

Les alliages à base de Zirconium (Zr) sont largement utilisés dans les réacteurs nucléaires. Mais, après l'accident de Fukushima Daiichi, et afin d'améliorer la sûreté nucléaire, Zr a attiré la communauté scientifique pour des études, plus approfondies concernant le Zr et ses alliages ainsi que la diffusion de l'hydrogène dans le Zr. De ce fait, des études théoriques basées sur des modélisations *Ab initio* ont été effectuées. Les paramètres structuraux obtenus, les propriétés thermiques et mécaniques des β -Zr et β' -Zr propres sont en excellent accord avec les précédentes données expérimentales et théoriques. Sur la base de la présente étude, la présence de Fe dans les interstices octaédriques du zirconium HCP (système Zr-Fe) induit une grande flexibilité (fragilité moindre) du système Zr-Fe comparé au Zr propre. De plus, le système Zr-Fe fait augmenter remarquablement le coefficient de dilatation thermique causant ainsi une croissance du volume du matériau à mesure que sa température augmente. Les résultats obtenus sont mécaniquement avantageux et sont d'une importance essentielle pour améliorer la sûreté nucléaire et empêcher la fragilisation du Zr pendant de long temps de fonctionnement des réacteurs nucléaires.

Nous avons par ailleurs étudié l'adsorption et l'incorporation de l'hydrogène (H) dans une surface propre de Zr (0001) ainsi que l'étude de l'effet de défauts de lacunes ou d'incorporation d'impuretés sur la diffusion de l'hydrogène à travers cette surface Zr (0001). Les résultats obtenus confirment bien que les sites HCP et FCC sont énergétiquement les plus stables pour les énergies d'adsorption de l'hydrogène $E_{ads}(H)$, tandis que les sites d'incorporation de H les plus probables sont les sites Octaédriques et Tetraédriques (inOcta et inTetra). La lacune en atome Zr réduit les $E_{ads}(H)$ de H dans les sites FCC. À $\theta = 0.25$ (1/4 monolayer $\theta = ML$), l'énergie d'incorporation $E_{incorp}(H)$ au site inTetra augmente pour une surface Zr (0001) dopée en Fe, Ni et Nb, tandis que Sn et Si la font réduire. Par ailleurs, Cr et Nb font diminuer remarquablement l'énergie minimale de parcours (MEP) lors de la migration de H à travers cette surface Zr (0001). Les résultats obtenus sont avantageux pour le stockage d'hydrogène dans les alliages à base de Zr, alors que ces impuretés pourraient endommager la gaine (le Zr dope) en facilitant la formation d'hydrures.

L'étude des propriétés des hydrures de Zr (β' -ZrH_{1.5}, ZrH_{1.53} et ZrH_{1.59}) est essentielle pour comprendre son comportement à des températures élevées. On constate que lorsque la teneur en H augmente, le paramètre de maille augmente. Par ailleurs, en analysant les propriétés vibratoires (densité d'état partielle $\rho_{DOS}(\omega)$ de Phonon), nous avons trouvé que ces hydrures sont dynamiquement stables (pas de fréquences négatives imaginaires dans les résultats). En outre, un écart clair entre les branches acoustiques et optiques avec environ 23 THz a été observé en raison de la considérable différence de masse entre Zr et H (Zr est plus lourd que H). Une contribution faible de la fréquence Zr (PDOS) apparaît dans l'hydrogène et vice versa est à signaler. Sur la base de ces résultats, les hydrures étudiés présentent globalement des propriétés vibratoires et thermodynamiques similaires.