACM Trans. Math. Softw.* **9**, p. 293 (1983). 25
- [77] L. Lopez et D. Trigiante. *Intern. J. Computer Math.* **30**, p. 191 (1989). 25
- [78] P. N. Brown et A. C. Hindmarsh. *SIAM J. Numer. Anal.* **23**, p. 610 (1986). 25
- [79] E. Hofer. *SIAM J. Numer. Anal.* **13**, p. 645 (1976). 25
- [80] C. A. Kennedy et M. H. Carpenter. *Appl. Numer. Math.* **44**, p. 139 (2003). 25
- [81] D. R. Reynolds *et al.* *User Documentation for ARKode v1.0.1*. Rap. tech. LLNL-SM-668082, Lawrence Livermore National Laboratory (2015). 25
- [82] M. Gherardi *et al.* *Comput. Phys. Commun.* **183**, p. 1966 (2012). 26, 28, 29

- [83] J. Marian et V. V. Bulatov. *J. Nucl. Mater.* **415**, p. 84 (2011). 26
- [84] M. A. Gibson et J. Bruck. *J. Phys. Chem. A* **104**, p. 1876 (2000). 27
- [85] D. T. Gillespie. *J. Chem. Phys.* **115**, p. 1716 (2001). 27
- [86] E. Haseltine et J. Rawlings. *J. Chem. Phys.* **117**, p. 6959 (2002). 27
- [87] Y. Cao, D. T. Gillespie et L. R. Petzold. *J. Chem. Phys.* **122**, p. 014116 (2005). 27
- [88] T. L. Hoang *et al.* *J. Comput. Phys.* **300**, p. 254 (2015). 27
- [89] A. Alfonsi *et al.* *ESAIM : Proc.* **14**, p. 1 (2005). 27
- [90] S. Le Bourdieu et M. Barrault. *Méthode Monte Carlo pour l'étude du vieillissement des matériaux irradiés*. Rap. tech. H-I23-2008-0446-FR, EDF R&D (2008). 27
- [91] M. P. Surh, J. B. Sturgeon et W. G. Wolfer. *J. Nucl. Mater.* **325**, p. 44 (2004). 29
- [92] G. Jacucci, A. Perini et G. Martin. *J. Phys. A : Math. Gen.* **16**, p. 369 (1983). 31
- [93] A. Perini, G. Jacucci et G. Martin. *Phys. Rev. B* **29**, p. 2689 (1984). 31
- [94] T. Jourdan et J.-P. Crocombette. *J. Nucl. Mater.* **418**, p. 98 (2011). 31, 32
- [95] S. E. Donnelly. *Radiat. Eff.* **90**, p. 1 (1985). 31
- [96] C. A. Walsh, J. Yuan et L. M. Brown. *Philos. Mag. A* **80**, p. 1507 (2000). 31
- [97] S. Frécharde *et al.* *J. Nucl. Mater.* **393**, p. 102 (2009). 31
- [98] H. Trinkaus. *Radiat. Eff.* **78**, p. 189 (1983). 32
- [99] S. Sharafat et N. M. Ghoniem. *J. Nucl. Mater.* **122 & 123**, p. 531 (1984). 32
- [100] W. G. Wolfer *et al.* *J. Nucl. Mater.* **122 & 123**, p. 565 (1984). 32
- [101] K. Morishita et R. Sugano. *J. Nucl. Mater.* **353**, p. 52 (2006). 32, 34
- [102] S. M. Hafez Haghghat, G. Lucas et R. Schäublin. *Europhys. Lett.* **85**, p. 60008 (2009). 32
- [103] J. H. Evans, A. van Veen et L. M. Caspers. *Scr. Metall.* **15**, p. 323 (1981). 32
- [104] H. Trinkaus et W. G. Wolfer. *J. Nucl. Mater.* **122 & 123**, p. 552 (1984). 32
- [105] W. G. Wolfer. *Philos. Mag. A* **58**, p. 285 (1988). 32
- [106] R. L. Mills, D. H. Liebenberg et J. C. Bronson. *Phys. Rev. B* **21**, p. 5137 (1980). 33
- [107] K. Morishita, R. Sugano et B. D. Wirth. *J. Nucl. Mater.* **323**, p. 243 (2003). 34
- [108] G. Lucas et R. Schäublin. *J. Nucl. Mater.* **386-388**, p. 360 (2009). 34
- [109] C. C. Fu et F. Willaime. *Phys. Rev. B* **72**, p. 064117 (2005). 34, 47
- [110] T. Jourdan et J.-P. Crocombette. *Phys. Rev. B* **86**, p. 054113 (2012). 34, 35, 36, 37
- [111] J. Rottler, D. J. Srolovitz et R. Car. *Phys. Rev. B* **71**, p. 064109 (2005). 34
- [112] R. E. Stoller *et al.* *J. Nucl. Mater.* **382**, p. 77 (2008). 34
- [113] A. Souidi *et al.* *J. Nucl. Mater.* **419**, p. 122 (2011). 35
- [114] H. Xu, Y. N. Osetsky et R. E. Stoller. *J. Nucl. Mater.* **423**, p. 102 (2012). 35
- [115] S. Jumel et J. C. Van-Duysen. *J. Nucl. Mater.* **328**, p. 151 (2004). 36
- [116] A. Y. Dunn et L. Capolungo. *Comp. Mater. Sci.* **102**, p. 314 (2015). 37
- [117] A. Vattré *et al.* *Nat. Commun.* **7**, p. 10424 (2016). 37, 39, 40, 41

- [118] B. N. Singh. *Philos. Mag.* **29**, p. 25 (1974). 37
- [119] G. R. Odette, M. J. Alinger et B. D. Wirth. *Annu. Rev. Mater. Res.* **38**, p. 471 (2008). 37
- [120] L. L. Hsiung *et al.* *Phys. Rev. B* **82**, p. 184103 (2010). 37
- [121] W. Z. Han *et al.* *Acta Mater.* **60**, p. 6341 (2012). 37
- [122] A. Misra *et al.* *JOM* **59**, p. 62 (2007). 37
- [123] R. W. Balluffi. Dans M. T. Robinson et F. W. Young, Jr., éditeurs, *Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals*, t. II, p. 852 (1975). 39, 66
- [124] M. J. Demkowicz, R. G. Hoagland et J. P. Hirth. *Phys. Rev. Lett.* **100**, p. 136102 (2008). 39
- [125] S. Mao *et al.* *Acta Mater.* **82**, p. 328 (2015). 39
- [126] A. H. King et D. A. Smith. *Radiat. Eff.* **54**, p. 169 (1981). 39
- [127] R. R. Galimov et S. B. Goryachev. *Phys. Status Solidi B* **153**, p. 443 (1989). 39
- [128] C. Jiang *et al.* *Mater. Res. Lett.* **2**, p. 100 (2014). 39
- [129] A. H. Cottrell. *Prog. Met. Phys.* **1**, p. 77 (1949). 39
- [130] J. P. Hirth et J. Lothe. *Theory of dislocations*. McGraw-Hill (1968). 39
- [131] L. Priester. *Les joints de grains. De la théorie à l'ingénierie*. EDP Sciences (2006). 39
- [132] A. J. Vattré et M. J. Demkowicz. *Acta Mater.* **61**, p. 5172 (2013). 39
- [133] A. J. Vattré et M. J. Demkowicz. *Acta Mater.* **82**, p. 234 (2015). 39
- [134] H. Kanzaki. *J. Phys. Chem. Solids* **2**, p. 24 (1957). 40
- [135] E. Kröner. *Z. Naturforsch., A : Phys. Sci.* **11**, p. 969 (1956). 40
- [136] R. Siems. *Phys. Stat. Sol.* **30**, p. 645 (1968). 40, 66
- [137] W. G. Wolfer. Dans R. J. Konings, éditeur, *Comprehensive Nuclear Materials*, p. 1. Elsevier, Oxford (2012). 40, 54
- [138] H. R. Schober. *J. Phys. F : Metal Phys.* **7**, p. 1127 (1977). 40
- [139] M. J. Gillan. *Philos. Mag. A* **48**, p. 903 (1983). 40
- [140] E. Clouet *et al.* *Acta Mater.* **56**, p. 3450 (2008). 40
- [141] H.-G. Haubold et D. Martinsen. *J. Nucl. Mater.* **69 & 70**, p. 644 (1978). 40
- [142] P. Ehrhart *et al.* *Landolt-Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*. Atomic Defects In Metals. Springer (1991). 40
- [143] W. Schilling. *J. Nucl. Mater.* **69 & 70**, p. 465 (1978). 40
- [144] A. B. Sivak *et al.* *J. Nucl. Mater.* **417**, p. 1067 (2011). 41
- [145] G. Subramanian *et al.* *Phys. Rev. B* **87**, p. 144107 (2013). 41
- [146] P. H. Dederichs et K. Schroeder. *Phys. Rev. B* **17**, p. 2524 (1978). 43, 52, 53
- [147] R. Bullough et R. C. Perrin. *The Mechanism and Kinetics of Void Growth During Neutron Irradiation*, p. 317. ASTM STP 484 (1970). 43
- [148] P. T. Heald. *Philos. Mag.* **31**, p. 551 (1975). 43

- [149] E. A. Little, R. Bullough et M. H. Wood. Proc. R. Soc. Lond. A **372**, p. 565 (1980). 43
- [150] H. Lefaix-Jeuland *et al.* J. Nucl. Mater. **434**, p. 152 (2013). 45
- [151] S. Moll, T. Jourdan et H. Lefaix-Jeuland. Phys. Rev. Lett. **111**, p. 015503 (2013). 45, 46
- [152] Le Moniteur, éditeur. *Les Matériaux du nucléaire*. Monographie DEN (2016). 46
- [153] K. Farrell, M. B. Lewis et N. H. Packan. Scr. Metall. **12**, p. 1121 (1978). 46
- [154] S. C. Agarwal *et al.* J. Nucl. Mater. **85 & 86**, p. 653 (1979). 46
- [155] Y. Katoh *et al.* J. Nucl. Mater. **210**, p. 290 (1994). 46
- [156] J. P. Foster *et al.* J. Nucl. Mater. **224**, p. 207 (1995). 46, 56
- [157] D. J. Edwards *et al.* J. Nucl. Mater. **317**, p. 32 (2003). 46, 56
- [158] D. Edwards *et al.* Dans T. R. Allen, P. J. King et L. Nelson, éditeurs, *Proceedings of the 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors*, p. 419 (2005). 46, 56
- [159] H. Ullmaier et H. Trinkaus. Mater. Sci. Forum **97–99**, p. 451 (1992). 46
- [160] G. H. Dai *et al.* Acta Phys. Pol., A **83**, p. 277 (1993). 46
- [161] M. Eldrup et B. N. Singh. J. Nucl. Mater. **323**, p. 346 (2003). 46
- [162] K. Arakawa *et al.* J. Appl. Phys. **89**, p. 4752 (2001). 47
- [163] S. L. Dudarev, R. Bullough et P. M. Derlet. Phys. Rev. Lett. **100**, p. 135503 (2008). 47
- [164] A. J. Ardell. Dans G. W. Lorimer, éditeur, *Phase transformations '87* (1988). 49
- [165] C. Bonafos, D. Mathiot et A. Claverie. J. Appl. Phys. **83**, p. 3008 (1998). 49
- [166] G. Z. Pan, K. N. Tu et A. Prussin. J. Appl. Phys. **81**, p. 78 (1997). 49
- [167] H. Wen, P.-W. Ma et C. H. Woo. J. Nucl. Mater. **440**, p. 428 (2013). 50
- [168] N. Sandberg *et al.* Phys. Rev. B **92**, p. 184102 (2015). 50
- [169] H. Wen et C. H. Woo. J. Nucl. Mater. **470**, p. 102 (2016). 50
- [170] F. Soisson et C.-C. Fu. Phys. Rev. B **76**, p. 214102 (2007). 50
- [171] M. Athènes et M.-C. Marinica. J. Comput. Phys. **229**, p. 7129 (2010). 50
- [172] G. Lucas et R. Schäublin. Nucl. Instr. Meth. B **267** (18), p. 3009 (2009). 50
- [173] H. O. K. Kirchner. Acta Metall. **21**, p. 85 (1973). 51
- [174] B. Burton et M. V. Speight. Philos. Mag. A **53**, p. 385 (1986). 51
- [175] R. Ngayam-Happy, C. S. Becquart et C. Domain. J. Nucl. Mater. **440**, p. 143 (2013). 51
- [176] N. Gharbi. *Contribution à la compréhension de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium à forte dose*. Thèse de doctorat, Université de La Rochelle (2015). 52
- [177] P. T. Heald et M. V. Speight. Philos. Mag. **29**, p. 1075 (1974). 52
- [178] W. G. Wolfer et M. Ashkin. J. Appl. Phys. **47**, p. 791 (1976). 52
- [179] R. Bullough et J. R. Willis. Philos. Mag. **31**, p. 855 (1975). 52

- [180] E. J. Savino. *Philos. Mag.* **36**, p. 323 (1977). 52
- [181] C. N. Tomé, H. A. Cecatto et E. J. Savino. *Phys. Rev. B* **25**, p. 7428 (1982). 52
- [182] B. C. Skinner et C. H. Woo. *Phys. Rev. B* **30**, p. 3084 (1984). 52, 53
- [183] C. H. Woo. *J. Nucl. Mater.* **120**, p. 55 (1984). 53
- [184] G. J. C. Carpenter, R. H. Zee et A. Rogerson. *J. Nucl. Mater.* **159**, p. 86 (1988). 53
- [185] F. Onimus et J.-L. Béchade. Dans *Comprehensive Nuclear Materials*, p. 1. Elsevier (2012). 53
- [186] C. H. Woo et U. Gösele. *J. Nucl. Mater.* **119**, p. 219 (1983). 53
- [187] C. H. Woo. *J. Nucl. Mater.* **159**, p. 237 (1988). 53
- [188] G. Vérité. *Structure, stabilité et mobilité des défauts ponctuels dans le zirconium hexagonal compact : étude ab initio*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (2007). 53
- [189] G. Vérité *et al.* *Phys. Rev. B* **87**, p. 134108 (2013). 53
- [190] C. Varvenne *et al.* *Phys. Rev. B* **88**, p. 134102 (2013). 53, 54
- [191] G. D. Samolyuk *et al.* *Acta Mater.* **78**, p. 173 (2014). 53, 54
- [192] C. H. Woo et E. J. Savino. *J. Nucl. Mater.* **116**, p. 17 (1983). 53
- [193] W. G. Wolfer et M. Ashkin. *J. Appl. Phys.* **46**, p. 547 (1975). 53
- [194] C. H. Woo. *J. Nucl. Mater.* **80**, p. 132 (1979). 54
- [195] C. Varvenne, O. Mackain et E. Clouet. *Acta Mater.* **65**, p. 65 (2014). 54
- [196] C. Hellio, C. H. de Novion et L. Boulanger. *J. Nucl. Mater.* **159**, p. 368 (1988). 54
- [197] Y. de Carlan *et al.* Dans E. R. Bradley et G. P. Sabol, éditeurs, *Zirconium in the Nuclear Industry : Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295*, p. 638 (1996). 54
- [198] M. Griffiths et R. W. Gilbert. *J. Nucl. Mater.* **150**, p. 169 (1987). 54
- [199] M. Griffiths. Dans M. Limback et B. Kammenzind, éditeurs, *Zirconium in the Nuclear Industry : 15th International Symposium, ASTM*, t. 5, p. 1 (2007). 54
- [200] P. T. Heald et M. V. Speight. *Acta Metall.* **23**, p. 1389 (1975). 54
- [201] A. D. Brailsford et R. Bullough. *J. Nucl. Mater.* **44**, p. 121 (1972). 56
- [202] J. E. Westmoreland *et al.* *Radiat. Eff.* **26**, p. 1 (1975). 56
- [203] L. K. Mansur. *J. Nucl. Mater.* **78**, p. 156 (1978). 56
- [204] A. D. Brailsford et L. K. Mansur. *J. Nucl. Mater.* **71**, p. 110 (1977). 56
- [205] M. H. Yoo. *J. Nucl. Mater.* **79**, p. 135 (1979). 56
- [206] E. H. Lee, L. K. Mansur et M. H. Yoo. *J. Nucl. Mater.* **85 & 86**, p. 577 (1979). 56
- [207] D. L. Plumton et W. G. Wolfer. *J. Nucl. Mater.* **120**, p. 245 (1984). 56
- [208] M. P. Short *et al.* *J. Nucl. Mater.* **471**, p. 200 (2016). 56, 61
- [209] H. R. Brager *et al.* Dans M. L. Bleiberg et J. W. Bennett, éditeurs, *Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials*. The Metallurgical Society of AIME (1977). 56
- [210] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz et R. E. Stoller. *J. Nucl. Mater.* **206**, p. 266 (1993). 56

- [211] W. G. Wolfer et B. B. Glasgow. *Acta Metall.* **33**, p. 1997 (1985). 57, 58
- [212] R. E. Stoller et G. R. Odette. Dans F. A. Garner, N. H. Packan et A. S. Kumar, éditeurs, *Radiation-Induced Changes in Microstructure : 13th International Symposium (Part I)*, ASTM STP 955, p. 371. ASTM (1987). 57, 58
- [213] M. Zouari *et al.* Dans J. T. Busby, G. Ilevbare et P. L. Andresen, éditeurs, *15th International Conference on Environmental Degradation*, p. 1371. John Wiley & Sons, Inc. (2011). 57
- [214] P. J. Maziasz. *Microstructural development on 20%-cold-worked types 316 and 316 + Ti stainless steels irradiated in HFIR : temperature and fluence dependence of the dislocation component*. Rap. tech. DOE/ER-0045/7, Oak Ridge National Laboratory (1971). 58
- [215] D. Fahr, E. E. Bloom et J. O. Stiegler. Dans *Irradiation Embrittlement and Creep in Fuel Cladding and Core Components*, p. 167. British Nuclear Energy Society (1972). 58
- [216] L. E. Rehn, P. R. Okamoto et R. S. Averback. *Phys. Rev. B* **30**, p. 3073 (1984). 58
- [217] L. E. Rehn. *J. Nucl. Mater.* **174**, p. 144 (1990). 58
- [218] C. Dimitrov *et al.* *Mater. Sci. Forum* **15-18**, p. 1275 (1987). 58
- [219] G. Bonny *et al.* *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **19**, p. 085008 (2011). 58
- [220] Y. Satoh, H. Abe et S. W. Kim. *Philos. Mag.* **92**, p. 1129 (2012). 61
- [221] Y. Satoh *et al.* *Philos. Mag.* **95**, p. 1587 (2015). 61
- [222] J. Baštecká. *Czech. J. Phys.* **14**, p. 430 (1964). 61
- [223] R. S. Averback, R. Benedek et K. L. Merkle. *Phys. Rev. B* **18**, p. 4156 (1978). 61
- [224] A. Kurganov et G. Petrova. *Numer. Math.* **88**, p. 683 (2001). 65
- [225] T. Tanaka *et al.* *J. Nucl. Mater.* **329-333**, p. 294 (2004). 66
- [226] B. P. Uberuaga *et al.* *Sci. Rep.* **5**, p. 9095 (2015). 66
- [227] E. Clouet. *Acta Mater.* **54**, p. 3543 (2006). 66
- [228] G. J. Ackland. *J. Nucl. Mater.* **152**, p. 53 (1988). 66
- [229] J. R. Hardy et R. Bullough. *Philos. Mag.* **15**, p. 237 (1967). 66
- [230] R. Bullough et R. C. Newman. *Rep. Prog. Phys.* **33**, p. 101 (1970). 66
- [231] W. G. Wolfer et A. Si-Ahmed. *Phys. Lett. A* **76**, p. 341 (1980). 66
- [232] Z. Chang *et al.* *J. Nucl. Mater.* **441**, p. 357 (2013). 67
- [233] P. Lapouge *et al.* *J. Nucl. Mater.* **476**, p. 20 (2016). 68