

THESE

En vue de l'obtention du grade de docteur délivré par

L'Université Lille 1

Dans la spécialité

Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

CONTRIBUTION AU DEVELOPPEMENT D'ACIERS AUSTENITIQUES AVANCÉS RÉSISTANTS AU GONFLEMENT SOUS IRRADIATION



Soutenance le 18/11/2019 par

Adrien VAUGOUDE

Directeur de thèse : **Pr Alexandre LEGRIS**

Encadrant CEA : **Yann DE CARLAN**



Jury :

Mme. Marie-France BARTHE, Directrice de recherche

M. Michel PEREZ, Professeur

M. Thomas JOURDAN, Docteur

M Dominique THIAUDIERE, Docteur

Mme Marie-Hélène MATHON, Docteur

M. Yann DE CARLAN, Docteur

M. Alexandre LEGRIS, Professeur

Mme. Martine BLAT-YRIEIX, Ingénieur

Rémi Delville, Docteur

Université d'Orléans

Université de Lyon

CEA Saclay

Synchrotron Soleil

CEA/CNRS LLB

CEA Saclay

Université de Lille 1

EDF - Les Renardières

SCK-CEN

Rapporteur

Rapporteur

Examinateur

Examinateur

Examinatrice

Examinateur

Directeur de thèse

Invitée

Invité

Résumé : Contribution au développement d'aciers austénitiques avancés résistants au gonflement sous irradiation

Dans le cadre des recherches sur les réacteurs de 4^{ème} génération, le CEA développe de nouvelles nuances d'aciers austénitiques qui seront utilisables, par exemple, pour le gainage de combustibles de réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na).

Grâce à d'excellentes propriétés mécaniques et une bonne résistance à la corrosion, ils sont utilisables jusqu'à une centaine de dpa, même si leur durée de vie peut être limitée par le phénomène de gonflement sous irradiation. Le gonflement est dû à la formation de cavités dans le matériau suite à l'irradiation et provoque des déformations macroscopiques et fragilise les gaines de combustible. L'alliage de référence, développé grâce aux précédents travaux sur les RNR français, est un acier austénitique 15Cr/15Ni stabilisé au titane appelé AIM1.

Ce travail porte sur l'étude et la compréhension des mécanismes menant à la formation des cavités sous irradiation pour contribuer au développement d'une nuance AIM2 plus résistante au gonflement.

Différentes optimisations chimiques et microstructurales ont été étudiées en adoptant une démarche analytique. Trois alliages modèles ont permis d'étudier la double stabilisation titane et niobium et des microstructures modèles ont été définies pour mettre en évidence le rôle de paramètres microstructuraux influençant le gonflement (dislocations, solutés, nano-précipités). Des caractérisations par MEB, DRX et DNPA ont permis une meilleure compréhension des évolutions microstructurales des trois nuances et des microstructures modèles et aussi d'étudier leur capacité à former un fin réseau de nano-précipités. Des irradiations à très hautes doses aux ions Fe³⁺ (2MeV et 10MeV) pour provoquer la formation de cavités ont permis de mettre en avant le rôle prépondérant de la microstructure sur la résistance au gonflement.

Une nouvelle méthodologie de l'étude du gonflement induit par l'irradiations aux ions a été proposée. Elle permet une étude statistique de la formation des cavités et repose sur l'utilisation de la microscopie à balayage. Les nouveaux détecteurs permettent en effet l'acquisition de clichés haute définition pouvant contenir sur une même micrographie plusieurs milliers de cavités. Ces clichés sont ensuite analysés à l'aide d'un algorithme d'intelligence artificielle à apprentissage supervisé pour reconnaître automatiquement les cavités mais également différents objets présents dans la microstructure (précipités, joints de grain, etc). Un exemple d'étude de l'effet sur le gonflement du gradient de dommage d'irradiation, caractéristique des irradiations aux ions lourds, est présenté comme illustration de cette méthodologie appelée MEBIA.

Des calculs par dynamique d'amas ont permis de simuler l'impact des nano-précipités et de la densité initiale de dislocations sur le gonflement. Ces résultats ont inspiré la création de nouvelles microstructures qui ont été irradiées et ont commencées à être caractérisées. Ce travail devra être poursuivi pour valider la pertinence des microstructures optimisées.

Les résultats présentés dans ce manuscrit illustre les difficultés rencontrées pour étudier les microstructures des aciers austénitiques irradiés à très forte dose mais il montre que des approches nouvelles peuvent aussi être mises en place pour faciliter ce travail.

Summary: Development of advanced austenitic steels resistant to swelling under irradiation

In the framework on 4th generation reactors, the CEA is developing new grades of austenitic steels that will be usable, for example, for the cladding of fuels for sodium-cooling fast neutron reactors (RNR-Na).

Thanks to their excellent mechanical properties and good corrosion resistance, they can be used up to 100 dpa, although their service life may be limited by the phenomenon of swelling under irradiation. Swelling is due to the formation of cavities in the material following irradiation and can cause geometric deformations and weaken the fuel claddings. The reference alloy, developed thanks to previous R&D on French RNRs, is an austenitic 15Cr/15Ni titanium stabilized steel called AIM1.

This work focuses on studying and understanding the mechanisms leading to the formation of cavities under irradiation to contribute to the development of a more swell-resistant AIM2 grade.

Different chemical and microstructural optimizations were investigated using an analytical approach. Three model alloys were used to study the double stabilization of titanium and niobium and several model microstructures were defined to highlight the role of microstructural parameters influencing swelling (dislocations, solutes, nanoprecipitates). Characterizations by SEM, DRX and DNPA have allowed a better understanding of the microstructural evolutions of the three grades, model microstructures and also to study their ability to form a fine network of nanoprecipitates. Very high-dose irradiations with Fe³⁺ ions (2MeV and 10MeV) to induce the formation of cavities have highlighted the major role of microstructure on swelling resistance.

A new methodology for the study of swelling induced by ion irradiation has been proposed. It allows a statistical study of cavity formation and is based on the use of scanning microscopy. Indeed, the new detectors can acquire high definition images that can contain several thousand cavities on the same micrograph. These images are then analyzed using a supervised learning artificial intelligence algorithm to automatically recognize the cavities but as well as different objects present in the microstructure (precipitates, grain joints, etc.). An example of a study of the effect on the swelling of the irradiation damage gradient, characteristic of heavy ion irradiation, is presented as an illustration of this methodology called MEBIA.

Cluster dynamic calculations simulated the impact of nanoprecipitates and the initial density of dislocations on swelling. These results inspired the creation of new microstructures that were irradiated and began to be characterized. This work will have to be continued to validate the relevance of optimized microstructures.

Results presented in this manuscript illustrate the difficulties encountered in studying the microstructures of austenitic steels irradiated at very high doses, but it shows that new approaches can also be put in place to facilitate this work.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Marie-France Barthes et Michel Perez d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse et de d'avoir pris le temps de la lire avec attention dans une période particulièrement chargée. Vos questions et critiques détaillées m'ont permis d'avoir une nouvelle vision de mon travail et de progresser. Je remercie également les autres membres du jury : Martine Blat-Yrieix, Dominique Thiaudière et Remi Delville d'avoir examiné ce travail et pour leur sagacité lors de la soutenance qui a été un très bon moment pour moi. L'expertise de Rémi Delville sur ces matériaux et son analyse du manuscrit ont été particulièrement enrichissantes. Les expériences conduites au synchrotron SOLEIL, grâce à Dominique Thiaudière, ont été un beau moment de ma thèse. A travers Dominique, qui m'a initié avec bienveillance aux joies de la diffraction sur grands instruments, j'aimerais aussi remercier toute l'équipe de SOLEIL qui m'a permis d'effectuer ces expériences uniques qui resteront un bon souvenir.

Je tiens aussi à remercier vivement mon directeur de thèse, Alexandre Legris pour son appui scientifique et sa clairvoyance qui a permis de résoudre efficacement les problèmes rencontrés au cours de cette thèse. Je remercie également chaleureusement Marie-Hélène Mathon qui a permis le montage de ce cette thèse et m'a ouvert les portes des arcanes de la DNPA. Grâce à Marie-Hélène, j'ai été parmi les derniers bénéficiaires des neutrons du réacteur Orphée et ses connaissances et son expertise ont permis d'obtenir rapidement des résultats qui ont enrichi significativement ce travail.

Je remercie Philippe Chapelot et Laurence Portier de m'avoir accueilli au CEA au sein du SRMA et Caroline Bisor responsable du projet MACNA qui a toujours soutenu cette thèse. De même, merci à Jean Henry grâce à qui j'ai toujours pu travailler dans les meilleures conditions au laboratoire du LA2M pendant ces trois années.

Enfin, Yann, je te remercie du fond du cœur de m'avoir entraîné dans cette aventure. Tu as su réunir les conditions pour que ce doctorat soit le plus enrichissant possible et tu as toujours répondu présent lorsque j'en avais besoin. Discuter avec toi est toujours passionnant, que le sujet soit scientifique ou plutôt orienté stratégie politique. J'ai vraiment passé trois belles années au laboratoire du LA2M et c'est grâce à toi.

J'aimerais ensuite remercier toutes les personnes avec qui j'ai eu la chance de travailler lors de cette thèse. Tout d'abord merci à l'équipe de JANNuS Saclay pour les nombreuses irradiations réalisées pendant cette thèse : je remercie avec plaisir Céline Cabet, Ana Barabe, Frédérique Lepretre, Marie Loyer et bien sûr l'ensemble de l'équipe d'irradiation. Comme nous avons besoin de fortes doses, nos demandes de temps de faisceau ont toujours été à la limite des possibilités de l'installation et l'équipe JANNuS a toujours fait le maximum pour que nous puissions réaliser les expériences dans les meilleures conditions possibles. Je remercie chaleureusement Thomas Jourdan qui m'a beaucoup aidé pour la mise en place de la simulation numérique et pour l'interprétation des résultats. Merci également l'équipe du LTMEX et particulièrement Denis Sornin, Patrick Olier et Emilien Curtet pour leur participation dans ces travaux.

Je remercie également, toutes les personnes qui m'ont aidé de près ou de loin lors de ce travail de thèse : Jean-Luc Béchade pour ses cours à l'INSTN et pour m'avoir accueilli en tant que chef de laboratoire lors de mon stage au CEA sur les ODS, Joël Ribis pour son aide précieuse en Microscopie Electronique en Transmission et ses conseils avisés et bienveillants, Jean Christophe Brachet avec qui il est toujours passionnant de discuter, Joël Malaplate avec qui j'ai eu l'honneur d'affronter la Diffusion des Neutrons aux Petits Angles, Elodie Rouesne qui m'a tout appris au MEB, France Dalle pour la SAT et son inspirant bureau-jardin, Véronique Rabeau pour les polissages et préparation, Thomas Guilbert pour les traitements thermiques et ses bons plans d'impression 3D, Stéphane Urvoy le breton et sa maison en bois écoresponsable pour la dureté et la métallo, Raphaëlle Guillou pour l'informatique et la DRX, Je n'oublie pas Amélie Gangloff, Cécilia Mitton, Cathy Vidal, Benoit Arnal, Thierry Vandenberghe, Mickael Jublot et Arnaud Courcelle.

Je souhaite aussi à remercier particulièrement Karine Belin qui a été aux petits soins pour moi pendant ces trois années de thèse et d'une efficacité redoutable pour résoudre le moindre de mes soucis administratifs. Je remercie mon impresario Marie-Pierre Hugon pour sa gentillesse sans limite et pour avoir propulsé ma carrière cinématographique, je suis maintenant présent sur le catalogue Netflix !

Ces trois années n'auraient pas été aussi enrichissantes sans les thésards des différentes générations. Je commence par remercier les anciens, voir ancêtres, qui ont su tracer la voie et installer la convivialité au laboratoire : Baptiste, Gilles, Sylvain, Alexia, Benjamin, Marine, Bertrand, Vianney. Il m'ont convaincu que se lancer dans une thèse n'était pas facile tous les jours, mais que cela en valait la peine ! Je remercie bien sûr les thésards de ma génération : Amal et ses talents de patineuse sur verglas et Emilien pour sa maîtrise de la trottinette électrique et nos dégustations d'IPA. Je souhaite bon courage aux plus jeunes, même si je ne m'inquiète pas pour eux : Flore, Gabriel, Aymeric, Ana, Lucas, Quentin. Je remercie aussi mon petit (même s'il est plutôt grand) stagiaire Romain Gaulon, toujours de bonne humeur, qui m'a fait connaître la joie de l'encadrement.

Un grand merci à Flore et Gabriel avec qui j'ai adoré partager un bureau. Je vous félicite pour avoir enduré mes pulsions créatives qui ont mené à la création d'un écosystème dans le bureau pendant la période de rédaction de ce manuscrit. Gabriel tu as mis en danger ma fin de thèse avec ton jeu sans oxygène, mais bon, je te remercie quand même. Tu es d'une efficacité et d'une précision redoutable et tu te donnes à fond dans ce que tu entreprends. J'ai été bluffé par ton sens du design lors du très sérieux projet de potager de l'espace mais aussi lors de nos projets fumeux avec le Dr Mouton. Merci Flore d'avoir été à l'initiative de l'aventure de « La Fleur dans l'Espace » qui m'a fait rêver de potagers spatiaux. Notre projet, bien qu'exceptionnel et novateur n'a pas été compris. Nous n'avons finalement pas été retenus mais cela en valait la peine, rien que pour t'entendre expliquer le fonctionnement d'une éponge dans l'espace à une journaliste médusée (~7minutes, vidéo sur demande). #DesThésardsDansLesChoux.

Je remercie également Raphaëlle Guillou, Mother of Chanel and MouMouss, Reine de la correspondance informatique, Critique série et films, Renifleuse de Popcorn. Il n'y a rien de plus important que la communication si l'on souhaite faire vivre la convivialité au laboratoire et tu fais battre le cœur du labo à pleine vitesse ! Tu m'as beaucoup aidé et facilité la vie au labo, tu n'as été que bienveillance et je t'en remercie ☺.

Isabelle, ta venue au laboratoire est arrivée vers la fin de cette thèse a été une très belle surprise ! Outre tes remarquables compétences scientifiques (et en Matlab !) qui m'ont beaucoup aidé, ta passion immodérée pour les palettes et pour le bricolage m'ont montré que je n'étais pas le seul à avoir des hobbies qui sont certes un peu « particuliers », mais tellement cools ☺. Je te trouverai toujours une tiny place pour ta MiniMaison si tu veux venir visiter le Loiret !

Merci à la troupe de sudiste : Max, JB, Alex, Titi, Gauthier, José, Kévin, Nathan, Olivier, Polo, Laurent j'ai hâte de vous retrouver pour le RDV annuel au chalet et passer des moments très intelligents ! Merci aussi aux copains des Arts avec qui j'ai moins bu de bière que ce que j'aurai voulu : Broner, Giroux, Balma, Camille, Valletto et Faroukia. Je tenais à remercier particulièrement la Dream Team de Stanislas, les survivants du Grand Accident, les Membres de la confrérie du Château en Cataluña, les biches : Robin Derrida, Arthur Fontaine et Ivo Boschi. Vous êtes les meilleurs les copains !

Je remercie bien sûr mes parents, qui m'ont toujours soutenus et encouragés pour me permettre de m'épanouir en faisant ce qui me plait. Je remercie également mes supers grands frères et belles sœurs : Sébastien, Julien, Louise et Cathy et les adorables petits qui grandissent si vite : Nanon, Gaby, Titouan et Tom.

Pour conclure, je remercie ma merveilleuse fiancée Pauline ainsi que mon adorable chat Souki qui m'ont apporté un soutien indéfectible pendant cette aventure même si je ne suis pas toujours facile ☺

Un grand merci à tous !

TABLE DES MATIERES

Organisation du manuscrit	11
1. Chapitre I	12
1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation	13
1.1.1 Généralités sur le fonctionnement des réacteurs nucléaires à neutrons rapides....	13
1.1.2 Irradiation neutronique des gaines de combustibles	15
1.1.3 Les irradiations aux particules chargées.....	17
1.1.4 L'évaluation du dommage d'irradiation.....	18
1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation.....	20
1.2.1 Gonflement sous irradiation	20
1.2.2 La formation d'amas de défauts sous irradiation	22
1.2.3 Le réseau initial de dislocations	25
1.2.4 L'effet de la température	27
1.2.5 L'effet du taux de dommage	29
1.3 Les évolutions chimiques de la microstructure sous irradiation	31
1.3.1 Les ségrégations induites par irradiation.....	31
1.3.2 La modification de la précipitation	34
1.3.3 Les réactions de transmutation.....	34
1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés.....	36
1.4.1 Histoire de l'évolution des gaines en aciers austénitiques pour les réacteurs à neutrons rapides français (RNR).....	36
1.4.2 Les caractéristiques de l'AIM1	37
1.4.3 La composition chimique des aciers austénitiques avancés.....	40
1.4.4 Précipitation dans les aciers austénitiques	44
1.5 Conclusion du chapitre bibliographique	50
2. Chapitre II	52
2.1 Perspectives d'optimisations de l'AIM1 et Matériaux de cette étude	53
2.1.1 Optimisation chimique : matrice de nuances modèles	53
2.1.2 Optimisations microstructurales : Etats métallurgiques modèles	55
2.2 Elaboration des microstructures modèles	56
2.2.1 Microstructure élémentaire : hypereutectique M1	56
2.2.2 Vieillescence 800°C 24h : Microstructure Vieilles M3_V	57
2.2.3 Traitement mécanique (écrouissage à 20%) : Microstructures M2 et M3_Ve	58
2.2.4 Traitement thermique nano précipités : Microstructure M6	59

2.2.5	Synthèse des microstructures modèles.....	60
2.3	Caractérisation des microstructures modèles.....	61
2.3.1	Caractérisation des microstructures par Diffraction des Rayons X – ligne DiffAbs 61	
2.3.2	Caractérisation par diffraction des neutrons aux petits angles (DNPA) : LLB- Orphée.....	69
2.4	Conclusion du chapitre II.....	77
3.	Chapitre III.....	78
3.1	La problématique de l'étude du gonflement.....	79
3.1.1	Échelle de mesure du gonflement et des cavités.....	79
3.1.2	Simulation expérimentale du gonflement avec la plateforme JANNuS Saclay....	80
3.1.3	Spécificité des irradiations aux ions.....	81
3.1.4	Préparation des échantillons pour les irradiations aux ions (disques MET 3 mm)83	
3.2	Observation des cavités au microscope électronique à balayage (MEB).....	85
3.2.1	Principes de fonctionnement du MEB.....	85
3.2.2	Principe de l'imagerie des cavités au MEB.....	87
3.2.3	Apport de l'approche dans le cas d'irradiations aux ions.....	89
3.2.4	Image haute définition d'un disque irradié aux ions (L49M6, J15-3, ~110dpa, 620°C)91	
3.3	Traitement d'image par un algorithme de Machine Learning.....	92
3.3.1	Reconnaissance automatisée par un algorithme de machine learning.....	92
3.3.2	Principe de la segmentation d'image.....	93
3.3.3	Présentation du plugin Fiji : Trainable weka segmentation.....	94
3.3.4	Traitement d'une image haute définition.....	95
3.4	Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement.....	97
3.4.1	Approche macroscopique : observation du halo de gonflement.....	97
3.4.2	Approche fine : gradient d'irradiation.....	99
3.5	Perspectives de polissage mécanique en biseau.....	106
3.5.1	Principe du polissage mécanique en biseau.....	107
3.5.2	Premiers essais de polissage mécanique en biseau.....	107
3.6	Conclusion et Perspectives de la méthodologie MEBIA.....	110
4.	Chapitre IV.....	111
4.1	La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory).....	112
4.1.1	Mécanismes menant à l'apparition des cavités.....	112
4.1.2	Les équations élémentaires.....	113

4.1.3	Scenarios d'évolution de microstructures.	113
4.1	Simulation numérique du gonflement.....	117
4.1.1	Présentation du code CRESCENDO.....	117
4.1.2	Jeu de paramètres du code.....	119
4.1.3	Discussion sur l'ajustement des paramètres du modèle.....	121
4.2	Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay	122
4.2.1	Influence de la température sur le gonflement	122
4.2.2	Études de microstructures modèles vieilles irradiées à 550°C (JANNuS J15-4) 128	
4.3	Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.	134
4.3.1	Effet de la variation de densité de dislocations initiale sans précipité.....	136
4.3.2	Effet de nano précipités dans une microstructure recristallisée (faible densité de dislocations).....	137
4.3.3	Effets conjugués des nano précipités et de la densité de dislocations initiale.....	138
4.4	Synthèse des résultats et perspectives.....	139
5.	Chapitre V.....	140
5.1	Présentation de la campagne d'irradiation JANNuS 7	141
5.1.1	Microstructures irradiées dans JANNuS 7	141
5.1.2	Choix des conditions expérimentales JANNuS 7 :	143
5.2	Observations de la surface irradiée brute.....	145
5.2.1	Observation de cavités induites par l'irradiation :	145
5.2.2	Morphologies des précipités en surface	146
5.2.3	Effet des joints de grains et des précipités primaires	147
5.2.4	Effet de la température sur la précipitation	149
5.3	Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation	150
5.3.1	Effet des dislocations	151
5.3.2	Effet de la solution solide.....	152
5.3.3	Effet des nano précipités et dislocations : M6 et M6e	153
5.3.4	Comparaison M6_e (nano, ré-écrouie) avec l'AIM1 (référence industrielle)	154
5.4	Conclusion du chapitre V.....	155
	Conclusions et perspectives	156
	Références bibliographiques	158
	Annexes.....	168

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit de thèse porte sur le développement de l'AIM2, une nuance d'acier austénitique inoxydable optimisée pour le gainage combustible des réacteurs à neutrons rapides (RNR). L'AIM2 sera le successeur de l'AIM1, actuelle nuance française de référence pour ce type d'utilisation.

Le premier chapitre est une revue bibliographique des effets provoqués par les irradiations dans les aciers austénitiques utilisés pour le gainage de RNR ainsi qu'un résumé des choix ayant menés à création de l'AIM1. Le phénomène de gonflement par cavités des aciers austénitiques ainsi que les principales évolutions de microstructures induites par l'irradiation sont présentés.

Le second chapitre présente différentes microstructures modèles qui ont été définies avec pour objectif d'étudier l'effet des éléments de microstructure (dislocations solution solide, précipités) sur la formation des cavités. Des résultats de DNPA et DRX Synchrotron (DiffAbs) sur ces microstructures sont également présentés. Un plan d'expérience optimisé de type Taguchi est utilisé dans un cas simple portant sur la formation de nano précipités dans les nuances modèles. Les résultats et l'intérêt de cette approche plan d'expérience sont discutés.

Le troisième chapitre présente une nouvelle méthodologie pour l'étude du gonflement sous irradiation. Cette approche repose sur l'acquisition de clichés haute définition au MEB qui traités par un algorithme de traitement d'image par apprentissage supervisé (approche MEBIA). L'intérêt de l'utilisation d'outils d'analyse de données par ordinateur est discuté, particulièrement dans le cas d'irradiations aux ions pour l'acquisition de données expérimentales. Des premiers résultats sont présentés.

Le quatrième chapitre présente des résultats de simulations numérique du gonflement obtenus avec le Code CEA/EDF CRESCENDO qui permet de prendre en compte les évolutions de la microstructure sous irradiation. Après une discussion sur la paramétrisation du modèle, l'effet croisé des nano précipités et des dislocations est simulé puis discuté. Une piste d'explication des hétérogénéités du gonflement observé expérimentalement, est avancée. De nouvelles microstructures modèles, sélectionnées à la suite des résultats de simulation, sont présentés.

Le cinquième chapitre présente l'irradiation aux ions de microstructures nouvelles proposée grâce à la simulation. Le gonflement de ces échantillons n'a pu être étudié mais l'influence de la microstructure sur l'apparition d'une précipitation induite par l'irradiation en surface est analysée et discutée.

Chapitre I

Généralités et synthèse bibliographique sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

« Tout ce qui est simple est faux mais tout ce qui ne l'est pas est inutilisable.

Paul Valéry

1.1 GENERALITES SUR LES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES ET LES EFFETS DE L'IRRADIATION

1.1.1 Généralités sur le fonctionnement des réacteurs nucléaires à neutrons rapides

L'ensemble des réacteurs nucléaires de production électrique actuellement en service dans le monde sont basés sur les réactions de fission nucléaire. Lors d'une fission nucléaire, un atome de grande taille se scinde en atomes plus petits et plus stables. Il y a alors une libération d'énergie sous forme de rayonnement γ et d'énergie cinétique provenant des produits de fission et des neutrons. L'énergie est récupérée sous forme de chaleur, qui est par la suite convertie en électricité.

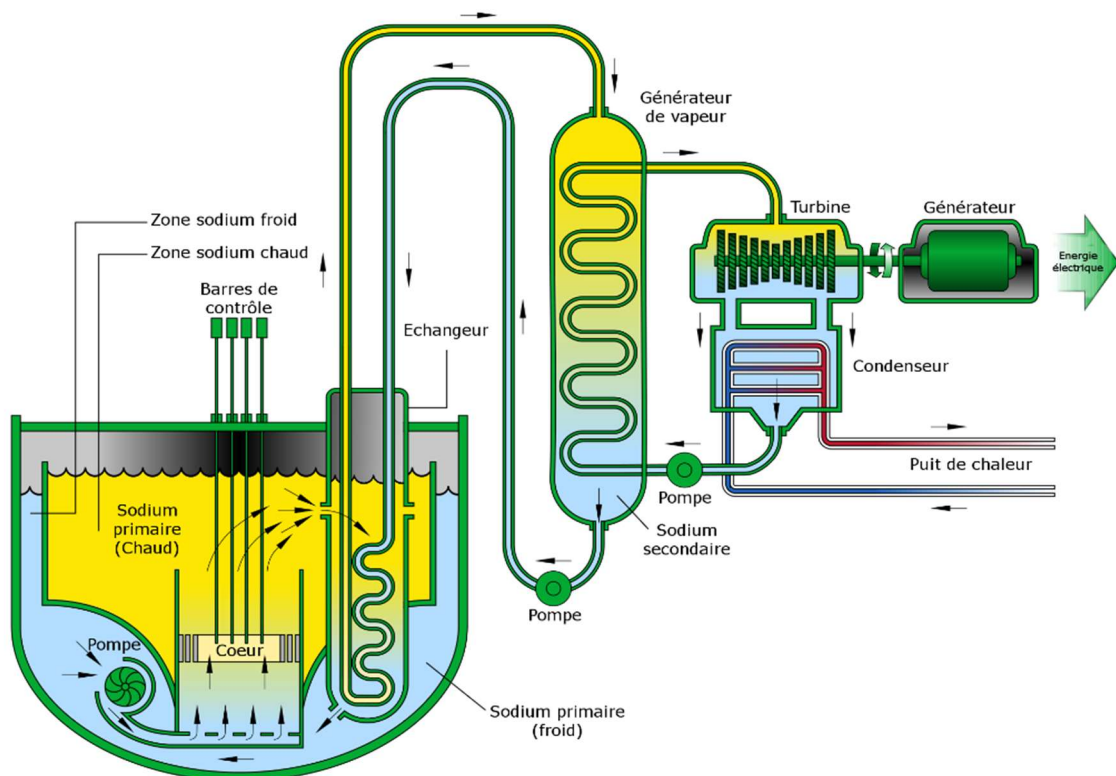


Figure 1 : Schéma de fonctionnement d'un réacteur à neutrons rapides (RNR) [137].

Le fonctionnement de la centrale nucléaire nécessite l'utilisation d'un combustible nucléaire contenant une proportion significative d'éléments fissiles. Les éléments fissiles naturellement présents sont des atomes lourds qui ont été formés lors d'événements cosmiques, dans les supernovæ par exemple. Ils se décomposent spontanément ce qui fait que leurs proportions sur terre diminuent de manière naturelle.

Aujourd'hui, les quantités d'éléments fissiles sont faibles, les éléments les plus instables s'étant décomposés depuis longtemps. L'élément fissile le plus utilisé dans les centrales nucléaires est l' ^{235}U , sa demi-vie 703 800 000 ans fait qu'il existe de manière naturelle en proportion faible mais non négligeable (0.7% de l'uranium total). Il est souvent nécessaire de réaliser une étape d'enrichissement consistant à augmenter la concentration isotopique de l' ^{235}U pour qu'il puisse être utilisé comme combustible nucléaire.

1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

On peut utiliser des atomes qui ne sont initialement pas fissiles, mais qui peuvent le devenir par l'absorption de neutrons et par transmutation, on parle de capture fertile. C'est par exemple le cas avec l' ^{238}U , qui après absorption d'un neutron, se transmute en un atome fissile (^{239}Pu) après plusieurs réactions nucléaires données Figure 2.

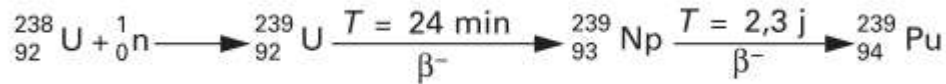


Figure 2 : Génération d'atomes fissiles à partir de l'uranium naturel.

Les réacteurs à neutrons rapides ouvrent l'opportunité de valoriser les stocks d'uranium 238 qui représentent plus de 99% de l'uranium naturel total. Il est d'ailleurs possible de faire fonctionner les réacteurs à neutrons rapides sodium en mode d'iso génération, c'est-à-dire que l'on génère autant d'atomes fissiles que l'on en consomme. Dans un contexte de réduction du volume des déchets nucléaires, il est également possible de fonctionner en incinérateur et de détruire les actinides mineurs qui sont des déchets à haute activité vie longue (HA-VL) générés par le parc nucléaire actuel et dont la gestion est complexe.

On peut induire la fission d'un atome fissile par absorption d'un neutron qui déstabilise le noyau et provoque sa désintégration. Chaque fission d'atome fissile, provoquée par un neutron, libère en moyenne 2 à 3 neutrons ce qui permet d'induire de nouvelles fissions et d'entretenir la réaction en chaîne [1].

Les neutrons ainsi émis dans le combustible ont trois destinées possibles :

- Être capturés par des noyaux fissiles et provoquer de nouvelles fissions (capture fissile).
- S'échapper du système concerné (fuites)
- Être capturés par un noyau non fissile (absorption stérile).

Le pilotage d'un réacteur nucléaire se réalise grâce à des barres de contrôle dont le rôle est d'absorber des neutrons dans le cœur pour piloter en temps réel le nombre de fissions se produisant dans le cœur du réacteur. Pour maintenir une réaction en chaîne stable il faut que statistiquement 1 seul des neutrons générés par une fission serve à induire une autre fission.

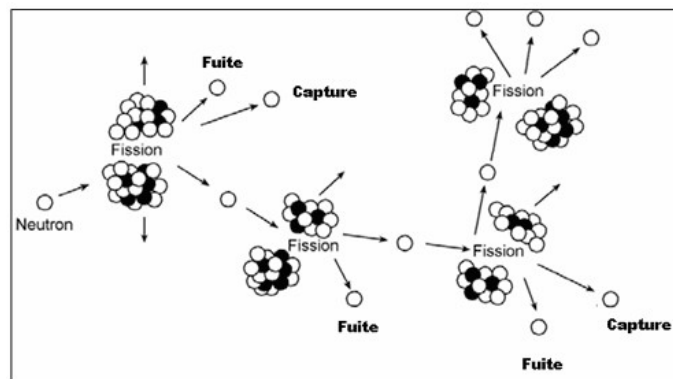


Figure 3 : Illustration du bilan neutronique d'une réaction en chaîne de fissions [1].

1.1.2 Irradiation neutronique des gaines de combustibles

Les matériaux dont est constitué le cœur d'un réacteur à neutrons rapides évoluent à haute température et sont exposés à de fortes doses d'irradiation. Un assemblage combustible est formé d'un tube hexagonal dans lequel sont disposés les gaines contenant le combustible. Le combustible est généralement fritté sous forme de pastilles empilées à l'intérieur des gaines comme schématisé Figure 4. Les gaines de combustibles du fait de leur utilisation sont particulièrement exposées aux radiations. Elles sont la première barrière de sûreté d'un réacteur nucléaire et ont pour rôle de garantir le confinement du combustible radioactif, il est donc essentiel d'en garantir l'intégrité.

Un matériau de gaine se doit impérativement d'assurer les critères suivants :

- Etre réalisable de manière industrielle
- Avoir un comportement mécanique satisfaisant tout au long du cycle de vie de la gaine
- Etre résistant à l'environnement physicochimique
- Etre compatible avec le procédé retenu pour le retraitement du combustible
- Etre assemblable avec d'autres matériaux (bouchon de gaine)

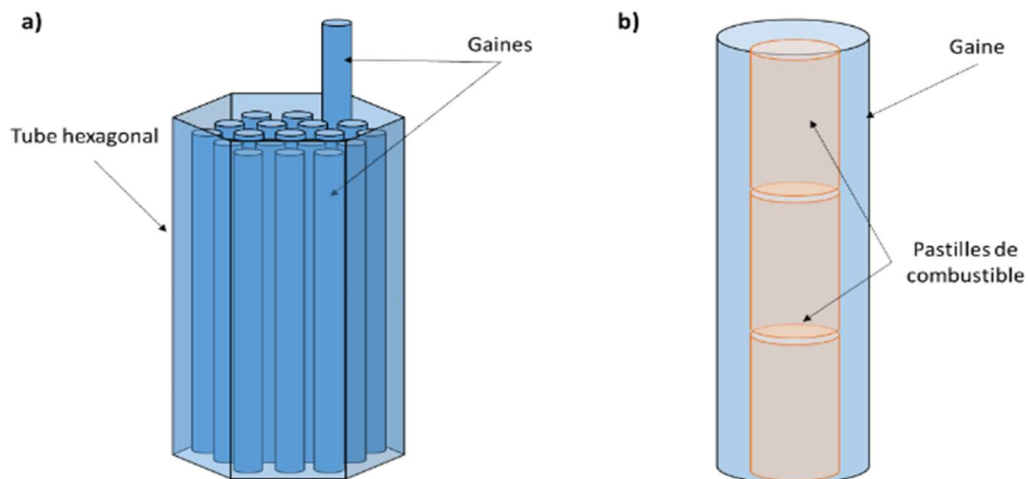


Figure 4 : a) Représentation d'un assemblage constitué de gaines contenues dans un tube hexagonal b) tronçon d'une gaine contenant le combustible nucléaire sous forme de pastilles de combustibles.

1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

Effet d'irradiation sur les gaines de combustibles

Ce sont les aciers austénitiques inoxydables qui ont été les premiers matériaux choisis pour les gainages des réacteurs rapides. Ce choix a été fait en raison de la maturité industrielle de ces matériaux et de leurs excellentes propriétés à haute température.

Comme le matériau de gainage ne contient pas d'élément fissile, les neutrons qui traversent ces derniers peuvent alors :

- Être absorbés par le noyau cible ce qui en modifie le numéro atomique et peut mener à des réactions de transmutation par une succession de décompositions radioactives (ex : transmutation alpha du nickel en fer).
- Réaliser une collision élastique, assimilables à une collision balistique entre la particule et le noyau de l'atome cible.

Lors d'une interaction élastique, il y a transfert d'une partie de l'énergie cinétique de la particule vers l'atome cible. En considérant les noyaux atomiques comme des sphères dures, l'expression de l'énergie cinétique transmise T_{\max} est donnée par l'équation ci-dessous :

$$T_{\max} = 4 \cdot \frac{m_n m_c}{(m_n + m_c)^2} E_n \quad (1.1)$$

Avec m_n la masse du neutron, m_c la masse de l'atome cible et E_n l'énergie du neutron incident.

Si l'énergie cinétique transmise est inférieure à l'énergie seuil de déplacement E_d d'un atome de son site cristallin, il y a un échauffement mais pas de création de défauts. Lorsque l'énergie cinétique transmise est légèrement supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d de l'atome (quelques dizaines d'eV), l'atome cible est éjecté de son site cristallin et change de position de manière irréversible. L'atome déplacé laisse derrière lui une lacune et se déplace dans le réseau cristallin en position interstitielle et devient un auto-interstitiel (Self Interstitial Atome, SIA). Le résultat net est donc une formation d'une paire lacune et d'un SIA dans le réseau cristallin que l'on appelle paire de Frenkel.

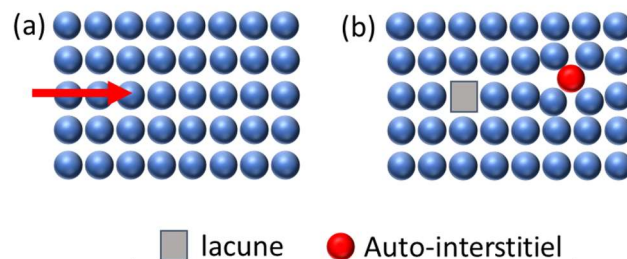


Figure 5 : Formation d'une paire de Frenkel (auto-interstitiel et lacune) suite à une collision élastique neutron-atome (flèche rouge).

1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

Dans le cas d'une collision avec un neutron rapide, l'énergie transférée au PKA (primary knock on atom, premier atome collisionné) est généralement élevée avec $T \gg E_d$ ce qui est suffisant pour éjecter plusieurs atomes de leur site cristallographique. On nomme cascade de déplacement la réaction en chaîne de déplacements d'atomes pouvant à leur tour déplacer de nouveaux atomes, jusqu'à ce que l'énergie cinétique initialement transmise au PKA soit dissipée entre un nombre suffisant d'atomes pour ne plus engendrer de déplacements. Finalement, il ne reste d'une cascade de déplacements qu'une zone centrale riche en lacunes et des SIA situés en périphérie, car ces derniers diffusent rapidement dans le matériau, hors de portée de recombinaisons avec les lacunes. [2]

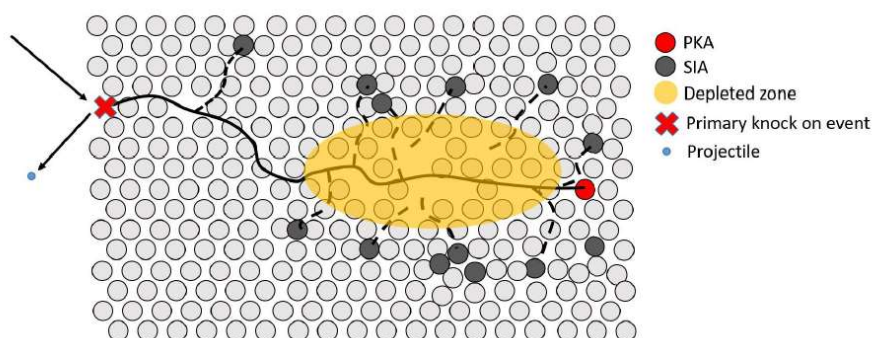


Figure 6 : Illustration d'une cascade de déplacements. Figure issue de [2] d'après [3].

1.1.3 Les irradiations aux particules chargées

Il est possible de générer des défauts proches de ceux provoqués par l'irradiation neutronique hors réacteur en utilisant des particules chargées (ions, électrons...). Ces types d'irradiations ont pour avantage d'être pilotables grâce à un accélérateur à particules dont on peut précisément contrôler l'énergie et le flux et les conditions expérimentales.

La morphologie des dommages d'irradiation dépend fortement des caractéristiques de la particule incidente. La Figure 7, reproduite à partir de [3] illustre les différentes morphologies des dommages d'irradiation générés par des particules de différentes natures accélérées à 1MeV. Avec \bar{T} la valeur moyenne de l'énergie cinétique transférée au PKA et ϵ l'efficacité de cascade qui représente la fraction de défauts persistant dans la microstructure en fin de cascade.

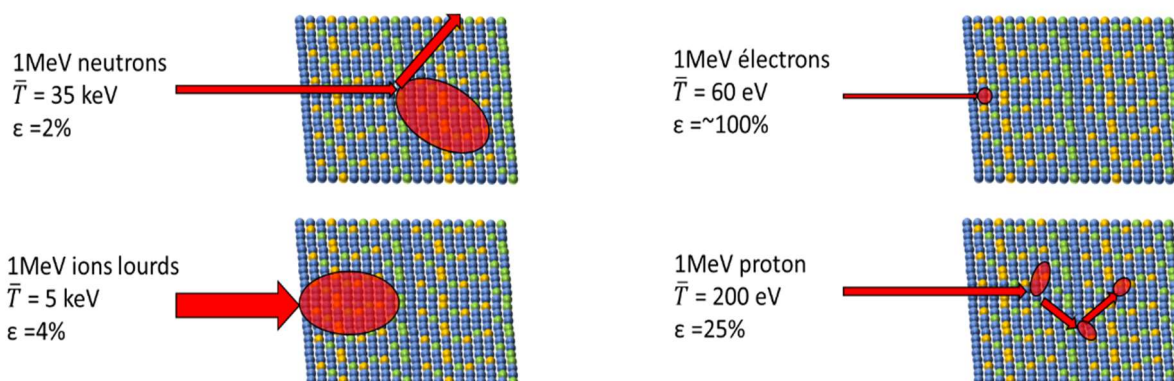


Figure 7 : Morphologie des cascades de dommages créés dans un acier par différentes natures de particules accélérées à 1MeV. Figure reproduite à partir de [3].

1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

Dans le cas d'irradiations avec des électrons, la cascade se réduit généralement au déplacement d'un unique atome hors de son site cristallin. La notion de PKA et la formule de transfert d'énergie cinétique en cas de collision élastique restent applicables en remplaçant la masse du neutron par celle de la particule incidente.

Les irradiations aux ions lourds permettent de générer des cascades de déplacement analogues aux cascades engendrées par les neutrons. La grande section efficace d'interaction des ions et les forts flux permettent d'induire de très forts dommages dans des temps très courts. Il est ainsi possible de générer en quelques heures un dommage équivalent à plusieurs mois d'irradiation en réacteur, et ce, sans entraîner d'activation radiologique des échantillons.

Des simulations par dynamique moléculaire montrent que l'efficacité de recombinaison dépend de la température. Selon la température d'irradiation différentes études montrent que cette efficacité de cascade peut varier entre 1% [4] et 30% [5], [6]. Il est difficile de vérifier ces valeurs expérimentalement dans le cas des alliages complexes à solution solide. Des études montrent que l'efficacité de cascade peut être dépendante de la composition chimique du matériau et des éléments en solution solide [7].

Contrairement aux neutrons, les particules chargées peuvent également perdre une partie de leur énergie par collision inélastique due à l'interaction d'une particule chargée avec le nuage électronique. Cela provoque un échauffement du matériau mais ne génère pas de création de défaut dans les matériaux métalliques.

D'autres différences significatives existent entre irradiations aux neutrons et irradiations aux ions. Dans le cas d'irradiations aux ions, le profil de dommage n'est pas uniforme. Le volume irradié est également très faible et se limite à l'extrême surface de l'échantillon et il y a également une implantation des ions dans le matériau. Ces différences sont à prendre en compte car elles sont susceptibles de modifier fortement le comportement du matériau sous irradiation.

1.1.4 L'évaluation du dommage d'irradiation

Au vu de la diversité des effets d'irradiation en fonction de la nature et de l'énergie des particules irradiantes, une unité de mesure du dommage a été mise en place afin de comparer les différentes irradiations. Le déplacement par atome (dpa) est une valeur qui permet d'évaluer le degré de dommage induit lors de l'irradiation. Il représente la moyenne de changement de site cristallin de chaque atome du matériau. Une dose de 100 dpa signifie donc qu'en moyenne, chaque atome a changé de site cristallin 100 fois lors de l'irradiation.

Le nombre de déplacements par atome par unité de volume et de temps est défini par l'équation ci-dessous. Les différents modèles portent sur le calcul des différents paramètres.

$$\frac{dpa}{cm^{-3} \cdot s^{-1}} = \rho \cdot \int_{E_{min}}^{E_{max}} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \Phi(E_i) \cdot \sigma(E_i, T) \cdot \nu(T) \cdot dT dE_i \quad (1.2)$$

$\Phi(E_i)$	Le flux de particules incidentes d'énergie E_i
$\sigma(E_i, T)$	La probabilité qu'une particule d'énergie E_i transfère une énergie T
$\nu(T)$	Le nombre de déplacement d'atomes produit par un PKA d'énergie T
ρ	La masse volumique du matériau

1.1 Généralités sur les réacteurs à neutrons rapides et les effets de l'irradiation

L'un des premiers modèles, qui fut par la suite repris et modifié à différentes reprises est le modèle de Kinchin-Pease. Il repose sur la relation entre l'énergie initiale du PKA et le nombre de paires de Frenkel induites par la suite. Le nombre de paires induites dépend de l'énergie de seuil de déplacement E_d et d'une énergie critique haute E_c au-delà de laquelle l'énergie est dissipée par ionisation et interaction électronique.

Ainsi, pour un PKA d'énergie T , le nombre de déplacement $\nu(T)$ induit est décrit par :

$$\nu(T) \begin{cases} 0 & \text{Si } T < E_d \\ 1 & \text{Si } E_d < T < 2E_d \\ \frac{T}{2E_d} & \text{Si } 2E_d < T < E_c \\ \frac{E_c}{2E_d} & \text{Si } T > E_c \end{cases} \quad (1.3)$$

Le modèle NRT est aujourd'hui le plus largement utilisé et repose sur une formule modifiée de Kinchin-Pease. Le dpa NRT ne prend en compte que le spectre d'énergie des PKA pour chaque irradiation ce qui permet la comparaison des irradiations aux neutrons avec des irradiations aux ions. Il faut cependant avoir conscience lors de la comparaison de résultats que certains paramètres déterminants tels que la transmutation, la température ou le débit de dose ne sont pas pris en considération par ce modèle. [8]

Le logiciel Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM), développé par Ziegler, permet la simulation des trajectoires de collision et d'implantations d'ions par une approche de type Monte Carlo. Le logiciel considère le déplacement d'une particule comme rectiligne jusqu'à ce que celle-ci soit suffisamment proche d'un atome du cristal pour qu'une collision ait lieu.

Ce logiciel est une aide au calcul de dose précieuse mais ne constitue pas un outil de calcul exact du dommage. En effet, il ne prend pas en compte la cristallinité, le recouvrement potentiel de cascades, ni les recombinaisons ou les interactions avec les atomes proches de la trajectoire.

Pour obtenir des résultats proches du modèle NRT, Stoller recommande l'utilisation de la méthode Ion distribution and quick calculation damage (Kinchin-Pease, K-P) avec des énergies de seuil de 40 eV pour les alliages à base de fer. Cette méthode permet de calculer le spectre des PKA par ion incident et le nombre d'atomes déplacés induit par ces PKA avec la formule de Kinchin et Pease. C'est cette méthode qui a été utilisée pour réaliser les différents calculs de dose utilisés dans ce manuscrit.

1.2 LES EVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES SOUS IRRADIATION

1.2.1 Gonflement sous irradiation

Le gonflement des aciers austénitiques est un phénomène induit par l'irradiation et qui n'avait pas été anticipé. Il a été observé pour la première fois dans un réacteur à neutrons rapides et présenté dans la revue scientifique Nature en 1967 [9]. Les gaines concernées, en acier austénitique proche de la nuance 316, présentaient des déformations macroscopiques dont l'origine provenait de la formation de cavités dans le matériau. Le gonflement peut potentiellement entraîner des déformations macroscopiques. Des exemples de modification de géométrie dans des gaines provenant du réacteur expérimental français Phénix [10] sont visibles Figure 8.



Figure 8 : Photographies d'assemblage du réacteur Phénix [10]. On peut observer l'allongement d'une partie des gaines.

Le gonflement est une conséquence de l'accumulation de défauts d'irradiation provoqués par le passage des neutrons de fuite issus des fissions dans le combustible nucléaire. Après une période d'incubation sans gonflement, il se peut que les gaines de combustibles présentent un gonflement volumique incontrôlé, de l'ordre de 1%/dpa [11], [12]. Cette période d'incubation peut être variable selon les nuances et les conditions d'irradiation.

Dans les aciers austénitiques, les lacunes induites par l'irradiation peuvent se condenser sous forme d'amas 3D de forme quasi-sphériques. Sous certaines conditions ces amas peuvent germer et croître de façon incontrôlée pour former des cavités dont le diamètre peut dépasser la centaine de nanomètres. Une forte densité de ces cavités réparties dans le matériau peut alors provoquer des déformations géométriques ainsi qu'une fragilisation des assemblages de combustible.

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

En pratique, le gonflement est divisé schématiquement en deux régimes : un premier régime d'incubation suivi d'un régime stationnaire de gonflement. L'allure générale d'une courbe de gonflement est présentée Figure 9. Pendant la période d'incubation il n'y a pas de gonflement significatif et très peu de cavités sont observables. Le régime stationnaire, où le gonflement devient significatif, correspond à la germination et la croissance d'une forte densité de cavités.

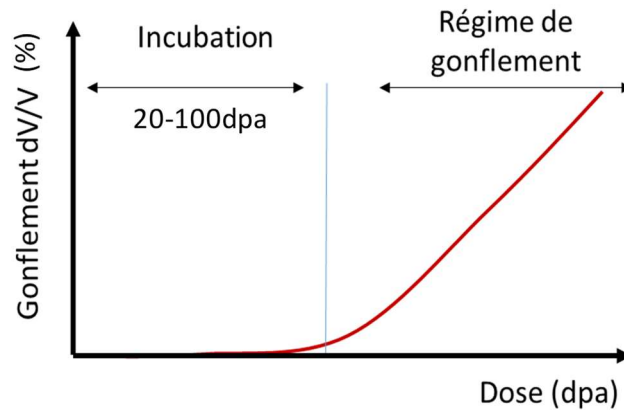


Figure 9 : Allure générale d'une courbe de gonflement en fonction de la dose d'irradiation.

Un fort gonflement peut engendrer la fragilisation des gaines [13], [14] et entraîner des modifications géométriques des assemblages préjudiciable à la circulation du sodium liquide. Par sécurité, le critère de gonflement limite est fixé à environ 3% [12], [15], [16]

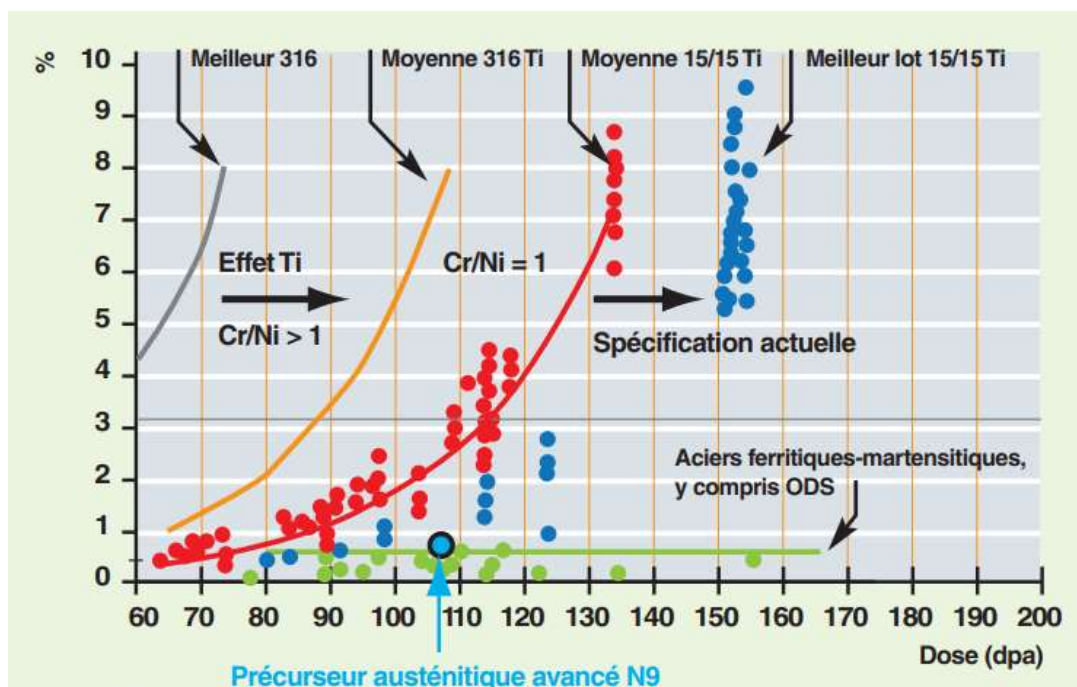


Figure 10 : Gonflement pour différents matériaux de gaines Phénix en fonction de la dose d'irradiation [15].

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

La problématique du gonflement sous irradiation est un réel enjeu des réacteurs à neutrons rapides et des futurs réacteurs à fusion. Les aciers inoxydables austénitiques y sont très utilisés et seules de très faibles déformations géométriques sont tolérables en réacteur et les gaines de combustible ne doivent en aucun cas présenter un comportement fragile. Une amélioration de la fiabilité et de la durée d'utilisation des gaines combustibles signifie à la fois une amélioration de sûreté, une réduction du volume de déchets et une utilisation optimale des ressources combustibles.

1.2.2 La formation d'amas de défauts sous irradiation

Lors de l'irradiation il y a une création continue de paires de Frenkel (lacune et interstitiel) du fait des collisions élastiques des particules irradiantes avec la matière. Cela induit une sursaturation de lacunes et de SIAs dans le matériau. La Figure 11 provenant de la thèse de Cautauts [17] est une simulation des concentrations de défauts ponctuels simulés à l'équilibre thermique et sous différentes conditions d'irradiation. On y voit que les concentrations de défauts ponctuels sont très fortement dépendantes de la température, des conditions d'irradiation ainsi que de la microstructure initiale du matériau.

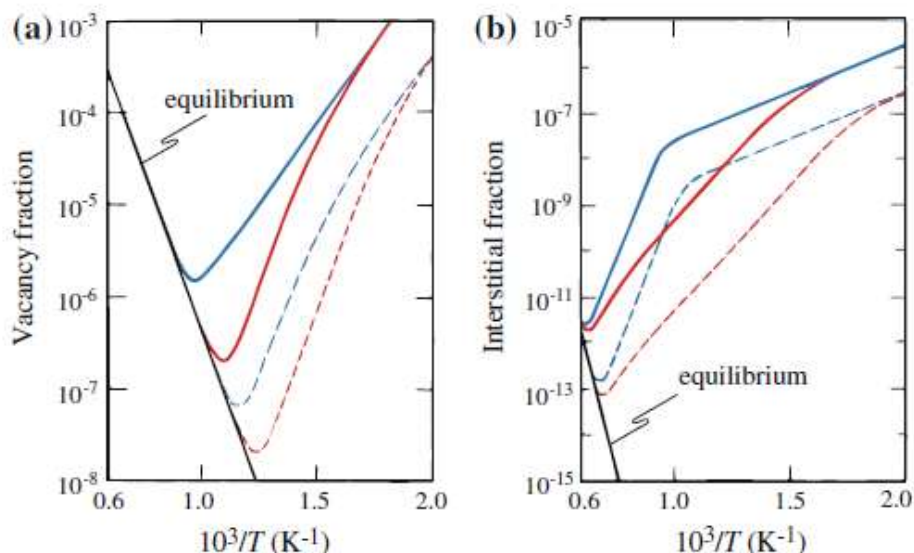


Figure 11 : Comparaison des concentrations de lacunes (a) et d'interstitiels (b) dans un matériau irradié avec un fort taux de dommage (trait continu) et faible taux de dommage (pointillés). L'irradiation provoque une sursaturation à la fois de lacunes et d'interstitiels qui dépend de la température. Les courbes rouges et bleues correspondent respectivement à une forte ou une faible densité de dislocations ce qui fait varier la sursaturation de défauts [138].

Les défauts ponctuels, en particuliers les SIAs, génèrent une déformation élastique du réseau cristallin. Pour réduire l'énergie globale du système, les défauts s'organisent dans des configurations énergétiquement plus favorables. Dans la structure cubique face centrée les défauts ponctuels peuvent se condenser dans des configurations thermodynamiquement plus stables telles que les boucles de Frank (amas 2D) ou les cavités (amas 3D de lacunes).

Les défauts ponctuels peuvent disparaître par recombinaison mutuelle avec un défaut de nature opposée, être absorbés au niveau d'un puits de défauts ou s'associer avec des défauts de même nature.

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

1.2.2.1 Les cavités

Lorsque la sursaturation lacunaire dépasse la limite de solubilité des lacunes dans l'acier, celles-ci ont alors tendance à se regrouper sous forme de cavités 3D qui sont des configurations plus intéressantes d'un point de vu énergétique. C'est la formation de ces cavités en grand nombre qui est responsable du gonflement sous irradiation. Les cavités possèdent un rayon critique en dessous duquel elles ne sont pas stables thermodynamiquement notamment à cause de la tension de surface. La germination et le début du régime de gonflement démarre lorsque la sursaturation est suffisante pour que les germes dépassent le rayon critique de stabilité. Les amas de lacunes s'organisent sous la forme de cavités facettées du fait de l'anisotropie d'énergie de surface en fonction des orientations cristallines de la matrice. Ce phénomène est particulièrement visible dans le cas d'irradiations aux ions car les cavités sont vides sans gaz stabilisant à l'intérieur comme l'hélium produit par irradiation aux neutrons (Figure 12).

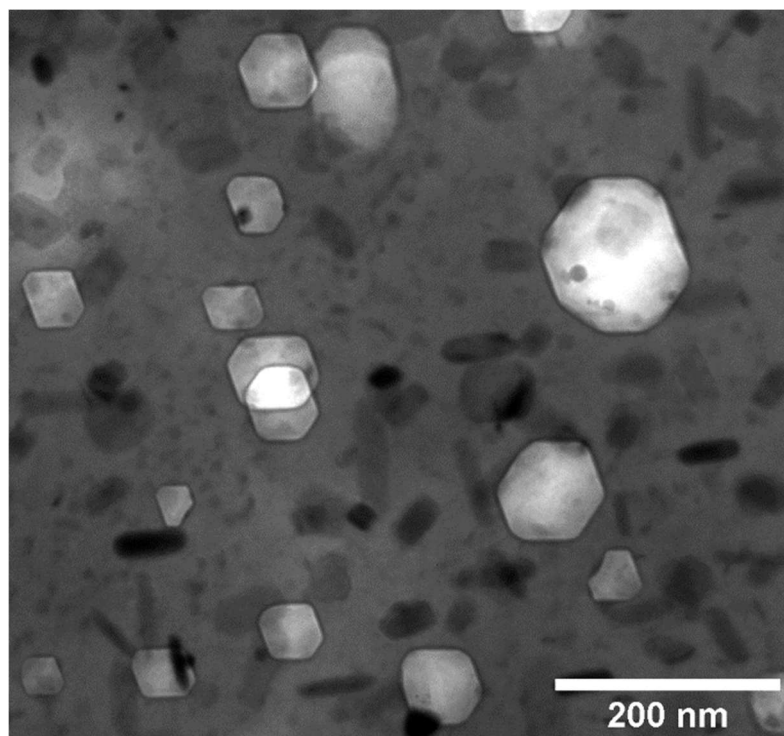


Figure 12 : Cavités facettées dans un acier 15/15Nb irradiés aux ions (110dpa, 600°C). Cliché de B. Rouxel [40].

La taille critique de stabilité des amas lacunaires peut être réduite par la présence d'atomes de gaz tels que l'hélium. Lors de l'irradiation en réacteur, il y a en effet production d'hélium, non soluble dans l'austénite, par décroissance radioactive alpha. L'hélium est alors piégé aux interfaces ou dans les petits amas de lacunes ce qui permet de les stabiliser. La présence d'hélium réduit le rayon critique de stabilité, elle favorise donc la germination de cavités même si la présence d'hélium n'est pas nécessaire à leur formation [18]–[20].

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

Lors d'un recuit la taille de la cavité finale correspond à l'équilibre thermique de la tension de surface de la cavité avec la pression interne générée par l'hélium [21]. Lorsqu'il n'y a pas de production ou d'implantation de gaz (He) dans la matrice, les cavités peuvent se refermer totalement et être restaurées lors du traitement thermique.

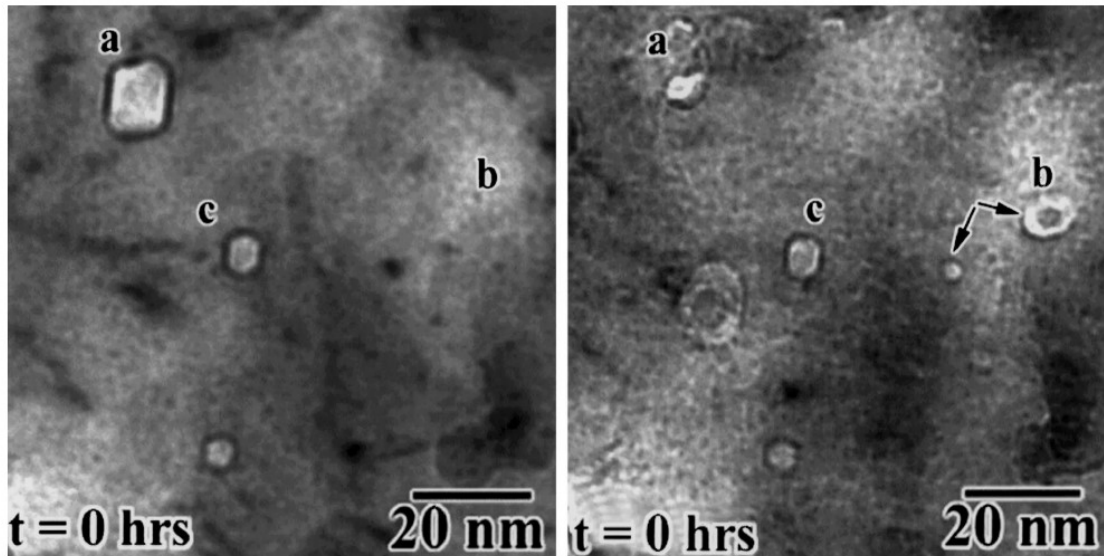


Figure 13 : Image d'un acier irradié aux neutrons à l'état initial et après 4h à 500°C : (a) diminution de la taille d'une cavité facettée (b) formation d'une bulle en association avec un précipité (c) absence de modification [21]

1.2.2.2 Les boucles de Frank

Les boucles de Frank sont des amas de défauts qui peuvent être de type lacunaire ou interstitiel. Elles sont positionnées entre les plans denses $\{111\}$ de l'austénite ce qui génère une faute d'empilement [22]–[24]. Un amas d'interstitiels s'organise sous la forme de disque qui est la forme la plus stable thermodynamiquement, et forment une boucle de dislocation qui délimite son contour.

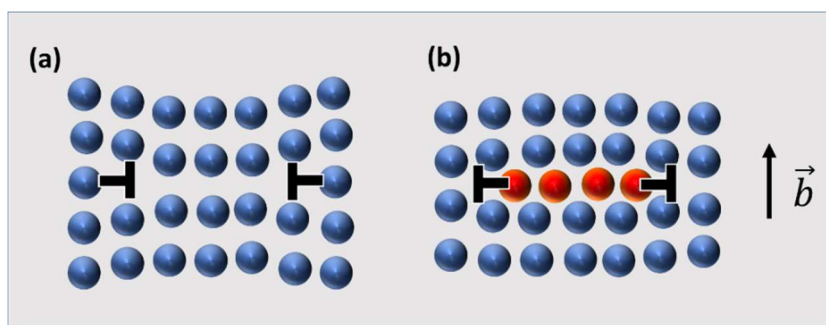


Figure 14 : Schémas des boucles de Frank lacunaires (a) et interstitielles (b)

La caractérisation des échantillons irradiés à haute température aux neutrons et aux ions montre que les boucles observées sont très majoritairement de nature interstitielle [22], [24]–[26]. Les boucles lacunaires ne sont que très rarement observées et ne semblent exister qu'en cas d'irradiation à faible température et faible dose d'irradiation [27] ou dans des conditions spécifiques lors d'irradiations in-situ [19].

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

Initialement, les boucles sont fautées avec un vecteur de burger ($b=a/3\langle 111 \rangle$) perpendiculaire au plan du disque. Ces boucles fautées sont alors sessiles, c'est-à-dire qu'elles ne peuvent se déplacer dans leur plan d'habitat. Ces boucles peuvent cependant croître et se défauter pour devenir glissiles en créant des boucles parfaites avec un vecteur de burger $b=1/2\langle 110 \rangle$. Deux principaux mécanismes de défautement, impliquant soit une interaction de la boucle avec une dislocation parfaite [28] soit le glissement de dislocations partielles [29], sont identifiés dans la littérature. En comparant l'énergie de la boucle parfaite avec l'énergie de la boucle fautée, il est possible de calculer une taille critique de boucle de Frank à partir de laquelle il est énergétiquement favorable pour une boucle de se défauter et d'incorporer le réseau de dislocations [30].

L'augmentation de la température, permet d'accroître la mobilité des défauts ponctuels et de favoriser la croissance, le défautement ainsi que la recombinaison des boucles de Frank [31], [32]. Expérimentalement, leur taille et leur densité sature dès les très faibles doses, entre 5 et 10 dpa [33]–[35].

1.2.3 Le réseau initial de dislocations

L'état métallurgique initial est d'une importance capitale dans l'étude du comportement vis-à-vis du gonflement. L'écroutissage permet systématiquement d'augmenter la dose d'incubation de plusieurs dizaines de dpa par rapport aux gaines hypereffluées. En revanche, un fort écroutissage peut avoir des conséquences sur le comportement mécanique qu'il convient de contrôler. Les densités de dislocations, associées aux états écrouis et recristallisés des aciers austénitiques, sont respectivement de l'ordre de 10^{15} m.m^{-3} et 10^{13} m.m^{-3} .

Un fort écroutissage (~20% de réduction de section) permet de saturer la matrice en dislocations qui sont des puits de défauts. En augmentant la densité des puits de défaut présents dans le matériau, cela réduit la sursaturation de lacunes et donc la formation de cavités.

Cependant les dislocations sont des puits biaisés, c'est-à-dire qu'elles attirent préférentiellement les interstitiels du fait du champ élastique qu'elles génèrent dans leur voisinage et favorisent la capture du surplus de lacunes par les cavités.

Lors de l'irradiation, la densité de dislocations tend rapidement vers une valeur de saturation qui est le résultat de la compétition entre deux mécanismes aux effets opposés de création et de disparition de dislocations :

1/ Mécanisme de création : Le défautement des boucles de Frank permet de générer de nouvelles dislocations qui alimentent le réseau [28], [36].

2/ Mécanisme de disparition : La restauration du réseau de dislocations par recombinaison ou annihilation fait diminuer le nombre de dislocations.

Du fait de la compétition de ces mécanismes, un acier hyperefflué et un acier écroui présentent la même densité de dislocations au bout de quelques dpa comme on peut le voir sur la Figure 15. La littérature rapporte fréquemment une saturation de la densité de dislocations rapide après quelques dpa [23], [37] et cette sursaturation n'est que peu sensible à la composition chimique.

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

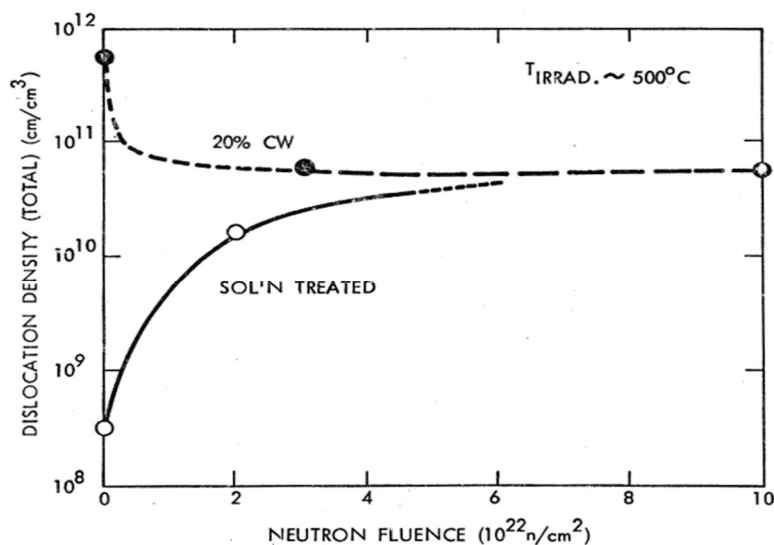


Figure 15: Évolution du réseau de dislocations d'un acier 316 hypertrempé (ligne) et écroui (pointillés) lors d'une irradiation aux neutrons [139].

Pourtant, les aciers hypertrempés se comportent systématiquement moins bien que ceux écrouis initialement. L'augmentation de la dose d'incubation remarquable que l'on peut observer Figure 16 dans le cas d'un acier stabilisé hypertrempé et écroui (SA+ CW) pourrait s'expliquer par la modification de la précipitation en service. Une des particularités des aciers austénitiques stabilisés est leur capacité à former des nano carbures de type MC. La formation de ces nano carbures nécessite à la fois une bonne mise en solution des éléments d'addition et un écrouissage homogène qui est abordé plus longuement dans le chapitre II.

La Figure 16 présente un acier 15/15 Ti précurseur de l'AIM1 dans différents états métallurgiques : hypertrempé (SA) hypertrempé et vieilli (SA & aged) et hypertrempé écroui. On peut s'interroger sur l'importance du biais lorsque l'on voit que les échantillons recristallisés, initialement non biaisés, se comportent systématiquement moins bien que les écrouis d'une même nuance. Les dislocations d'écrouissage pourraient également avoir des environnements chimiques différents des dislocations induites par l'irradiation. Dans ce cas, leur biais vis-à-vis des interstitiels pourrait être différent mais il est difficile de vérifier cette hypothèse dans le cas d'aciers complexes.

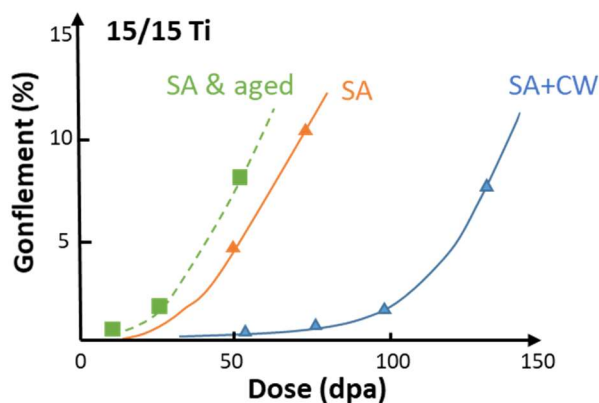


Figure 16 : Influence de l'état métallurgique sur le gonflement d'un 15/15 Ti à 500°C. On constate l'effet bénéfique de l'écrouissage sur la dose d'incubation du gonflement. Figure reproduite à partir de [101].

1.2.4 L'effet de la température

Très tôt, il est apparu que le gonflement était fortement dépendant des conditions de flux et de température. Cela se traduit concrètement par un gonflement non uniforme des gaines en fonction de la hauteur considérée et de la position de l'assemblage dans le cœur.

La Figure 17 issue de [12] montre des profils en bosse typiques des courbes de gonflement en fonction de la température. On peut également observer un décalage du maximum de gonflement avec la dose.

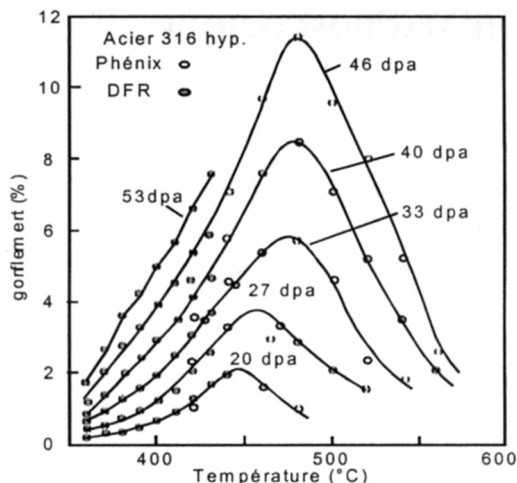


Figure 17 : Courbes de gonflement d'un acier 316 hypertempéré irradié aux neutrons à différentes doses dans les réacteurs DFR et Phénix [12].

La température, dont dépend la mobilité des défauts ponctuels est un facteur clé de l'apparition du gonflement. Il se produit dans une gamme de températures intermédiaires avec la température située entre 30% et 50% de la température de fusion.

Lorsque la température est inférieure à 30% de la température de fusion, la mobilité des lacunes est très faible. Les lacunes se recombinent « sur place » et ne peuvent pas diffuser sur des distances suffisantes pour former des cavités. Au contraire, si la température est au-delà de 50% de la température de fusion, la diffusion accélérée permet de rapidement annihiler les défauts mobiles aux puits de défaut et de limiter la sursaturation de défauts mobiles. De plus, les hautes températures limitent la formation et la croissance des cavités en favorisant l'émission de lacunes thermiques par la surface des cavités [38].

Pour des raisons de cinétique de diffusion, la température a un effet important sur la microstructure et gouverne la formation de cavités mais également les populations de boucles de Frank et de dislocations. La Figure 18 présente les évolutions en fonction de la température de la taille et la densité des populations de cavités dans des aciers 15Cr/16Ni avec et sans stabilisation au Ti [39]. La Figure 19 montre l'évolution de la densité de différents défauts en fonction de la température dans un acier PCA (15Cr/16Ni + Ti) [40].

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

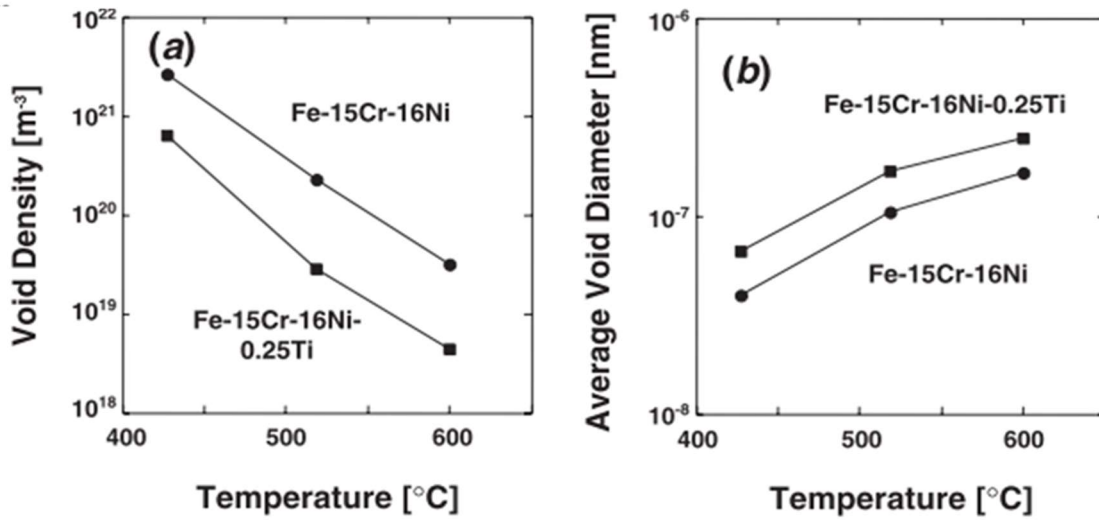


Figure 18 : Evolution de la densité et de la taille des cavités en fonction de la température d'irradiation [39].

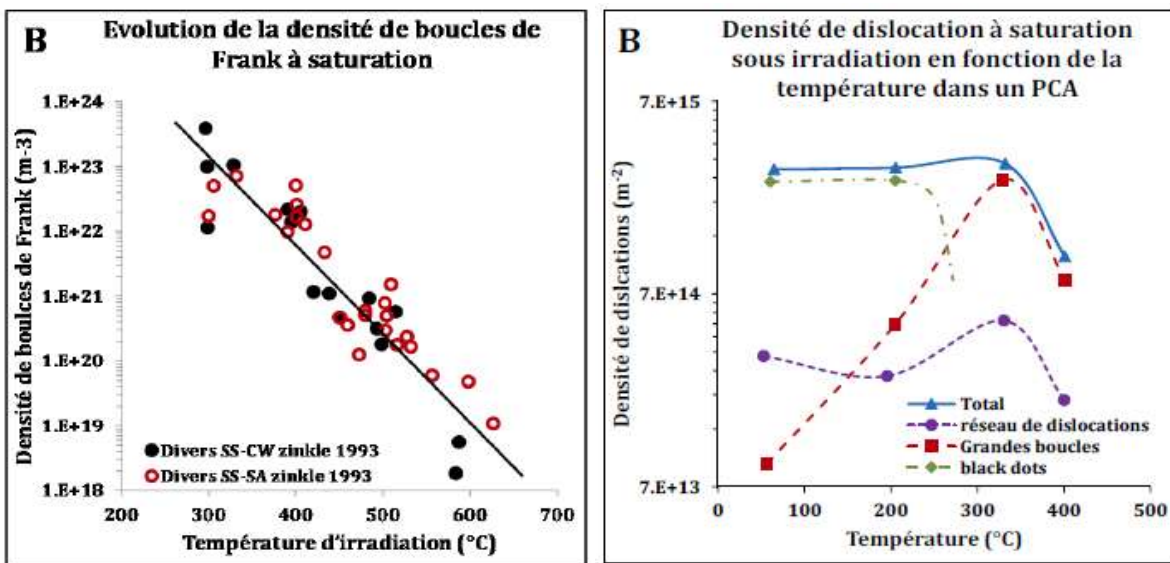


Figure 19 : Évolution des différentes populations de défauts en fonction de la température d'irradiation [40].

1.2.5 L'effet du taux de dommage

L'augmentation du taux de dommage augmente les concentrations de défauts mobiles et augmente vraisemblablement le taux de recombinaison des défauts ponctuels. Ce phénomène a été étudié à plusieurs reprises dans le cuivre et les aciers austénitiques [41], [42].

La variation du taux de dommage a un impact important sur la sursaturation de défauts mobiles et sur la diffusion (Cf partie 1.3). Ces changements peuvent modifier à la fois le vieillissement de la microstructure (restauration, précipitation) et modifier les domaines de température d'apparition du gonflement. La différence de taux de dommage est particulièrement importante entre les irradiations aux ions et aux neutrons. Mansur, propose en 1978 d'introduire un décalage en température pour corriger ces différences et obtenir des résultats comparables aux ions et aux neutrons [38]. Les équations ne sont valables que dans le cas de microstructures très simplifiées mais sont un bon indicateur pour cibler la température du pic de gonflement lors d'irradiation à différent flux.

Une synthèse proposée par Rouxel Figure 20 de différentes irradiations permet d'observer que le décalage du pic de gonflement dépend des matériaux et des conditions d'irradiation [40].

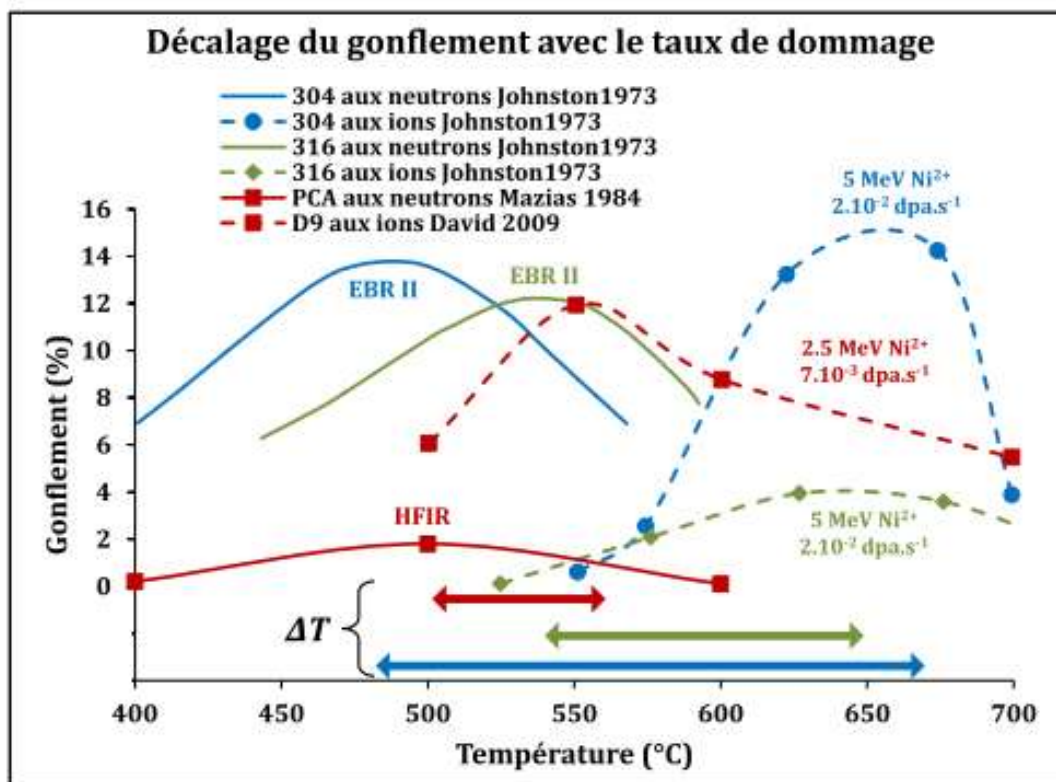


Figure 20 : Décalage du gonflement avec le taux de dommage synthèse de [40] d'après [140]–[142].

1.2 Les évolutions microstructurales sous irradiation

La modification du taux de dommage joue à la fois sur la germination et sur la croissance des cavités qui augmentent lorsque le taux de dommage est réduit [43]. La figure 21, réalisée par Borodin [44], montre clairement l'effet de l'augmentation de flux sur la bosse de gonflement lors d'irradiations aux ions avec une dose totale de 50 dpa.

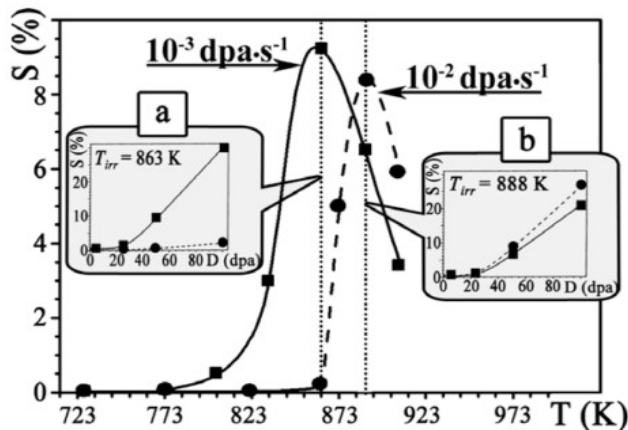


Figure 21 : Influence du flux de dose sur le gonflement d'un acier 18Cr-10Ni-Ti pour une dose totale de 50 dpa. Dépendance du gonflement en fonction de la dose à 863K (a) et 888K (b) [44].

D'autres études ont également montré que l'effet du débit de dose sur le gonflement dépendait également de la température d'irradiation. La Figure 22 réalisée par Séran présente le gonflement de différentes zones du cœur du réacteur expérimental RAPSODIE. Séran montre que l'effet du débit de dose est fortement marqué lors d'irradiations à haute température alors qu'il est presque inexistant à 450°C [45]. Il faut donc être particulièrement vigilant aux conditions de flux lors de la comparaison de campagne d'irradiation.

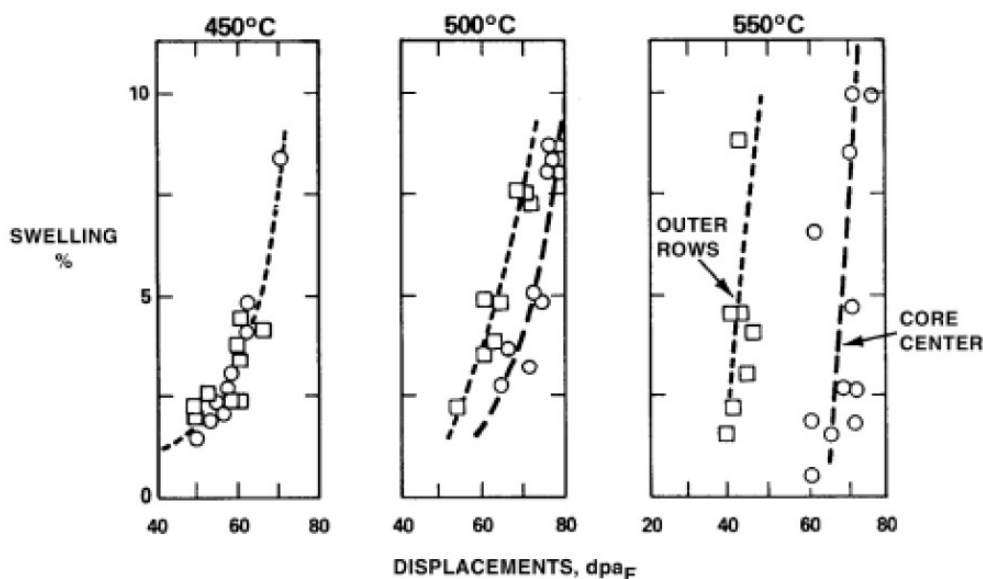


Figure 22 : Évolution des effets de flux en fonction de la température. On observe la différence de comportement entre les assemblage situées au centre du cœur (haut flux) et en périphérie (bas flux) est plus marqué aux hautes températures.

1.3 LES EVOLUTIONS CHIMIQUES DE LA MICROSTRUCTURE SOUS IRRADIATION

L'irradiation modifie profondément les évolutions de la microstructure à haute température. Cette partie présente comment l'irradiation peut avoir des impacts sur la répartition de la composition chimique des gaines en aciers austénitiques inoxydables.

1.3.1 Les ségrégations induites par irradiation

Les phénomènes de diffusion dans les métaux correspondent à des sauts effectués par les atomes via les défauts du cristal. Il convient de différencier la ségrégation accélérée (ségrégation d'équilibre accélérée par la sursaturation en défauts ponctuels) de la ségrégation induite qui n'existe que par le flux de défauts ponctuels induit par l'irradiation.

Du fait de la sursaturation lacunaire, les vitesses de diffusion des espèces sont généralement augmentées par l'irradiation. De plus, le mécanisme de diffusion interstitielle peut avoir lieu à des températures plus basses que lors d'un traitement thermique classique car l'énergie nécessaire à la formation de SIA est trop élevée pour être formée thermiquement.

Les puits de défauts dont la particularité est de pouvoir absorber les défauts qui se situent dans leur voisinage provoquent une diminution locale de la concentration de défauts. De ce fait il s'établit alors un flux de défaut depuis le « cœur » de la matrice en direction des puits de défauts. Dans le cas d'irradiations aux ions, où le taux de dommage est particulièrement élevé, les mécanismes de couplage des flux sont particulièrement intenses.

Les irradiations aux ions lourds permettent de générer des taux de création de défauts bien supérieurs à ceux des neutrons. Cela permet de faire apparaître le phénomène de gonflement sous irradiation de manière plus rapide mais cela impacte également les concentrations de défauts ponctuels en régime permanent et les flux de défauts dans le matériau.

Dans le cas d'un métal pur, le fait d'entretenir ces flux de défauts ne modifie en rien la chimie car tous les atomes diffusent à la même vitesse ce qui n'est pas le cas des alliages complexes. En raison de la différence de diffusivité des éléments chimiques [46]–[48], il se crée des ségrégations chimiques aux voisinages des puits de défauts de la microstructure. Ce phénomène est appelé effet Kirkendall et peut être observé aux niveaux de l'ensemble des puits de défaut de la microstructure tels que les joints de grains mais aussi les précipités ou les boucles de dislocation [13], [49]–[51] (Figure 23).

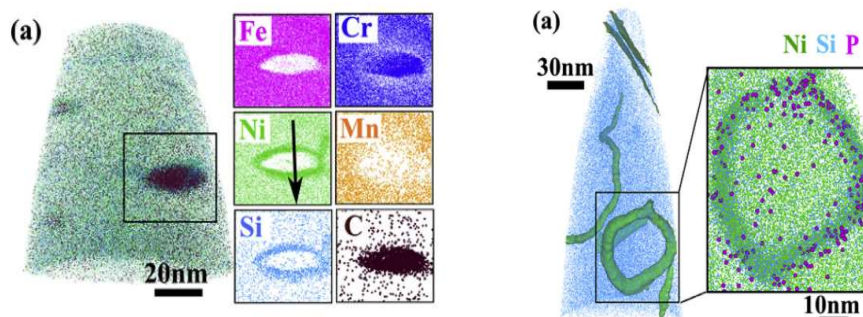


Figure 23 : ségrégations chimiques autour d'un carbure de chrome et d'une boucle de dislocation suite à une irradiation [49].

1.3 Les évolutions chimiques de la microstructure sous irradiation

1.3.1.1 Le rôle des lacunes dans les phénomènes de ségrégation

Lors de l'irradiation, des lacunes sont créées suite aux cascades de déplacement. La sursaturation lacunaire génère alors un flux de lacunes qui s'établit en direction des puits de défauts. Du fait de la diffusion lacunaire, un flux d'atome s'établit dans la direction opposée comme illustré Figure 24.

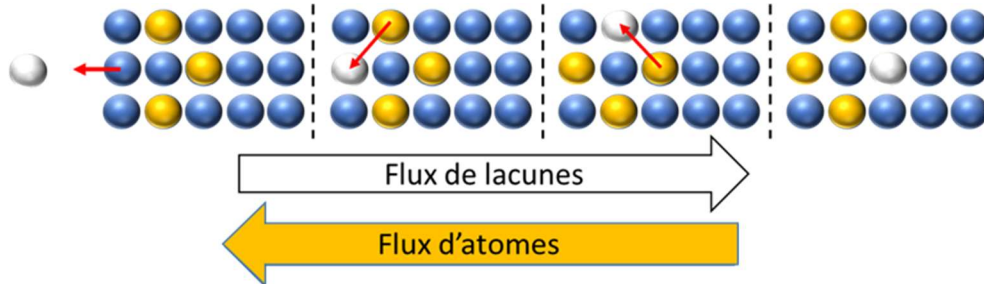


Figure 24 : Illustration de l'effet de la diffusion lacunaire préférentielle. Un flux de soluté diffusant préférentiellement par mécanisme lacunaire s'établit dans le sens opposé du flux de lacunes.

Dans un alliage, chaque espèce atomique ayant sa propre vitesse de diffusion, certains éléments s'éloignent plus rapidement que d'autres du puits de défauts. Il y a donc un enrichissement en éléments dont la diffusion par le mécanisme lacunaire est lente comme le Ni, qui diffuse plus lentement que le fer, l'élément de base de notre alliage. Inversement, on observe un appauvrissement Cr.

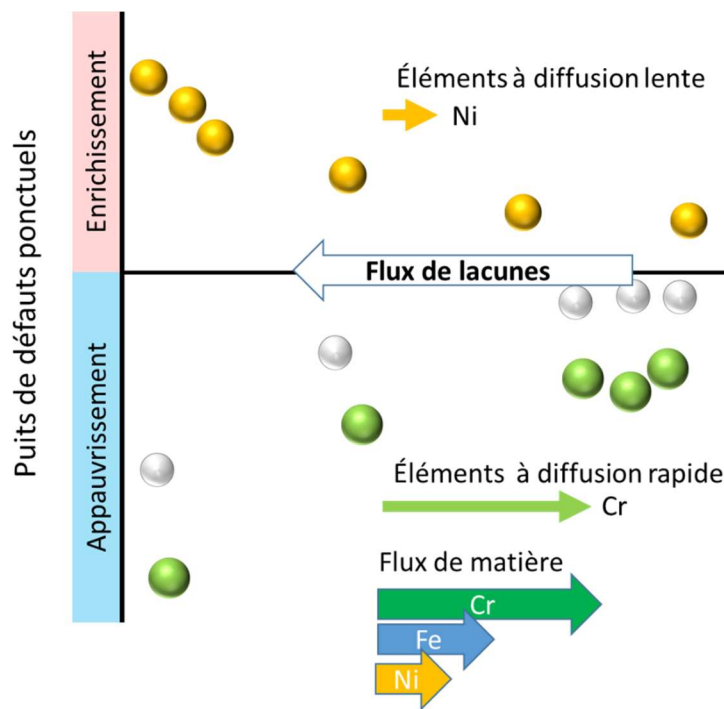


Figure 25 : Illustration du mécanisme de ségrégation induite par irradiation.

1.3.1.2 Le rôle des interstitiels dans les phénomènes de ségrégation

Du fait de la sursaturation d'interstitiels provoqué par l'irradiation et de leur absorption par les puits, il y a établissement d'un flux d'interstitiels vers les puits de défauts. Les éléments qui sont associés avec les interstitiels sont alors entraînés par le flux d'interstitiels ce qui provoque la ségrégation des éléments de petite taille tels que le Si et le P vers les puits de défauts.

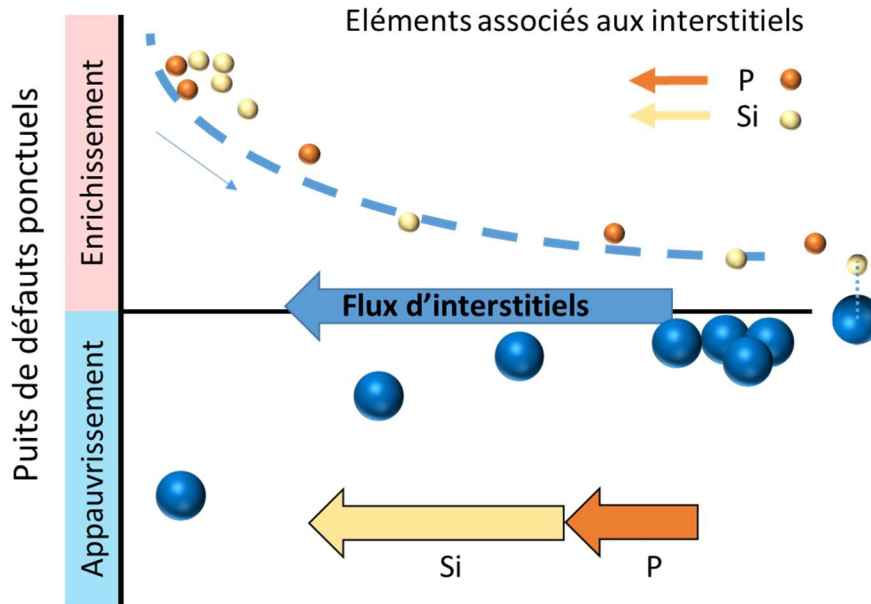


Figure 26 : Illustration du mécanisme de ségrégation induit par le flux d'interstitiels vers un puits de défauts. En général, il y a établissement d'un flux de soluté de petites taille dans le même sens que le flux d'interstitiels.

1.3.2 La modification de la précipitation

La précipitation est intrinsèquement liée aux éléments présents en solution solide et leurs concentrations relatives. La nature et la cinétique de formation de ces précipités sous irradiation est à la fois dépendante des proportions relatives des éléments en solution solide et des conditions d'irradiation.

En modifiant localement les concentrations relatives en éléments chimiques, les ségrégations induites par irradiations sont susceptibles de profondément impacter la précipitation observée à des températures équivalentes mais hors flux. Selon les cas, l'irradiation peut accélérer, induire, ou modifier la cinétique d'apparition des précipités. Les compositions de ces phases peuvent être modifiées en fonction des paramètres de l'irradiation, de la composition chimique de la nuance ainsi que des traitements thermomécaniques initiaux [2].

On distingue trois grandes catégories de précipitation influencées par l'irradiation :

- **Précipitation accélérée ou retardée** : les phases formées sont également présentes lors d'un vieillissement thermique simple, mais leur cinétique d'apparition est modifiée par l'irradiation
- **Précipitation modifiée** : les précipités du matériau irradié n'ont pas la même composition chimique que ceux formés lors d'un traitement thermique. Souvent la structure cristallographique et la morphologie des précipités ne sont pas modifiées
- **Précipitation induite** : des précipités qui n'apparaissent pas lors de vieillissements thermiques et n'apparaissent que sous irradiation et sous certaines conditions

Ces modifications sont sources d'évolution des microstructures sous irradiation et la modification de la précipitation en service modifie les éléments résiduels en solution solide et les puits de la microstructure. Les phases apparaissant hors irradiation ou sous irradiation sont abordées de manière plus détaillée dans le chapitre II de ce manuscrit.

1.3.3 Les réactions de transmutation

L'une des particularités des neutrons rapides est de favoriser les interactions neutron-noyau et d'augmenter les probabilités de réactions de transmutation, c'est-à-dire la transformation d'un élément en un autre élément par une modification de son numéro atomique.

Des éléments présents dans les aciers de gaines austénitiques sont également soumis à la transmutation et peuvent être une source de création d'hélium (décomposition α) dans le matériau. La présence d'hélium va notamment influencer la formation et l'évolution des cavités [52]. L'hélium, qui n'est pas soluble dans l'austénite, ajoute une contribution de pression interne aux amas de lacunes ce qui les stabilise thermodynamiquement [21].

A ce titre le Ni joue un double rôle dans le gonflement. D'une part il a été montré à de nombreuses reprises qu'il avait un effet bénéfique sur la résistance au gonflement ; d'autre part, la grande section efficace d'absorption du Ni Figure 27 en fait l'un des principaux émetteurs d'hélium dans la gaine ce qui favorise l'apparition de cavités.

1.3 Les évolutions chimiques de la microstructure sous irradiation

Bien que les réactions de transmutation n'aient pas lieu dans nos conditions d'irradiation aux ions, il est possible de reproduire l'effet de l'hélium en le pré-injectant avant d'irradier ou de l'implanter lors de d'une irradiation à faisceaux multiples.

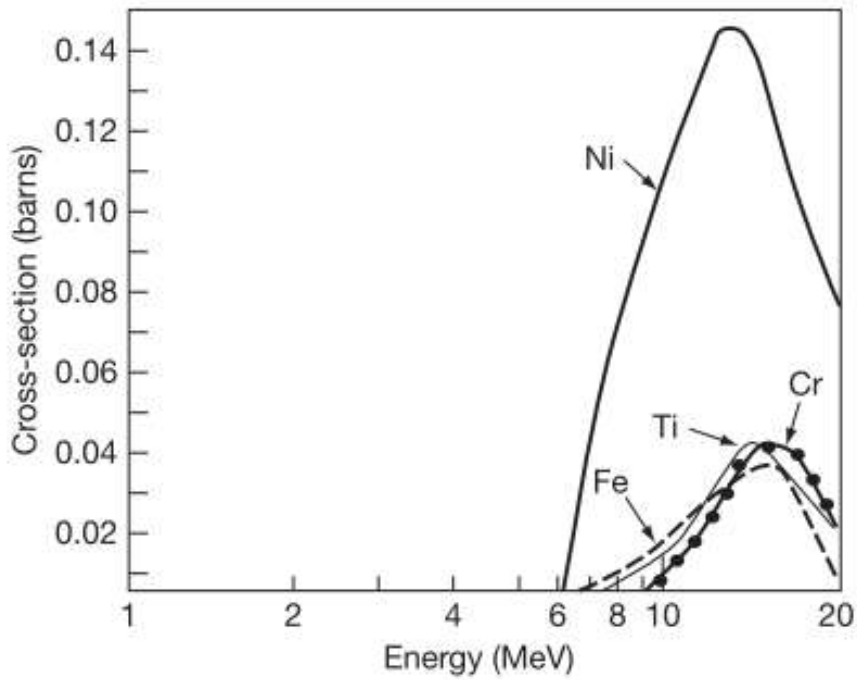


Figure 27 : Évolution des sections d'absorption en fonction de l'énergie des neutrons. Dans nos aciers, le Ni est le principal responsable de la production d'hélium.

1.4 PRESENTATION DES ACIERS AUSTENITIQUES AVANCES STABILISES

Les aciers inoxydables austénitiques sont les plus utilisés parmi les aciers inoxydables. Ils possèdent des qualités remarquables qui les démarquent des autres catégories d'aciers : bonne résistance à la corrosion dans des milieux variés, de bonnes caractéristiques mécaniques (ductilité, résilience, durcissement en solution solide) et une bonne résistance au fluage en température.

Les aciers austénitiques inoxydables répondent aux critères exigeants que doivent remplir les matériaux de gaine pour les réacteurs rapides. Les procédés industriels de mise en forme et leur soudage sont également maîtrisés. Grâce à ces avantages, ces aciers sont utilisés pour des applications variées.

Leur utilisation peut néanmoins être limitée par le phénomène de gonflement sous irradiation, ce phénomène est présenté plus en détail dans la partie 1.2.1 de ce chapitre.

1.4.1 Histoire de l'évolution des gaines en aciers austénitiques pour les réacteurs à neutrons rapides français (RNR).

Le phénomène de gonflement est provoqué par l'apparition de cavités nanométriques dans les aciers austénitiques. Leur accumulation provoque ainsi un gonflement macroscopique de la gaine et entraîne des modifications de géométrie de l'assemblage. Le gonflement sous irradiation n'avait pas été anticipé lors de la conception des RNR, il a initialement été observé dans le premier réacteur RNR expérimental britannique DFR qui a dû être déchargé prématurément en raison du comportement anormal du réacteur. Avec le durcissement sous irradiation, c'est l'un des principaux facteurs limitant le taux de combustion atteignable par les gaines en acier austénitique.

Les différentes optimisations des matériaux ont permis une augmentation progressive du taux de combustion des assemblages irradiés visible Figure 28 avec l'augmentation progressive du taux de combustion des assemblages du réacteur expérimental PHENIX [16]. Le retour d'expérience des réacteurs expérimentaux français et Européens (cosortium DeBeNe) a permis d'identifier les problématiques matériaux associées à cette technologie de réacteur. Actuellement, en France, la nuance la plus aboutie est l'AIM1, un acier austénitique inoxydable 15Cr/15Ni stabilisé au titane.

L'AIM2 est prévu pour être l'optimisation de l'AIM1 en vue d'une utilisation dans un réacteur à neutrons rapides de quatrième génération.

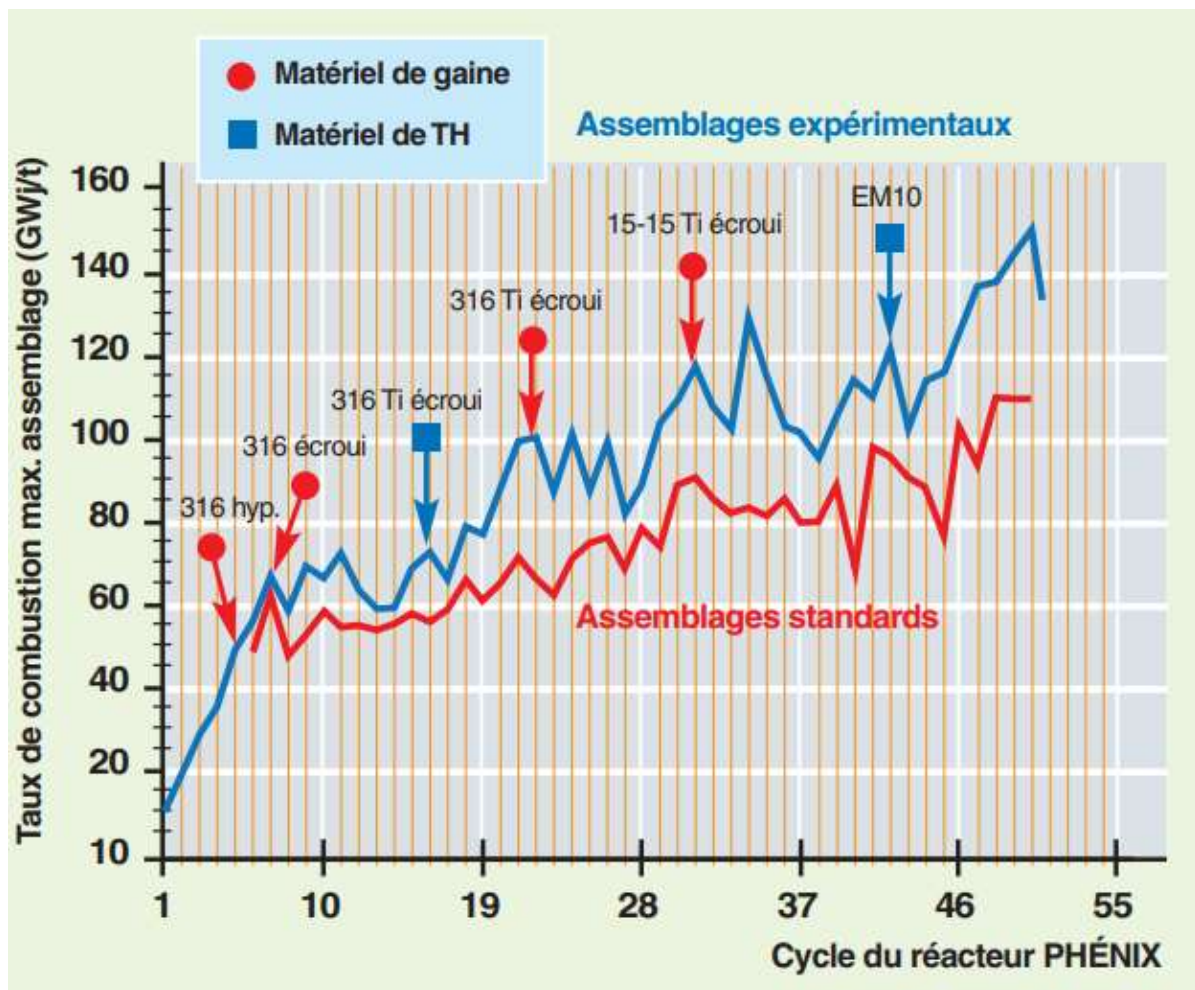


Figure 28 : Evolution du taux de combustion en fonction de l'évolution des gaines combustibles et des tubes hexagonaux dans le réacteur Phénix[16].

1.4.2 Les caractéristiques de l'AIM1

L'AIM1 a été développé à partir des essais réalisés dans les premiers réacteurs à neutrons rapides développés par la France. Cette technologie de réacteur a été explorée dans l'optique d'une fermeture du cycle de l'uranium et de l'incinération des déchets à haute activité et à vie longue (HA-VL).

Les premiers assemblages utilisés étaient en acier 316 hypere trempés (SA) qui sont classiquement utilisés dans l'industrie et dont la mise en forme était maîtrisée. Très vite, les assemblages ont présenté un fort gonflement provoquant des déformations géométriques qui militent la durée de vie des assemblages. De nombreuses campagnes d'essais/erreurs ont été menées pour améliorer la résistance au gonflement des gaines de combustible. La Figure 29 présente le gonflement de différents aciers représentatifs des différentes générations de gaines en acier austénitique [10].

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

La première optimisation fut de réaliser un écrouissage (CW) avant la mise en réacteur. L'effet de l'écrouissage permet de rallonger la dose d'incubation avant l'apparition du régime de gonflement. Le meilleur comportement des nuances écrouies a été expliqué par la réduction du nombre de défauts mobiles dans la matrice. L'effet de l'écrouissage semble surtout efficace contre le gonflement jusqu'à 550°C.

L'effet de l'écrouissage, qui est encore plus prononcé dans le cas de nuances hypereffluées écrouies que dans les nuances pré-vieillies, souligne l'importance d'une bonne remise en solution des éléments d'additions comme le titane.

La seconde optimisation fut la stabilisation au titane. La « seconde bosse de gonflement », qui apparaissait à haute température fut maîtrisée grâce à la stabilisation par ajout de titane. La maîtrise de la seconde bosse de gonflement fut attribuée à la stabilisation du réseau de dislocations par la formation de nano carbures qui limitaient la restauration du réseau de dislocations à haute température [12], [15].

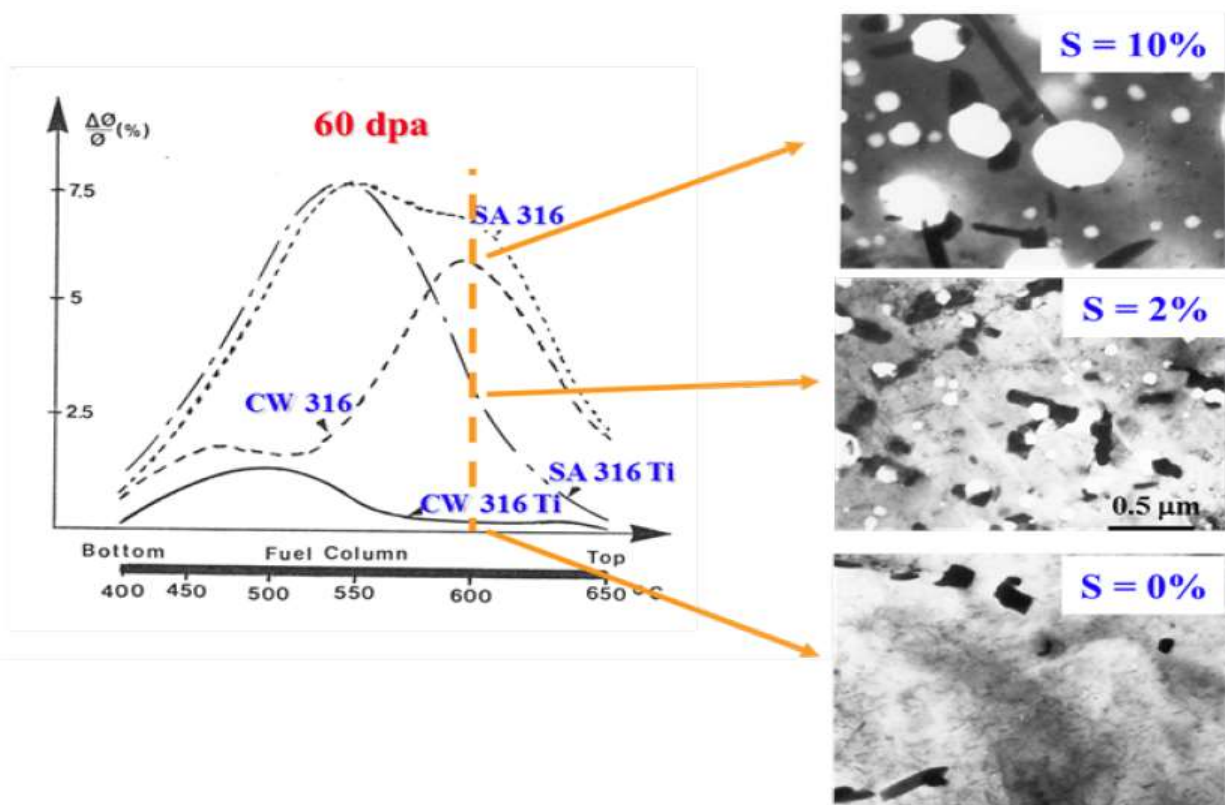


Figure 29 : Courbes de gonflement à 60 dpa de différents aciers représentatifs de différentes générations de matériaux de gaines austénitiques et micrographie MET à 600°C. Maîtrise de la seconde bosse de gonflement par l'ajout de Ti [10].

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

Le rapport de stabilisation est défini comme le rapport des concentrations atomiques stabilisant/carbone. La Figure 30 illustre l'importance du rapport de stabilisation sur le gonflement sous irradiation, il a été déterminé que le rapport atomique optimal était proche de 1 [12]. Lorsque le rapport de stabilisation est inférieur à 1, la présence de carbone résiduel favorise la formation de phases grossières, riches en éléments limitants le gonflement ou la corrosion. Au-dessus, le manque de carbone favoriserait la précipitation des éléments stabilisants sous forme de phases grossières.

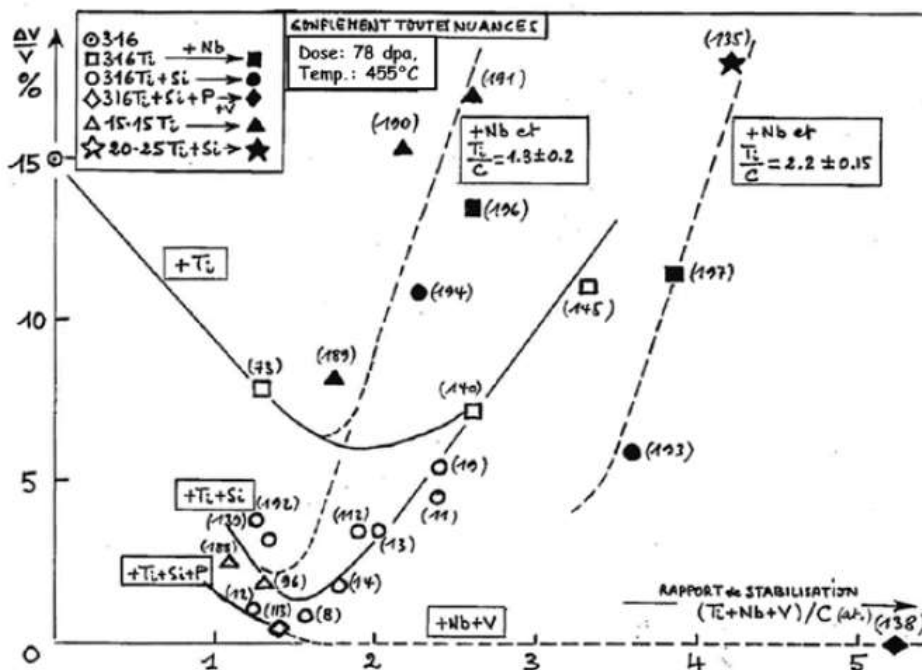


Figure 30 : Effet d'une multi stabilisation sur le gonflement et importance du rapport de stabilisation [12].

L'AIM1 est le fruit de ces campagnes d'essais : acier 15Cr/15Ni avec un rapport de stabilisation de 1 et un bon équilibre entre les éléments chimiques. Les étapes finales de fabrication consistent à réaliser un traitement d'hypertrempe suivi d'un écrouissage de 20%. Les meilleurs lots d'AIM1 supportent des doses d'irradiation jusqu'à 100 dpa. Potentiellement 130 dpa dans certains cas mais il faut noter que l'effet de lot peut être important.

L'hypertrempe à haute température permet de dissoudre un maximum d'éléments en solution solide. Ces effets sont discutés dans la partie 1.4.3.

L'ajout d'un réseau de dislocations dense permet de générer une forte densité de puits répartis dans les grains et permet de limiter les sursaturations de défauts mobiles dans la matrice. Il faut veiller à ne pas pénaliser le comportement mécanique et notamment l'allongement qui diminue fortement lors d'un écrouissage. L'objectif est d'avoir une structure de réseaux de dislocations la plus dense et homogène possible, pour ne pas avoir d'hétérogénéité de comportement. Des récents travaux ont montrés que l'écrouissage à froid permettait également la formation de macles mécaniques de déformation [53].

1.4.3 La composition chimique des aciers austénitiques avancés

Cette partie vise à présenter la métallurgie des aciers austénitiques ainsi que les principaux facteurs chimiques impactant le gonflement. Les teneurs en éléments d'alliage sont indiquées en %poids.

1.4.3.1 Les aciers austénitiques et les éléments d'additions

Le fer pur possède plusieurs formes allotropiques dont la stabilité dépend de la température. La ferrite α est stable jusqu'à 910°C et de structure cristalline cubique centrée (CC). L'austénite γ est stable entre 910 et 1400°C est de structure Cubique face centrée (CFC). La ferrite δ est stable entre 1400°C et le point de fusion du fer (1538°C) et possède une structure cubique centrée (CC). Les éléments d'addition permettent de modifier les domaines de stabilité de l'austénite et de la ferrite. En particulier, il est possible d'étendre le domaine austénitique en ajoutant des éléments gammagènes (Ni) qui permettent d'agrandir la boucle austénitique afin d'étendre son domaine de stabilité jusqu'à température ambiante. Au contraire, il est possible de le réduire en ajoutant des éléments alphagènes tels que le chrome.

La figure 4 qui représente un diagramme de phases binaire Fe-Cr permet de visualiser le domaine d'existence de la structure austénitique en fonction de la teneur en chrome ainsi que l'élargissement de la boucle austénitique avec l'ajout de Ni.

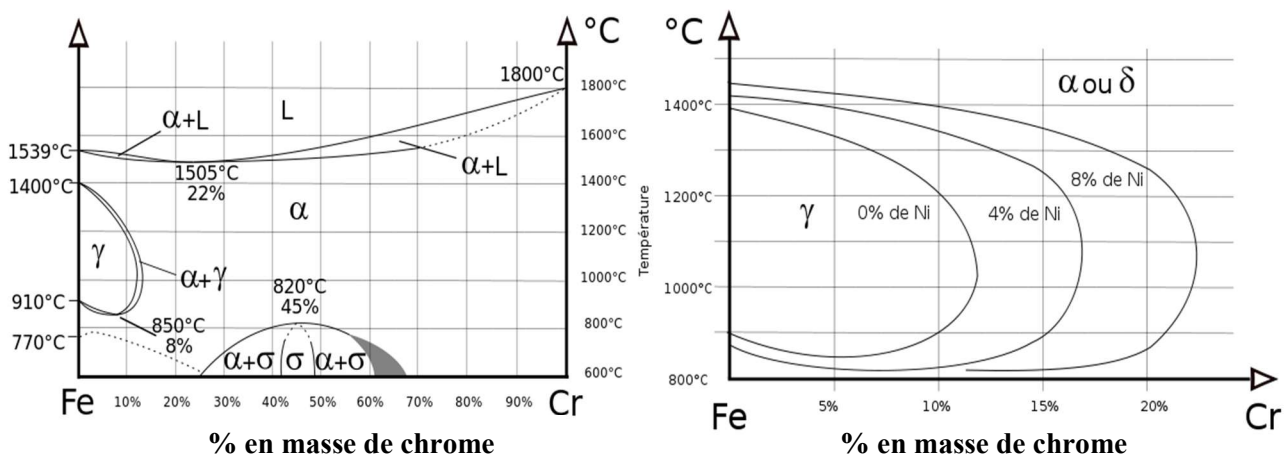


Figure 31 : A gauche diagramme de phase binaire Fe-Cr. A droite, influence de la teneur en Nickel sur la boucle austénitique [143].

En 1974 Johnston montre l'effet croisé du Ni et du Cr (Figure 32) grâce à des alliages ternaires Fe-Ni-Cr [54]. De nombreuses études ont par la suite confirmé qualitativement ces résultats, montrant qu'il était préférable, vis-à-vis du gonflement, de réduire les teneurs en chrome [47], [55] et d'avoir des hautes teneurs en Ni [48], [56].

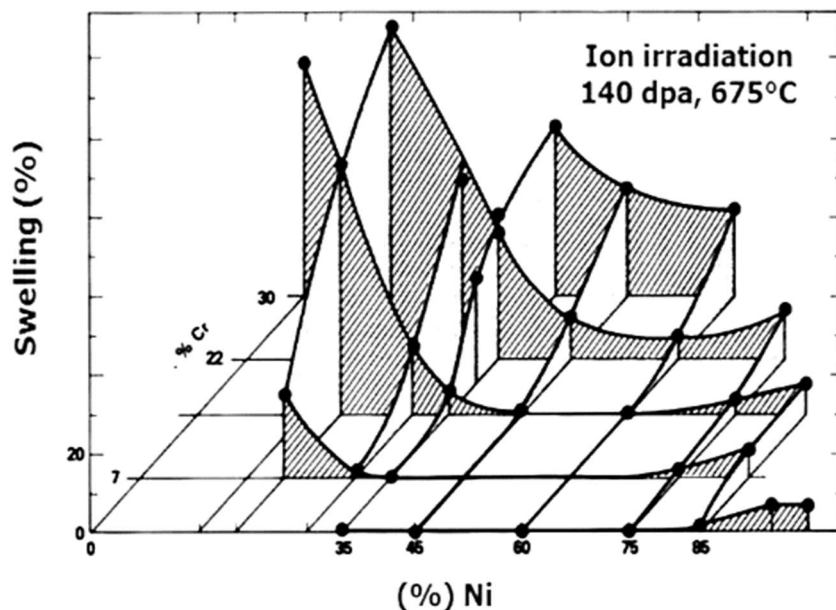


Figure 32 : Effet du Ni et Cr sur le gonflement aux ions Ni 5MeV d'alliages Fe-Ni-Cr [54].

1.4.3.1.1 Chrome (15%)

Les normes européennes imposent qu'un acier inoxydable contienne au minimum 10,5 % massique de chrome et moins de 1,2 % de carbone. Cela donne à l'acier une résistance à la corrosion par passivation grâce aux oxydes de chrome Cr_2O_3 . Il faut cependant veiller à ne pas avoir une concentration en chrome et en carbone trop élevée pour ne pas favoriser la précipitation de carbures $Cr_{23}C_6$, ce qui entrainerait des effets délétères pour l'alliage notamment en ce qui concerne la corrosion intergranulaire.

1.4.3.1.2 Nickel (15% -25%)

Le nickel est fortement gammagène, il apporte de bonnes propriétés mécaniques, particulièrement en termes de ductilité, résilience et fluage. Une augmentation du taux de nickel peut favoriser la formation de carbures complexes [57] ainsi qu'une forme cellulaire du réseau de dislocations [58]. L'ajout de nickel augmente la précipitation de carbures complexes de type $M_{23}C_6$ et M_6C [57]. Desormeaux et Rouxel [59] ont montré qu'une augmentation du taux de nickel permettait de ralentir la formation et la croissance des boucles de dislocations. Différents résultats montrent que le Ni pourrait modifier la vitesse de diffusion des lacunes et augmenter le rayon critique de formation de cavités. Son effet a été étudié à de nombreuses reprises dans la littérature et n'a pas été étudié dans ce travail. Les précurseurs AIM2 les plus performants ont un taux de nickel de 25%.

1.4.3.2 Élément stabilisants

Le principe de la stabilisation est basé sur l'ajout d'éléments ayant une forte affinité avec le carbone dissout dans la solution solide. Cela a pour effet d'inhiber la formation d'autres carbures tels que les $M_{23}C_6$ (notamment aux joints de grains) et permet de limiter les phénomènes de corrosion intergranulaire.

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

1.4.3.2.1 Titane (0.4%)

Lors d'un traitement thermique, le titane capte rapidement le carbone en solution solide en formant des carbures de type MC avec $M=Ti$ ou (Ti, Mo) . Il a été montré que l'ajout de titane permettait d'obtenir un matériau avec des grains plus fins, Rouxel montre une réduction significative de la taille de grain avec un ajout de 0.2% de titane massique, probablement dû à la formation de précipités lors du laminage à chaud qui épinglent les joints de grains et limitent leur croissance [40]. Le titane est aussi bénéfique vis-à-vis du gonflement lorsqu'il est en solution solide, ce qui serait expliqué par son énergie de liaison élevée avec les lacunes. Cela lui permettrait de diminuer la mobilité de ces lacunes.

La population de MC générée dépend de l'histoire thermomécanique de l'acier. Si la remise en solution des éléments d'addition et la densité de sites de germination (ici les dislocations) sont importantes, les MC sont répartis de façon homogène dans l'ensemble de la matrice et sont de taille nanométriques [57]. La présence de fins MC permet de créer des points d'ancrage qui permettent d'épingler les joints de grains [60], [61]. Cela permet de limiter la croissance des grains mais aussi de retarder la restauration [62] et d'améliorer les performances en fluage.

Si la densité de sites de germination disponibles n'est pas suffisante (cas des aciers non écrouis), les TiC sont alors plus grossiers et germent préférentiellement aux joints de grains en position intergranulaire, ils ne remplissent plus alors leur rôle stabilisateur.

Pour maintenir un bon rapport de stabilisation proche de l'unité, le titane et le carbone doivent être du même ordre de concentration atomique. La teneur massique de titane doit donc être 4 fois supérieure à celle du carbone.

1.4.3.2.2 Niobium (0.8%)

Il présente des propriétés métallurgiques très similaires à celles du titane et peut aussi être utilisé comme élément de stabilisation. En revanche il n'a pas un impact aussi bénéfique que le titane sur la résistance au gonflement lorsqu'il se trouve en solution solide [40]. La présence de niobium favoriserait la formation de M_6C et accélérerait la formation de phases intermétalliques (σ et χ) pour de longs recuits dans les aciers austénitiques 15Cr-25Ni-Nb [57].

Il est plus souvent envisagé d'utiliser le niobium dans le cadre d'une multi stabilisation et notamment en présence de titane. Les effets d'une double stabilisation titane et niobium ne sont pas encore maîtrisés mais l'ajout de Nb pourrait être utile pour modifier les caractéristiques du réseau de nano-précipités formés (densité, taille, stabilité, paramètres de maille). On peut citer la nuance DS4, un 15Cr/25Ni doublement stabilisé au titane et au niobium, qui présente une résistance au gonflement remarquable.

1.4.3.2.3 Carbone (0.09%)

Le carbone favorise la structure austénitique de l'acier, confère de bonnes propriétés mécaniques et précipite préférentiellement avec les éléments stabilisants comme le titane ou le niobium.

Le carbone est un élément de petite taille qui possède une forte mobilité dans l'austénite. Il est sensible aux phénomènes de ségrégations induites par irradiation. Lorsqu'il se trouve en excès par rapport aux éléments stabilisants, il favorise la formation de précipités grossiers, comme les $M_{23}C_6$ ou M_6C [10]. Une précipitation grossière peut avoir des effets délétères pour la résistance

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

au gonflement (appauvrissement de la solution solide) et pour les propriétés mécaniques (fragilité, corrosion).

1.4.3.3 Autres éléments d'addition

1.4.3.3.1 Phosphore (0.04%)

L'ajout de phosphore a généralement peu d'impact sur la précipitation dans les aciers austénitiques sauf dans le cas d'aciers stabilisés dans lesquels il précipite sous forme de fines aiguilles orientées. Delalande ne les détecte qu'après des recuits de 150h à 700°C ou 200h à 650°C [57]. L'utilisation du phosphore serait particulièrement intéressante dans le cadre d'une double stabilisation car les phosphures se forment préférentiellement à partir du Nb ou du V [63]. Cela permet de favoriser deux facteurs de résistance au gonflement : former une précipitation fine tout en gardant un maximum de Ti en solution solide.

1.4.3.3.2 Azote (<0.01%)

L'azote est l'interstitiel le plus durcissant en solution solide et peut interagir avec les dislocations par atmosphère de Cottrell. En présence de titane, il précipite principalement sous forme de TiN stables dès le bain liquide. Il en subsiste alors très peu en solution solide.

1.4.3.3.3 Silicium (0.8%)

Le silicium joue un rôle dans la résistance à l'oxydation à haute température et dans des environnements très oxydants. Le silicium favorise la résistance au gonflement sous irradiation, mais c'est aussi le principal élément de ségrégation du fait de sa diffusion très rapide avec les lacunes [58]. Il faut éviter d'avoir une teneur initiale trop élevée pour ne pas favoriser la formation de phases riches en Ni, Ti et Si sous irradiation [64]. Shibahara montre un effet particulièrement bénéfique du Si en présence de Ti et Nb sans lesquels il aurait tendance à précipiter sous forme de Υ' [65].

L'ajout de 0.8% Si a été rapporté comme très bénéfique dans l'acier 316 entre 500 et 600°C [66].

1.4.3.3.4 Molybdène (1.5%)

Le molybdène entre dans la composition des nano précipités (Ti,Mo)C, il favoriserait particulièrement les M_6C qui se formeraient à partir d'un mécanisme d'enrichissement des $M_{23}C_6$ en Mo [57].

1.4.3.3.5 Le Manganèse (1.5%)

Il améliore la ductilité à chaud à haute température et améliore la solubilité de l'azote dans l'acier.

1.4.3.3.6 Aluminium

On limite au maximum sa présence car elle est responsable de la précipitation de Ni_3TiAl riche en Ni et Ti [64].

1.4.4 Précipitation dans les aciers austénitiques

Les précipités sont des agrégats qui se forment dans le matériau à partir des éléments en solution solide composant l'acier austénitique. Leur nature et leurs caractéristiques dépendent de l'histoire thermomécanique de l'acier ainsi que de la composition de l'acier. La précipitation (nature, taille, densité) peut avoir un impact majeur sur les propriétés mécaniques (dureté, allongement, résistance mécanique) et sur la résistance au gonflement. Les précipités ont un effet direct sur le gonflement car leurs interfaces avec la matrice peuvent servir de pièges ou puits de défaut. Ils ont également un effet indirect sur le gonflement car ils se forment à partir des éléments en solution solide qui permettent d'améliorer la résistance au gonflement.

Les précipités primaires sont formés lors de la coulée. Leur taille est généralement comprise entre 200 nm et 1 μ m et ne sont pas dissous lors d'un traitement d'hypertrempe à haute température. Les précipités secondaires, auxquels une attention particulière est portée dans ce travail, sont ceux qui se forment pendant l'hypertrempe si celle-ci n'est pas suffisamment rapide, lors de traitements de revenus ou en service dans le réacteur. On les sépare généralement en deux catégories de précipités : les carbonitrides et les phases intermétalliques.

A la fin du cycle de fabrication, un traitement d'hypertrempe est effectué pour garder le maximum d'éléments d'addition en solution dans la matrice. Il reste cependant dans la matrice des inclusions non métalliques ainsi que des carbonitrides qui ne se dissolvent pas lors des traitements d'hypertrempe [57]; [67]; [68].

1.4.4.1 Carbures simples

1.4.4.1.1 MC (M=Ti, Nb)

Selon les éléments stabilisateurs (Ti et/ou Nb) on peut former des carbures de titane TiC, de niobium NbC ou de titane et niobium (Ti, Nb) C qui contiennent également une part de Molybdène. Lors de la précipitation en service, ces précipités germent préférentiellement sur les dislocations et les fautes d'empilement. On obtient alors dans le cas d'un acier correctement écroui, une précipitation de taille nanométrique uniformément répartie dans la matrice.

Les MC secondaires ont donc plusieurs avantages vis-à-vis du gonflement :

- ils stabilisent le réseau de dislocations et inhibent la restauration [61]
- ils limitent la précipitation des $M_{23}C_6$ et M_6C
- Ils contiennent une fraction de Mo ce qui limite la formation de phases de Laves

Des phénomènes de coprécipitation de $M_{23}C_6$ avec des carbonitrides ont parfois été rapportés dans la littérature [67].

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

Les MC sont très stables si bien qu'il est difficile de les remettre totalement en solution, il subsiste généralement une fraction de carbures, qui n'est pas remise en solution lors de l'hypertrempe. Comme on peut le voir sur la Figure 33 issue de la thèse de Rouxel [40], la présence de niobium renforce la stabilité thermodynamique des MC. Il faut donc faire attention car, à traitement d'hypertrempe égal, la proportion de précipités non dissous est plus importante dans les nuances au niobium. Le traitement de remise en solution utilisé pour l'AIM1 est vraisemblablement à adapter pour un AIM2 Ti+Nb.

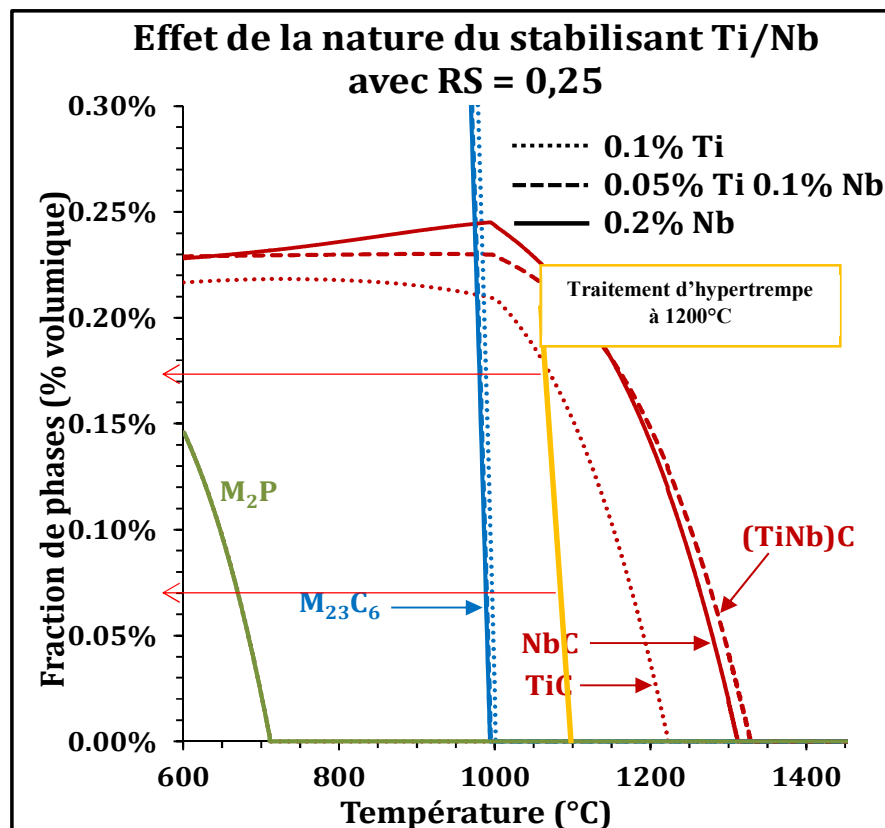


Figure 33 : Evolution de la fraction de phase en fonction de la température et de la stabilisation, simulation MatCalc. Figure issue de [40].

Il a été montré à de nombreuses reprises [69]–[72] que le titane était bénéfique en solution solide, ce qui ne serait pas forcément le cas pour le niobium. Il faut néanmoins limiter la concentration de titane si l'on ne souhaite pas former de précipités grossiers riches en titane à la place des MC nanométriques.

Bien que très stables thermiquement, les MC ne le sont pas sous irradiation à basse température [73]. Il est pourtant attendu que la diffusion accélérée favorise leur formation. La diffusion à basse température pourrait ne pas être suffisante pour compenser l'effet des cascades de déplacement qui peuvent partiellement dissoudre les précipités par chocs balistiques. La Figure 34 issue de la thèse de Cautaearts [17] d'après [74] présente les domaines de stabilités sous irradiation aux ions des TiC dans un acier proche de l'AIM1.

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

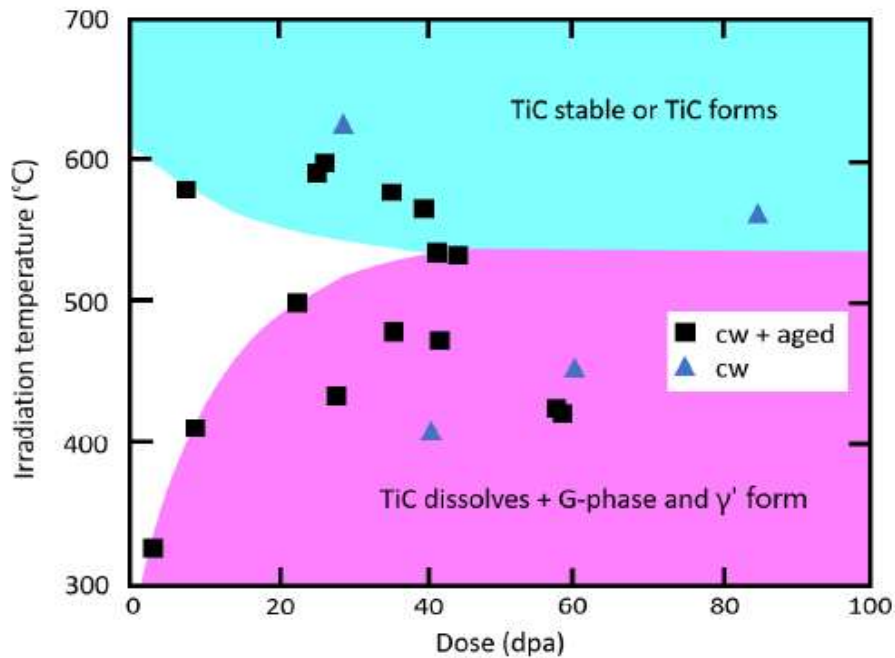


Figure 34 : Diagramme température dose d'irradiation dans des microstructures irradiées aux ions issue de [17] [74]. Le domaine de stabilité des MC est indiqué en cyan et le domaine de dissolution des MC et de formation des phases G et de formation des γ' est indiqué en magenta.

1.4.4.1.2 $M_{23}C_6$

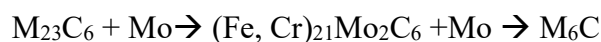
Ce sont des précipités récurrents dans les aciers austénitiques inoxydables [60], [75], [76] avec $M=Cr$. Ils germent majoritairement en position intergranulaire et sont connus pour favoriser la corrosion en appauvrissant les joints de grains en chrome. La composition de ces précipités peut varier selon les éléments chimiques disponibles.

L'ajout de titane permet de réduire la présence de $M_{23}C_6$ car le carbone est capté par les TiC.

L'ajout de phosphore favorise l'apparition de $M_{23}C_6$ ou M_6C car une partie du titane est capté par les phosphures ce qui laisse du carbone disponible en solution.

1.4.4.1.3 M_6C (η) ($M=Mo, Fe, Ti, Nb$)

Ce type de carbure est régulièrement présent dans les aciers contenant du Mo. Une augmentation de Ni favorise également la formation de ces carbures complexes [57]. Lors d'un vieillissement thermique et en présence de Mo, les $M_{23}C_6$ peuvent s'enrichir en Mo et, à partir d'un certain seuil, se transformer en M_6C selon le mécanisme suivant [77] :



1.4.4.1.4 Ti (C, N) et Ti_2CS

Les carbonitrures et sulfures sont formés lors de la coulée en phase liquide et ne peuvent pas être remis en solution lors du traitement d'hypertrempe [78]. Le titane, piégé dans ces précipités, n'est donc pas disponible pour une remise en solution solide. On cherche à limiter

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

au maximum leur formation en limitant la présence de N et S (qualité de la coulée) pour obtenir un matériau le plus homogène possible.

1.4.4.2 Phases intermétalliques

Les phases intermétalliques précipitent souvent de manière plus tardive car elles sont composées d'éléments chimiques diffusant plus lentement que le carbone [57]. Cependant, dans les aciers austénitiques stabilisés le carbone est absorbé par l'élément stabilisateur ce qui ralentit la formation des carbures complexes mais favorise la formation des phases intermétalliques.

Les phases intermétalliques le plus souvent rencontrées dans les aciers austénitiques sont les phases σ , χ , et de Laves. Il est également possible selon la composition de la nuance, de trouver des phases γ' , G, R, μ , et γ'' [79].

1.4.4.2.1 Précipités γ'

Les précipités γ' (Ni₃Si) sont régulièrement observés dans les aciers austénitiques irradiés à haute dose en RNR. Ils sont généralement observés aux températures d'irradiation faible (<500°C) correspondant au domaine de dissolution sous irradiation des nano MC. Ces précipités se forment également sous irradiation dans des vis de réacteur à eau pressurisée (REP) en 316 écroui [80].

La phase γ' est favorisée par la forte teneur en Ni. Dans des nuances à 25% Ni tels que le DS4, une forte précipitation γ' est observée tandis que très peu de TiC sont visibles. Delalande ne les a jamais observés après vieillissement thermique dans des alliages dont la teneur en Ni était inférieure à 25%.

Volgin montre dans un acier 316 irradié aux ions, que les ségrégations le long des dislocations permettent à des amas enrichis en nickel et silicium de se former et d'atteindre des compositions chimiques correspondant à des précipités γ' . Il en a conclu que les dislocations sont des sites préférentiels hétérogène de germination de ces précipités [81].

1.4.4.2.2 Phosphures MxP

Lorsque la teneur en phosphore est suffisante (>200ppm), à la suite de traitement thermique entre 650°C et 800°C et en présence d'un élément stabilisateur, des auteurs ont rapporté la présence de phosphures en aiguille [57], [76], [82] suivant la direction <001> de l'austénite. Ils peuvent adopter une structure orthorhombique [57] mais aussi hexagonale ou tétragonale [83]. Ils sont particulièrement stables même pour des maintiens très longs et sont suspectés de jouer le même rôle stabilisateur que les MC vis-à-vis du réseau de dislocations [57], [84].

D'après Lee, la formation de ces phosphures est très lente (présence à partir de 500h à 600°C) [76]. Cependant dans le cadre de cette thèse leur présence a été observée par des analyses SAT sur des matériaux irradiés aux ions à 600°C pendant 30h, leur cinétique de formation est donc probablement accéléré par l'irradiation.

1.4.4.2.3 Phase G

Cette phase n'apparaît qu'en présence d'élément stabilisateur (titane et/ou niobium) dans la solution solide. Delalande signale une précipitation rapide aux joints de grain à 750°C dans des aciers 20Cr/25Ni et une apparition plus tardive après un long recuit (3000h 650°C) dans un 316Ti [57].

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

1.4.4.2.4 Phase σ

Cette phase est thermodynamiquement stable entre 500°C et 580°C. C'est une phase qui se développe généralement dans la ferrite et possède une cinétique d'apparition très lente dans l'austénite (plusieurs milliers d'heures) et précipite près des carbures complexes [57]. Grot et Spruiell ont observé une cinétique accélérée par la présence de titane et montrent que l'écroutissage favorise la phase σ et bloque la formation de la phase χ [85].

1.4.4.2.5 Phases χ

A l'instar des carbures M_6C , la phase χ n'existe qu'en présence de Mo ou Ti. Sa composition est similaire à celle de la phase σ mais le carbone peut se dissoudre dans la phase χ . A cause de cette propriété, cette phase était par le passé classifiée en carbure $M_{18}C$. La phase χ se forme principalement aux joints de grains, joints de macles et sur les dislocations [85].

1.4.4.2.6 Phases de Laves

Les phases de Laves sont susceptibles d'être présentes dans les alliages riches en Mo, elles ont une morphologie en latte. Elles peuvent germer sur les joints de macles, joints de grain et dislocations. Elles précipitent entre 650 et 800°C et peuvent apparaître à partir de quelques heures de recuit [57]. Leur stœchiométrie est de type M_2Mo ($M=Cr, Fe$ ou Si). Leur formation est inhibée par la précipitation des TiC qui consomment le Mo disponible en solution solide. Delalande a également montré que la présence de phosphore pouvait limiter leur apparition [57].

1.4 Présentation des aciers austénitiques avancés stabilisés

1.4.4.3 Synthèse des phases

La présence de nombreux éléments d'addition dans les aciers austénitiques avancés rend la précipitation relativement complexe et elle peut être fortement impactée par la composition chimique et l'élaboration de la nuance. Les domaines des principaux traitements thermomécaniques, de changement de phases et de précipitation hors irradiation dans les aciers austénitiques sont résumés par Padilha [60].

Le Tableau 1 est un récapitulatif des phases et de leurs modifications induites par irradiation d'après [17], [40], [57], [73], [85]–[91]

phase	Morphologie	structure	paramètre de maille nm	modification irradiation
matrice		Fm3m	a=0.359	
Ti (C, N)	cubique	Fm3m	a=0.424	
Ti2CS	Bâtonnets allongés	P3bm1	a=0.321 C=1.121	
(Ti, Mo) C	Sphérique ou facettée	Fm3m	a= 0.432 +/-0.005	accélérée ou retardée
(Nb, Mo) C	Sphérique ou facettée	Fm3m	a= 0.447 +/- 0.005	accélérée ou retardée
(Nb, Ti, Mo) C	Sphérique ou facettée	Fm3m	a=0.44	accélérée ou retardée
M23C6	Allongée ou en lamelles	Fm3m	a=1.063 +/-0.02	retardée par irradiation
M6C (n)	Non renseignée	Fd3m	a=1.080	accélérée ou retardée
γ' (Ni, Fe, Ti, Mo) ₃ Si	sphériques	Fm3m	a=0.35	induite par irradiation
G (Ti, Mn, Cr, Mo, Fe) ₆ Ni ₁₆ Si ₇		Fm3m	a=1.120	induite par irradiation
Laves	Latte fautés	P63/mmc	a=0.473 +/- 0.01 c=0.772 +/-0.01	modifiée par irradiation
σ	Allongée	P4/mnm	a0 = 0,883 ± 0,001 c0 = 0,459 ± 0,001	accélérée ou retardée
X	Allongée	I43m cubique	a=0.888 +/-0.05	accélérée ou retardée
M2P_ortho		orthorhombique P12	a=0.567 b=0.357 c=0.665	modifiée
M2P_hexa		hexagonale P123	a=0.608 c=0.364	modifiée

Tableau 1 :Phases rencontrées dans les aciers austénitiques avancés et effet de l'irradiation sur celles-ci

1.5 Conclusion du chapitre bibliographique

1.5 CONCLUSION DU CHAPITRE BIBLIOGRAPHIQUE

Ce travail s'inscrit dans le cadre du développement de matériaux de cœurs pour les Réacteurs à Neutrons Rapides Sodium de génération IV. La technologie des réacteurs à neutron rapide est associée à de fortes doses d'irradiation qui peuvent détériorer les matériaux qui sont utilisés pour confiner le combustible nucléaire.

Les aciers austénitiques inoxydables sont utilisés dans ce type de réacteurs mais leur durée de vie peut être limitée par le phénomène de gonflement sous irradiation. Le flux de neutrons traversant les gaines provoque l'apparition de cavités qui peuvent déformer les gaines lors d'irradiation prolongées.

Le gonflement est un phénomène complexe à appréhender car il repose sur de nombreux paramètres. Ces paramètres sont interdépendants et il existe de nombreuses boucles de rétroactions qui impactent l'évolution de la microstructure sous irradiation. Il est possible de reproduire le phénomène de gonflement hors réacteur pour l'étudier mais les transpositions des résultats dans les conditions d'irradiation aux neutrons ne sont pas immédiates.

Des étapes d'optimisation ont permis d'améliorer progressivement la durée d'utilisation des gaines de combustibles en aciers austénitiques dans les réacteurs. La nuance française de référence est l'AIM1, un acier austénitique 15Cr/15Ni stabilisé au titane. La stabilisation permet de limiter la formation de phases grossières et rend la formation d'un fin réseau de nano carbures possibles sous certaines conditions.

Chapitre II

Caractérisations microstructurales des matériaux de l'étude

« Notre vie est une seule route derrière nous mais une multitude devant nous. »

Paul de Carvel – Mots de tête

Ce deuxième chapitre présente les perspectives d'optimisations chimique et microstructurales des aciers austénitiques vis-à-vis du gonflement sous irradiation. Des microstructures modèles qui ont été définies dans l'objectif d'étudier l'effet des éléments de microstructure (dislocations solution solide, précipités) sont présentées. La dernière partie de ce chapitre présente des caractérisations obtenues par DNPA (LLB) et DRX Synchrotron (DiffAbs) sur ces microstructures.

2.1 PERSPECTIVES D'OPTIMISATIONS DE L'AIM1 ET MATERIAUX DE CETTE ETUDE

Les pistes d'optimisations de la nuance AIM1 vers une nuance optimisée AIM2 sont à la fois chimiques et microstructurales. Une démarche analytique a été adoptée pour évaluer les effets des différentes optimisations. Des aciers modèles ayant différentes compositions chimiques et différentes microstructures ont été produits pour isoler l'influence des différents paramètres.

2.1.1 Optimisation chimique : matrice de nuances modèles

Des aciers modèles semi industriels ont été conçus par Rouxel [40] et élaborés au laboratoire de production OCAS. Dix nuances, ont été élaborées à partir de la composition chimique de l'AIM1 (15/15 Ti) pour étudier les effets des différents éléments chimiques. Le diagramme Figure 35 synthétise les effets chimiques mis en évidence par la comparaison des nuances. Le Tableau 2 présente les compositions chimiques des 10 nuances mesurées par ICP.

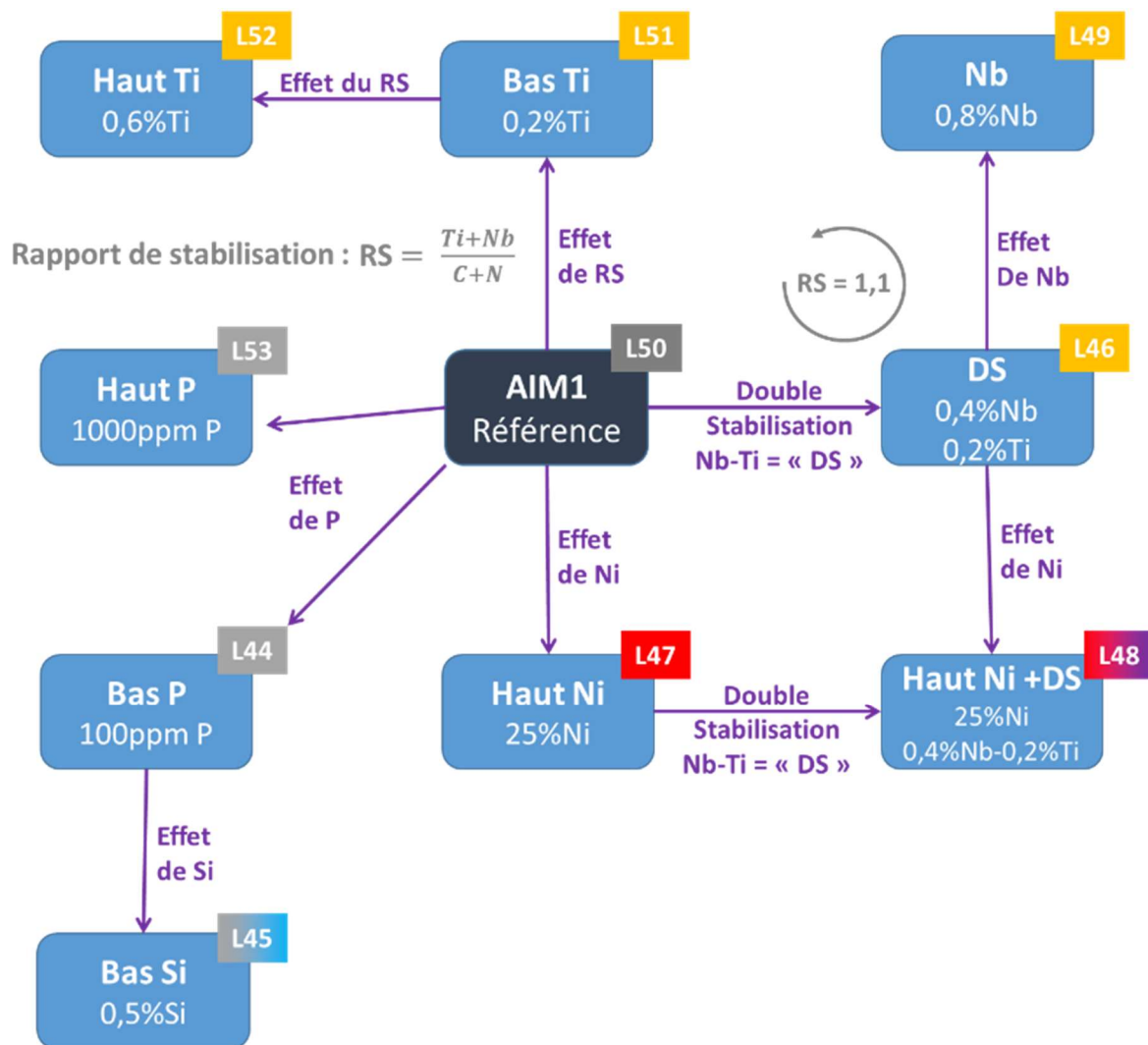


Figure 35: Diagramme des nuances modèles et mise en évidence des différents effets chimiques. [40]

2.1 Perspectives d'optimisations de l'AIM1 et Matériaux de cette étude

Compositions des nuances modèles : mesures ICP-OES												
Nuances	C	Cr	Ni	Ti	Nb	P	Si	Mo	Mn	N	B	RS
L50	0,095	14,3	16	0,42	0,0059	0,04	0,83	1,5	1,5	0,0049	0,0079	1,06
L51	0,085	14,3	15,8	0,19	0,005	0,038	0,81	1,5	1,5	0,0053	0,0082	0,53
L52	0,086	14,6	15,9	0,58	0,0063	0,04	0,81	1,5	1,5	0,0026	0,0073	1,65
L53	0,088	14,4	15,5	0,44	0,0048	0,087	0,757	1,5	1,53	0,0051	0,0066	1,19
L44	0,092	14,4	15,9	0,44	0,0071	0,012	0,86	1,5	1,5	0,0038	0,0074	1,16
L45	0,09	14,7	15,9	0,42	0,0066	0,011	0,51	1,5	1,5	0,0043	0,0068	1,12
L46	0,09	14,3	16	0,21	0,43	0,033	0,8	1,5	1,5	0,0058	0,0078	1,11
L47	0,09	14,4	25,1	0,42	0,013	0,039	0,81	1,5	1,5	0,0034	0,0077	1,14
L48	0,091	14,3	25,2	0,2	0,42	0,039	0,81	1,5	1,5	0,0059	0,0069	1,06
L49	0,058	14,4	15,9	0,0087	0,9	0,039	0,82	1,5	1,5	0,02	0,0038	1,47

Tableau 2: compositions des différentes nuances modèles générées autour de la composition chimique de l'AIM1.

La double stabilisation est une piste étudiée pour améliorer la résistance au gonflement des aciers austénitiques avancés [12], [40], [87], [92]. Dans ce travail, l'intérêt d'une double stabilisation a été étudié. Il a été fait le choix de réduire à 3 le nombre de nuances étudiées qui ont chacune la même base 15Cr/15Ni mais dont la stabilisation est assurée par du titane, du niobium ou les deux (Figure 36). Etant donné que la masse volumique du Nb est pratiquement le double de celle du Ti, la teneur massique en Nb est deux fois plus élevée que celle du titane pour maintenir un rapport de stabilisation proche de l'unité.



Figure 36 : Nuances choisies pour étudier la double stabilisation titane niobium.

L'idée de l'utilisation du niobium pour limiter le gonflement vient du fait qu'il pourrait se substituer partiellement ou totalement au titane dans certains précipités (phase G, Phosphures).

Ces aciers ont déjà été étudiés lors de la thèse de Rouxel qui a adapté leur cycle de fabrication afin d'obtenir des tailles de grains similaires à l'AIM1 pour chaque nuance.

2.1 Perspectives d'optimisations de l'AIM1 et Matériaux de cette étude

2.1.2 Optimisations microstructurales : Etats métallurgiques modèles

Des microstructures modèles ont été générées à l'aide de plusieurs chemins thermomécaniques. Ces microstructures ont été choisies afin de séparer et d'évaluer et découpler les effets de différents éléments de microstructure : dislocations, précipités et solution solide. Les différentes microstructures générées sont présentées et caractérisées dans la suite de ce paragraphe.

Trois traitements thermiques et un traitement mécanique ont été utilisés pour générer les différentes microstructures modèles :

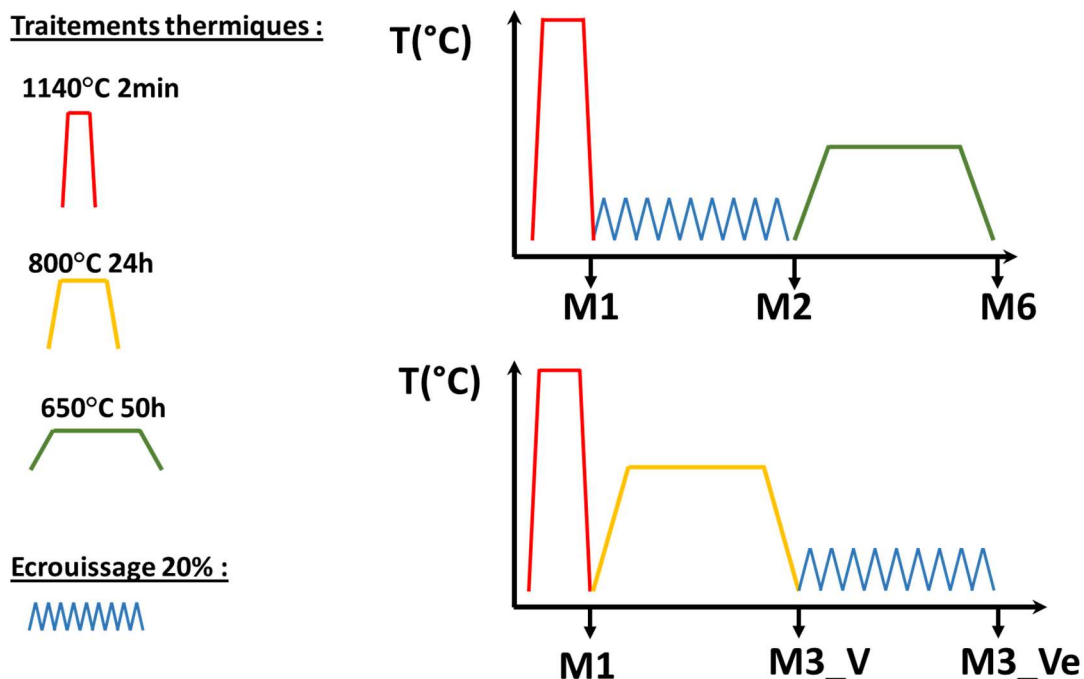
Un écrouissage à 20% : L'écrouissage permet de générer une forte densité de dislocations dans le matériau par réduction d'épaisseur.

Hypertrempe (1140°C, 2min) : L'hypertrempe permet de dissoudre les précipités secondaires et de remettre les éléments d'addition en solution solide.

Vieillessement (800°C, 24h) : Le traitement thermique de vieillissement permet de générer des précipités grossiers et d'appauvrir la solution solide.

Traitement thermique (650°C, 50h) : Ce traitement thermique associé à un écrouissage préliminaire permet de générer une fine densité de carbures nanométriques.

Les cycles thermomécaniques associés aux différentes microstructures M^* sont représentés Figure 37 ci-après.



2.2 Elaboration des microstructures modèles

2.2 ELABORATION DES MICROSTRUCTURES MODELES

Le paragraphe présente les différentes microstructures à la suite des traitements thermomécaniques. La définition de ces microstructures modèles présentées ici est issue de [40], et les densités de dislocations ont été mesurée par MET avec la méthode des interceptes et sont données avec une précision de 50%. Dans ce travail, la connaissance de ces microstructures a été approfondie grâce à des analyses complémentaires (MEB, DRX, DNPA, SAT). D'autres microstructures modèles sont également présentées dans le chapitre V.

2.2.1 Microstructure élémentaire : hypertrempée M1

C'est la microstructure initiale à partir de laquelle sont générées les autres. L'hypertrempe consiste à réaliser un traitement thermique de 2 min à 1140°C sous balayage d'hélium suivi d'une trempe à l'air. La microstructure contient alors très peu de défauts et les solutés sont remis en solution solide. C'est un état recristallisé comprenant très peu de dislocations, avec une densité de dislocations d'environ 10^{13}m^{-3} .

1140°C 2min



Il a été déterminé par SAT qu'environ 50% de Ti était remis en solution solide pour les nuances stabilisées au Ti et que 33% du Nb était remis en solution solide.

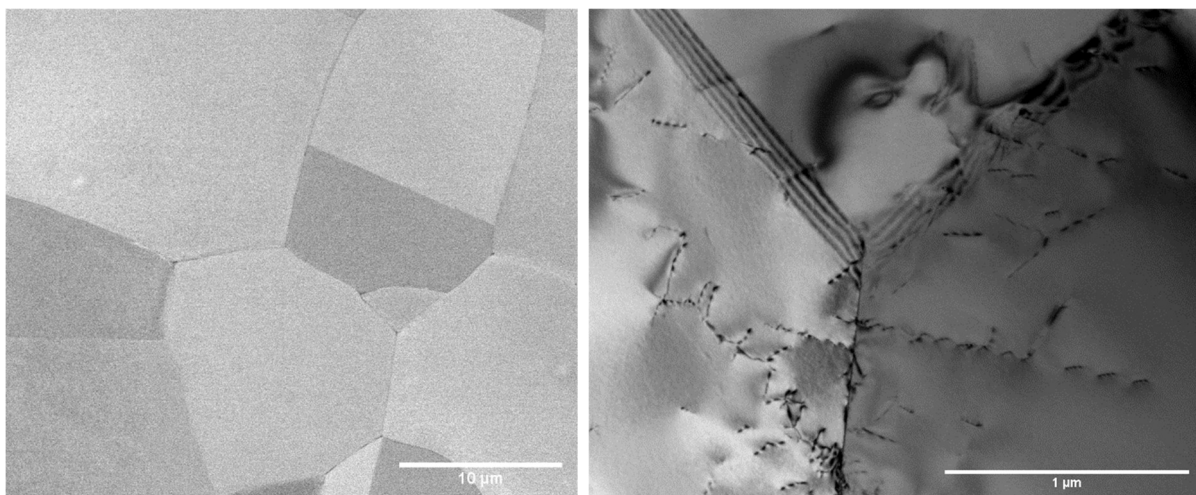


Figure 38 : Micrographie d'un échantillon hypertrempé (M1) au MEB (a) [ce travail] et au MET(b) [40]

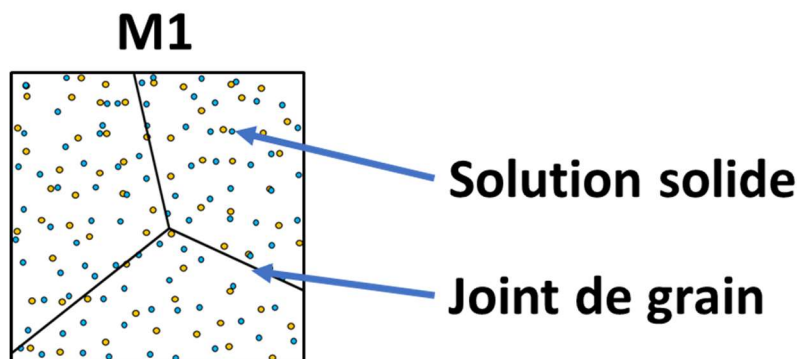


Figure 39 : Schématisation de la microstructure hypertrempée. Les éléments en solution solide sont représentés par des points jaunes et bleus.

2.2 Elaboration des microstructures modèles

2.2.2 Vieillissement 800°C 24h : Microstructure Vieillie M3_V

Les traitements de vieillissement à haute température permettent de faire précipiter les solutés qui ont été remis en solution solide suite à l'hypertrempe.

Du fait de la très faible densité de défauts, il y a très peu de sites de germinations disponibles. La germination des précipités, principalement des carbures, se fait alors préférentiellement aux joints de grains sous forme grossière.

Ces précipités sont de taille micrométrique et leur localisation aux joints de grains fait que ces précipités n'ont qu'un très faible effet direct sur la résistance au gonflement. La comparaison avec la microstructure hypertrempée M1 permet de mettre en évidence les effets de la solution solide.

La microstructure **M3_V** correspond ainsi à une microstructure recristallisée avec une densité de dislocations de 10^{13}m^{-3} et une solution solide épuisée de ses éléments stabilisants.

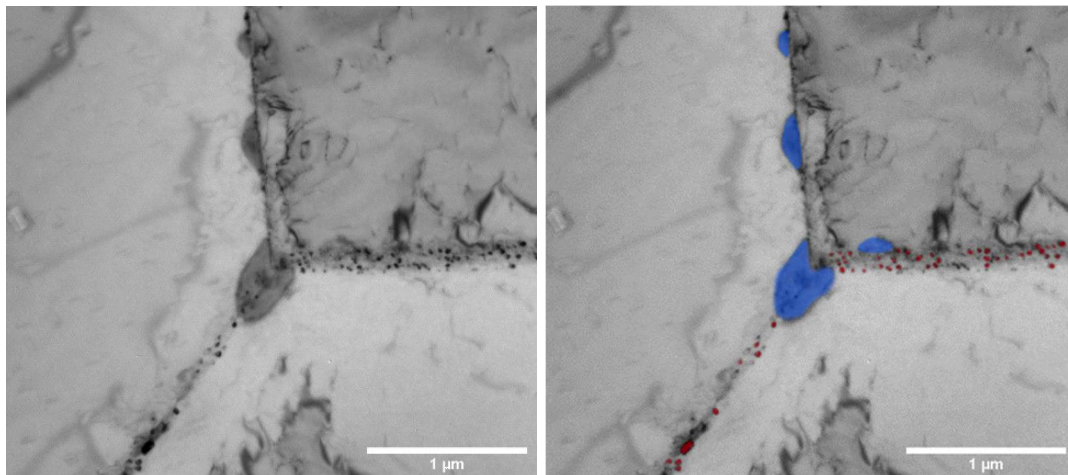
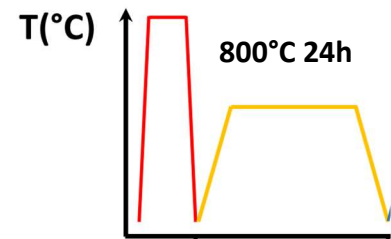


Figure 40: Mise en évidence de la précipitation de $M_{23}C_6$ (en bleu à droite) et de TiC (en rouge) au niveau des joints de grains pour les microstructure vieilles. Cliché MET original issu de [40].

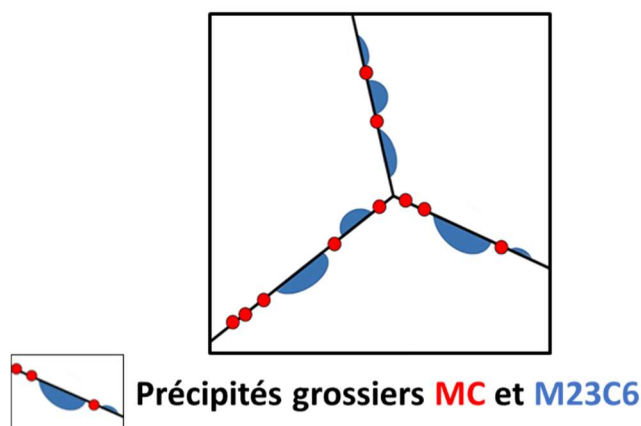


Figure 41 : schématisation de la microstructure vieillie M3_V

2.2 Elaboration des microstructures modèles

2.2.3 Traitement mécanique (écrouissage à 20%) : Microstructures M2 et M3_Ve

Le traitement d'écrouissage permet de saturer la matrice austénitique en dislocations avec des valeurs de densité de dislocations proches de $10^{15}/m^3$ classiques des aciers austénitiques.



En fonction de l'état microstructural avant l'écrouissage nous avons donc :

M2 : Microstructure hypertrempée + écouissage. Cette microstructure est saturée en dislocations et un maximum d'éléments d'additions est dissous dans la solution solide. Comme la microstructure M1, environ 50% du titane et 33% du niobium est présent en solution solide.

M3_Ve : Microstructure vieillie + écouissage. Cette microstructure est saturée en dislocations et la solution solide est épuisée en éléments stabilisants.

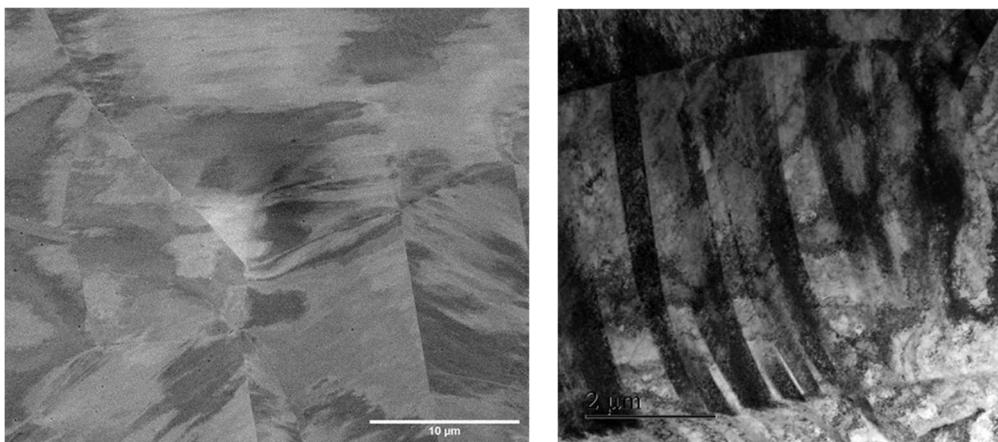


Figure 42 : Clichés MEB (a) et MET (b) de la microstructure M2.

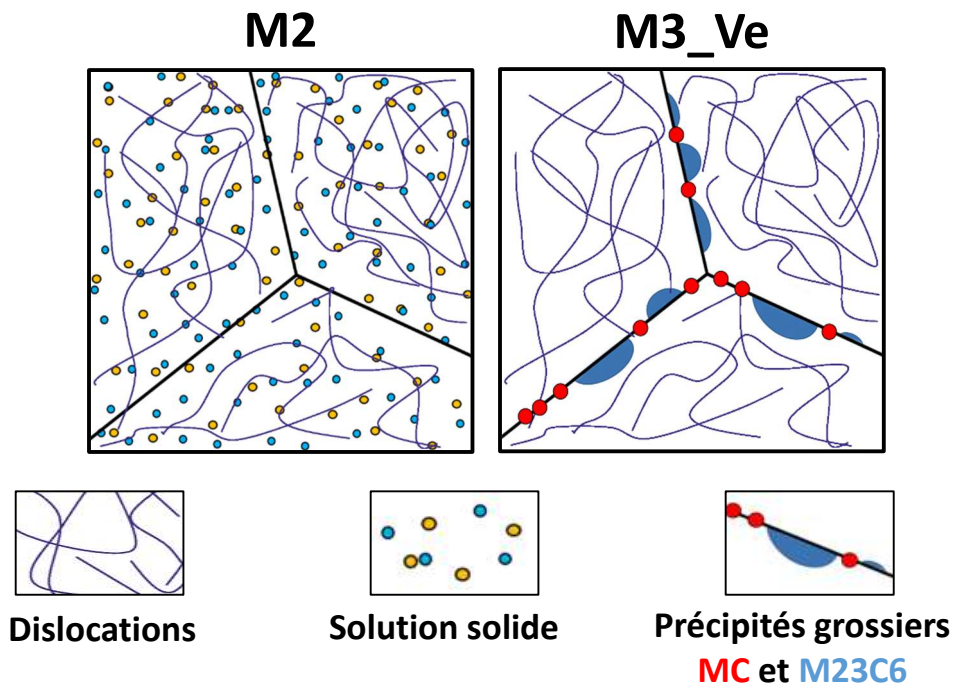


Figure 43: Schéma des microstructures M2 et M3_Ve.

2.2 Elaboration des microstructures modèles

2.2.4 Traitement thermique nano précipités : Microstructure M6

Il s'agit d'un autre traitement composé par : hypertrempe 2 min à 1140°C puis trempe à l'air. Ecouissage à 20% de réduction d'épaisseur. Traitement thermique à 650°C pendant 50h.

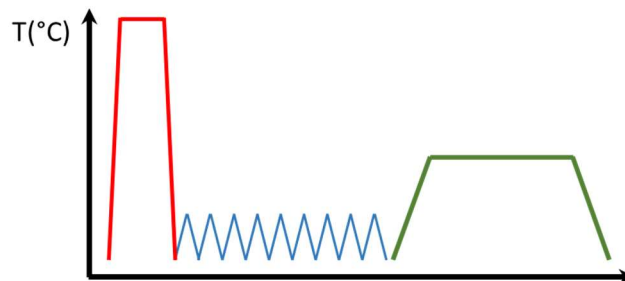


Figure 44: cycle thermomécanique pour générer une population de MC de taille nanométrique

Pour former une population nanométrique de précipités MC, il faut avoir la conjugaison d'une forte densité de sites de germination de solutés en solution solide ce qui est le cas de la microstructure M2. Un traitement thermique est réalisé à 650°C pendant 50h ce qui permet au carbone d'être piégé par le titane au niveau des dislocations et de former un fin réseau de nano carbures. Ces précipités peuvent servir de point d'ancrage pour les dislocations et limiter les effets de restauration et de recristallisation sous irradiation.

A priori, une petite fraction des dislocations introduites lors de l'écrouissage initial est restaurée par rapport à l'état M2. La densité de dislocations mesurée par MET a été estimée à $7.10^{14}m/m^3$ sur la base de quelques échantillons, mais n'a pas fait l'objet d'une étude statistique.

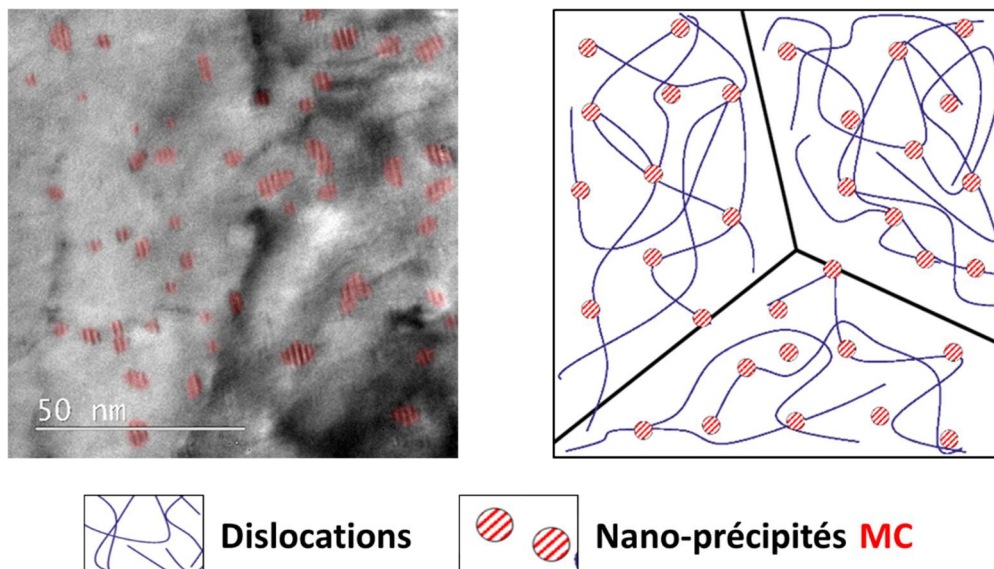


Figure 45 : Cliché MET de la microstructure M6 (L50) avec une forte densité de dislocations et de nanoprecipités. Les nano précipités, visibles par leur franges de Moiré à gauche, ont été mis en évidence par la colorisation de l'image.

2.2 Elaboration des microstructures modèles

2.2.5 Synthèse des microstructures modèles

La Figure 46 synthétise les 5 microstructures modèles M* qui seront utilisés dans les chapitre suivants.

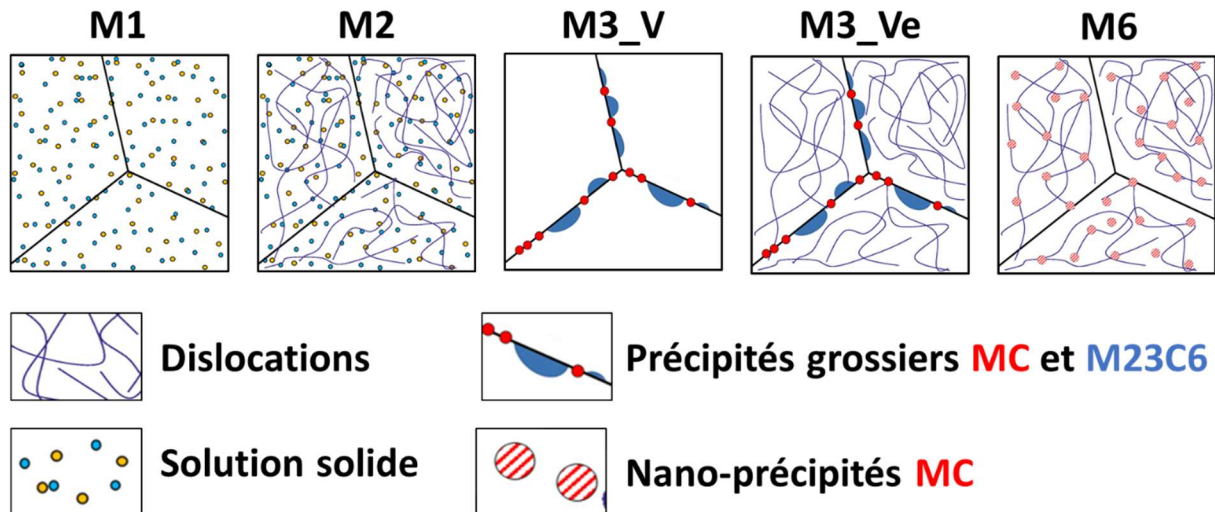


Figure 46 : Illustration des microstructures modèles.

Le Tableau 3 est une synthèse qualitative des caractéristiques microstructurales des différentes microstructures modèles.

	M1	M2	M3Ve	M3V	M6
Densité de dislocations	0 10^{13}	1 10^{15}	1 10^{15}	0 10^{13}	1 $7 \cdot 10^{14}$
Densité précipités nanométriques	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	1 10^{22}
Solution solide	1	1	0	0	0

Tableau 3 : valeurs de paramètres microstructuraux (0 : faible ; 1 : fort) dans les différentes microstructures modèles.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

2.3 CARACTERISATION DES MICROSTRUCTURES MODELES

2.3.1 Caractérisation des microstructures par Diffraction des Rayons X – ligne DiffAbs

Des caractérisations des microstructures issues de différents vieillissements thermiques ont été réalisées par diffraction des rayons X (DRX) sur la ligne de lumière synchrotron Soleil DiffAbs. Cette ligne propose un grand nombre de techniques expérimentales pour la caractérisation des matériaux. Elle offre la possibilité de coupler la diffraction de rayons X, la fluorescence et l'absorption X ce qui permet d'assurer que l'ensemble des mesures se font dans des conditions expérimentales totalement identiques. Il est également possible de réaliser des mesures rapides lors de traitement thermique à haute température et de réaliser des caractérisations In situ de la précipitation. La ligne de lumière DiffAbs s'adresse à de nombreux secteurs de recherche académique et appliquée parmi lesquels la science des matériaux et la physico-chimie y tiennent une place prépondérante.

2.3.1.1 Suivi in situ de la précipitation hors irradiation

Un suivi par diffraction des rayons X (DRX) de la précipitation in-situ lors d'un traitement thermique à haute température a été réalisé à l'aide du détecteur XPAD sur un domaine angulaire allant de 14° à 44° en configuration $\theta/2\theta$ avec une énergie de 18.7 keV ($\lambda=0.663017$ Å).

Les microstructures initiales sont hypertrempées et écrouies (M2). En principe cette microstructure présente quelques précipités primaires, elle est saturée en dislocations et les éléments d'additions sont dissous dans la solution solide. Les spectres DRX montrent donc la contribution de la matrice austénitique et des précipités primaires de la microstructure.

Le traitement thermique à haute température permet de faire précipiter les éléments présents dans la solution solide. La température du plateau de 650°C a été choisie pour correspondre au traitement thermique M6 de formation des nano précipités, est également une température proche des conditions d'irradiations de ce travail. Les scans ont été réalisés en continu lors du cycle thermique représenté Figure 47. Le temps séparant deux scans est de 180s.

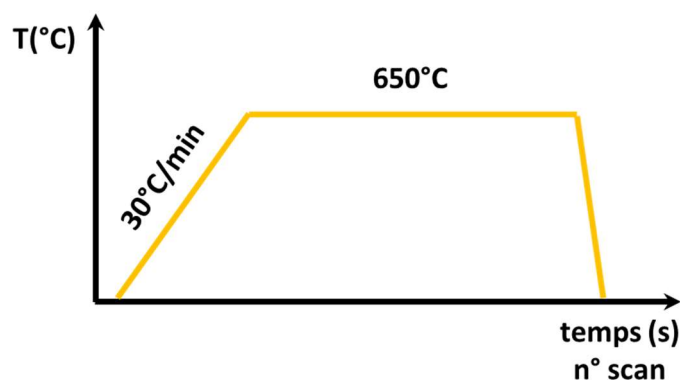


Figure 47 : Cycle thermique suivi pour les caractérisations DRX in situ.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

La température choisie correspond au traitement thermique pour former les nano précipités MC. Du fait de la très petite taille de ces phases, les pics correspondants devraient être très élargis et proche du bruit de fond. Au contraire, les phases plus grossières devraient générer des pics de diffractions plus fins et mieux définis.

La Figure 48 présente une vue 3D des scans successifs pour la nuance L49 (15/15 Nb). On constate l'apparition et la croissance de pics de diffraction confirmant l'apparition d'une précipitation secondaire. On peut observer un décalage de l'ensemble des pics en début et en fin d'expérience, cela correspond au décalage provoqué par l'évolution de la température du matériau. Il n'a pas été possible de réaliser des mesures pendant la montée et la descente en température entre 20°C et 650°C pour chaque nuance du fait de difficultés expérimentales.

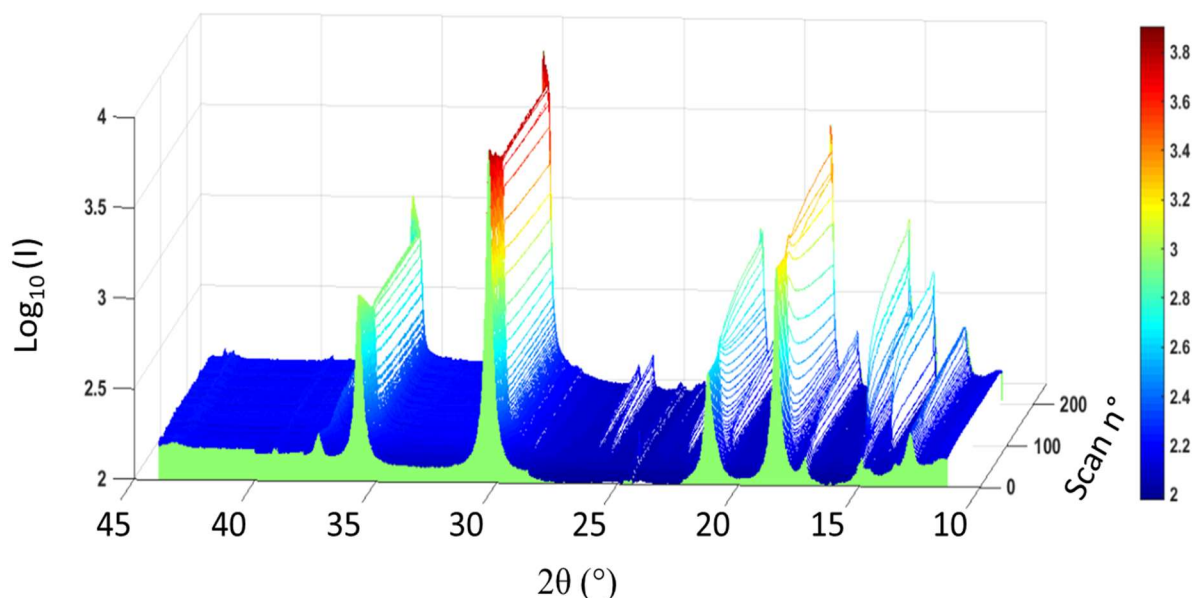


Figure 48 : Vue 3D de l'ensemble des scans de diffraction 2θ de l'échantillon 15/15Nb réalisés in situ. La superposition des scans successifs permet d'observer l'évolution des pics de diffraction provoquée par la précipitation à 650°C. (ligne DiffAbs).

Les trois figures suivantes présentent les ensembles des scans pour les trois nuances. Le début et la fin de palier isotherme à 650°C est symbolisé par une ligne rouge. L'intervalle de temps entre deux scans est de 180s.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

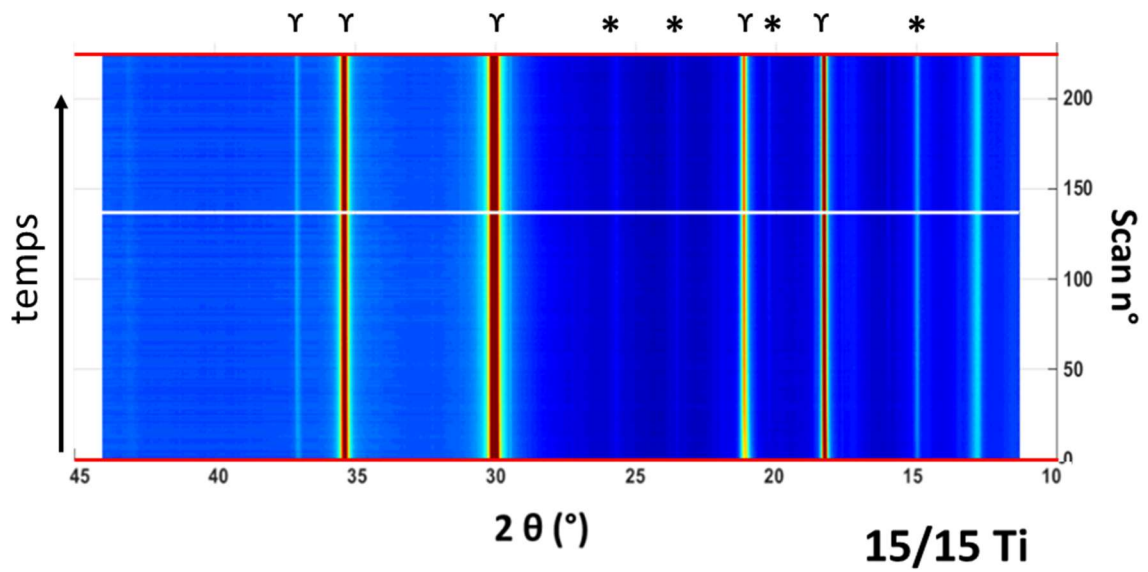


Figure 49 : Mesures In-situ de la nuance L50 (15/15 Ti)

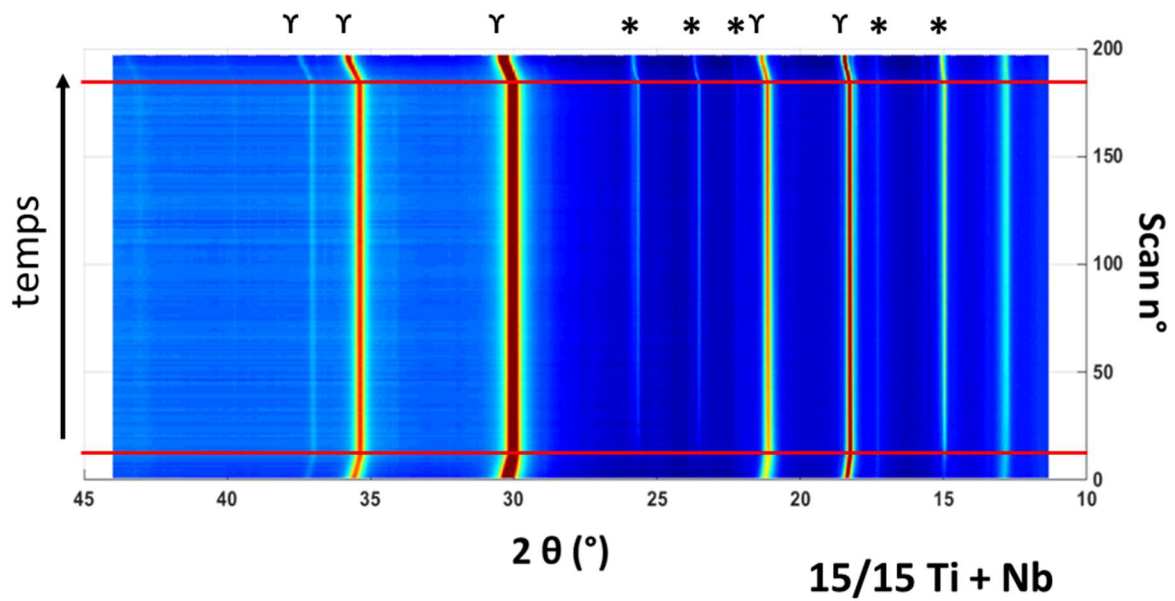
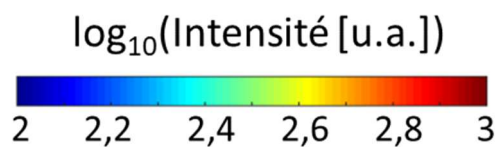


Figure 50 : Mesures In-situ de la nuance L46 (15/15 Ti + Nb)



2.3 Caractérisation des microstructures modèles

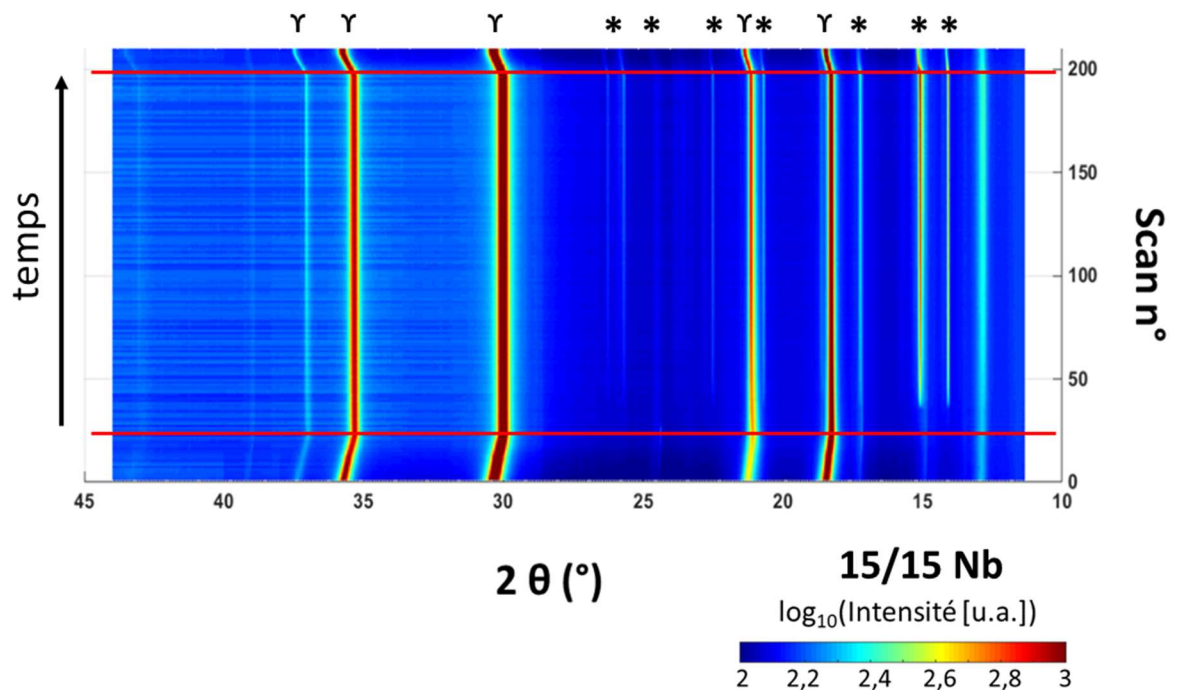


Figure 51 : Mesures In-situ de la nuance L49 (15/15 Nb)

On constate que la nuance stabilisée au titane n'évolue que très peu et assez peu de pics secondaires apparaissent lors du traitement thermique. La formation de nano précipités lors de ce traitement thermique ne fait pas de doute mais il n'a pas été possible d'isoler leur contribution du fait de l'étalement des pics de diffraction associés aux MC qui restent proches du bruit de fond et de la superposition de multiples pics de diffraction d'autres phases et de MC primaires.

Dans le cas de la nuance L49 (15/15Nb), et dans une moindre mesure de la nuance L46 (15/15 Ti+Nb), des pics de diffractions secondaires apparaissent lors du traitement thermique (indiqués par des *). Du fait de la morphologie des pics on peut s'attendre à ce que leur origine soit dû à la formation de phases plus grossières que les nano précipités MC.

Ces résultats montrent que l'évolution des microstructures contenant du niobium est moins prévisible avec l'apparition de phases grossières qui est l'indice d'une stabilisation a priori moins bonne.

2.3.1.2 Caractérisation d'échantillons vieillis thermiquement

Des caractérisations par diffraction des rayons X ont été réalisées en configuration $\theta/2\theta$ sur les différentes microstructures modèles des trois nuances de cette étude et des vieillissements thermiques. L'ensemble des spectres DRX sur des échantillons vieillis thermiquement caractérisés lors de cette campagne sont donnés à l'URL suivante : <https://tinyurl.com/y3gpbmcc> [93]

Les microstructures modèles M1 (SA, recristallisé), M2 : (SA+ CW) et des vieillissement thermiques 500h à partir de l'état M2 aux températures $T = 500, 600, 650^\circ\text{C}$ sont présentés dans cette partie.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Il n'a pas été jugé pertinent de réaliser des analyses quantitatives du fait de la diversité des phases présentes dans nos matériaux et de la superposition de nombreux pics de diffraction. L'étude des pics de diffraction de la matrice austénitique permettent d'obtenir des informations microstructurales des différents échantillons. Les Figure 52 et Figure 53 présentent le pic de diffraction associé au plan (220) de l'austénite pour les trois nuances.

La largeur des pics de diffraction résulte de la convolution de plusieurs contributions : système instrumental, taille des domaines cohérents et des micros contraintes ce qui en fait un indicateur des évolutions générales de nos échantillons. Les calculs ont été faits à partir des spectres non corrigés de la fonction instrumentale ou des micro contraintes mais ils ont été réalisés de manière systématique pour une procédure expérimentale donnée. L'ensemble des échantillons a été préparé de la même manière et caractérisés lors d'une campagne de caractérisation DRX avec des conditions d'acquisition identiques.

La formule de Scherrer qui permet de relier la largeur de pics de diffraction à la taille des domaines cohérents de diffraction qui ont la même structure qu'un monocristal. Dans cette étude, cette formule a été utilisée de manière qualitative pour estimer l'évolution de la taille des domaines diffractant de la matrice austénitique dans les trois nuances lors de traitement thermique long (500h). La formule de Debye-Scherrer est donnée équation 1.5, la constante de Scherrer K a été prise égale à 0.89 [94].

$$B(2\theta) = \frac{K\lambda}{L \cdot \cos(\theta)} \quad 2.1$$

$B(2\theta)$	La largeur de raie en radians
K	La constante de Scherrer
λ	La longueur d'onde monochromatique
L	La taille moyenne des domaines cohérents

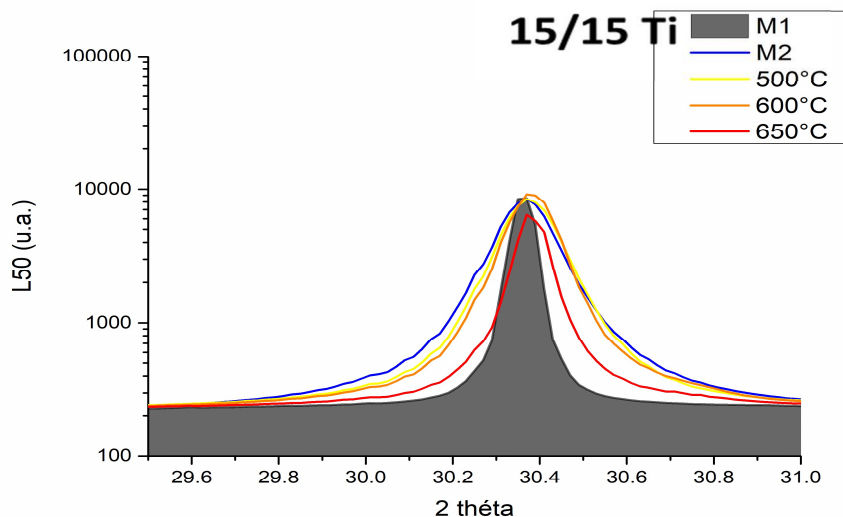


Figure 52 : Evolution du pic associé au plan (220) de l'austénite pour différentes microstructures et vieillissements thermiques de 500h entre 500°C et 650°C (nuance L50 (15/15 Ti)).

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

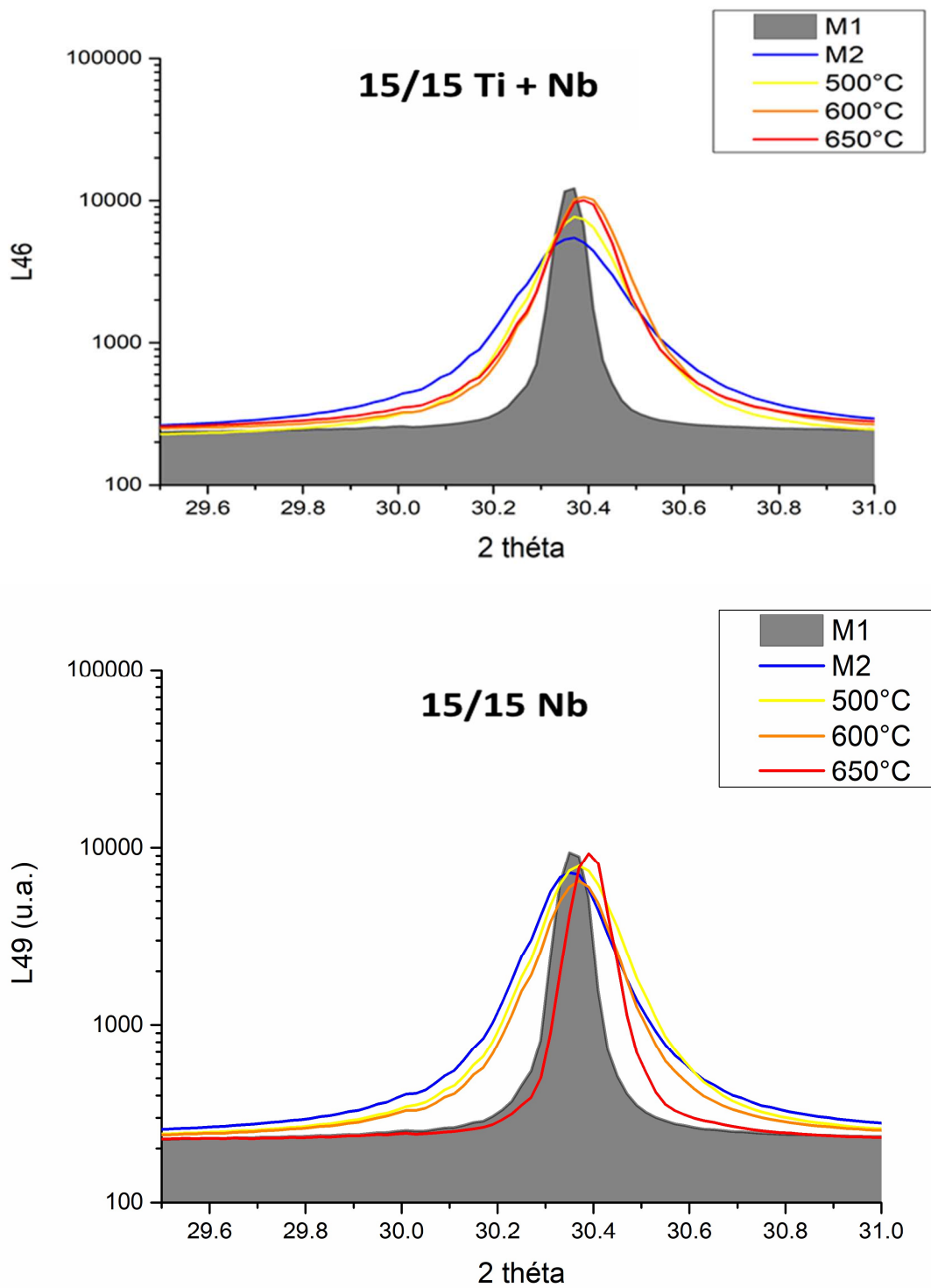


Figure 53 : Evolution du pic associé au plan (220) de l'austénite pour différentes microstructures et vieillissements thermiques de 500h entre 500°C et 650°C (nuances L46(15/15 Ti + Nb) et L49(15/15 Nb)).

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Les pics de diffraction de la matrice austénitiques ont été étudiés en mesurant la largeur intégrale du pic, soit le rapport de la surface nette divisée par la hauteur nette du pic de diffraction. Le Tableau 4 résume les tailles des domaines cohérents de diffraction L1 et L2 qui ont été estimées sur les pics de diffraction des plans (220) et (311) respectivement. La moyenne de ces résultats est représentée graphiquement Figure 54.

Les mesures de la position, de la surface et de la hauteur des pics sont données en annexe C.

L50	L1 (pic 30,5)	L2 pic (35,6)	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	9,01	9,83	9,42
M2 (CW)	2,71	3,96	3,34
500°C	2,82	4,12	3,47
600°C	3,12	4,64	3,88
650°C	5,56	6,90	6,23

L46	L1 (pic 30,5)	L2 pic (35,6)	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	9,10	10,59	9,85
M2 (CW)	2,09	3,04	2,56
500°C	2,82	4,06	3,44
600°C	3,32	4,63	3,97
650°C	3,34	4,79	4,07

L49	L1 (pic 30,5)	L2 pic (35,6)	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	8,22	9,58	8,90
M2 (CW)	2,55	3,89	3,22
500°C	2,78	4,07	3,43
600°C	2,80	4,34	3,57
650°C	7,03	8,21	7,62

Tableau 4 : Estimations de la taille moyenne des domaines cohérents pour différentes microstructures. La valeur a été estimée avec la formule de Scherrer pour différents états métallurgiques et vieillissement thermiques de 500h des trois nuances étudiées. Les mesures ont été réalisées sur deux pics de la matrice austénitique.

La Figure 54 montre les effets des traitements thermomécaniques sur la taille moyenne de domaine cohérent des différents échantillons. L'état recristallisé M1 possède la taille de domaine la plus grande avec des valeurs proches de 9 nm. L'ajout de dislocations par écrouissage réduit fortement cette taille de domaine diffractant qui est alors de l'ordre de 3 nm pour les trois nuances. Les domaines cohérents sont relativement stables lors de traitements thermiques aux températures de 500°C et 600°C mais on constate de nettes différences entre les trois nuances pour le traitement à 650°C. L'augmentation de la taille moyenne des domaines est certainement liée à la restauration partielle des dislocations des échantillons et une relaxation des contraintes internes. La nuance stabilisée au niobium est celle dont la taille de domaine cohérent augmente le plus et se rapproche de celle l'état recristallisé.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

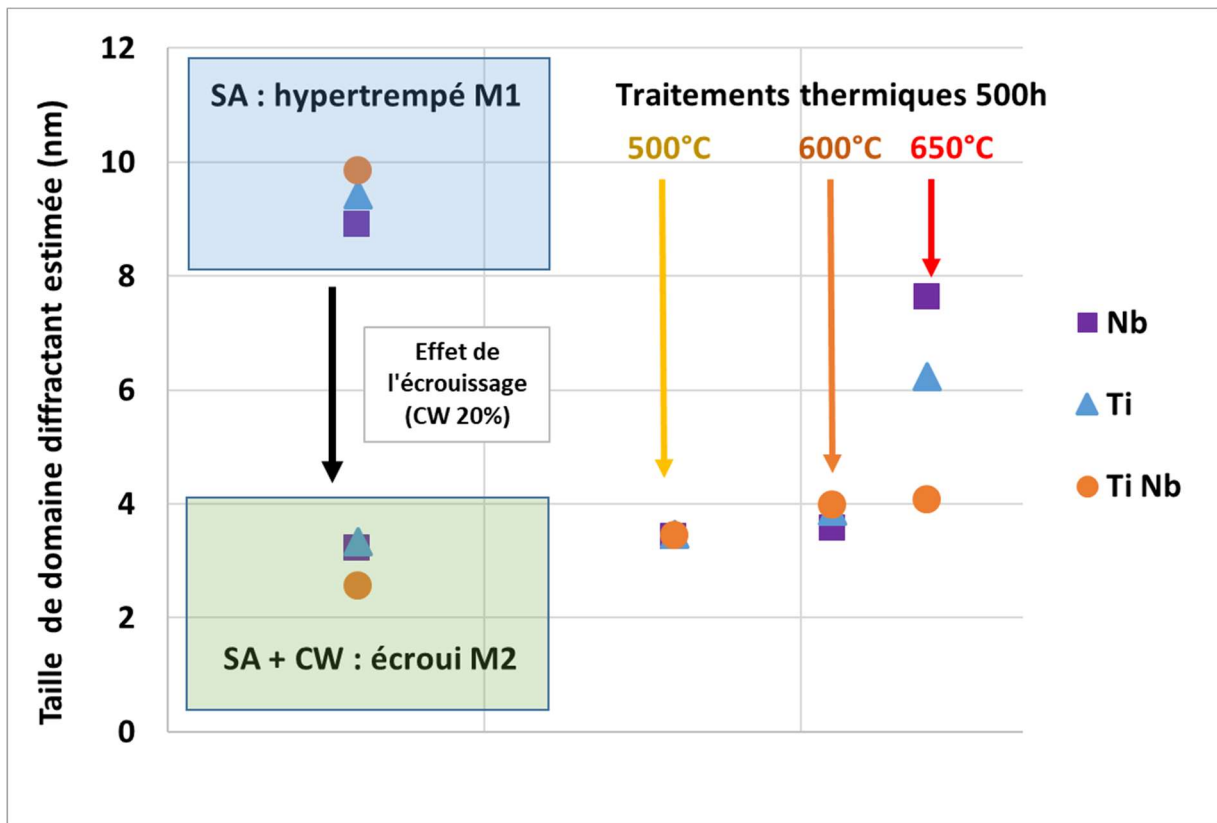


Figure 54 : Evolution de la taille des domaines cohérents de diffraction en fonction de l'état métallurgique et de traitements thermiques d'une durée de 500h.

2.3.1.3 Bilan des caractérisations par diffraction des rayons X

Les expériences in-situ ont montré que les nuances contenant du Nb ont d'avantages de précipitation secondaires. Un effet potentiel de la stabilisation au Nb est donc de favoriser l'apparition de phases grossières et de rendre l'évolution de la microstructure plus imprévisible.

Cela peut s'expliquer par le fait que la composition chimique a initialement été déterminée pour une nuance stabilisée au Ti. Remplacer le Ti par du Nb nécessite probablement des ajustements du cycle d'élaboration, avec une modification de la température d'hypertrempe par exemple, pour obtenir un rapport de stabilisation optimal.

Les expériences ex-situ ont montrés que l'évolution de la taille des domaines diffractant de l'austénite n'est pas équivalent dans les trois nuances à 650°C. Ces températures étant proches des conditions d'irradiation utilisées par la suite, cela pourrait expliquer un écart de comportement des nuances vis-à-vis du gonflement sachant que les tailles de domaines diffractant dépendent des contraintes internes et de réseau de dislocations dans le matériau.

La nuance au Nb qui se comporte le moins bien vis-à-vis de la résistance au gonflement est aussi celle qui semble le moins stable par traitement thermique.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

2.3.2 Caractérisation par diffraction des neutrons aux petits angles (DNPA) : LLB-Orphée

La diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA) permet de sonder la matière à des échelles spatiales allant de 0.5 à 50nm. Cette technique peut être utilisée pour déterminer les grandeurs moyennes qui caractérisent la forme et la taille des objets qui diffusent. Les principes de cette technique peuvent être trouvés dans [95],[96], [97].

L'expérience consiste à envoyer un faisceau de neutrons quasi parallèle et de longueur d'onde moyenne λ au travers d'un échantillon. Un détecteur permet de mesurer la variation d'intensité diffusée $I(q)$. La grandeur physique étudiée est le vecteur de diffusion q dont l'expression est proportionnelle au sinus de l'angle de diffusion et à l'inverse de la longueur d'onde.

$$q = \frac{4\pi * \sin\theta}{\lambda} \quad (2.2)$$

L'analyse de la courbe de diffusion $I(q)$ nécessite deux conditions :

1. le domaine de q doit être du même ordre de grandeur que celui de l'inverse des distances à mesurer. Sachant que la longueur d'onde des neutrons est comprise entre 0.2 et 2 nm, les valeurs de q correspondant à des tailles caractéristiques comprises entre 0.5 et 50 nm sont accessibles avec des angles de diffusion θ inférieurs à 10° .

2. L'intensité diffusée doit être mesurable, ce qui nécessite l'existence d'un contraste entre l'objet étudié et le milieu qui l'entoure. La probabilité qu'un neutron soit diffusé est caractérisée par une longueur de diffusion b et dépend de la nature des atomes, mais aussi des isotopes.

De précédentes caractérisations d'échantillons vieillis thermiquement avaient été réalisées lors de la thèse de B Rouxel, cette base de données a été réorganisée et enrichie avec de nouvelles températures de traitements thermiques (accessible à l'url <https://tinyurl.com/yxc5st9z> [98]). Les courbes de diffractions ont été corrigées vis-à-vis du bruit de fond et normalisées par le flux du faisceau incident, la transmission et l'angle solide. Les valeurs ont ensuite été adimensionnées grâce à un plexiglas étalon.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Pour étudier les courbes DNPA, il faut calculer la longueur de diffusion de la matrice et des phases b_{phase} en présence. Ces longueurs de diffusion peuvent être calculées à partir de la longueur de diffusion de chaque élément b_{el} et de leur teneur en pourcent atomique dans la phase concernée avec :

$$b_{phase} = \sum_{el} [X_{el} * b_{el}] \quad 2.3$$

Où b_{el} est la longueur de diffusion de chaque élément et X_{el} sa teneur atomique dans la phase concernée.

Des hypothèses simplificatrices fortes ont été nécessaires sur la chimie des différents précipités. La composition chimique des différentes phases peut être connue par des analyses EELS ou SAT. Des variations sensibles ont été observées en fonction des matériaux et des conditions d'irradiation. On supposera dans la suite que les précipités des différentes nuances sont stœchiométriques avec 10% atomique de molybdène remplaçant le ou les éléments stabilisants.

Phase	Fe	Ni	Cr	Ti	Nb	C	Mo	b_{phase}
Matrice 15/15	70	14	16					0,8638
(Ti, Mo) C				40		50	10	0,2620
(Ti, Nb, Mo) C				20	20	50	10	0,4719
(Nb, Mo) C					40	50	10	0,6817

Tableau 5 : Composition retenue en %atomique des nano précipités.

Les observations MET montrent que les précipités sont généralement des ellipsoïdes. Une fois la forme de l'objet identifiée, il faut effectuer des ajustements des intensités diffusées avec des modèles de facteurs de forme pour déterminer les paramètres de l'objet. On supposera que la distribution des nano-précipités est une population gaussienne d'ellipses. La section efficace I de diffusion nucléaire peut s'écrire de la manière suivante :

$$I(q) = f_v * (\rho_p - \rho_m)^2 * F(q, R, e) \quad 2.4$$

$$\text{Avec } A = f_v * (\rho_p - \rho_m)^2 \quad 2.5$$

$$\text{Et } \rho_i = b_{el}/V_{at} \quad (i=p \text{ ou } m) \quad 2.6$$

f_v la proportion volumique

ρ est la densité de longueur de diffusion des particules p ou de la matrice m .

F est une fonction gaussienne

R le rayon des nano-précipités et e le facteur d'ellipse

ρ est la densité de longueur de diffusion des particules p ou de la matrice m .

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

2.3.2.1 Stabilité des microstructures vieilles : M3V M3Ve et M6

Les courbes utilisées dans cette partie sont tirées de la base de données issues de la caractérisation par DNPA regroupant 105 conditions nuances/traitements thermomécaniques différents. Au total 25 nouvelles mesures (états standards, traitement thermique à plus basse température, plan expérience Taguchi) ont été ajoutées en complément des mesures réalisés par Rouxel [40].

Plus la microstructure contient un nombre important de nano-précipités, plus l'intensité diffusée est importante. Par ailleurs, plus la population de nano-précipités est petite, plus les neutrons vont diffuser avec des grands angles, et donc des vecteurs q importants. L'observation de la courbe $\ln(I)=f(q)$ permet d'observer la signature de la nano précipitation.

La comparaison des courbes de DNPA Figure 55 d'échantillons vieillis à 650°C (en rouge et jaune) avec un échantillon hypertrempé (bleu) permet de visualiser l'évolution de la courbe en présence de nano précipités. Cette contribution est visible sous forme d'une bosse dans la zone des grands q de la courbe. On remarque que les intensités évoluent très légèrement entre 50h et 2000h à 650°C ce qui signifie que la population de précipité évolue peu après 50h à 650°C.

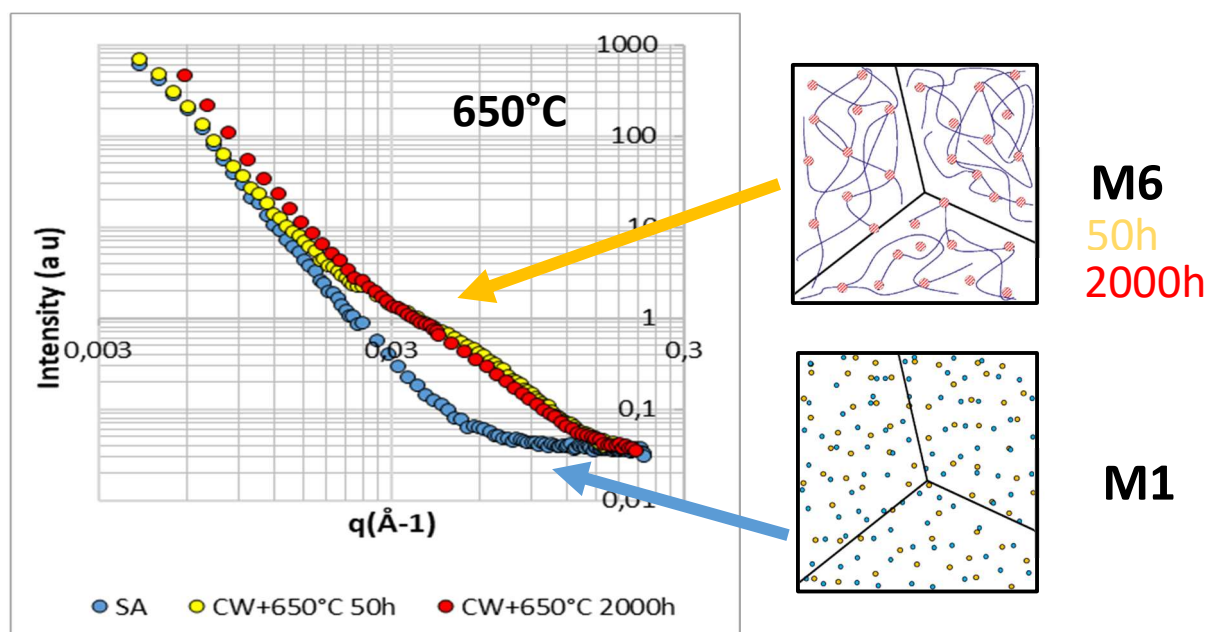
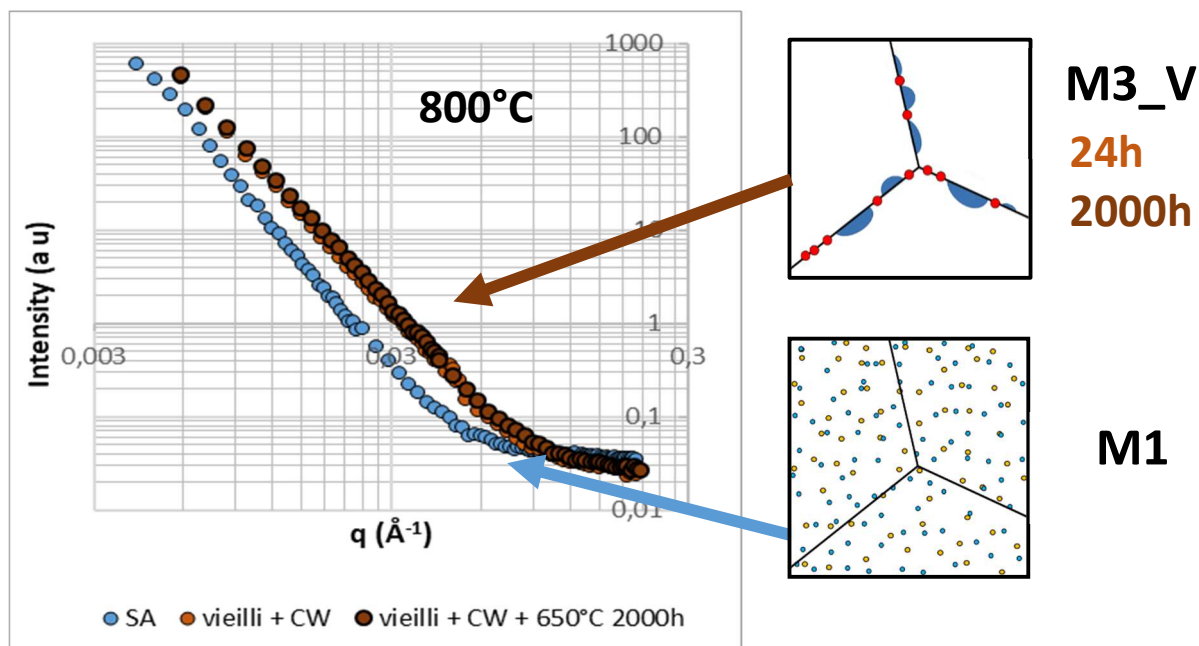


Figure 55 : Comparaison des courbes de DNPA d'un échantillon hypertrempé M1 (courbe bleue) et de deux échantillons vieillis à 650°C pendant 50h(courbe jaune) et 2000h (courbe rouge)

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

La comparaison des courbes de DNPA Figure 56 d'échantillons pré vieillis à 800°C pendant 24h montre également que la microstructure reste stable pendant un traitement thermique de 2000h à 650°C. Il ne semble pas y avoir de contribution de nano précipités dans les échantillons vieillis. La différence observée entre la microstructure hypertrempee (en bleu) et les microstructures pré vieillis à 800°C (en marron) est liée à la contribution des précipités grossiers visibles dans le domaine de Porod à petit q .



2.3 Caractérisation des microstructures modèles

2.3.2.2 Plan d'expérience Taguchi - Capacité de formation de nanos MC

L'effet d'un paramètre sur une réponse, par exemple la température d'hypertrempe sur la taille de grain, peut se représenter sur une courbe de dimension 1. Lorsque l'on commence à étudier un plus grand nombre de paramètres, la dimension du problème augmente également. Il devient alors difficile d'étudier et de représenter de façon simple l'espace des solutions qui peut être de dimension n.

Taguchi est l'auteur d'une méthode de stratégie combinatoire expérimentale des paramètres de fabrication qui permettent d'optimiser les plans d'expériences pour étudier l'influence de différents paramètres (possiblement de différentes natures) sur une réponse voulue. La réponse est une grandeur mesurable que l'on souhaite optimiser. Les détails de la méthode Taguchi peuvent être trouvés dans [99].

Pour cela, Taguchi propose de faire varier les sous espaces de paramètres de façon orthogonale pour minimiser le nombre d'expériences nécessaires. Il propose un ensemble de plans d'expériences tabulés, appelées tables de Taguchi, permettant de réaliser un criblage expérimental.

Dans le cas de cette étude, la réponse étudiée est la formation de nano précipités que l'on mesure par DNPA. Nous nous sommes intéressés à la capacité de formation de nano précipités de nos trois nuances en fonction des traitements thermomécaniques précédant le traitement thermique à 650°C. Les paramètres choisis pour l'étude sont : la nuance, l'écrouissage, la température et le temps d'hypertrempe. Les échantillons ont ensuite tous été traités thermiquement à 650°C pendant 50h pour faire précipiter la population de nano précipités.

La caractérisation des précipités a été réalisée par DNPA, plus adaptée pour l'étude des nano précipités. Les paramètres sont considérés indépendants par hypothèse simplificatrice qui permet de réduire le nombre d'essais et de choisir la table de Taguchi L9 (Figure 57). Il est possible de prendre en compte les effets corrélés mais il aurait été nécessaire de générer un volume d'essais plus conséquent.

	1 - Faible	2 - Moyen	3 - Fort
Rapport Nb/Ti	0%Nb 100%Ti	50%Nb 50%Ti	100% Nb
Température SA	1050°C	1150°C	1200°C
Écrouissage	5%	20%	30%
Temps SA	10s	2min	10min

	P1	P2	P3	P4
E1	1	1	1	1
E2	1	2	2	2
E3	1	3	3	3
E4	2	1	2	3
E5	2	2	3	1
E6	2	3	1	2
E7	3	1	3	2
E8	3	2	1	3
E9	3	3	2	1

Figure 57 : Les différents niveaux de paramètres utilisés pour cette étude sont présentés dans le tableau de gauche. A droite, la table de taguchi L9 qui sert à choisir les niveau de paramètres à associer aux différents paramètres.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Le Tableau 6 présente le plan d'expérience avec les différents niveaux de paramètre pour chacun des 9 essais nécessaires pour la table L9. Trois essais ont été ajoutés pour servir de référence avec des traitements proches de mise en forme proche de l'AIM1.

Echantillon	Stabilisation	Température	Écrouissage	Temps SA (s)
E1	Ti	1050°C	5%	10
E2	Ti	1150°C	20%	100
E3	Ti	1200°C	30%	1000
E4	TiNb	1050°C	20%	1000
E5	TiNb	1150°C	30%	10
E6	TiNb	1200°C	5%	100
E7	Nb	1050°C	30%	100
E8	Nb	1150°C	5%	1000
E9	Nb	1200°C	20%	10
E10	Ti	1200°C	20%	100
E11	TiNb	1200°C	20%	100
E12	Nb	1200°C	20%	100

Tableau 6 : Plan d'expérience suivi pour les essais. Les échantillons E10-12 ont été ajoutés pour servir de référence.

Le choix de la réponse étudiée ici est la surface d'interface équivalente qui correspond aux surfaces précipités/matrices dans un cube de 1cm de côté. Cet indice permet d'avoir une approche intuitive pour comparer les forces de puits dues aux différentes populations de nano précipités. Ces résultats sont donnés dans le Tableau 7.

Echantillon	Rayon	facteur d'ellipse	Fraction volumique	Densité de nano MC	surface équivalente m ² /cm ³
E1	1,5	1	0,03%	2,0E+22	0,57
E2	2	1,5	0,21%	4,2E+22	2,86
E3	2,3	1,4	0,35%	4,9E+22	4,15
E4	1,2	1,2	0,04%	4,2E+22	0,87
E5	2,1	1,4	0,18%	3,3E+22	2,38
E6	2,9	1,5	0,37%	2,4E+22	3,43
E7	1,9	1,4	0,16%	4,0E+22	2,34
E8	2,1	1,4	0,20%	3,6E+22	2,59
E9	2,3	1,4	0,29%	4,1E+22	3,53
E10	2,1	1,4	0,42%	7,8E+22	5,55
E11	2,5	1,4	0,33%	3,6E+22	3,64
E12	2,5	1,4	0,33%	3,6E+22	3,59

Tableau 7 : Résultats du plan d'expérience obtenus à partir de mesures DNPA.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Par hypothèse simplificatrice, les paramètres sont considérés comme indépendants. L'influence d'un niveau de paramètre est donc la moyenne des réponses des essais réalisés avec ce niveau de paramètre. Par exemple, pour calculer la réponse associée à un écrouissage de 5% il faut réaliser la moyenne des réponses des échantillons E1 E6 et E8. Pour l'effet de la température de 1050°C, on calcule la moyenne de E1 E4 E8. L'une des forces de cette approche est qu'un résultat, ici l'essai E8, sert plusieurs fois. La représentation des effets des différents paramètres est donnée Figure 58.

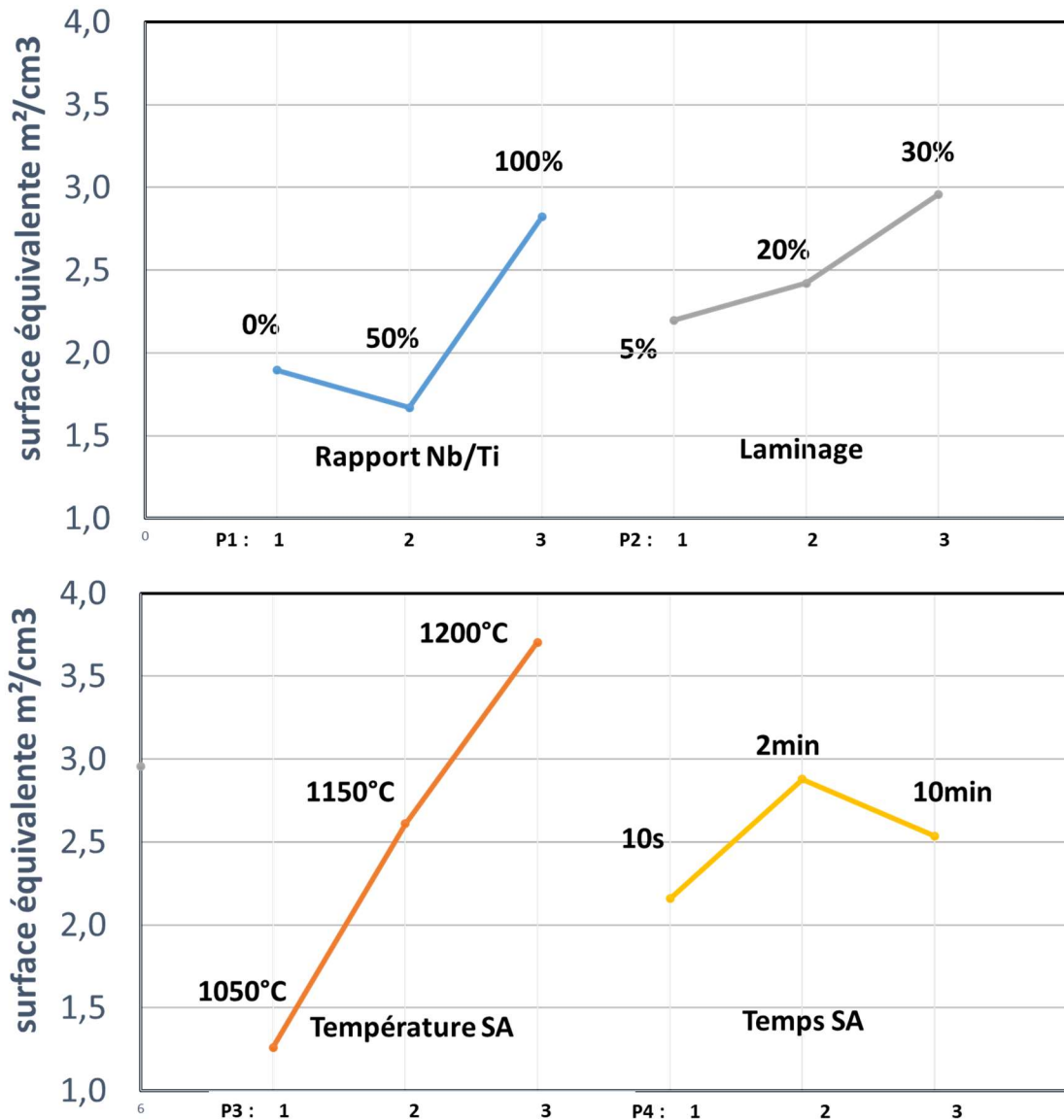


Figure 58 : Evolution de la surface équivalente de nano précipités en fonction des différents niveaux de paramètre.

2.3 Caractérisation des microstructures modèles

Effet du rapport Ti/Nb :

Ici, les résultats obtenus indiquent que le Niobium ne semble pas nuire à la population de nano précipités et semblent indiquer que la nuance 15/15 Nb peut former davantage de nano précipités, ce qui pourrait suggérer une meilleure stabilisation. Ce résultat est surprenant au vu des résultats obtenus au synchrotron. En effet la nuance 15/15 Nb semblait, au contraire être la moins bien stabilisée.

Les essais E10 – E12 ont été réalisés en plus du plan d'expérience. Ces essais correspondent aux trois nuances étudiées avec des conditions de mise en forme proches de l'AIM1. Ils montrent que la nuance au titane est celle qui présente le plus d'interface et une précipitation plus fine. Cette différence est probablement due aux effets croisés des paramètres qui ont été négligés (voir partie suivante).

Effet du laminage :

Le laminage favorise une plus grande densité d'interfaces. Ce résultat était attendu du fait de l'augmentation du nombre de site de germination.

Effet de la température d'hypertrempe :

L'augmentation de la température d'hypertrempe augmente fortement la densité d'interfaces. Ce résultat était attendu car une meilleure remise en solution des solutés permet de former un réseau de nano précipités plus dense.

Effet du temps d'hypertrempe :

Il semble y avoir un optimum de temps d'hypertrempe bien que l'effet du paramètre soit modéré sur la réponse. Ce résultat est surprenant car il n'était pas prévu qu'un temps d'hypertrempe long puisse diminuer le nombre de nano précipités.

2.3.2.2.1 Effets croisés des paramètres et mesure de la réponse

Les paramètres ne sont pas indépendants comme supposés. Il est par exemple attendu que la température d'hypertrempe et le temps de maintien soient en effet corrélés et qu'ils impactent fortement la formation de nano précipités.

L'estimation de la réponse est par ailleurs dépendante d'un des paramètres (rapport Ti/Nb) car la composition chimique des précipités est utilisée pour l'estimation de la fraction volumique des précipités. Le Tableau 8 présente les variations relatives du terme $(\rho_p - \rho_m)^2$ qui est le terme de contraste de densité de longueur de diffusion des précipités par rapport à la matrice et impacte le calcul de la fraction volumique de précipités. On notera l'impact relatif par rapport à l'hypothèse de la présence de 10% atomique de Mo.

2.4 Conclusion du chapitre II

Phases	Nuance	$(\rho_p - \rho_m)^2$	Variation relative du terme de contraste
TiC*	15/15 Ti	0,003528	
(Ti, Mo) C	15/15 Ti	0,002434	-31%
(Ti, Nb) C*	15/15 Ti Nb	0,001261	
(Ti, Nb, Mo) C	15/15 Ti Nb	0,000955	-24%
NbC*	15/15 Nb	0,000197	
(Nb, Mo) C	15/15 Nb	0,000205	4%

Tableau 8 : Comparaison des précipités stœchiométriques (noté avec une *) ou contenant 10% atomique de Mo.

Cette dépendance est susceptible d'induire des erreurs car la mesure de la réponse n'est pas indépendante de la nuance considérée. Dans le cas de la nuance stabilisés au Niobium l'hypothèse de remplacement d'une partie du Nb par du Mo impacte faiblement le terme de contraste avec une variation relative de 4%. En revanche la teneur de 10% atomique de Mo modifie fortement le terme de contraste dans les nuances stabilisées avec du titane.

2.4 CONCLUSION DU CHAPITRE II

Ce chapitre présente des microstructures modèles qui ont été générées et caractérisées en fonction des populations de puits de défaut de ces dernières : solution solide, précipitation, dislocations. Les opérations de laminages ont été réalisées au laboratoire LTMEX du CEA.

Une des caractéristiques majeures des aciers austénitiques stabilisés est leur capacité à former des nano précipités. Leur formation est censée inhiber la précipitation d'autres phases secondaires potentiellement néfastes pour le gonflement. Des analyses par diffraction des rayons X montrent que les trois nuances de l'étude dans l'état de référence M2 (hypertrempé écroui) n'ont pas un comportement équivalent à 650°C. L'ajout de Nb semble favoriser l'apparition de phases secondaires grossières à des températures qui correspondent à la température de traitement thermique utilisée pour former les nano précipités et qui est proche des températures d'irradiations de ce travail.

Un plan d'expérience de type Taguchi a été réalisé pour étudier les effets de la nuance, du traitement de remise en solution et de l'écrouissage sur la formation des nano précipités. Cela a permis de montrer qu'il était possible de modifier la formation de ces nano précipités ce qui ouvre des opportunités d'optimisation de ces derniers (fraction volumique, densité, taille). Il faut noter que globalement nos trois nuances présentent des densités de nano précipités supérieure à 10^{22} précipités/m³. L'analyse des courbes DNPA nous confirment que les microstructures vieilles sont stables lors de long traitements thermiques à haute température.

La connaissance des évolutions microstructurales a permis de mieux comprendre les nuances disponibles pour ce projet et de proposer pour la suite d'étudier des microstructures modèles dont on connaît le comportement.

Chapitre III

Développement d'une Méthodologie d'étude du gonflement au MEB assistée par IA

*Je fais des petits trous, des petits trous, encore des petits trous
Des petits trous, des petits trous, toujours des petits trous
Des petits trous, des petits trous !*

Le poinçonneur des Lilas,
Serge Gainsbourg
1959

L'objectif de ce chapitre est de présenter une nouvelle approche pour étudier le gonflement sous irradiation aux ions. Cette approche repose sur l'acquisition de clichés haute définition au MEB et traités par un algorithme de traitement d'image par apprentissage supervisé. Cette approche permet de faciliter les quantifications de cavités et d'obtenir une statistique bien meilleure que les méthodes actuelles.

3.1 La problématique de l'étude du gonflement

3.1 LA PROBLEMATIQUE DE L'ETUDE DU GONFLEMENT

3.1.1 Échelle de mesure du gonflement et des cavités

Le gonflement est un phénomène macroscopique dont l'origine s'explique au niveau atomique. Une des problématiques de l'étude du gonflement est donc le choix de l'échelle à adopter pour l'étudier.

Il est possible de mesurer macroscopiquement le gonflement par variation de masse volumique [100] ou par la déformation géométrique des gaines [101]. Ces mesures permettent d'avoir une valeur moyenne du gonflement de la gaine en couvrant l'ensemble des tailles de cavités. C'est une approche particulièrement bien adaptée dans le cas des assemblages irradiés en réacteur nucléaire. Ce sont des mesures relativement simples pouvant donner une valeur moyennée fiable du gonflement.

En revanche, ces mesures ne sont pas adaptées dans le cas des irradiations aux ions car le volume irradié est très faible, il n'est donc pas possible d'utiliser des méthodes de caractérisation telles que la dilatométrie ou la densitométrie. On étudie en général les caractéristiques des populations de cavités au niveau microscopique afin d'évaluer une valeur de gonflement.

La microscopie électronique en transmission (MET) est la première technique qui a été utilisée pour étudier les populations de cavités responsables du gonflement, et reste la technique la plus utilisée à ce jour [82], [102], [103]. C'est une technique de microscopie où un faisceau d'électrons est transmis à travers un échantillon très fin (~100nm). Le faisceau d'électrons, qui interagit avec l'échantillon, donne ensuite naissance à une image contenant des informations de diffraction, ce qui permet d'imager une grande variété d'éléments de la microstructure (précipités, dislocations, cavités, boucles de dislocations). La compréhension des processus d'interaction des électrons avec la matière joue un rôle essentiel pour être capable de comprendre et analyser les clichés MET [104].

Dans le cas de **la microscopie électronique à balayage (MEB)**, le faisceau d'électrons est focalisé de manière à former une sonde électronique la plus fine possible. Cette sonde sert ensuite à balayer la surface de l'échantillon. Il y a la possibilité d'avoir une grande profondeur de champ permettant ainsi d'imager de très larges zones, en outre les récentes améliorations des capteurs permettent aujourd'hui d'atteindre des résolutions suffisantes pour imager des cavités de taille nanométriques.

La Figure 59 présente différents instruments de caractérisations visuelles avec leur domaine d'utilisation en bleu et en vert leur résolution spatiale (finesse des détails). La Microscopie Électronique en Transmission est la mieux adaptée pour l'observation des cavités dans le cas d'irradiation aux ions, mais il est quand même possible de l'étudier par microscopie à balayage.

3.1 La problématique de l'étude du gonflement

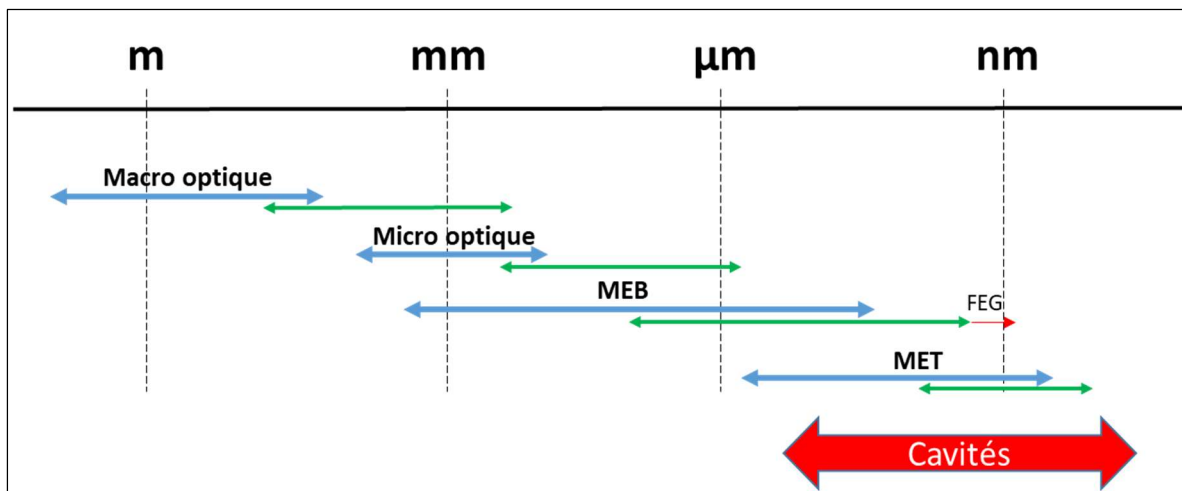


Figure 59 : Représentation de l'échelle d'utilisation de différents instruments d'analyse. Les microscopies électroniques MET et MEB sont adaptées pour l'observation des cavités induites par l'irradiation.

3.1.2 Simulation expérimentale du gonflement avec la plateforme JANNuS Saclay

Pour être capable de simuler expérimentalement le gonflement sous irradiation, des irradiations aux ions Fe ont été conduites dans l'installation JANNuS à Saclay. Cette plateforme présente l'avantage d'être très flexible car elle est capable de fournir une large variété de conditions d'irradiation. Seul des irradiations avec un mono faisceau ont été réalisées dans ce travail mais il est possible d'utiliser différentes sources d'ions et de réaliser des irradiations double ou triple faisceau pour étudier les effets de l'implantation de l'hélium par exemple.

Un porte échantillons, pouvant accueillir 19 disques de 3mm, monté sur une platine chauffante, a été utilisé lors des différentes irradiations. Le contrôle et le suivi de la température se font grâce à un thermocouple et l'homogénéité de la température est vérifiée par caméra thermique.

Des irradiations aux températures de 500°C, 550°C et 600°C ont été réalisées dans l'objectif de localiser la température de maximum de gonflement et de confirmer les résultats obtenus par Rouxel pendant sa thèse [105]. Ces irradiations ont été réalisées sur des échantillons hypertrempés et écrouis représentatif de la microstructure de l'AIM1 et les résultats de ces irradiations sont présentés dans le chapitre IV.

Il faut noter que les matériaux de notre étude sont déjà très optimisés vis-à-vis du gonflement et il est assez difficile d'y former des cavités. L'étude de microstructures modèles pré-vieilles, dont la résistance au gonflement est dégradée, est intéressante car elle permet d'isoler les effets de certains paramètres tout en formant plus facilement des cavités permettant de réduire le temps d'irradiation nécessaire.

3.1.3 Spécificité des irradiations aux ions

Les ions ont un pouvoir de pénétration très limité dans la matière, la zone irradiée est donc limitée à l'extrême surface de l'échantillon. Une conséquence du faible pouvoir de pénétration des ions dans la matière est la création dans l'épaisseur irradiée d'un gradient de dommage associé à un gradient d'implantation dont le pic est décalé par rapport au pic de dommage.

En modifiant la nature et l'énergie des ions, il est possible de modifier les profils de dommage et d'implantation introduits dans l'échantillon. La Figure 60 représente l'allure normalisée de profils de dommage et d'implantation en fonction de l'énergie des ions. Dans le cas du profil de 10 MeV en rouge sur la Figure 60, un dommage de 50 dpa en surface correspond à une dose de 330 dpa au pic de dommage, situé à 2 μ m sous la surface. Il faut être vigilant lors du choix de l'énergie et de l'ion, car cela conditionne la source d'ions à utiliser et peut fortement impacter les limites de flux, et donc les doses, que l'on peut atteindre.

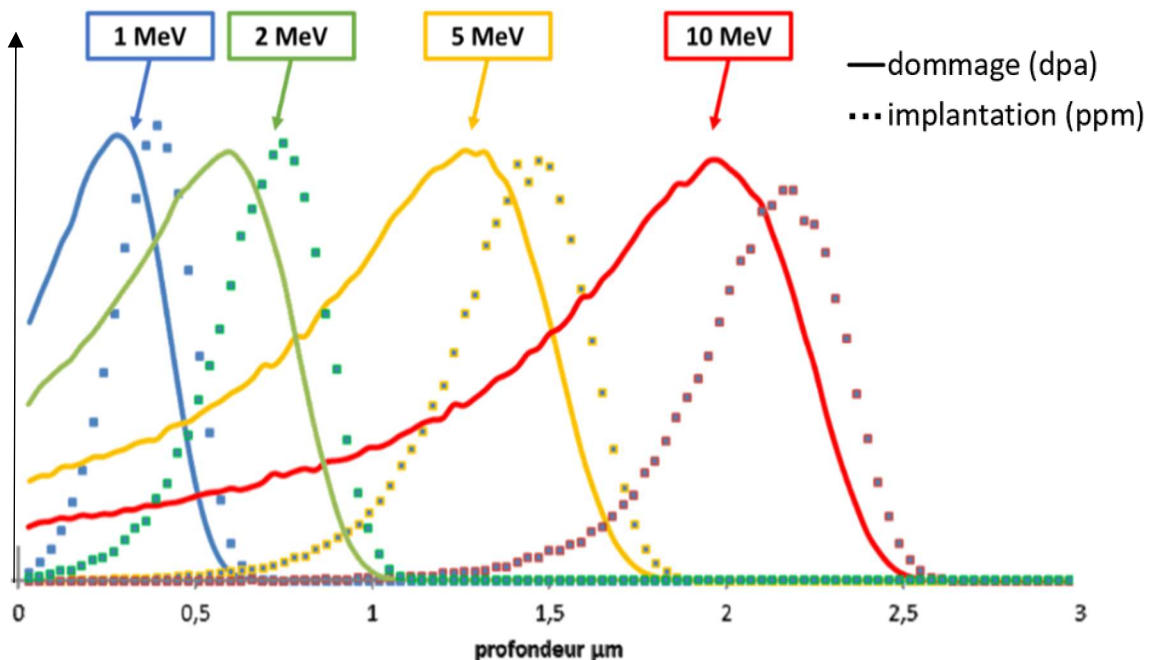


Figure 60 : Profils normalisés de dommage et d'implantation (calculs SRIM) pour des ions Fe dans un acier 15Cr/15Ni. En trait plein le profil de dommage et en pointillé celui d'implantation.

Une des particularités des irradiations aux ions est donc la forte dépendance de la dose en fonction de la profondeur. C'est un point de divergence avec les irradiations aux neutrons où la dose est homogène dans l'épaisseur de la gaine car cette dernière est fine, proche de 500 μ m.

3.1 La problématique de l'étude du gonflement

En général, le maximum de gonflement d'un échantillon correspond à la zone où les cavités sont les plus grosses. Cette zone est située légèrement en amont du pic de dommage comme schématisé Figure 61. Expérimentalement, on constate que le gonflement maximal ne se situe pas au niveau du pic de dommage [106][107], ce qui s'explique par l'effet de l'implantation des ions, qui limite la formation des cavités du fait de l'apport d'interstitiels supplémentaires.

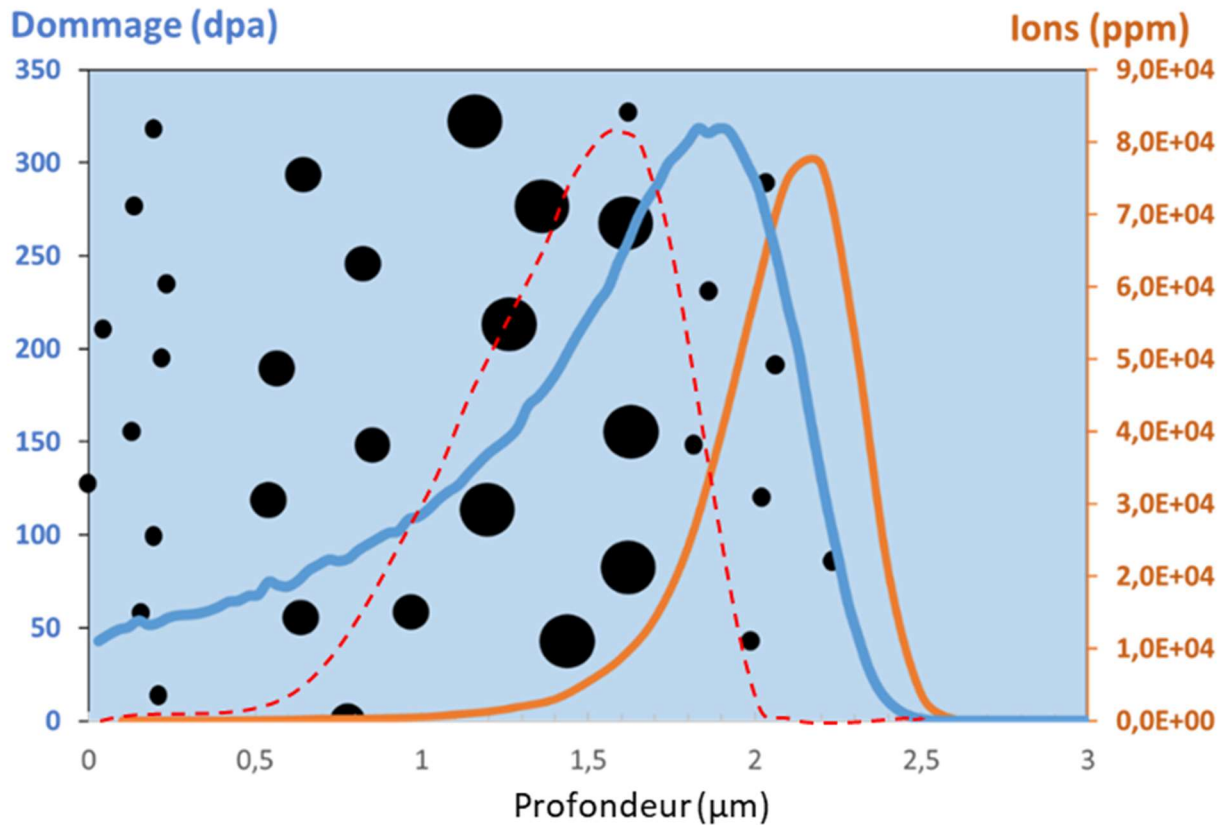


Figure 61 : Schématisation de la répartition des cavités en fonction de la profondeur d'irradiation. Les courbes de dommage (en bleu) et d'implantation (marron) ont été calculées pour des ions Fe accélérés à 10 MeV, conditions représentatives des irradiations présentées dans le chapitre V. La courbe rouge, en pointillés, schématise la forme attendue de la courbe de gonflement.

3.1 La problématique de l'étude du gonflement

3.1.4 Préparation des échantillons pour les irradiations aux ions (disques MET 3 mm)

3.1.4.1 Étapes de préparation avant irradiation :

- (a) Une plaque est tout d'abord affinée par polissage mécanique à une épaisseur d'environ 100 μm . Un poinçon est ensuite utilisé pour prélever les disques dans la plaque (a).
- (b) On obtient un disque de 3mm de diamètre et de 100 μm d'épaisseur.
- (c) Le disque est ensuite électropoli sur une première face (par convention la face avant), sur une profondeur d'environ 50 μm pour obtenir une surface polie sans écrouissage en surface.
- (d) L'échantillon prêt pour l'irradiation est un disque non percé avec une cuvette en son centre.

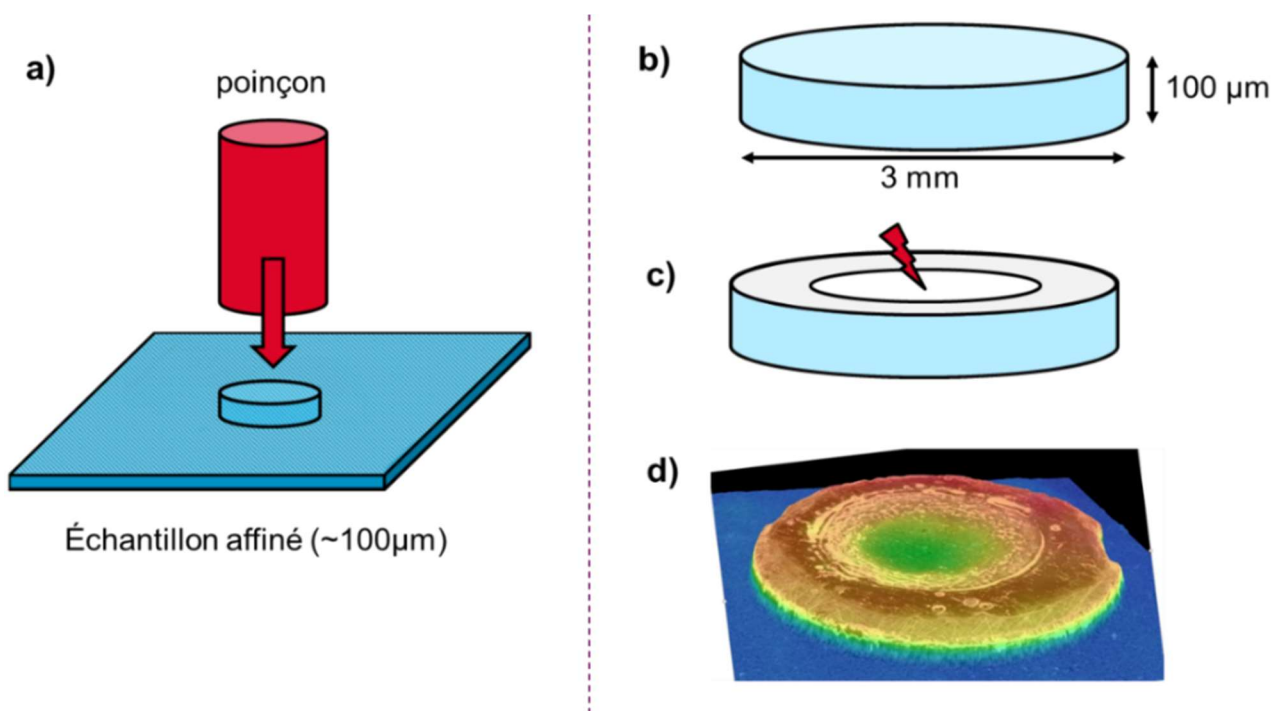


Figure 62 : Schématisation des étapes de réalisation d'un disque électropoli sur une face pour irradiation. (d) Image au microscope optique d'un disque électropoli en cuvette avec une coloration en fonction de la hauteur (Rouge : haut de la cuvette ; Vert fond de la cuvette ; Bleu : table support)

3.1 La problématique de l'étude du gonflement

3.1.4.2 Irradiation et électropolissage final :

Par convention, **on définit la face irradiée comme face avant et la dernière face électropolie comme face arrière**. Les étapes de préparation sont décrites dans la suite et schématisées Figure 63.

Étapes de préparation post-irradiation :

- (a) Irradiation de la face avant des échantillons dans la plateforme JANNuS Saclay.
- (b) Électropolissage de l'échantillon par la face arrière non irradiée, ce qui permet de venir intercepter la zone irradiée sans risquer de perdre la zone irradiée au polissage. On crée ainsi une zone centrale amincie que l'on peut étudier au MET.
- (c) Échantillon final, disque 3mm doublement électropolé en cuvette. La zone mince centrale a été irradiée et elle est observable au MET.
- (d) Vues de la face avant et arrière par le dessus après préparation. Les couleurs bleu et jaune symbolisent la répartition des zones irradiées et des zones non irradiées en fonction de la face du disque.

Dans le cas d'études au MET, on analyse les électrons qui sont transmis dans la zone fine du disque qui mesure 100 à 200nm d'épaisseur. L'orientation du disque dans le MET n'a donc pas d'effet majeur. En revanche, avec un MEB, qui permet d'analyser les surfaces, l'orientation du disque est primordiale.

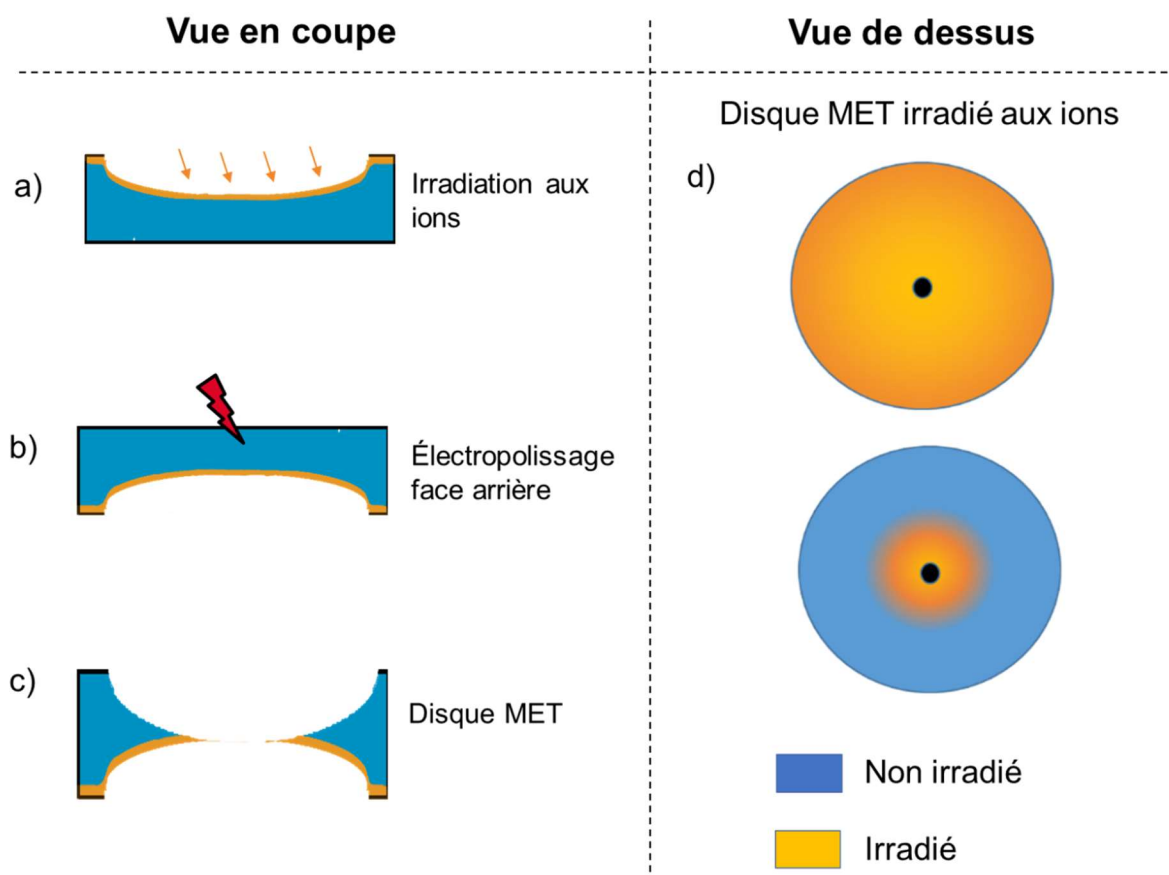


Figure 63 : Étapes de préparation d'échantillons après irradiation.

3.2 OBSERVATION DES CAVITES AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

3.2.1 Principes de fonctionnement du MEB

La microscopie électronique à balayage MEB est une technique puissante d'observation de la topographie et de l'extrême surface d'échantillons. Elle est principalement fondée sur la détection d'électrons rétrodiffusés ou électrons secondaires émis suite au balayage de la surface de l'échantillon par un faisceau d'électrons accélérés et focalisés [108].

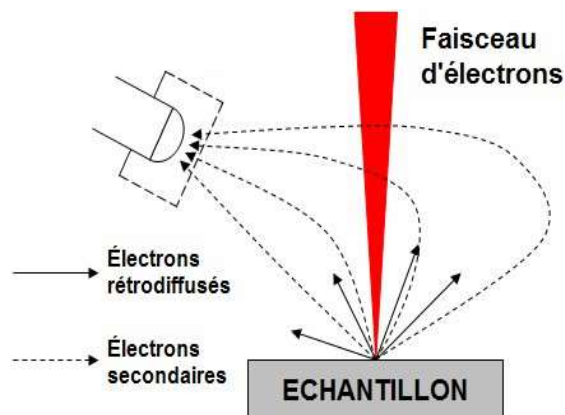


Figure 64 : Principe de fonctionnement du MEB.

Elle permet d'obtenir une grande profondeur de champ et les dernières générations de MEB haute définition sont capables d'atteindre des résolutions spatiales de l'ordre du nanomètre. Le MEB utilisé est un FEG à effet Schottky avec une colonne électronique Gemini Zeiss et une tension d'accélération variable entre 5 et 25 kV.

La colonne électronique du microscope utilisée est présentée Figure 65 [108]. Une avancée notable a été réalisée grâce au détecteur à électron secondaire InLens, positionné dans la colonne électronique. Ce détecteur possède une résolution spatiale excellente, car il permet de capter les électrons secondaires de première génération SE1 qui sont émis dans un angle solide très proche de l'axe optique.

Selon la zone scannée par le faisceau d'électrons, le signal réémis est plus ou moins intense ce qui permet d'obtenir différents contrastes. L'image est formée pixel par pixel en sondant successivement les différentes zones. Selon la nature des électrons collectés par le détecteur, on peut obtenir différentes informations (chimiques, topographiques). Le volume de matière sondé dépend également de la nature des électrons que l'on collecte avec le détecteur. Les différentes natures d'électrons et leurs zones d'émission sont représentés par la poire d'interaction électronique schématisée Figure 66 [108].

3.2 Observation des cavités au microscope électronique à balayage (MEB)

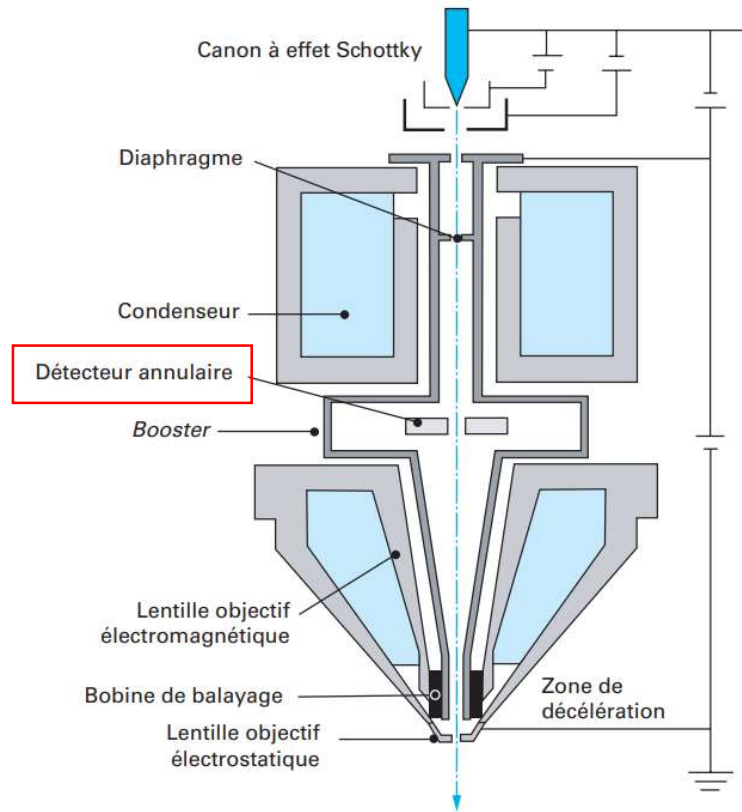


Figure 65 : Coupe de la colonne du Gemini Zeiss, montrant la position du détecteur annulaire In Lens (doc Zeiss). [108]

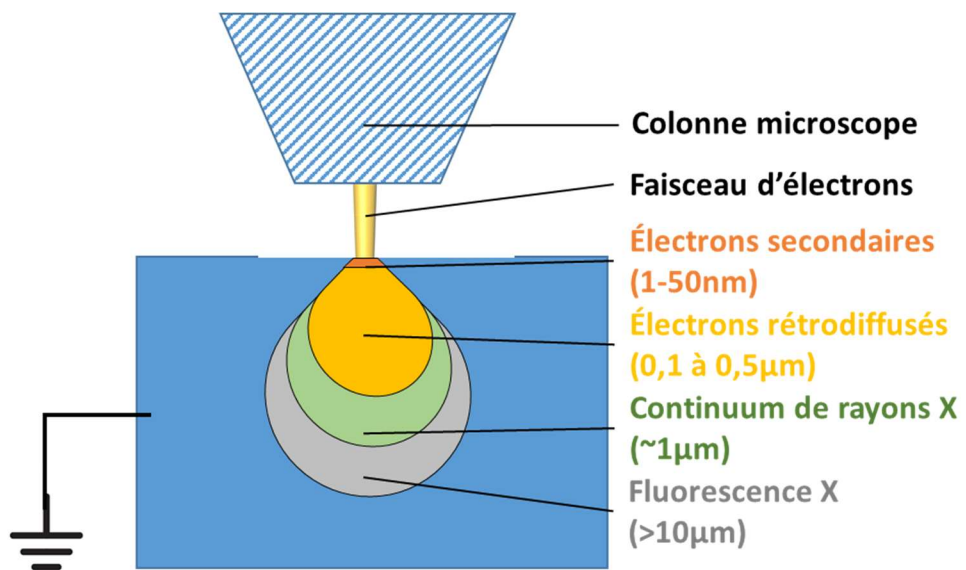


Figure 66 : Schématisation de la poire d'interaction électronique d'un microscope électronique à balayage

3.2.2 Principe de l'imagerie des cavités au MEB

Le phénomène de gonflement sous irradiation est provoqué par l'apparition de cavités dans l'acier. Les cavités sont des amas de lacunes qui germent et croissent à cause d'une sursaturation de lacunes provoquée par l'irradiation. Dans le cas des irradiations mono-faisceau aux particules chargées, ces cavités sont vides, mais elles peuvent être stabilisées et remplies de gaz (He) si on considère des irradiations aux neutrons.

L'utilisation du MEB pour étudier le gonflement a été rapportée, à notre connaissance, pour la première fois dans la littérature en 2016 [109] avec les électrons rétrodiffusés. Les cavités étant essentiellement du vide, le faisceau pénètre plus profondément dans la matière et il y a moins de rétrodiffusion vers les détecteurs ce qui se traduit par un contraste sombre (figure 4).

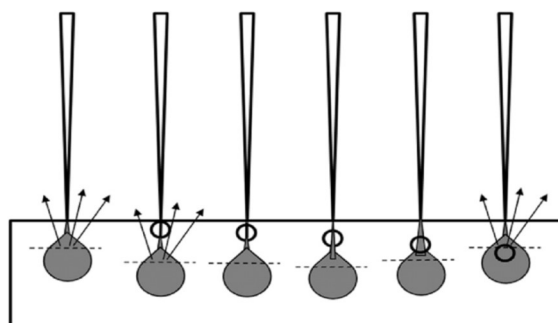


Figure 68 : Schématisation de l'influence d'une cavité sur le signal rétrodiffusé en fonction de la profondeur de la cavité. La position d'une cavité (cercle noir vide) impacte la position de la poire d'interaction électronique ainsi que l'intensité du signal réémis [109].

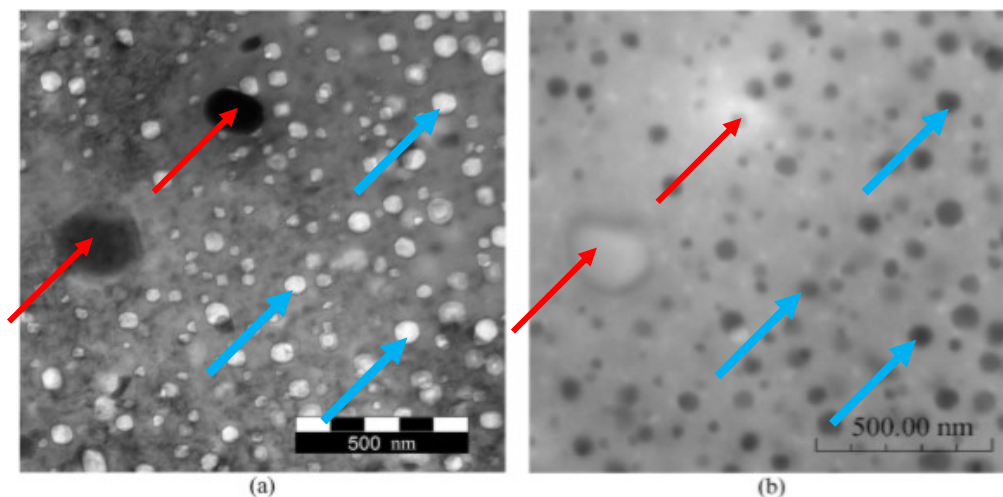


Figure 67 : Comparaison de deux clichés MET (a) et MEB (b) d'une lame FIB prélevée dans un acier irradié aux neutrons. Les flèches indiquent les cavités (bleu) et les précipités (rouge) [109].

Un exemple de comparaison d'observation de cavités au MEB et au MET sur une lame FIB provenant d'un échantillon irradié aux neutrons est donné Figure 67 [109]. Les cavités (Figure 67b) sont visibles au MEB grâce aux disques noirs (flèches bleues) et les précipités présentent un contraste chimique (flèches rouges).

3.2 Observation des cavités au microscope électronique à balayage (MEB)

Dans la publication [109], ce sont les électrons rétrodiffusés qui sont utilisés, car cela permet de visualiser les cavités dans un volume important de l'échantillon irradié aux neutrons.

Dans le cas d'irradiation aux ions il peut être préférable de ne pas sonder un volume de matière trop important du fait de la présence du gradient de dose. L'utilisation des électrons secondaires permet d'analyser un volume plus réduit de matière, sur une profondeur inférieure à 50 nm ce qui assure que la dose soit homogène sur la région analysée. L'utilisation des électrons rétrodiffusés permet de révéler des cavités situées plus en profondeur mais complique la corrélation entre le gonflement et la dose d'irradiation du fait du volume analysé.

La Figure 69 compare l'image d'un échantillon vieilli de cette étude (L50 M3_V) contenant des cavités. Les images ont été réalisées avec le détecteur d'électrons rétrodiffusés (a) ou avec le détecteur à électrons secondaires InLens (b). Dans les deux cas les cavités sont visibles par un contraste noir sur l'image.

On peut remarquer, avec le détecteur à électrons secondaires, un liseré blanc qui entoure certaines cavités Figure 69 (b) (flèches bleues). Ce liseré est dû au contraste topographique des cavités débouchantes révélé par les électrons secondaires captés par le détecteur InLens. Cela permet de différencier les cavités débouchantes de celles situées plus en profondeur.

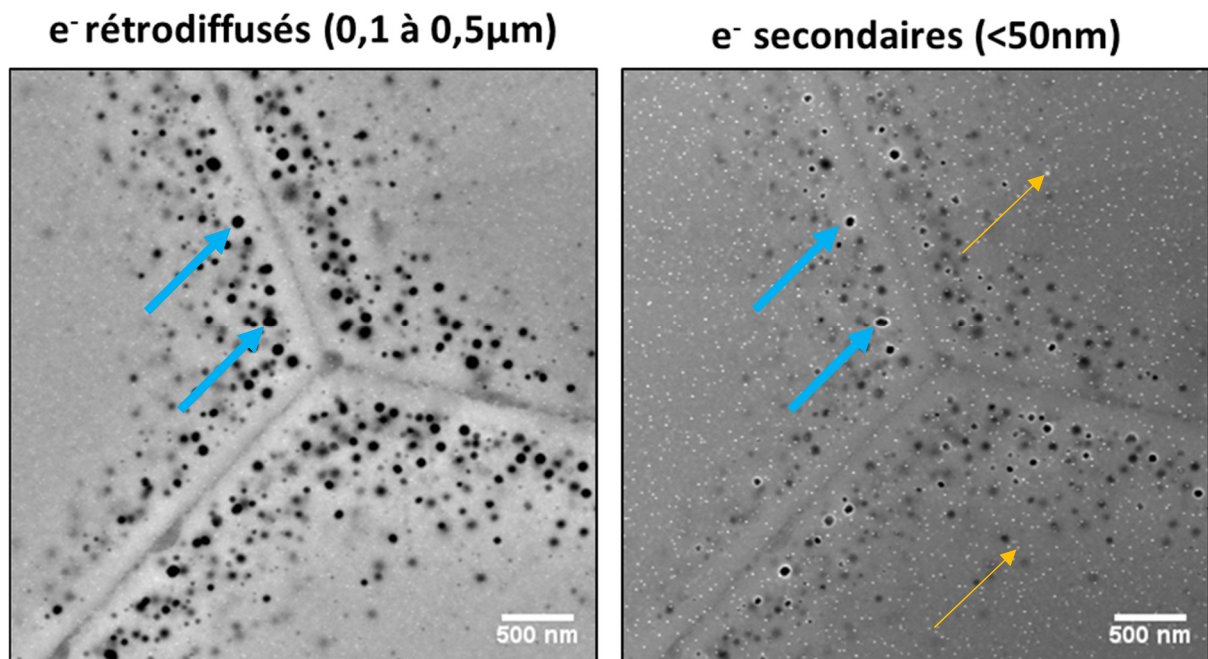


Figure 69 : Comparaison des cavités (flèches bleues) imagées avec les électrons rétrodiffusés AsB (gauche) ou électrons secondaires InLens (à droite). La nature exacte des contrastes blancs (flèche orange) n'a pas été déterminée mais ils sont compatibles avec des carbures de type MC.

3.2.3 Apport de l'approche dans le cas d'irradiations aux ions

Les études MET concernent en général la surface irradiée des échantillons, sur une épaisseur voisine de 120 nm [110][111]. Il est possible de réaliser un électropolissage flash [88] ou des prélèvements au FIB [112] pour étudier les zones d'intérêt plus en profondeur, là où se trouve le maximum de gonflement mais cela complexifie l'obtention des échantillons.

L'utilisation du MEB pour étudier les cavités peut permettre de faciliter la préparation des échantillons, d'analyser l'ensemble de la surface des échantillons irradiés, mais aussi de sonder des volumes de matière irradiée supérieurs (Figure 70).

L'utilisation des électrons rétrodiffusés peut servir pour détecter de façon rapide et simple la présence de cavités si elles se sont formées en profondeur dans un échantillon suite à une irradiation. Cette approche peut servir de méthode de criblage pour cibler les nuances les plus résistantes parmi un panel de nuances.

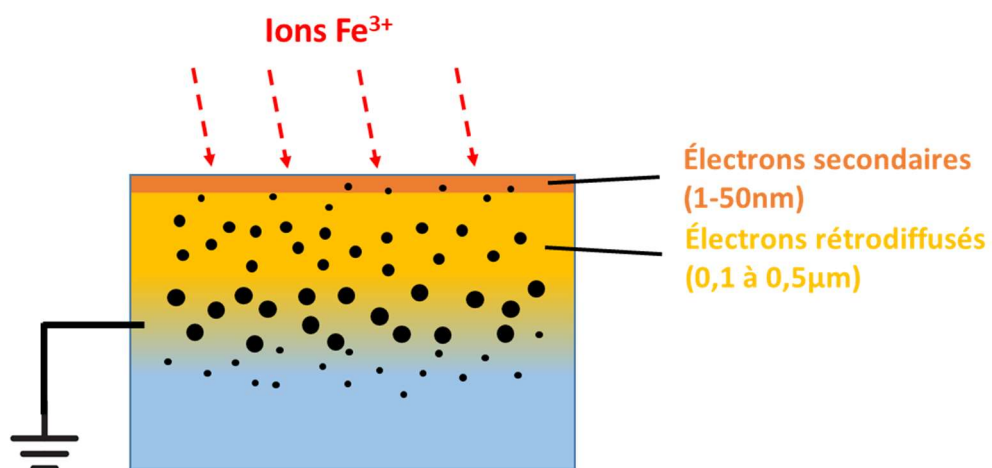


Figure 70 : Schéma en coupe d'un échantillon irradié aux ions. Les couleurs représentent les zones analysables au MEB avec les électrons secondaires et rétrodiffusés.

Du fait de la préparation des disques MET, il est ainsi possible d'observer des zones irradiées et non irradiées sur un même échantillon. Cela permet de comparer les microstructures irradiées et non irradiées sur un même échantillon et de mettre en évidence les effets propres à l'irradiation. Il est donc intéressant de ré-analyser des échantillons MET pour apporter une nouvelle vision d'échantillons préalablement étudiés grâce à ces nouvelles informations.

L'observation au MEB par la face arrière d'un disque irradié peut ainsi permettre d'observer l'ensemble du gradient d'irradiation qui est une caractéristique des irradiations aux ions. En effet, la dernière étape d'électropolissage permet d'intercepter l'ensemble des profondeurs iso doses comme cela est schématisé (traits pointillés) sur la Figure 71. **Il est ensuite possible de corréler la profondeur d'irradiation avec les simulations SRIM pour évaluer la dose d'irradiation** (Figure 72). Dans le cas des disques électropolis irradiés aux ions, il est intéressant d'utiliser le détecteur InLens pour étudier la dépendance du gonflement avec la dose d'irradiation car les électrons secondaires permettent de sonder un petit volume où la dose d'irradiation peut alors être considérée comme homogène.

3.2 Observation des cavités au microscope électronique à balayage (MEB)

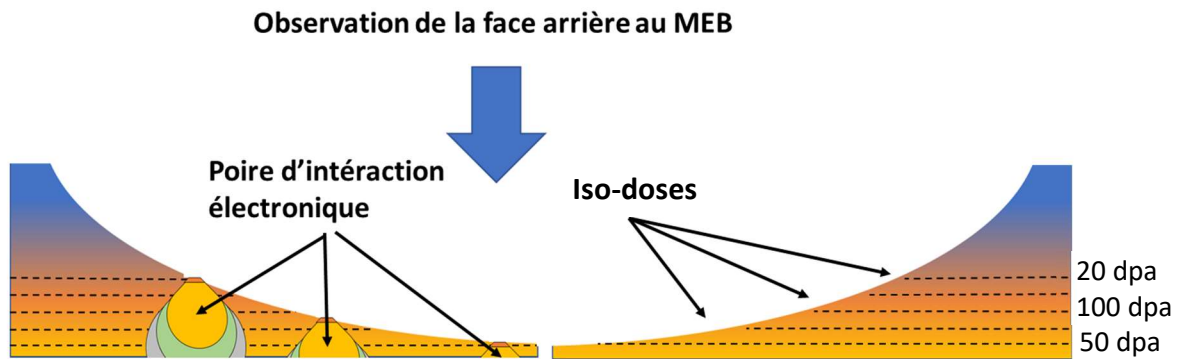


Figure 71: Schéma en coupe d'un disque MET irradié aux ions, observé par la face arrière. Les traits pointillés représentent les courbes isodoses.

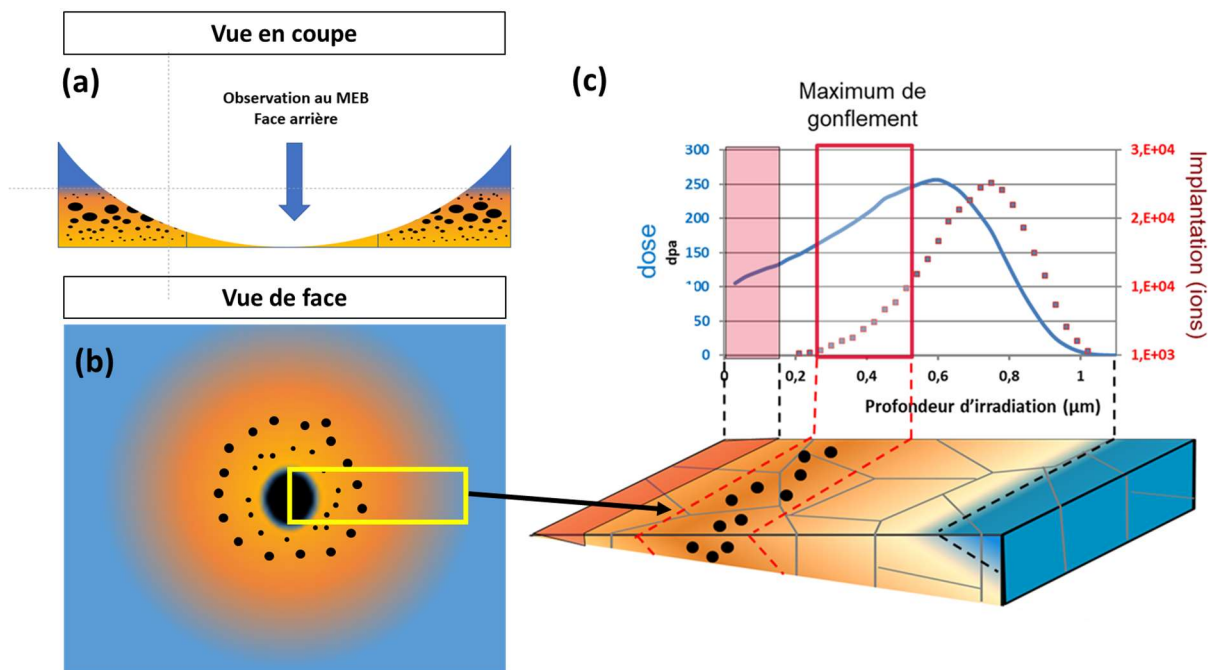


Figure 72 : Schematisation de la répartition des cavités sur un disque MET irradié aux ions. (a) Vue en coupe (b) vue de face (c) corrélation avec les simulations de doses et d'implantations SRIM aux ions fer 2MeV.

3.2 Observation des cavités au microscope électronique à balayage (MEB)

3.2.4 Image haute définition d'un disque irradié aux ions (L49M6, J15-3, ~110dpa, 620°C)

Un disque irradié lors de la thèse de Rouxel [40] a été ré analysé au MEB et présenté Figure 73. Cet échantillon a été sélectionné en raison du fort gonflement qu'il présente, probablement du fait de la température d'irradiation élevée. L'image est en très haute résolution (12288*9216px) et couvre une zone de 300x230 μm^2 avec une taille de pixel de 24.75nm.

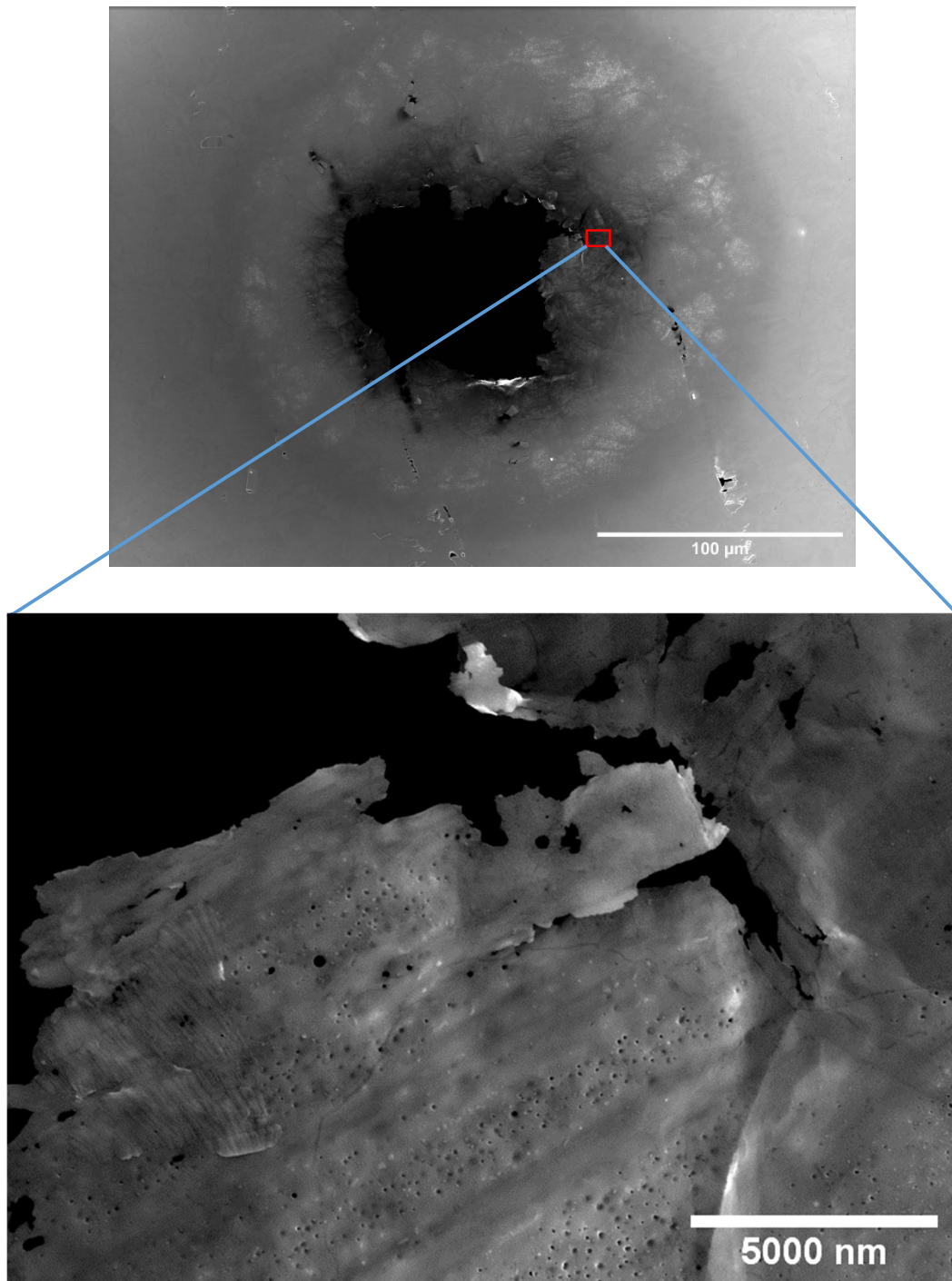


Figure 73 : Micrographie MEB très haute définition d'un disque 15/15 Nb pré veilli à 650°C/50h (L49M6) et irradié à 620°C avec une dose de 110 dpa en surface. L'image contient plusieurs dizaines de milliers d'objets (cavités, précipités). L'image du dessous est un zoom d'une partie de l'image.

3.3 TRAITEMENT D'IMAGE PAR UN ALGORITHME DE MACHINE LEARNING

Les clichés en haute définition peuvent contenir plusieurs dizaines de milliers d'objets de nature différente, il n'est pas envisageable de les quantifier manuellement dans leur totalité. Les variations de contraste et les dimensions de l'image ne permettent pas l'utilisation d'outils comme le seuillage pour isoler simplement les différents objets contenus dans l'image. Il est également difficile de présenter ce type de clichés en format papier ou informatique.

La vision assistée par ordinateur est un domaine de l'analyse d'images qui regroupe un ensemble de technologies permettant d'extraire des données pertinentes à partir d'images. Ces outils permettent à l'ordinateur de « voir » les objets contenus dans une image pour ensuite les analyser dans leur ensemble. La vision assistée par ordinateur facilite donc les études scientifiques, car elle peut classer un grand nombre d'images de manière systématique ce qui facilite la collecte et l'organisation de différents jeux de données.

3.3.1 Reconnaissance automatisée par un algorithme de machine learning

La reconnaissance automatisée d'images est un véritable défi pour les sciences informatiques, car un ordinateur fonctionne de manière logique avec des bits d'informations et ne possède pas de capacité d'interprétation innée. Il est possible de définir explicitement des critères de reconnaissance d'un objet mais ces derniers sont souvent inadaptés en cas de variations de luminosité et de contraste.

Il est donc difficile de définir des critères explicites qui permettraient à un ordinateur de différencier un chat et un chien, alors que cela ne représente pas de défi particulier pour un cerveau humain. C'est parce que nous avons appris à différencier ces animaux aux travers de nos expériences passées au contact de ces derniers.

Il est également possible pour les ordinateurs d'apprendre à reconnaître les objets d'une image sur la base d'exemples. Le Machine Learning, ou apprentissage statistique, est un champ d'étude de l'intelligence artificielle qui vise à donner aux ordinateurs la capacité d'apprendre à partir de données. Ces algorithmes arrivent à analyser des images sans avoir explicitement programmé des critères de reconnaissance pour reconnaître les différentes catégories.

Cela consiste à modéliser une fonction permettant d'établir des liens entre données d'entrée et la réponse de sortie, à partir d'une base de données d'exemples connus. Dans notre cas, ces exemples sont des matrices de valeurs numériques qui correspondent aux couleurs de chaque pixel de l'image. La méthodologie présentée dans ce manuscrit se base sur un algorithme d'analyse d'image open source à apprentissage supervisé, où la sélection des exemples et l'entraînement sont directement réalisés par l'utilisateur.

Ces données sont analysées par l'algorithme afin de trouver des correspondances et des similitudes avec les précédents exemples fournis. Dans le cas des images, les exemples se présentent sous la forme d'images dont les pixels ont été associés à différentes catégories (segmentation).

3.3.2 Principe de la segmentation d'image

Le principe de la segmentation est de classer les pixels en fonction de l'objet auquel ils appartiennent. Cela permet à l'ordinateur de regrouper des ensembles de pixels et de « voir » ces objets dans l'image. C'est sous la forme d'images segmentées que l'on alimente en général les algorithmes de traitement d'image en Machine Learning.

Une fois la phase d'apprentissage terminée, c'est également sous forme d'images segmentées que l'algorithme fournit ces résultats. Il est alors possible de traiter et d'analyser les données (nombre, taille, etc. ...) de façon automatisée.

Il existe différentes stratégies d'analyse d'image et de segmentation. Certaines sont représentées Figure 74 provenant de [113].

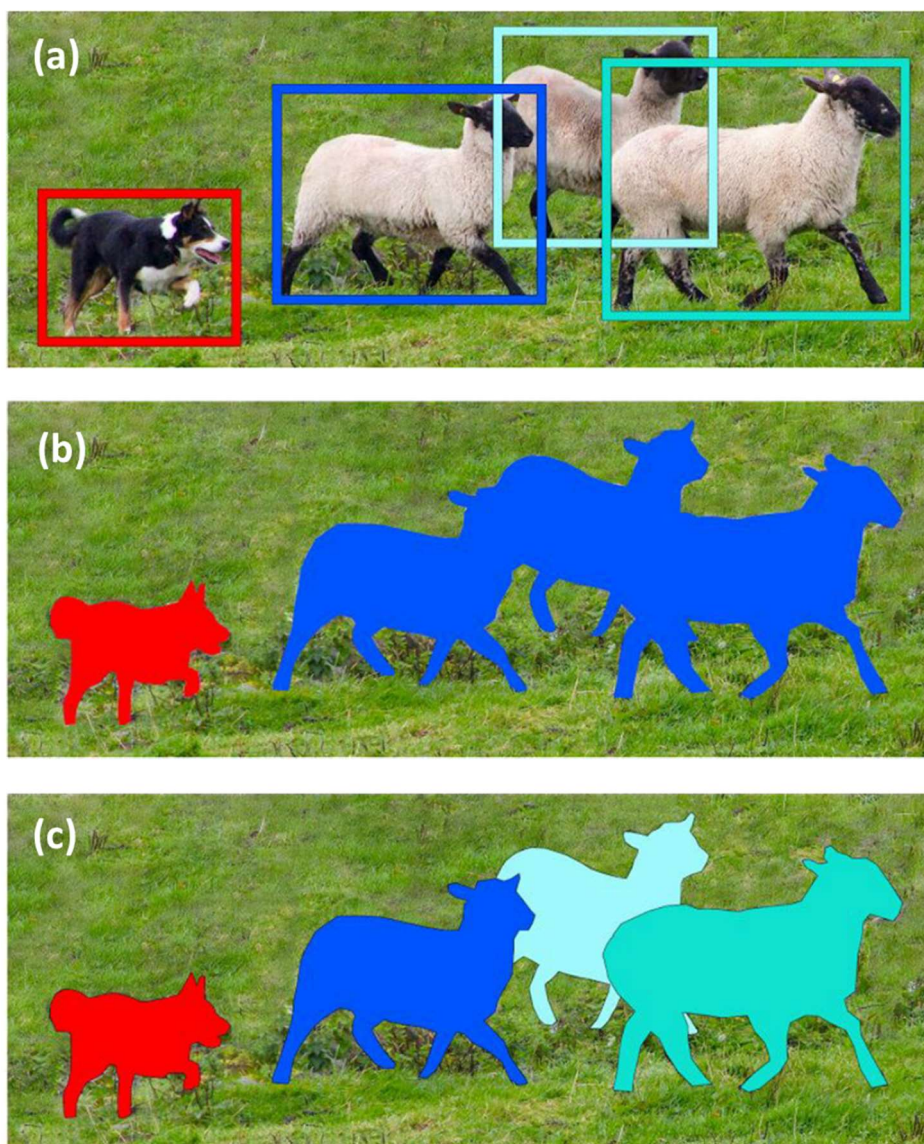


Figure 74 : (a) détection d'objets, (b) segmentation par catégories d'objets, (c) segmentation par catégories et par individus [113].

3.3.3 Présentation du plugin Fiji : Trainable weka segmentation

Weka est une collection d'algorithmes de Machine Learning pour des opérations de collecte de données. Le plugin Weka segmentation (open Source) a été développé sur imageJ et est utilisable sur des images de qualité standard et ne nécessite pas de machine de calcul puissante pour fournir des résultats de qualité. La documentation relative à cet algorithme est disponible dans [114] et <https://www.cs.waikato.ac.nz/ml/weka/>

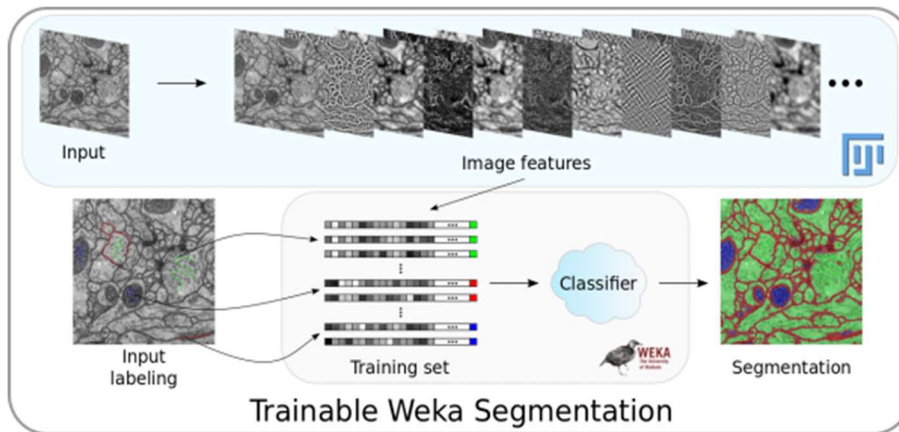


Figure 75 : Principe de fonctionnement du plugin Trainable Weka Segmentation. Figure issue de https://imagej.net/Trainable_Weka_Segmentation

L'algorithme s'entraîne à partir d'exemples directement sélectionnés par l'utilisateur sur l'image, à la souris. Après l'entraînement, l'algorithme réalise une proposition de segmentation de l'image pour vérification. L'utilisateur peut ensuite proposer de nouveaux exemples pour améliorer la qualité de la segmentation ou enregistrer les paramètres de tri. Il faut en général entre 3 et 10 exemples par catégorie pour que l'algorithme soit capable de réaliser une segmentation efficace.

Il est très performant sur des images MEB qui sont bien définies avec des variations de contraste relativement faibles. Le traitement des images MET est en revanche plus difficile, en raison des variations de contraste qu'il est parfois difficile d'interpréter, même pour l'œil humain entraîné.

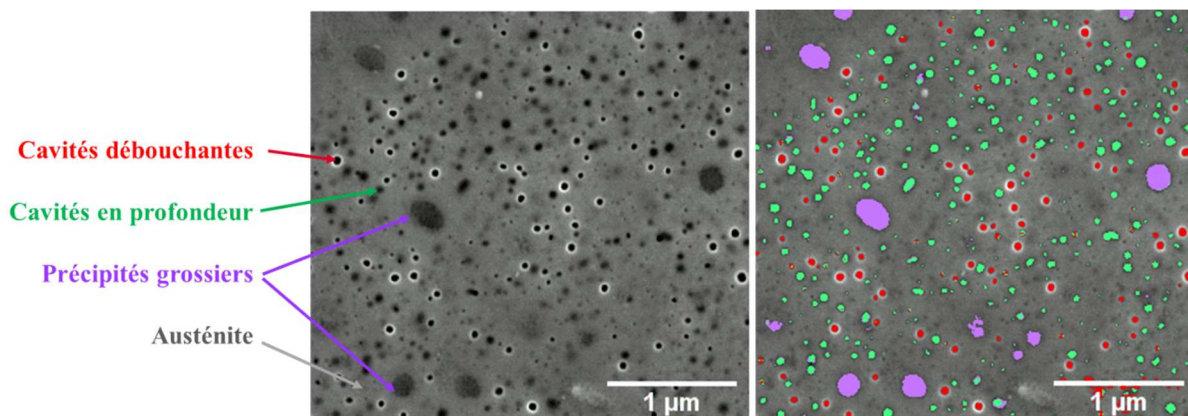


Figure 76 : Exemple de segmentation d'un acier irradié avec le plugin trainable Weka segmentation. L'image a été obtenue avec les électrons secondaires (InLens). Il a été possible de différencier les cavités débouchantes avec un liseret blanc, les cavités en profondeur et des précipités grossiers.

3.3.4 Traitement d'une image haute définition

Les dimensions des clichés haute définition ne permet pas leur traitement direct par Weka. Elles ont été découpées en n images élémentaires de plus petite taille. De cette manière, l'algorithme peut traiter séquentiellement les images pour les analyser ce qui nécessite moins de puissance de calcul.

L'image présentée dans la partie 3.2.4 a été découpée en 2400 images. L'entraînement a été réalisé à partir d'un échantillonnage de ces images élémentaires. L'algorithme a ensuite traité l'ensemble des 2400 images élémentaires de manière séquentielle ce qui a permis de segmenter l'ensemble du cliché très haute définition. Le cliché original segmenté a été reconstitué en réassemblant les 2400 images élémentaires segmentées. Les différentes étapes sont schématisées Figure 77 et Figure 78.

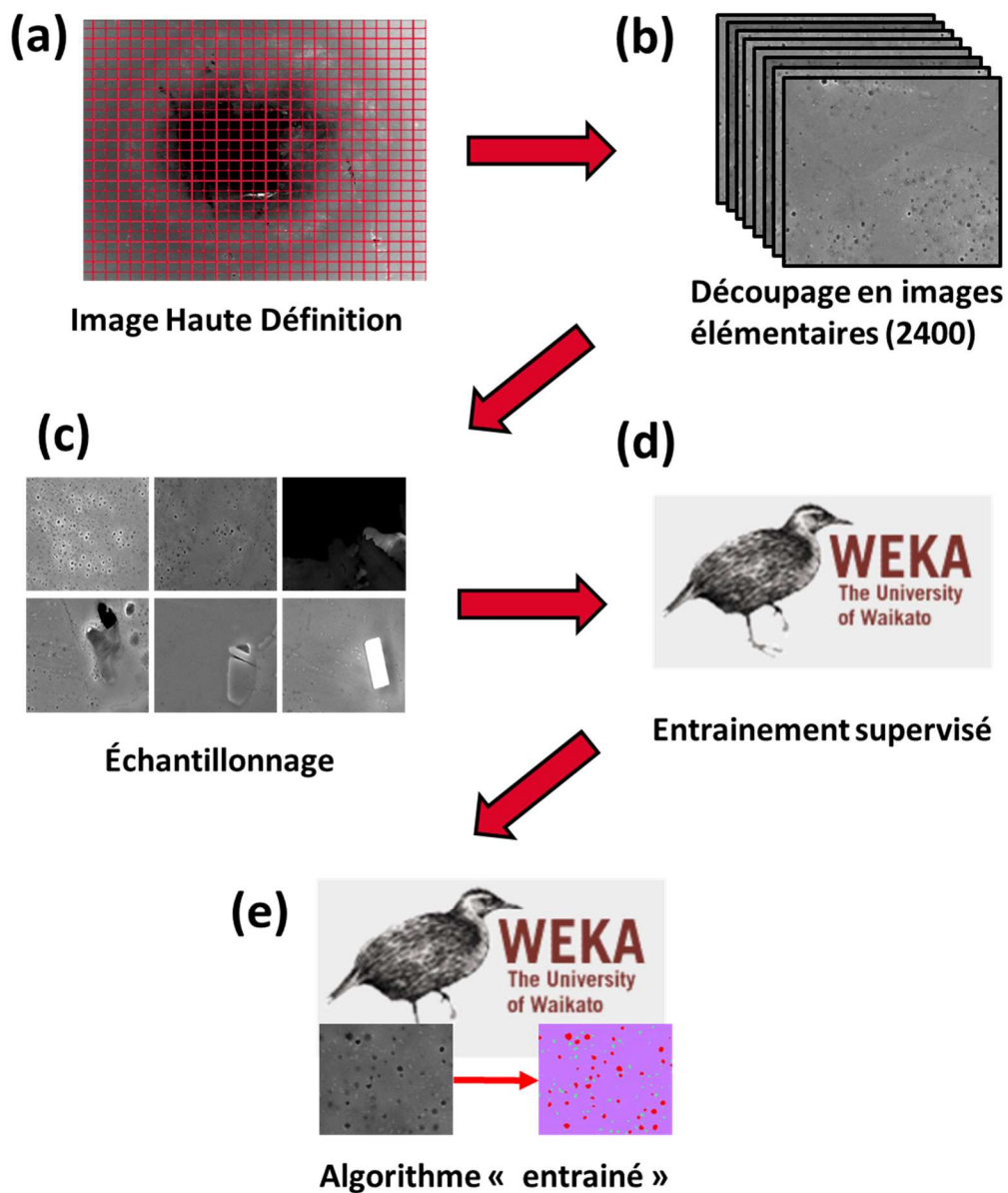


Figure 77 : Schéma des étapes réalisées pour entraîner l'algorithme WEKA.

3.3 Traitement d'image par un algorithme de Machine Learning

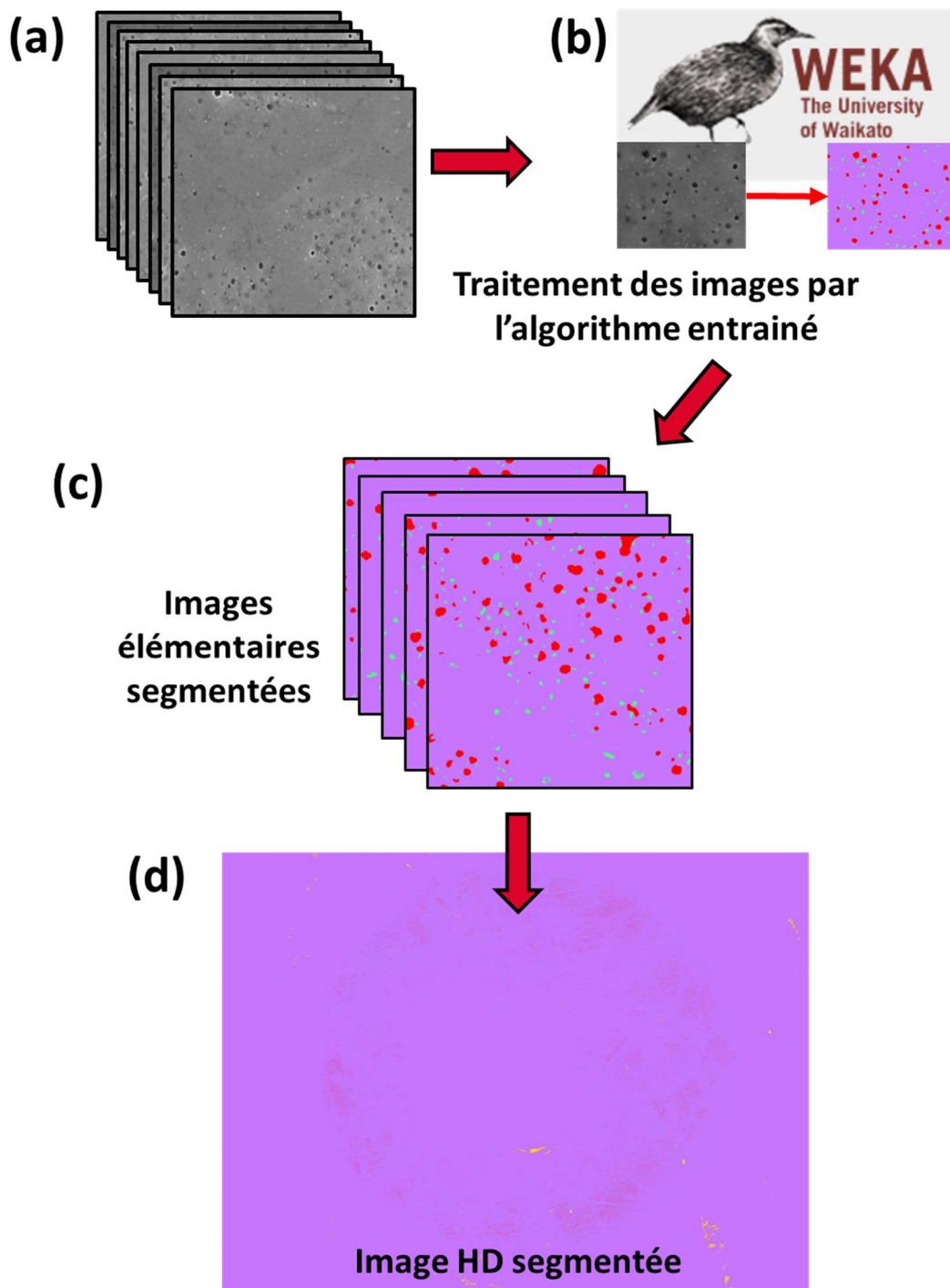


Figure 78 : Schématisation des étapes de segmentation à partir de l'algorithme entraîné.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

3.4 PRESENTATION DE L'APPROCHE MEB IA POUR L'ETUDE DU GONFLEMENT

L'approche par Microscopie Électronique à Balayage et Intelligence Artificielle (MEBIA) a été développée pour permettre la caractérisation fine des cavités formées dans des échantillons irradiés aux ions. Cette approche repose sur :

1/ l'observation de la surface avec des électrons secondaires qui permettent de sonder un volume de matière en extrême surface.

2/ l'acquisition de clichés très haute définition qui permet d'observer simultanément plusieurs milliers de cavités.

3/ L'utilisation d'un algorithme d'analyse d'image en apprentissage supervisé (Machine Learning) permettant une analyse semi-automatisée des clichés.

À partir de cette approche, il est alors possible d'étudier l'effet du gradient de dose et d'irradiation sur la formation des cavités sur un nombre très réduit d'échantillons. L'acquisition d'un plus grand volume de données sur un nombre réduit d'échantillons permet de réduire le rapport signal sur bruit des données expérimentales.

3.4.1 Approche macroscopique : observation du halo de gonflement

Le traitement de segmentation d'images détaillé dans la partie précédente a permis d'associer une carte de densité surfacique de cavités au cliché haute définition présenté partie 3.2.4. Ce traitement d'image permet de mieux visualiser la répartition des cavités et mettre en évidence les zones à fort gonflement. En raison de la préparation des échantillons (disque MET 3mm) et de la répartition des cavités selon la profondeur, on constate un halo de gonflement (Figure 79 et Figure 80).

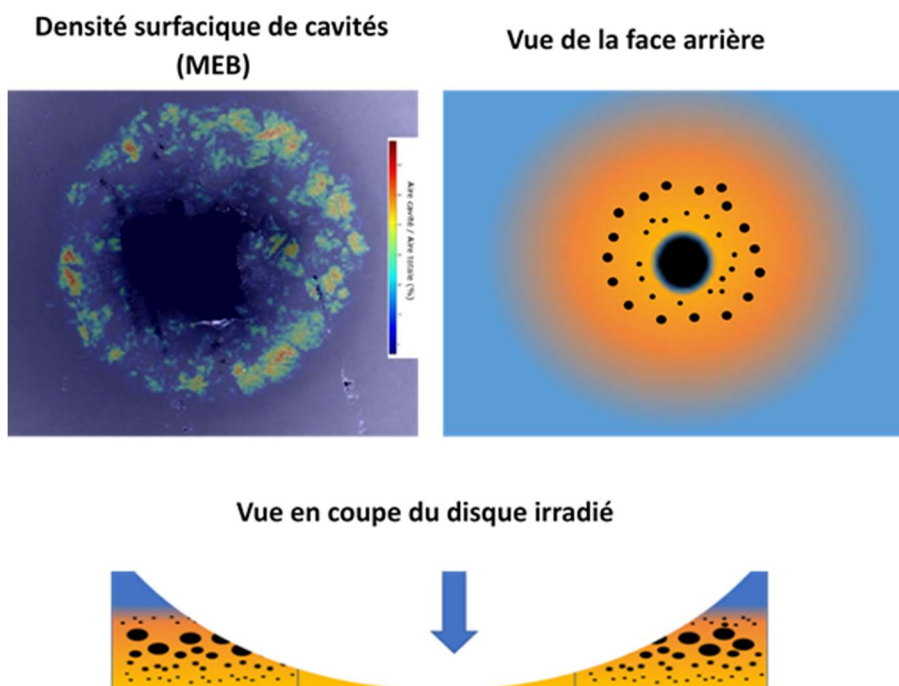


Figure 79 : Observation de la face arrière d'un disque irradié aux ions ($^{15}\text{N}/^{15}\text{Nb}$ pré-vieilli à $650^\circ\text{C}/50\text{h}$ irradié au ions Fe^{2+} 110dpa à 620°C). La colorisation de l'image MEB haute définition en fonction de la densité surfacique de cavités. Les schémas représentent la répartition des cavités sur l'échantillon en vue de face ou en coupe.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

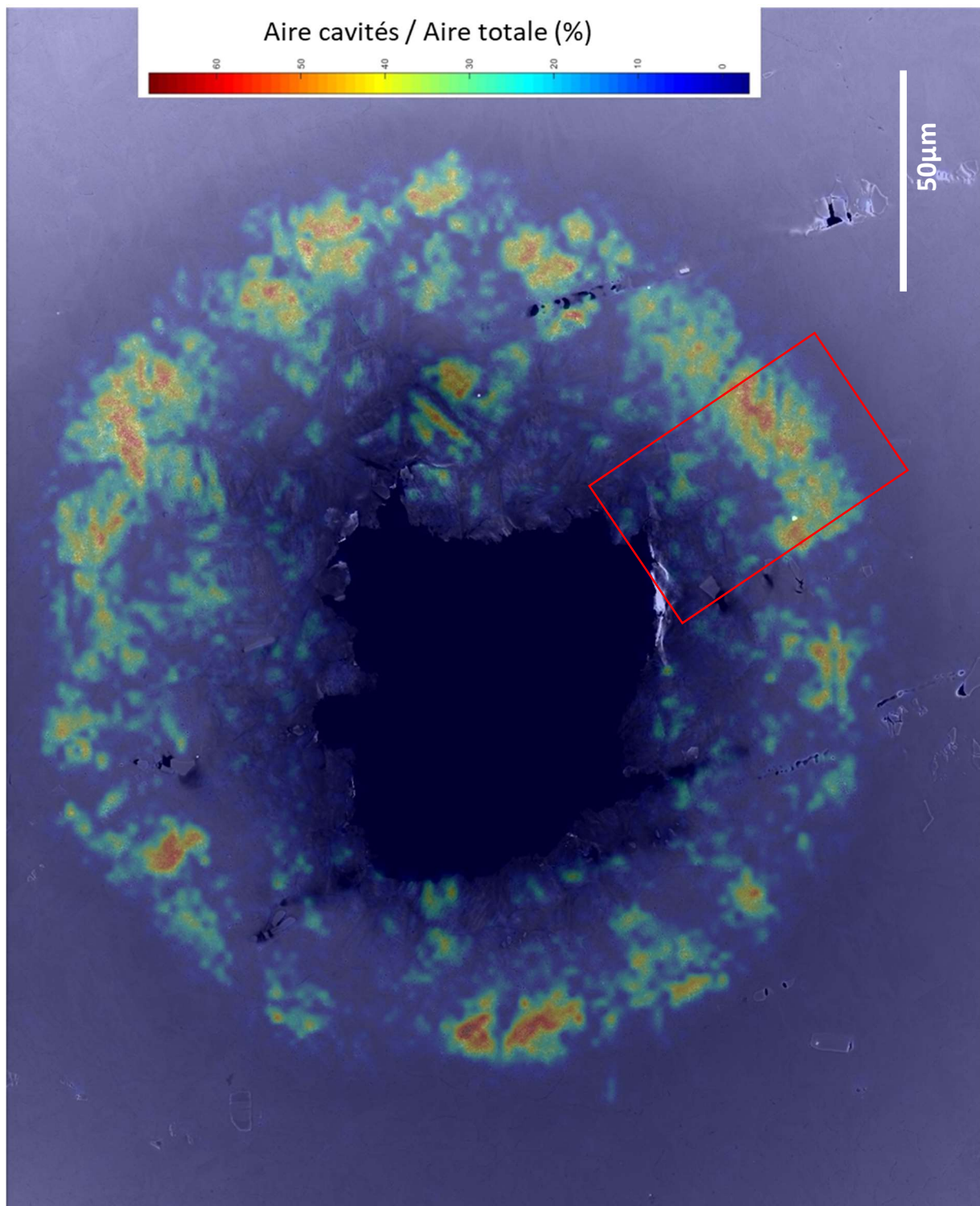


Figure 80 : Observation de la face arrière d'un disque irradié aux ions. Colorisation en fonction de la densité surfacique de cavités. Le rectangle rouge délimite la zone étudiée dans le paragraphe suivant.

3.4.2 Approche fine : gradient d'irradiation

La taille de pixel de 25 nm de la micrographie précédente ne permettait pas de compter correctement les cavités de l'image et de réaliser des études fines. Un zoom sur une partie radiale du halo, délimitée par le rectangle rouge de la Figure 80 a été réalisé. Ce cliché est également en haute définition et la dimension de pixel y est de 6 nm.

L'orientation de l'image fait que l'on observe, en regardant de gauche à droite, une profondeur d'irradiation croissante. L'image a été analysée en différenciant les précipités, les cavités et la matrice austénitique. Au total, plus de 9700 cavités et 8000 précipités sont dénombrés par l'algorithme.

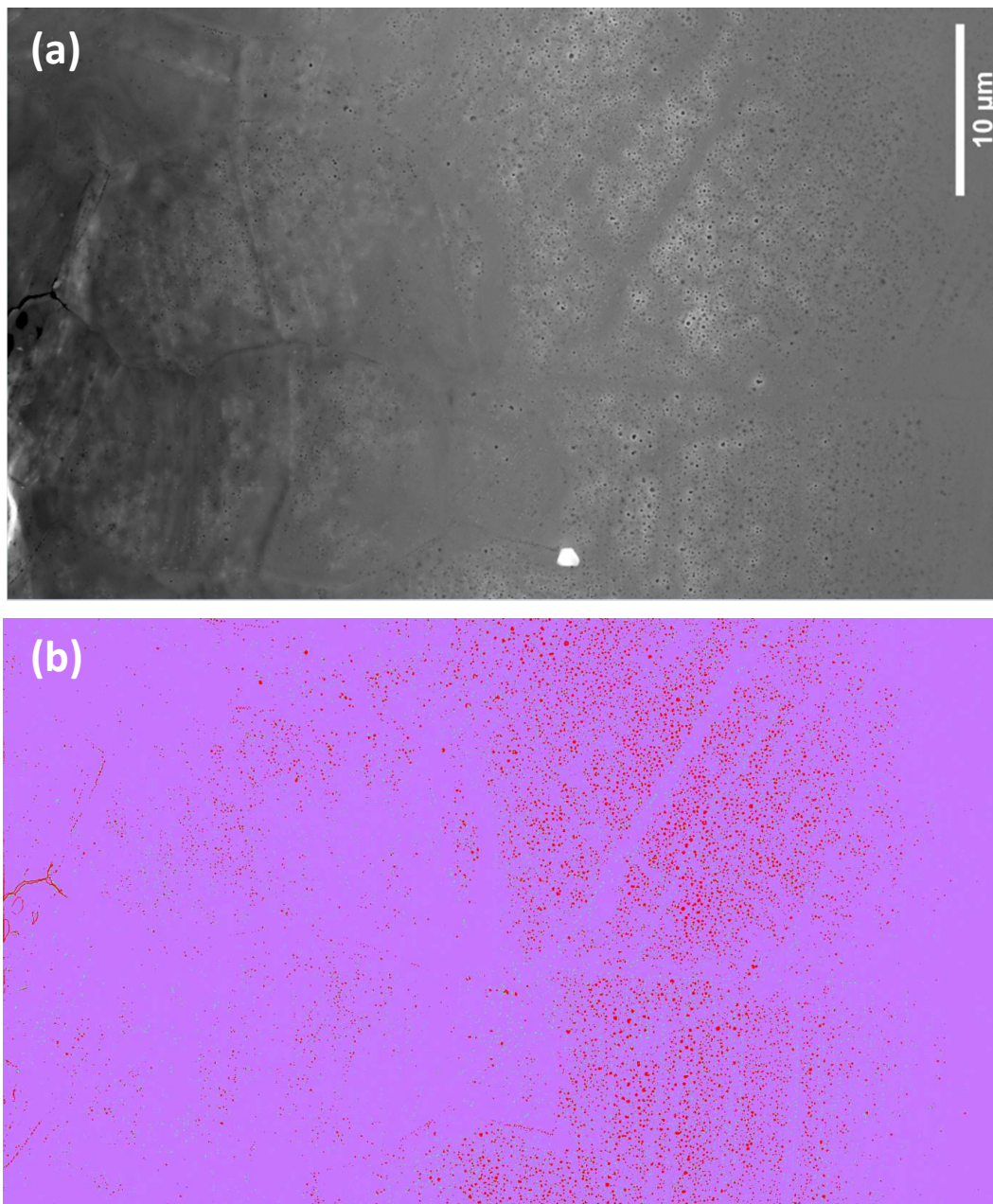


Figure 81 : a) Image avec le détecteur à électrons secondaire InLens d'une zone radiale du disque irradiée (L49M6 J15 3) et (b) segmentation associée.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

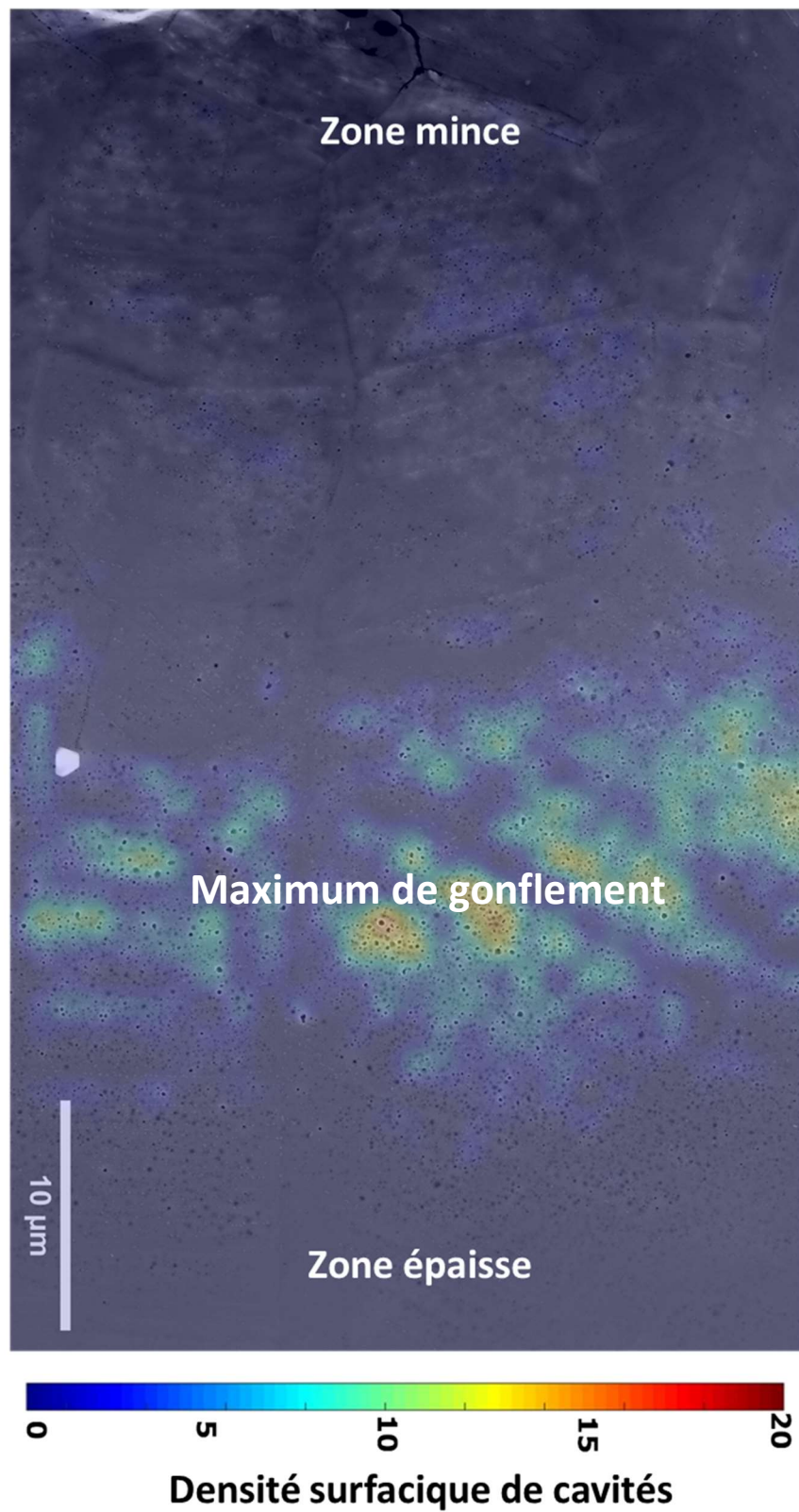


Figure 82 : Densité surfacique de cavités mise en évidence par une colorisation de l'image qui représente la densité surfacique de cavités en %.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

3.4.2.1 Évolution du gonflement le long du gradient de dose

Comme expliqué dans la partie 3.2.3, la géométrie des disques MET irradiés permet d'observer l'ensemble du gradient d'irradiation lorsque l'on étudie la face arrière électropolie au MEB. Il est possible d'associer les densités de cavités mesurées avec les simulations de dose et d'implantation calculées avec le logiciel SRIM en connaissant avec précision l'épaisseur locale du disque ce qui n'est pas le cas ici.

Le fait d'étudier une partie radiale du disque, en supposant que sa forme soit régulière, permet ici d'assimiler l'échantillon à un biseau d'angle α . Lorsque l'angle α est petit, cela permet « d'étaler » le gradient de gonflement et d'étendre la zone irradiée que l'on peut étudier au MEB. La Figure 83 schématise la représentation en biseau de la portion radiale étudiée et l'effet d'étalement de la courbe de gonflement.

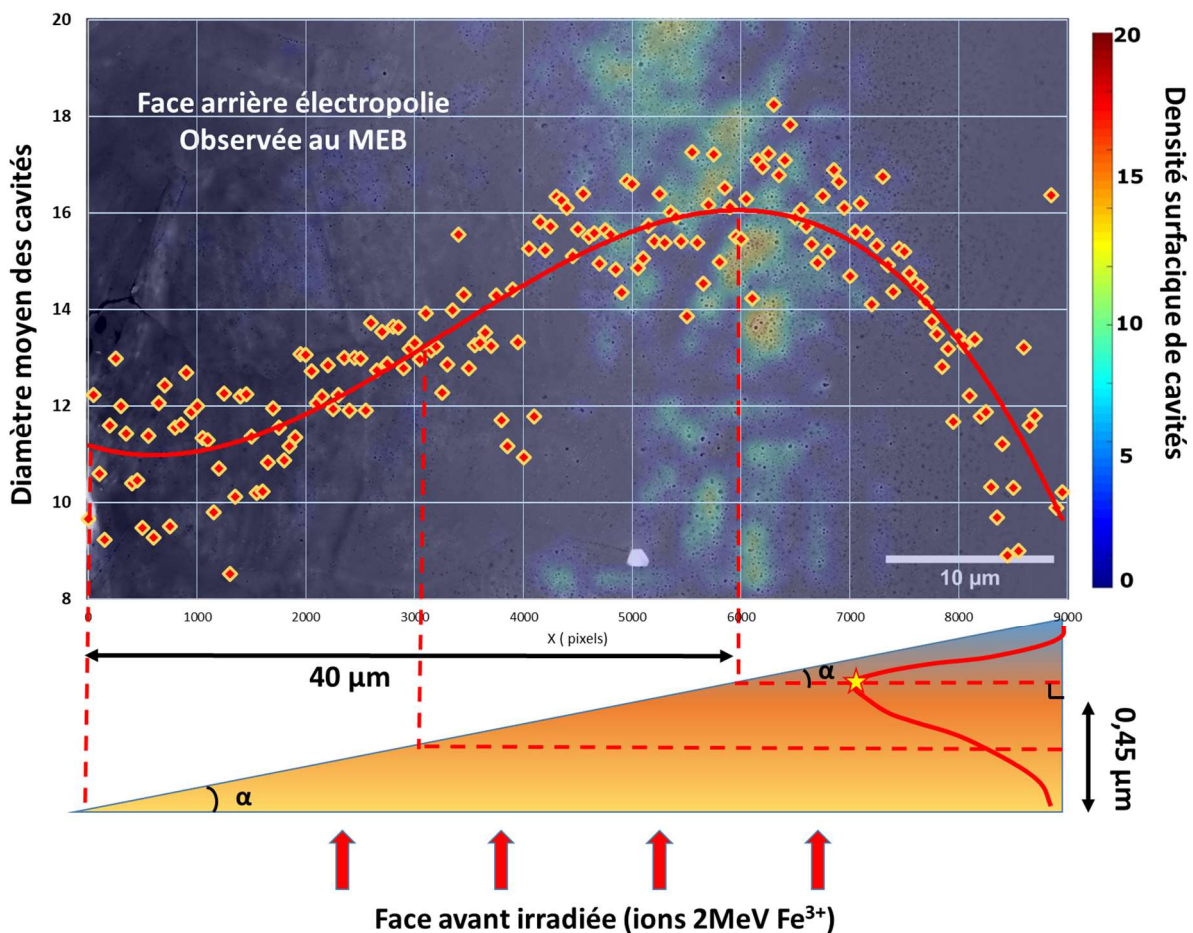


Figure 83 : Schéma de la forme en biseau de la portion radiale de disque irradiée aux ions. La carte en pseudo couleur représente la densité superficielle de cavités. Les points du graphique correspondent au diamètre des cavités moyenné par colonne de 50 pixels. La géométrie en biseau permet « d'étaler » la courbe de gonflement.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

La Figure 84 représente l'histogramme normalisé de la densité surfacique de cavités observées en fonction de leur distance au trou central du disque MET électropoli, qui correspond à une évolution croissante de la profondeur d'irradiation. Il a été estimé que le pic de gonflement se situait aux alentours de 40 μm .

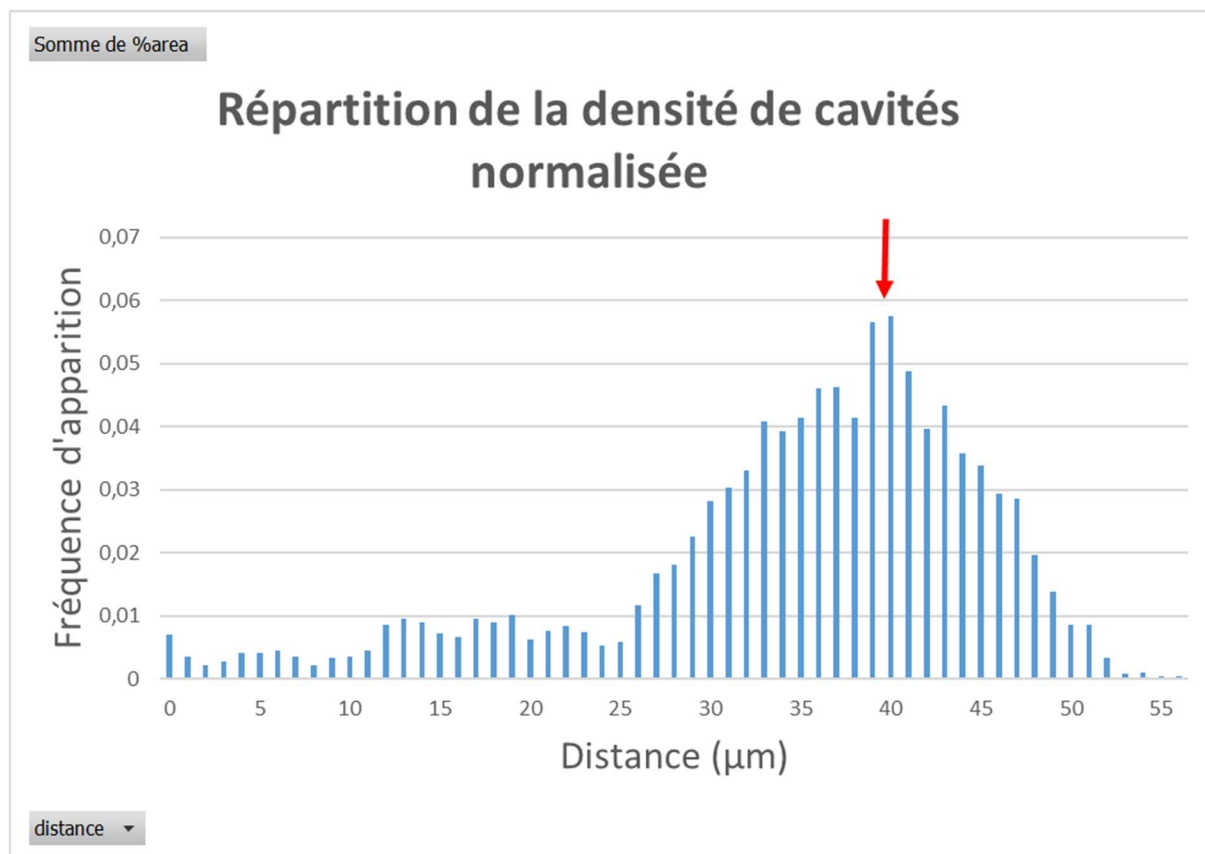


Figure 84 : Histogramme normalisé de la densité surfacique de cavités en fonction de leur distance avec au trou central du disque MET percé par électropolissage (L49M6, J15-3, portion radiale). Le pic de gonflement, indiqué par une flèche, est situé à environ 40 μm du bord du trou du disque irradié.

Dans le cas d'irradiations dans des conditions similaires (ions Fe^{2+} , 2MeV, 600°C), Rouxel observait à l'aide de prélèvement FIB un pic de gonflement situé aux alentours de 450 nm de profondeur [40]. En supposant que ce soit également le cas de cet échantillon, cela permet d'estimer par trigonométrie un angle α de biseau environ égal à 0,64°.

Les Figure 85 et Figure 86 présentent respectivement les pourcentages de pixels associés aux cavités et aux précipités en fonction de la profondeur d'irradiation estimée à partir de l'angle α . Chaque point de mesure correspond au pourcentage de pixels associés aux cavités/précipité par colonne de pixel de l'image (5500 pixels/colonnes).

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

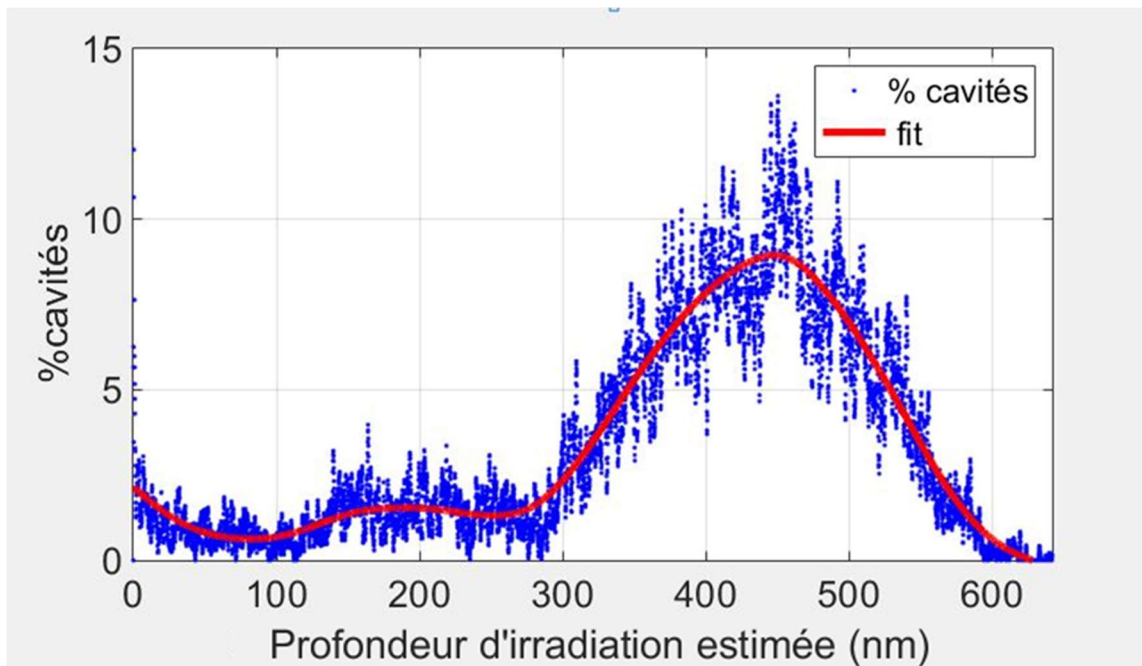


Figure 85 : Evolution du pourcentage de pixels associés à des cavités en fonction de la profondeur d'irradiation calculée à partir de l'estimation de l'angle α . Les valeurs ont été calculées pour chaque colonne de pixels de l'image originale.

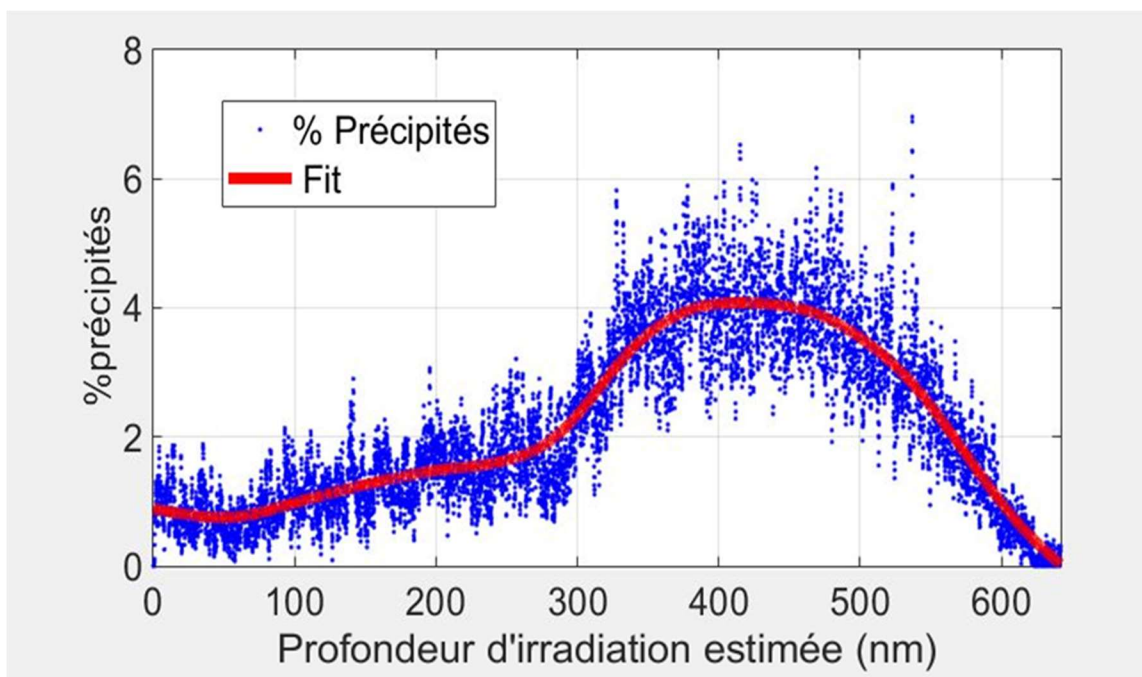


Figure 86 : Evolution du pourcentage de pixels associés à des précipités en fonction de la profondeur d'irradiation calculée à partir de l'estimation de l'angle α . Les valeurs ont été calculées pour chaque colonne de pixel de l'image originale.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

3.4.2.2 Courbe de gonflement d'irradiations aux ions. Corrélation avec la dose calculée SRIM.

L'objectif de cette partie est de présenter la courbe de gonflement qu'il est possible d'obtenir à partir d'un seul échantillon irradié aux ions. Du fait de la présence du gradient de dose ainsi que de l'implantation des ions, il est possible de diviser la zone irradiée en différentes zones en fonction de la profondeur (Figure 87).

Zone 1 : la dose d'irradiation augmente avec la profondeur d'irradiation, il y a peu d'implantation. Il est attendu que le gonflement apparaisse au-delà de la dose seuil d'incubation et qu'il augmente de manière quasi linéaire avec le dommage et la profondeur.

Zone 2 : La dose d'irradiation évolue faiblement tandis que l'implantation d'ions augmente fortement. L'apport supplémentaire d'interstitiels limite la croissance des cavités tandis que la dose est stable. Le gonflement associé à cette zone devrait donc décroître avec la profondeur.

Zone 3 : La dose d'irradiation diminue fortement et il y a une forte implantation, le gonflement devrait donc décroître fortement. Le gonflement de la zone 3 est attendu inférieur au gonflement de la zone 1 à dose d'irradiation égale du fait de l'implantation.

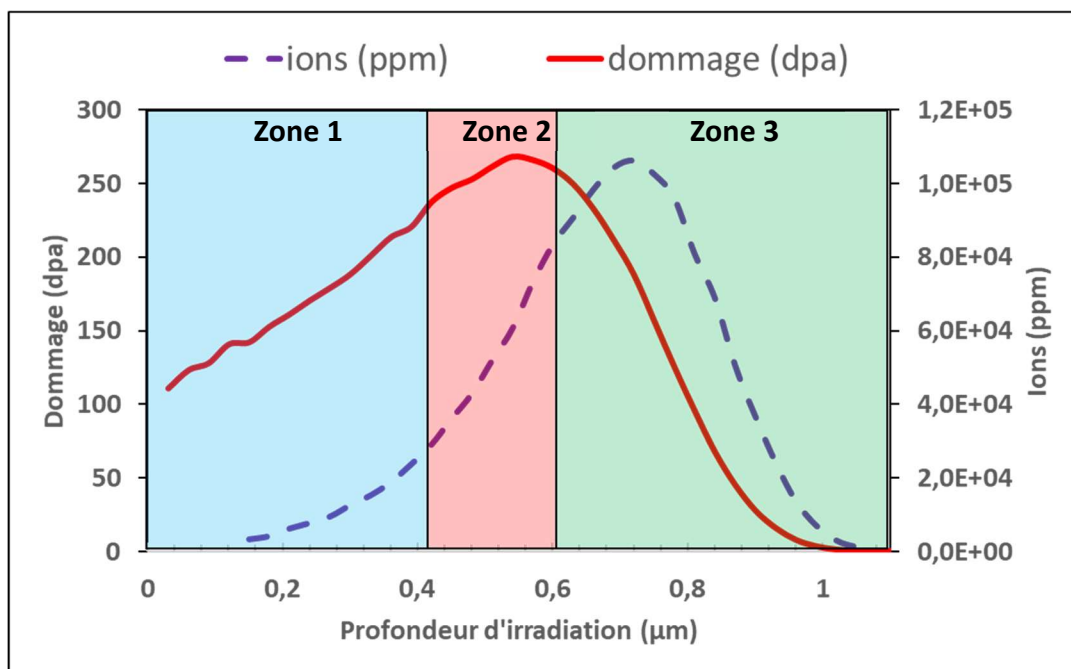


Figure 87 : Simulation SRIM des conditions d'irradiation de l'échantillon L49M6. Les couleurs séparent des domaines en fonction de la dose d'irradiation et de l'implantation.

Comme dans la partie précédente, il a été considéré que le pic de gonflement correspondait à une profondeur de 450nm et que l'épaisseur augmentait de manière linéaire. Chaque colonne de pixels de l'image est donc considérée comme une iso-profondeur. Cette hypothèse est rendue plausible en raison de l'électropolissage particulièrement symétrique et régulier de cet échantillon.

3.4 Présentation de l'approche MEB IA pour l'étude du gonflement

La Figure 88 (a) présente la courbe de gonflement (pourcentage surfacique de cavités) obtenue à partir de ces hypothèses et (b) l'allure de la courbe qui est théoriquement attendue dans le cas d'une irradiation aux ions.

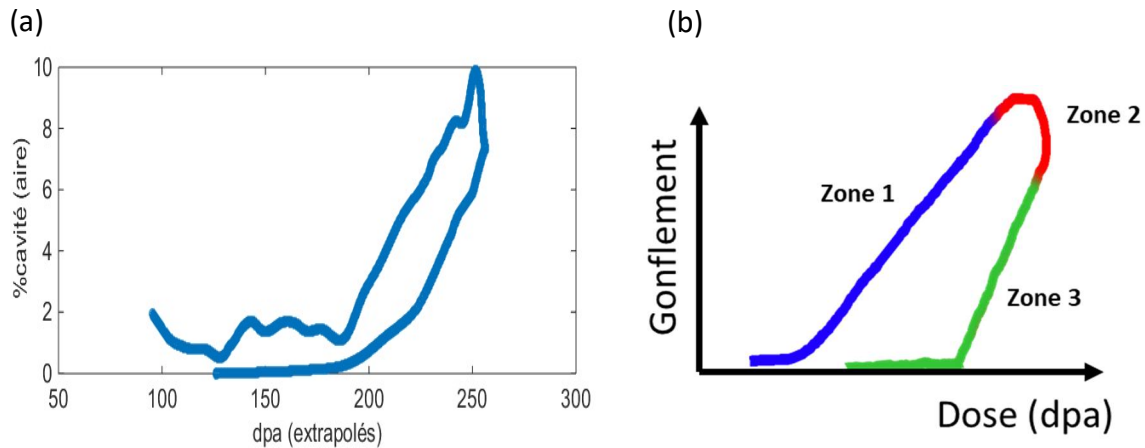


Figure 88: A gauche courbe de gonflement associé à une irradiation aux ions en fonction de la dose extrapolée. A droite allure de la courbe de gonflement attendue pour une irradiation aux ions.

On retrouve une courbe de gonflement proche de l'allure attendue pour un échantillon irradié aux ions. Pour obtenir des résultats plus proches de l'allure théorique, il serait nécessaire de réaliser des mesures plus précises de la géométrie de l'échantillon.

Le prélèvement de lame au FIB (Focused Ion Beam) pourrait être envisagé mais les petites dimensions des échantillons limiteraient la statistique associée aux mesures et la zone de prélèvement pourrait potentiellement ne pas être représentative du comportement global de l'échantillon.

L'utilisation d'un polissage mécanique en biseau permettrait en revanche d'accéder à de larges zones d'étude avec une géométrie maîtrisée ce qui faciliterait la corrélation du gonflement avec les simulations réalisées avec SRIM. Les échantillons seraient par ailleurs compatibles pour des caractérisations MEB et MET dans la zone fine du biseau.

La partie suivante détaille les perspectives concernant des polissages en biseau pour faciliter l'étude du gradient de gonflement et fiabiliser les mesures.

3.5.1 Principe du polissage mécanique en biseau

Une possibilité pour augmenter la surface irradiée observable est de « l'étaler » grâce à un polissage en biseau avec un angle α (Figure 90). À partir d'un échantillon irradié (avec une géométrie plane) un polissage mécanique avec un angle α permet d'intercepter l'ensemble des couches irradiées en maîtrisant la géométrie. Le facteur d'étalement, qui permet d'augmenter la surface analysable au MEB est défini par le rapport des longueurs $L2/L1$ qui est égal à $1/\sin(\alpha)$.

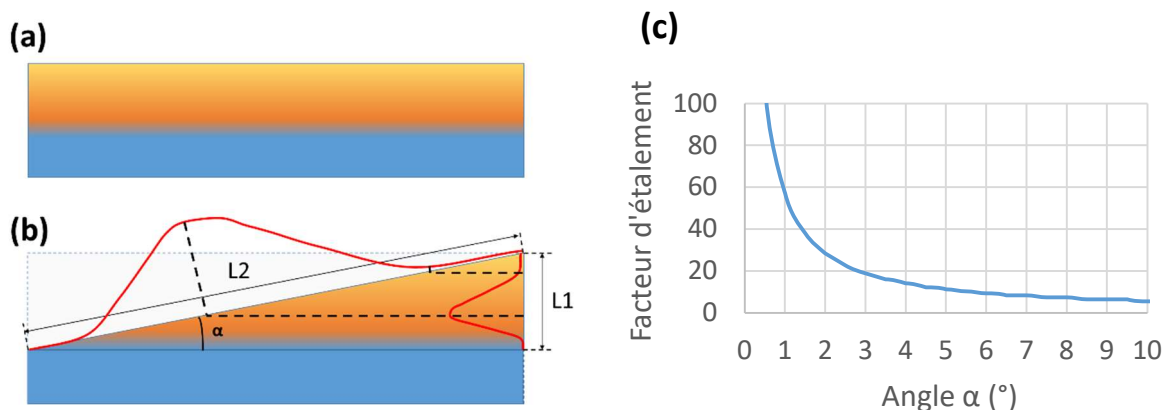


Figure 90 : Schema (a) d'un échantillon plan suite à une irradiation aux ions (b) poli en biseau avec un angle α . (c) Valeur du facteur d'étalement en fonction de l'angle α .

Cette approche devient intéressante pour des valeurs faibles de l'angle α . Un angle de 90° , associé à un facteur d'étalement égal à 1 correspondant au cas du polissage sur la tranche de l'échantillon. Le facteur d'étalement associé à un angle de $2,5^\circ$ permet ainsi d'étaler une profondeur irradiée de $1\mu\text{m}$ sur une zone de $23\mu\text{m}$ de largeur.

3.5.2 Premiers essais de polissage mécanique en biseau

Des essais pour valider la possibilité d'utiliser un polissage mécanique en biseau pour observer les cavités ont été réalisés lors de ce travail. Pour ce faire, un porte échantillon a été usiné avec une rainure de 30° . Cet angle correspond à un facteur d'étalement relativement faible (x2.5) et ne permet pas de réaliser d'étude statistique des populations de cavités. L'utilisation de ce type de porte échantillon permet en revanche de réaliser un polissage sur une petite partie de l'échantillon sans risquer de le détruire totalement lors du polissage.

Ces portes échantillons peuvent être utilisés avec différentes géométries d'échantillons (disque 3mm ou plaquette) et pourraient par exemple être utilisés pour vérifier si la dose d'irradiation a été suffisante pour induire la formation de cavités.

L'échantillon présenté Figure 92 est un 15/15 Ti+Nb avec la microstructure M3V (hypertrempé et vieilli à 800°C) qui est particulièrement sensible au gonflement. Il a été irradié en seconde partie de la campagne JANNuS 7 (ions Fe^{3+} 10MeV). La dose d'irradiation associée en surface est d'environ 29dpa et de 308dpa au niveau du pic de dommage (Figure 91 et Tableau 9).

3.5 Perspectives de polissage mécanique en biseau

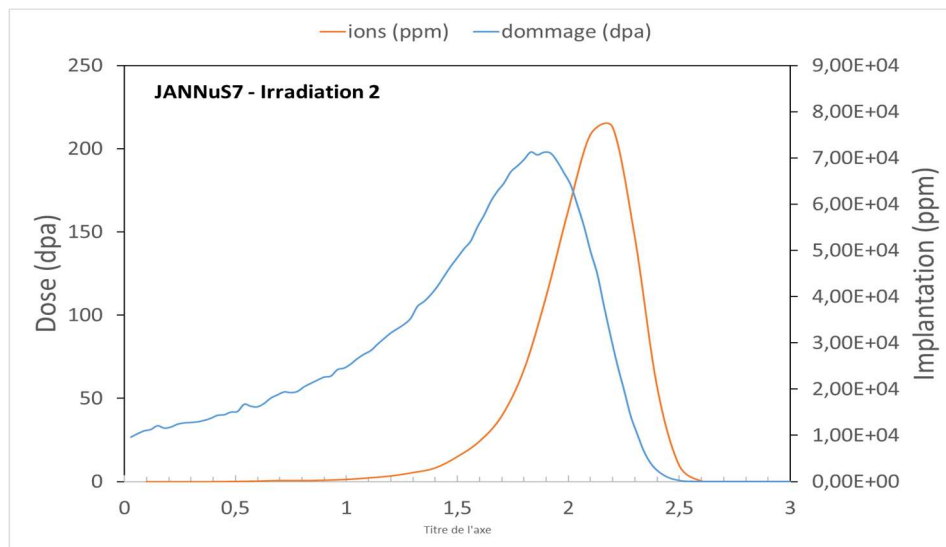


Figure 91: Simulation SRIM des profils de dommage et d'implantation de la seconde partie de l'irradiation JANNuS 7 aux ions Fer 10 MEV

Zone	Profondeur	Dose d'irradiation		taux de dommage	
Surface	0 - 0.1 μm	29	dpa	2,59E-04	dpa/s
début implantation	1.3 - 1.5 μm	119	dpa	1,07E-03	dpa/s
Pic de dommage	1.9 - 2 μm	308	dpa	1,66E-03	dpa/s

Tableau 9 : conditions de la seconde partie d'irradiation de la campagne JANNuS 7.

La Figure 92 présente une photographie du porte échantillon utilisé pour le polissage avec un angle de 30° et des micrographies réalisées au MEB. Des cavités sont observées dans une zone située entre 3.5 et 4.5 μm de la surface irradiée. En prenant en compte le coefficient d'étalement associé à l'angle de 30° , cela permet de localiser le pic de gonflement à une profondeur d'irradiation entre 1.4 et 1.8 μm ce qui est en accord avec la position du pic de gonflement attendu expérimentalement (dose maximum et implantation limitée).

3.5 Perspectives de polissage mécanique en biseau

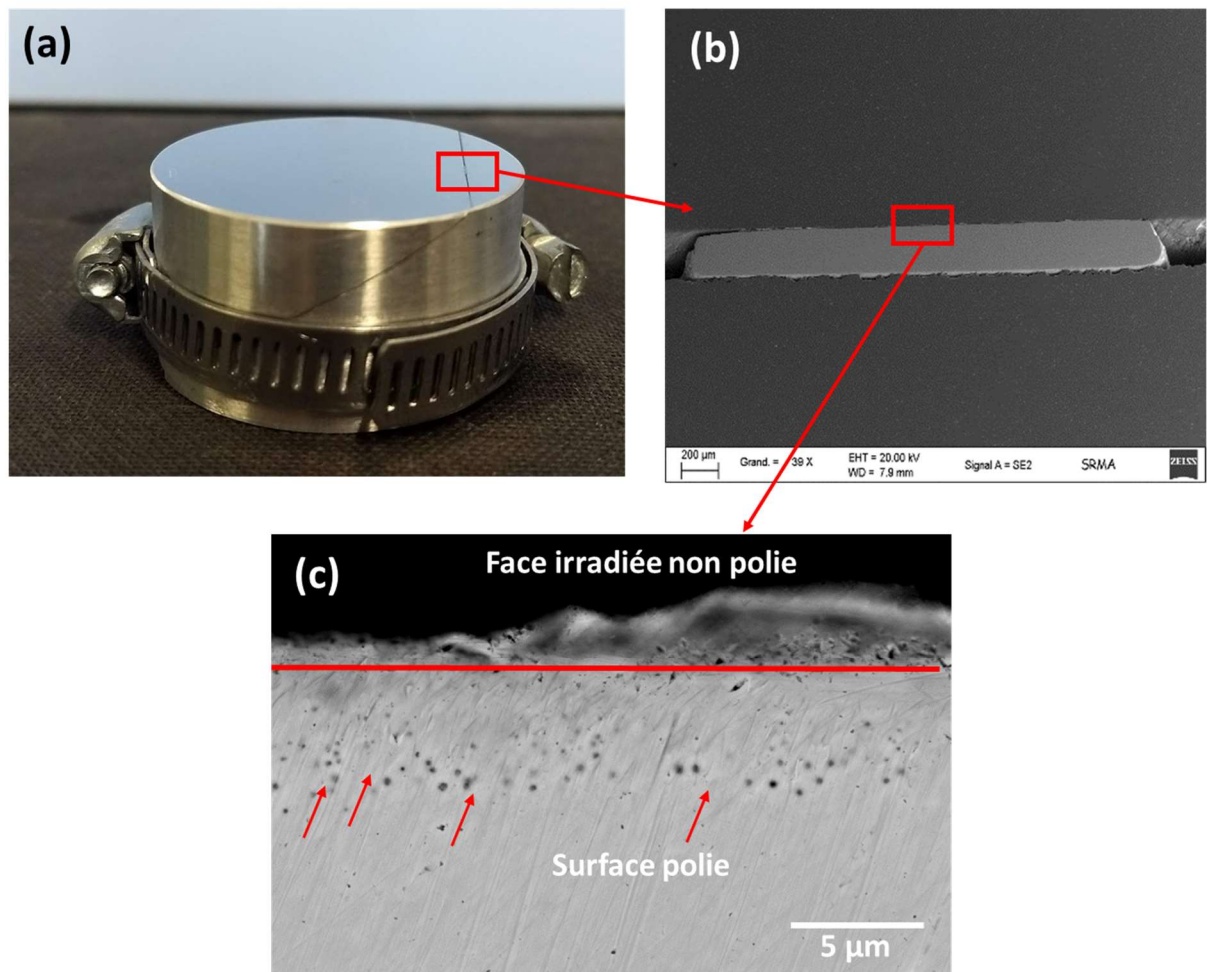


Figure 92 : (a) Porte échantillon pour polissage en biseau à 30° (b) image MEB de l'échantillon poli avec le porte échantillon (c) observation de cavités (flèches rouges) avec le signal rétrodiffusé au MEB. Le polissage manuel a induit un écrouissage en surface qui a refermé certaines des cavités. Il a été nécessaire d'utiliser le signal rétrodiffusé avec une forte tension d'accélération pour pouvoir observer ces cavités (perte de résolution spatiale). Des optimisations du protocole de polissage sont encore nécessaires pour fiabiliser la réalisation de ce type de préparation avec des angles de l'ordre de 1°.

3.6 Conclusion et Perspectives de la méthodologie MEBIA

3.6 CONCLUSION ET PERSPECTIVES DE LA METHODOLOGIE MEBIA

Ce chapitre a permis de présenter la mise en place d'une méthodologie originale pour l'étude du gonflement. L'approche par Microscopie Électronique à Balayage et Intelligence Artificielle (MEBIA) permet de caractériser finement les cavités des échantillons irradiées aux ions.

Cette approche repose sur :

1/ l'observation de la surface par microscopie à balayage avec les électrons secondaires ce qui permet de sonder la matière en extrême surface.

2/ l'acquisition de clichés très haute définition qui permettent d'observer simultanément plusieurs milliers de cavités et d'autres éléments microstructuraux.

3/ l'utilisation d'un algorithme d'analyse d'image en apprentissage supervisé permettant une analyse semi-automatisée des clichés.

Cette approche a été validée sur une lame mince et peut être déployée sur des échantillons polis en biseau avec une géométrie maîtrisée. Un porte échantillon permettant de polir des échantillons irradiés avec un biseau de 30° a permis de montrer qu'un polissage mécanique était envisageable pour étudier la formation des cavités. Il serait également possible d'étudier la zone fine d'un échantillon poli en biseau avec un MET.

L'approche MEBIA sur des échantillons irradiés aux ions permettrait d'analyser la répartition des cavités en fonction du gradient de dose et d'implantation mais aussi d'étudier d'autres éléments de la microstructure (précipités, joints de grain etc.).

Cette approche est également applicable pour les échantillons irradiés en réacteurs, on pourrait analyser de très grandes surfaces ce qui permettrait une meilleure compréhension des différents effets des éléments de la microstructure (joints de grains, précipités) et une fiabilisation par augmentation de la statistique de l'estimation du gonflement à partir de l'étude des cavités.

Chapitre IV

Simulation numérique du gonflement par dynamique d'amas

« [...] un ordinateur dont je ne saurais encore calculer les simples paramètres de fonctionnement – mais que je concevrai néanmoins pour vous.

Un ordinateur susceptible de calculer la Question à l'Ultime Réponse. Un ordinateur d'une si infiniment subtile complexité que la vie organique elle-même fera partie intégrante de ses unités de calcul. »

ADAMS, Douglas, 2005.

Le guide du voyageur galactique.

L'objectif de ce chapitre est de présenter des résultats obtenus expérimentalement confrontés à des résultats de simulation obtenus avec le code de dynamique d'amas CRESCENDO codéveloppé par le CEA et EDF R&D. Cette démarche analytique permet de mieux comprendre les effets des différents mécanismes et leurs conséquences sur la formation des cavités. Le code est utilisé de manière qualitative pour évaluer l'interdépendance des mécanismes et mesurer l'importance relative des différents éléments de microstructure de l'acier. Cela permet de tester numériquement différentes combinaisons et explorer les possibilités de créer de nouvelles microstructures optimisées.

Des résultats expérimentaux sont présentés, ainsi que des simulations qui permettent d'éclairer la compréhension des résultats. L'introduction récente des précipités par T. Jourdan dans le code permet de prendre en compte l'interaction de précipités avec les défauts ponctuels. Cette nouvelle fonctionnalité a été utilisée pour simuler différentes microstructures dont les caractéristiques ont été présentées au chapitre II.

L'effet de la température sur le gonflement est un point de divergence entre les simulations et les résultats expérimentaux. L'origine de cet écart, suspecté d'être lié à une évolution de la microstructure est discuté.

Des études de sensibilités vis-à-vis de la densité de dislocations et des nano précipités sont présentées dans la troisième partie de ce chapitre. Les simulations montrent une forte variabilité du gonflement pour des densités de dislocations représentatives de matériaux écrouis. Une nette amélioration de la résistance au gonflement est constatée avec l'association de nano précipités avec une forte densité de dislocations.

4.1 La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory)

4.1 LA MODELISATION DU GONFLEMENT PAR DYNAMIQUE D'AMAS (RATE THEORY)

Cette partie présente les principes de la modélisation du gonflement par dynamique d'amas. Elle traite le gonflement de manière qualitative pour permettre une meilleure description et compréhension des mécanismes à l'origine du gonflement. Elle permet de souligner l'importance des éléments de la microstructure qui peuvent servir de puits de défauts et de la température d'irradiation.

4.1.1 Mécanismes menant à l'apparition des cavités

Différents modèles ont été développés et présentés dans la littérature pour modéliser l'évolution microstructurale des aciers austénitiques sous irradiation. Le gonflement est en générale décrit par la théorie de la cinétique chimique. Ce type de modélisation considère les évolutions de concentrations des différents amas de défauts en fonction de leur nature et de leur taille à partir de lois d'évolution de type cinétique chimique. Les amas de défauts de taille n considérés ici peuvent être de nature lacunaire ou interstitielle. Par convention ces amas sont de nature lacunaire lorsque $n < 0$ ou de nature interstitielle si $n > 0$.

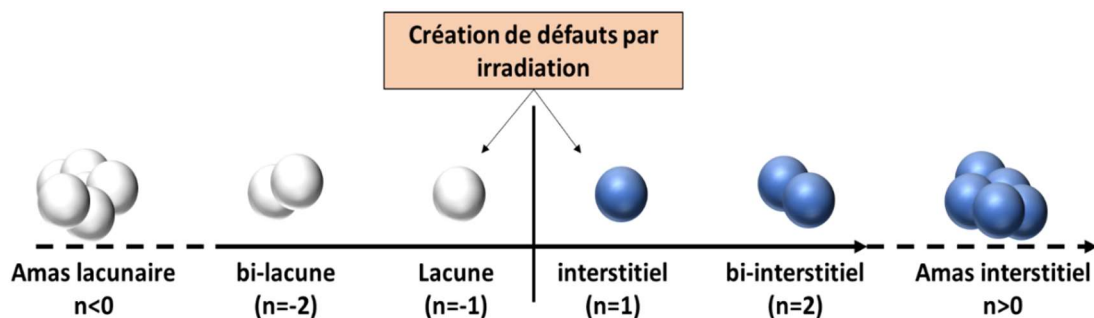


Figure 93 : Axe des amas de taille n considérés pour la simulation du gonflement. Par convention, ces amas sont de nature lacunaire lorsque ($n < 0$) ou de nature interstitielle si ($n > 0$).

Les évolutions de tailles d'amas immobiles peuvent se faire soit par absorption soit par émission de défauts mobiles de même nature que l'amas. Pour représenter la génération de défauts sous irradiation, des amas de taille 1 ou -1 sont introduits de manière spontanée.

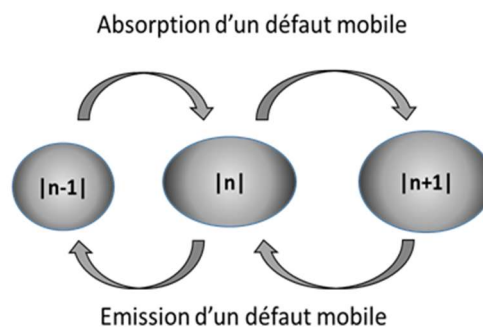


Figure 94 : Schématisation des évolutions des amas de taille n . Les tailles d'amas peuvent évoluer par absorption ou émission d'un mono défaut mobile.

4.1 La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory)

4.1.2 Les équations élémentaires

En dynamique d'amas c'est un système d'équations différentielles sur les concentrations C_n qui est résolu. Dans le cas où seuls les mono défauts sont considérés mobiles ($m = -1$ ou 1). Ces derniers peuvent s'annihiler en diffusant vers les puits de défauts de la microstructure ou en interagissant avec des amas de défauts. Un puits de défauts est un lieu dans la matrice où les défauts mobiles peuvent être absorbés. Physiquement, les puits de défauts sont des discontinuités dans le réseau cristallin. Ils peuvent être linéiques (dislocations, boucles de Frank) ou surfacique (joints de grains, cavités, interfaces précipités-matrice).

L'évolution des concentrations moyennes de lacunes (C_v) et d'interstitiels (C_i) simples est donnée par les équations ci-dessous (formalisme de Was [2]). Dans ce formalisme, les grandeurs relatives aux interstitiels, aux lacunes et aux puits de défauts sont respectivement associées aux indices **i** (Interstitial) **v** (Vacancy) et **s** (Sink).

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = K_0 - K_{iv}C_iC_v - \sum_k K_{vs,k}C_vC_{s,k} \quad 4.1$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = K_0 - K_{iv}C_iC_v - K_{is}C_iC_s \quad 4.2$$

Avec

K_0 Terme de création de défauts ponctuels sous irradiation

K_{iv} Constante cinétique associée au mécanisme de recombinaison interstitiel lacune

K_{vs} Constante cinétique associée à la capture des lacunes par les puits

K_{is} Constante cinétique associée à la capture des interstitiels par les puits

C_i ; C_v ; C_s Concentrations moyennes respectivement d'interstitiels, de lacunes, de puits

La suite de cette partie présente différents scénarios d'apparition du gonflement en fonction de la population de puits de défauts initialement présents dans la microstructure et de la température d'irradiation.

4.1.3 Scénarios d'évolution de microstructures.

Cette partie décrit qualitativement différents scénarios en fonction de la microstructure initiale et de la température d'irradiation. L'objectif de cette partie est de présenter les successions d'étapes qui sont à l'origine du gonflement et la façon dont les éléments de microstructure et la température d'irradiation sont susceptibles de les modifier. Il faut noter que la mobilité des interstitiels est bien plus élevée que celle des lacunes dans les matrices austénitiques avec plusieurs ordres de grandeurs entre les coefficients de diffusion des lacunes et des interstitiels. Bien que la présence de puits biaisés ne soit pas prise en compte dans les scénarios suivants, la différence de vitesse de diffusion est suffisante pour engendrer une sursaturation lacunaire en régime permanent dans le matériau. Les deux premiers scénarios présentés ici sont issus de [2].

4.1 La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory)

Hypothèses des scénarios :

- Le milieu est un métal pur. Les liaisons des défauts avec les solutés (piégeages) ne sont pas prises en compte.
- Seule l'apparition de mono-défauts mobiles est considérée, la formation de bi-défauts ou d'amas de taille supérieure en intra cascade est négligée.
- Pas d'influence du biais
- Les populations et forces de puits sont indépendantes du temps, sauf dans le cas du dernier scénario

4.1.3.1 Scénario 1 : Irradiation à basse température et forte densité de puits

A basse température, la mobilité des défauts est globalement faible. Les interstitiels qui sont les plus mobiles, rencontrent les puits de la microstructure avant que ne se forment les lacunes.

Les différentes phases au cours de l'irradiation présentées Figure 95 sont les suivantes :

- 1- Accumulation des défauts d'irradiation dans la microstructure en proportion égales par création des paires de Frenkel.
- 2- Contribution des puits pour l'absorption des interstitiels : La concentration d'interstitiels atteint un premier équilibre avec l'absorption par les puits tandis que la concentration de lacunes continue d'augmenter proportionnellement au temps et au flux.
- 3- Recombinaisons des lacunes et des interstitiels : La concentration de lacunes augmente progressivement ce qui favorise les recombinaisons lacunes-interstitiels. Une fraction des lacunes se recombinent mais elles ne sont pas encore absorbées par d'autres puits.
- 4- Arrivée des lacunes aux puits : Les lacunes arrivent aux puits ce qui permet aux concentrations de lacunes et d'interstitiels d'atteindre un état stationnaire.

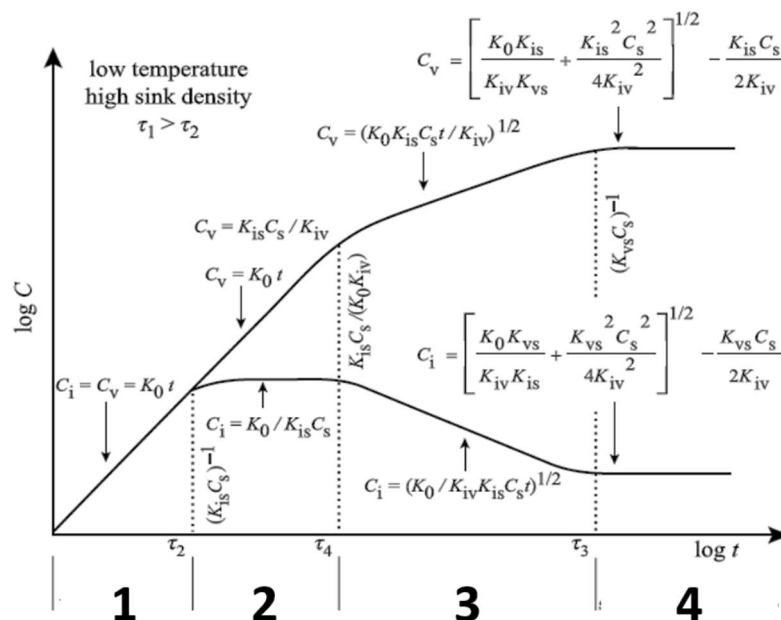


Figure 95 : évolution des concentration de lacunes et interstitiels d'après la Rate Theory dans le cas d'une irradiation à basse température en présence d'une forte densité de puits. [2].

4.1 La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory)

4.1.3.2 Scénario 2 : Irradiation à haute température

Dans ce scénario la haute température fait que les interstitiels sont très fortement mobiles et très rapidement dominé par les puits. Il faut également noter qu'un effet potentiel de la haute température est la présence non négligeable de lacunes émises thermiquement.

Les différentes phases au cours de l'irradiation représentées Figure 96 sont les suivantes :

1- Accumulation des défauts en proportion égale dans la matrice : Régime transitoire à priori rapide (nano secondes) du fait de la haute température et des mobilités accrues.

2-Élimination des interstitiels aux puits : Les interstitiels très mobiles sont rapidement absorbés aux puits. Cela limite leur concentration dans la matrice ce qui limite les recombinaisons avec les lacunes. La concentration de lacunes continue d'augmenter dans la microstructure.

3- Arrivée des lacunes aux puits : Etablissement du régime permanent avec l'absorptions des lacunes par les puits de la microstructure. Les concentrations à l'équilibre dépendent de la concentration de puits C_s et tend vers 0 lorsque l'on augmente la densité de puits.

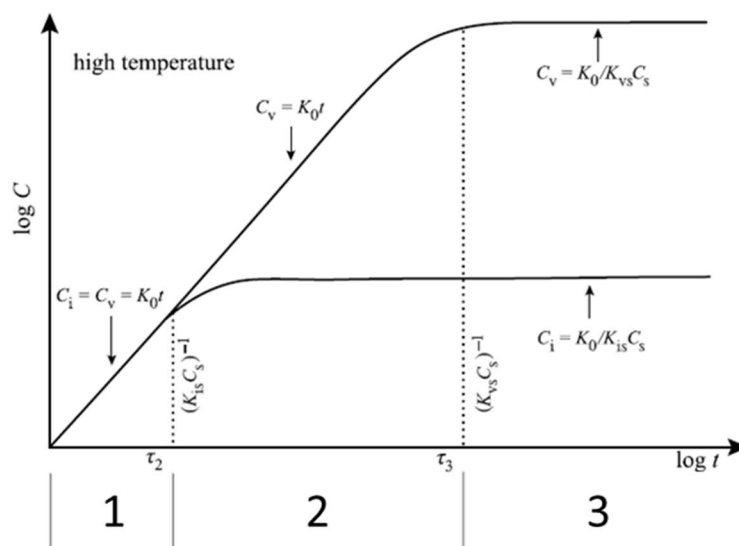


Figure 96 : Évolution des concentrations de lacunes et interstitiels d'après la Rate Theory dans le cas d'une irradiation à haute température Figure issue de [2].

4.1.3.3 Scénario 3 : Irradiation à haute température, forte densité de puits et évolution de la microstructure (cette étude)

Comme vu avec les précédents scénarios, l'augmentation des concentrations de puits tout comme l'augmentation de la température réduisent théoriquement la durée des transitoires. Dans nos conditions d'irradiation à haute température et haut flux, les calculs montrent que le régime pseudo stationnaire de la sursaturation lacunaire est atteint de manière quasi-instantanée ($< \mu s$).

Or il a été confirmé expérimentalement lors de ce travail et dans la littérature que le gonflement apparaissait plus rapidement dans les nuances recristallisées (faible densité de puits) et que la dose d'incubation était rallongée dans le cas des échantillons écrouis (forte densité de puits). Cela montre que l'établissement du régime permanent prévu dans les scénarios précédents n'implique pas nécessairement l'apparition du gonflement.

4.1 La modélisation du gonflement par dynamique d'amas (Rate Theory)

L'hypothèse de population de puits stables des deux précédents scénarios a pour mérite d'être simplificatrice mais fautive. La microstructure évolue lors de l'irradiation (évolution de la densité de dislocations, précipitation, germination de cavités et de boucles etc...). Cette évolution de la microstructure est toute fois plus lente que l'évolution des défauts ponctuels c'est pourquoi on parle de pseudo régime permanent.

La Figure 97 présente une simulation de l'évolution de la concentration de lacunes et d'interstitiels en prenant en compte les évolutions du réseau de dislocations, de germination et de croissance des amas de défaut. Cette simulation a été réalisée grâce au code CRESCENDO présenté qui est présenté dans la suite de ce chapitre.

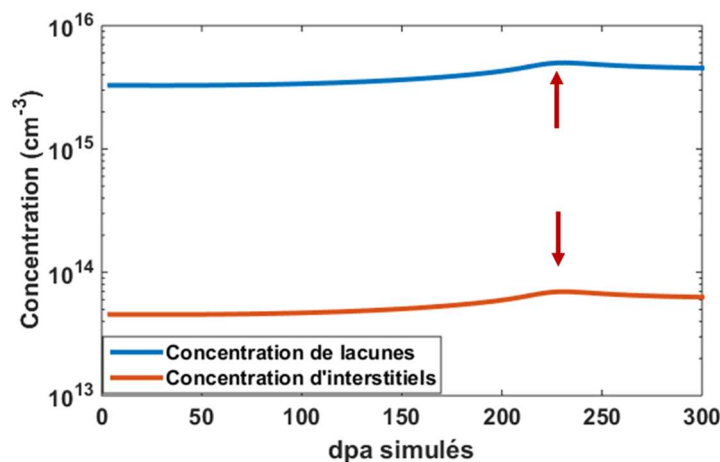


Figure 97 : Simulation de l'évolution des concentration de défauts mobiles (lacunes et auto interstitiels) dans la microstructure dans le cas d'un scénario à haute température (550°C) et haute densité de puits (écroui). Les flèches correspondent au moment de la germination des cavités.

Bien que le pseudo équilibre soit atteint de manière quasi instantanée, on observe une augmentation progressive des concentrations de lacunes et d'interstitiels. Cela est dû à la diminution de la force de puits globale de la microstructure du fait de la restauration du réseau de dislocations.

Les concentrations de défauts ponctuels atteignent un pic (indiqué par des flèches sur la Figure 97) qui correspond à la germination des cavités et le début du gonflement. L'apparition de cavités provoque l'apparition de nouveaux puits qui permettent à la microstructure d'atteindre un nouvel équilibre. C'est la fin de la dose d'incubation du gonflement et la croissance des cavités est alors majoritairement gouvernée par les puits biaisés.

Ces résultats montrent que l'étape limitant l'apparition du gonflement dans nos expériences est vraisemblablement celle de la germination des cavités, qui nécessite un taux de lacunes en sursaturation suffisant pour former les germes critiques de cavités.

4.1 Simulation numérique du gonflement

4.1 SIMULATION NUMERIQUE DU GONFLEMENT

4.1.1 Présentation du code CRESCENDO

CRESCENDO est un code de dynamique d'amas (DA) permettant de simuler l'évolution des concentrations d'amas de défauts lacunaires (cavités) et interstitiels (boucles) jusqu'à de très fortes doses, sans nécessiter de très grandes puissances de calcul. Les détails du modèle et des méthodes de résolutions numériques sont présentés dans [115]–[117].

Par principe, la modélisation en champ moyen considère que le matériau est homogène et n'est constitué que d'un seul type d'atome. Il est possible, dans une certaine mesure, de prendre en compte les effets d'alliage en modifiant les propriétés des défauts ponctuels et de leurs amas (diffusion, stabilité). On ne prend pas en compte les variations de composition chimique locale de l'alliage, on parle parfois « d'alliage gris ».

La simulation est utilisée de manière qualitative et nous sert ici d'outil de réflexion pour comprendre les résultats obtenus expérimentalement et tester numériquement les possibilités d'optimisations de microstructure.

4.1.1.1 Équations générales du modèle

Les équations gouvernant les évolutions des tailles d'amas immobiles par absorption ou émission de défauts mobiles sont données par :

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in [-1;1]} J_{n-m,n} - \sum_{m \in [-1;1]} J_{n,n+m} + G_n \quad (4.3)$$

$$J_{n,n+m} = \beta_{n,m} C_n C_m - \alpha_{n+m,m} C_{n+m} \quad (4.4)$$

n est un indice identifiant l'amas ; par convention, il est positif pour des amas interstitiels et négatif pour des amas lacunaires. $|n|$ correspond au nombre d'interstitiels ou de lacunes dans l'amas. Par exemple, une lacune est identifiée par $n = -1$, tandis qu'un interstitiel est identifié par $n = 1$.

G_n est le terme source pour la création d'amas de taille n

$J_{n,n+m}$ est le flux net d'amas de taille n passant à la taille $n+m$ par l'absorption d'un amas mobile de taille $(n+m) - n = m$

$\beta_{n,m}$ et $\alpha_{n,m}$ sont respectivement les coefficients d'absorption et d'émission de défauts mobiles m par un amas n .

4.1 Simulation numérique du gonflement

Dans le cas des amas mobiles, il faut prendre en compte les possibilités d'absorptions par les puits de défauts et par les autres amas. Les équations dans ce cas deviennent alors :

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in [-1;1]} J_{n-m,n} - \sum_{m \in [-1;1]} J_{n,n+m} + G_n - \sum_m J_{m,n+m} - \sum_j k^2_{j,n} D_n (C_n - \overline{C_{n,j}}) \quad (4.5)$$

- j** est la nature du puits (dislocation, précipité, ...)
- $k^2_{j,n}$ est la force de puits de nature j
- D_n** est le coefficient de diffusion de l'amas n
- $\overline{C_{n,j}}$ est la concentration de l'espèce n à l'équilibre thermique local au voisinage du puits j

4.1.1.2 Mécanismes pris en compte dans le code

Cette partie est une liste non-exhaustive des mécanismes pris en compte dans le modèle, accompagnée d'une description très succincte de leurs effets. Une présentation plus complète de CRESCENDO et des mécanismes considérés est disponible dans [115], [116].

4.1.1.2.1 Incorporation des boucles de Frank et évolution du réseau de dislocations

Les amas d'interstitiels sont par convention les amas de taille n avec n un entier positif. Un modèle d'incorporation des boucles de Frank au réseau de dislocations est inclus dans le code. Il permet de reproduire avec succès la saturation de la taille des boucles de Frank ainsi que l'augmentation de la densité de dislocations pour un matériau hypertrempé [87], [88], [118]

La restauration des dislocations assistée par montée sous irradiation est aussi prise en compte dans le modèle. Les dislocations modélisées peuvent monter et s'annihiler par l'absorption et l'émission de défauts ponctuels. La vitesse de montée v_c possède une composante liée à l'irradiation et une composante thermique.

La saturation de la densité de dislocations observée expérimentalement s'explique par la compétition entre l'incorporation des boucles de Frank dans le réseau de dislocations et la restauration des dislocations assistée par la montée.

4.1.1.2.2 Précipités

La possibilité de prendre en compte une ou plusieurs populations de précipités P_n a récemment été ajoutée dans le code par Jourdan [119]. Les populations P_n de précipités sont définies par les paramètres suivants : leur rayon r considéré comme constant, leur densité et leur énergie de liaison avec les lacunes ainsi que par leur densité surfacique de sites S_t susceptibles d'accepter des défauts mobiles.

Dès 1981, Brailsford et Mansur ont anticipé les effets que pouvaient avoir les précipités sur le gonflement [120]. Mansur avait prévu que dans le cas de précipités cohérents, ces derniers ne pourraient accommoder qu'un nombre fini de lacunes et seraient donc saturables. Au contraire,

4.1 Simulation numérique du gonflement

les précipités incohérents pourraient ne pas être saturables et servir de sites de germination pour les cavités comme cela est observé expérimentalement au MET avec les phases G.

Les précipités modélisés peuvent ainsi être de deux natures : **saturables** ou **insaturables**. Un précipité de nature **saturable** ne peut piéger qu'un nombre fini de lacunes ou d'interstitiels. Lorsque l'ensemble des sites accepteurs de défauts sont occupés, le précipité devient alors infiniment biaisé en faveur des défauts de nature opposée. Ce type de précipité est donc un site de recombinaison privilégié pour défauts mobiles mais ne peut pas servir de site de germination. Un précipité de nature **insaturable** n'est pas limité par le nombre de défauts qu'il peut accueillir, il peut donc devenir un site de germination. **Dans cette étude l'ensemble des précipités sont considéré saturables.**

La modélisation d'échantillons hypertremés est une des limites rencontrées dans ce travail. Il est en effet complexe de prendre en compte la formation de précipités pendant dans les simulations. Il est possible d'entrer une loi d'évolution de la densité de précipités dans le code mais cela nécessiterait d'établir un modèle de précipitation sous irradiation qui est fortement dépendante des conditions d'irradiation. La modification de la composition chimique de la solution solide serait également à prendre en compte car celle-ci influence fortement la résistance au gonflement.

La modélisation d'échantillons vieillis thermiquement est plus simple car les microstructures vieilles contiennent des populations de précipités stables et la solution solide est appauvrie avant l'irradiation. Cela permet de limiter la précipitation pendant l'irradiation et de minimiser les variations de la composition chimique de la solution solide.

4.1.2 Jeu de paramètres du code

4.1.2.1 Les paramètres matériaux

Les paramètres matériaux sont des paramètres ajustés en fonction du matériau étudié, de sa composition chimique et de son état métallurgique.

Une partie des paramètres sont des grandeurs physiques qui ne sont pas toutes mesurables dans le cas des nuances complexes. Ces valeurs servent de variables d'ajustement et un jeu de paramètres est associé à chaque nuance qui représente les propriétés globales moyennées du matériau sous la forme d'un « alliage gris ».

4.1.2.2 Paramètres liés à l'irradiation

Ces paramètres sont utilisés pour décrire les conditions expérimentales dans lesquelles se déroulent l'irradiation (taux de dommage, température) et simuler au mieux les conditions des différentes expériences d'irradiation.

4.1.2.3 Paramètres numériques

Ces paramètres concernent la stratégie de résolution numérique du système d'équations : tolérances sur l'erreur numérique, qui vont jouer sur le pas de temps, solveurs numériques utilisés, etc. En pratique ces paramètres ne jouent pas sur la solution physique et ne sont donc pas discutés ici, des précisions sont disponibles dans [121].

4.1 Simulation numérique du gonflement

4.1.2.4 Synthèse des paramètres utilisés pour les simulations

Les paramètres matériaux pertinents utilisés pour les simulations présentées sont résumés dans le tableau suivant Tableau 10. Ces paramètres et leur plage d'ajustement sont issus de précédents travaux de Kountchou [122], Michaut [88] et des références ([118], [121], [123], [124]).

α	Paramètre de maille	3,639	Å	Cette étude
ρ	Densité de dislocations initiale	10^9-10^{11}	cm^{-2}	Cette étude
η	Efficacité de cascade (coefficient de recombinaison)	1%		Ajusté
D_1^0	Pré-facteur de diffusion d'un interstitiel	4.10^{-2}	$\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$	[122]
D_{-1}^0	Pré-facteur de diffusion d'une lacune	1	$\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$	[122]
E_1^m	Energie de migration d'un interstitiel	0,87	eV	[122]
E_{-1}^m	Energie de migration d'une lacune	1,4	eV	Ajusté [118][122]
E_1^f	Energie de formation d'un interstitiel	4	eV	[88]
E_{-1}^f	Energie de formation d'une lacune	2	eV	[88]
$E_{2,1}^b$	Energie de liaison entre deux interstitiels	1,3	eV	[88]
$E_{-2,-1}^b$	Energie de liaison entre deux lacunes	0,45	eV	[88]
$E_{v,pn}^b$	Energie de liaison précipités lacunes	1.4	eV	Ajusté
σ_d	Écart type de la distribution de dislocations	0,3		[88]
Z_i	Efficacité d'absorption des interstitiels au niveau des boucles et des dislocations	1,05		Ajusté
Z_v	Efficacité d'absorption des lacunes au niveau des boucles et des dislocations	1		
r_{iv}	Rayon de recombinaison des interstitiels et lacunes	6	Å	[88], [122]
$f_i(n)$	Fraction d'amas interstitiels sous forme d'amas de taille n créés	$f_i(5) = 1.10^{-5}$		Ajusté [122]
$f_v(n)$	Fraction d'amas lacunaires sous forme d'amas de taille n créés	$f_i(9) = 2.10^{-4}$		Ajusté [122]

Tableau 10 : Paramètres de simulation utilisés dans les simulations de ce chapitre

4.1 Simulation numérique du gonflement

4.1.3 Discussion sur l'ajustement des paramètres du modèle

Ce modèle a précédemment été utilisé pour modéliser l'évolution de cavités et de boucles dans des nuances industrielles 304, 316 [88] mais également sur l'AIM1 [122]. CRESCENDO parvient à rendre compte de phénomènes complexes observés expérimentalement tels que l'évolution du réseau de dislocations, la formation de boucles de Frank et des cavités. Pour modéliser ces mécanismes de nombreux paramètres physiques sont nécessaires, dont certains difficilement mesurables expérimentalement et sont donc ajustés.

Le nombre de paramètres nécessaires augmente avec le nombre de mécanismes pris en compte dans le modèle. Il y a donc une augmentation des risques de sur-ajustement (overfitting) qui peut se traduire par une reproduction des incertitudes de mesures associées aux données expérimentales utilisées pour calibrer le jeu de paramètres.

Bien que le gonflement des gaines de combustible soit homogène au niveau macroscopique, il ne l'est pas nécessairement au niveau microscopique, à l'échelle des cavités. La répartition parfois hétérogène des cavités (Figure 98), la forte influence des conditions d'irradiation et de la microstructure montrent la nécessité d'analyser de larges plages expérimentales pour réduire les incertitudes de mesure.

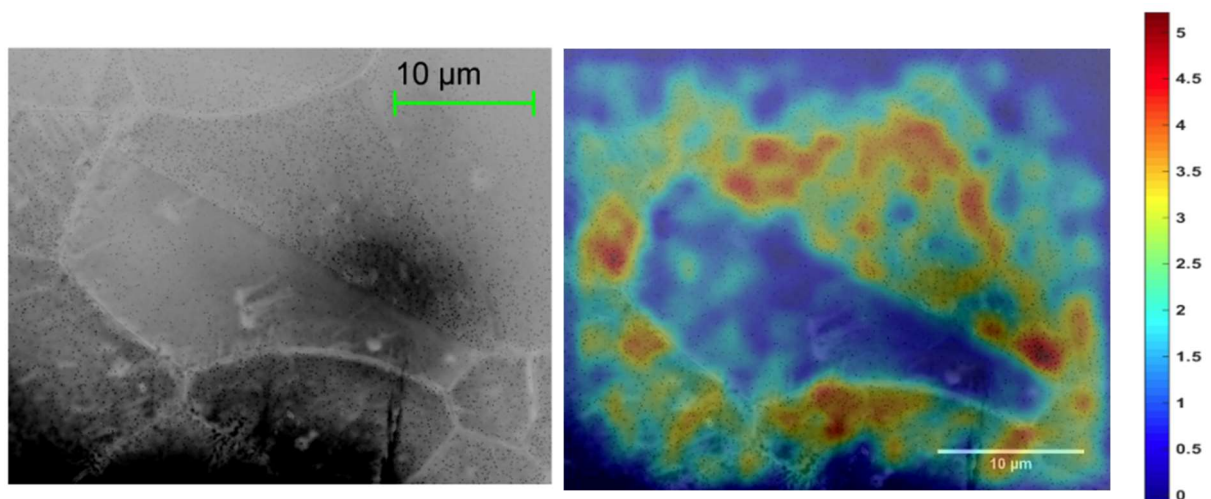


Figure 98 : Exemple de répartition hétérogène de cavités de part et d'autre d'une macule dans un grain. Les différences de gonflement de part et d'autre de la macule sont mises en évidence par une carte couleur de la densité surfacique de cavités. (L46M1 campagne J14)

La création d'un jeu de paramètres optimisé doit être conduite en vue de modélisations pour un alliage aux spécifications maîtrisées. Cela nécessite un volume conséquent de données expérimentales pour fiabiliser statistiquement les simulations. Le développement de la méthodologie présentée au chapitre III va dans ce sens car elle permet l'acquisition de données sur une plage continue de valeurs de dose et d'implantation sur un nombre réduit d'échantillons.

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2 SIMULATION DU GONFLEMENT DE MICROSTRUCTURES IRRADIEES AUX IONS SUR LA PLATEFORME JANNUS SACLAY

Cette partie présente des observations expérimentales et des résultats de simulation du gonflement qui ont été menées avec le code de dynamique d'amas CRESCENDO.

La première partie traite de la problématique de l'effet de la température d'irradiation sur le gonflement. Les résultats obtenus expérimentalement lors de ce travail sont présentés et montrent que le gonflement est favorisé à haute température. Au contraire, les simulations montrent une diminution du gonflement au-delà de 550°C. L'origine de ces différences qui est suspectée d'être causée par des modifications microstructurales lors de l'irradiation est discutée.

La seconde partie présente les résultats de simulation du gonflement de trois microstructures modèles vieilles qui sont comparées avec une nouvelle analyse d'échantillons irradiés aux ions lors de la campagne J15-4 par Rouxel [40]. L'effet des nano précipités sur la simulation du gonflement est discuté. Une partie de ces résultats a été présentée dans un article ICAPP2019 reproduit en annexe D.

4.2.1 Influence de la température sur le gonflement

4.2.1.1 Résultats expérimentaux effet de température et stabilisation : Irradiations JANNuS 1 à 5.

Cinq campagnes d'irradiation ont permis d'évaluer expérimentalement l'effet de la température d'irradiation (500°C, 550°C et 600°C) sur l'apparition du gonflement en fonction la nature de la stabilisation (Ti ; Ti + Nb ; Nb). Les trois nuances ont été irradiées avec l'état métallurgique de référence M2 (hypertrempé écroui) qui est particulièrement résistant au gonflement.

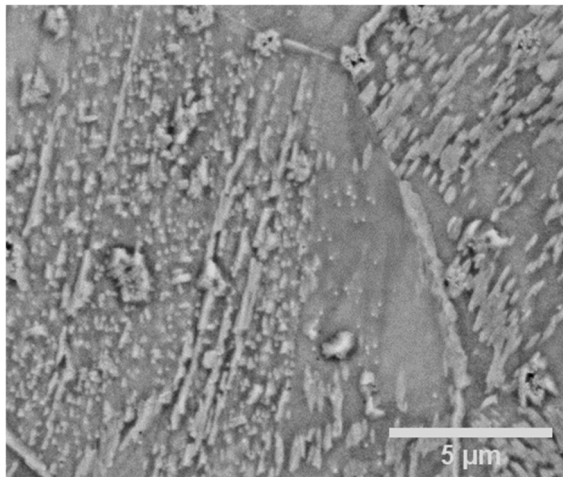
La dose de 75 dpa atteinte lors des premières irradiations n'était pas suffisante pour provoquer l'apparition de cavités observables au MEB. Une partie des échantillons irradiés à 500, 550 et 600 °C ont subi une irradiation supplémentaire à la température médiane de 550°C. Ce choix a permis de limiter le nombre de nouvelles irradiations nécessaires.

L'irradiation supplémentaire a permis d'atteindre une dose d'irradiation en surface de 135 dpa et de générer des cavités dans certains des échantillons, principalement ceux ayant été irradiés à haute température. Les plans de montage des différentes campagnes d'irradiation et les conditions expérimentales sont fournis annexe B.

4.2.1.1.1 Échantillons pré-irradiés à 500°C

Aucune cavité n'a été observée dans les échantillons pré-irradiés à 500°C. L'état de surface a été dégradé par suite des irradiations, probablement du fait de contaminations et d'oxydation des échantillons (Figure 99). L'analyse des faces arrière électro polies permet d'observer une coupe de l'épaisseur irradiée (dose au pic de dommage ~290dpa) et d'avoir un très bon état de surface. La Figure 100 est une micrographie de la nuance L46 (15/15 Ti Nb) avec les électrons rétrodiffusés et la présence d'aucune cavité (contraste noir sphérique) n'est constatée. Les observations de la face électropolie n'ont pas permis de détecter non plus de cavités dans les autres nuances de l'étude.

15/15Ti



15/15 Nb

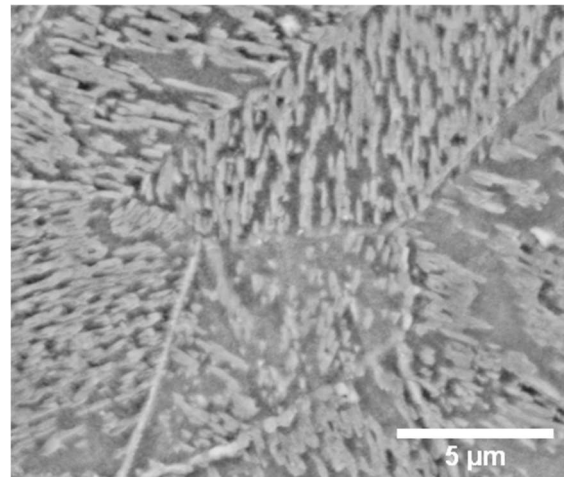


Figure 99 : Micrographies de la face brute d'irradiation des nuances L50 (15/15 Ti) et L49 (15/15 Nb) à 500°C puis à 550°C (135dpa) avec les électrons retrodiffusés. Aucune cavité n'a été observée mais l'état de surface dégradé suite aux irradiations rend l'observation directe de cavités délicate.

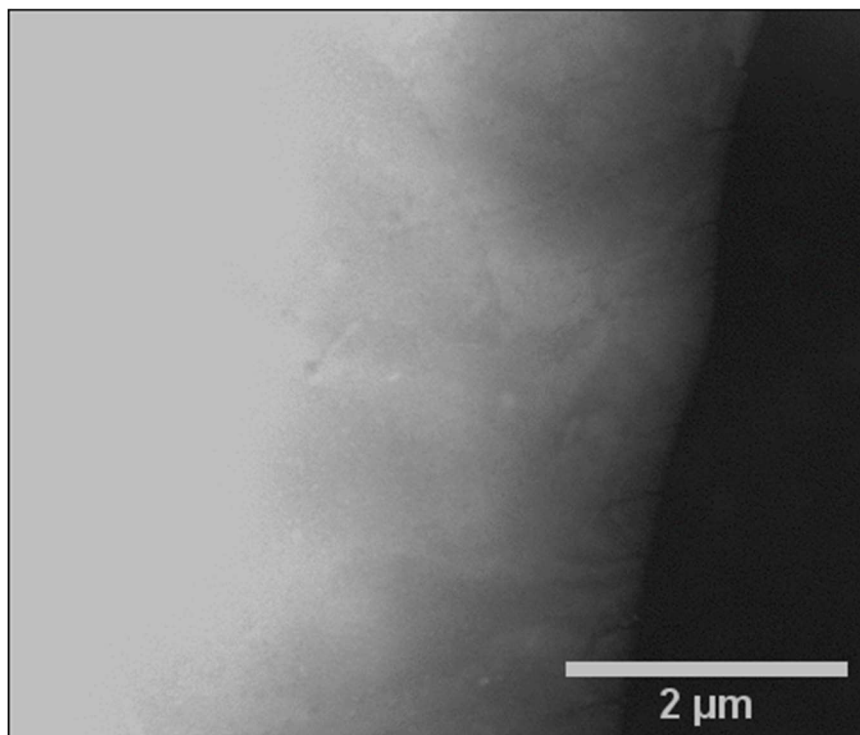


Figure 100 : Micrographie de la face arrière électropolie (électrons rétrodiffusés) de la nuance L46 (15/15 Ti+Nb) irradiée à 500°C puis à 550°C (135dpa). Il n'y a pas de cavités détectées.

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2.1.1.2 Échantillons pré-irradiés à 550°C

Les nuances L50 (15/15Ti) et L46 (15/15 Ti Nb) sont similaires aux échantillons irradiés à 500°C et ne présentent pas de cavités observables au MEB. Des objets pouvant être assimilés à des cavités (indiqués avec des flèches Figure 101) sont observés dans la nuance L49 (15/15 Nb). Ces objets ont été segmentés puis mesurés sur le cliché et possèdent un diamètre Feret moyen de 35 nm. Leur faible densité ne permet pas d'exclure définitivement que ces objets soient des précipités primaires ou formés pendant l'irradiation car ces derniers peuvent présenter un contraste similaire à celui des cavités.

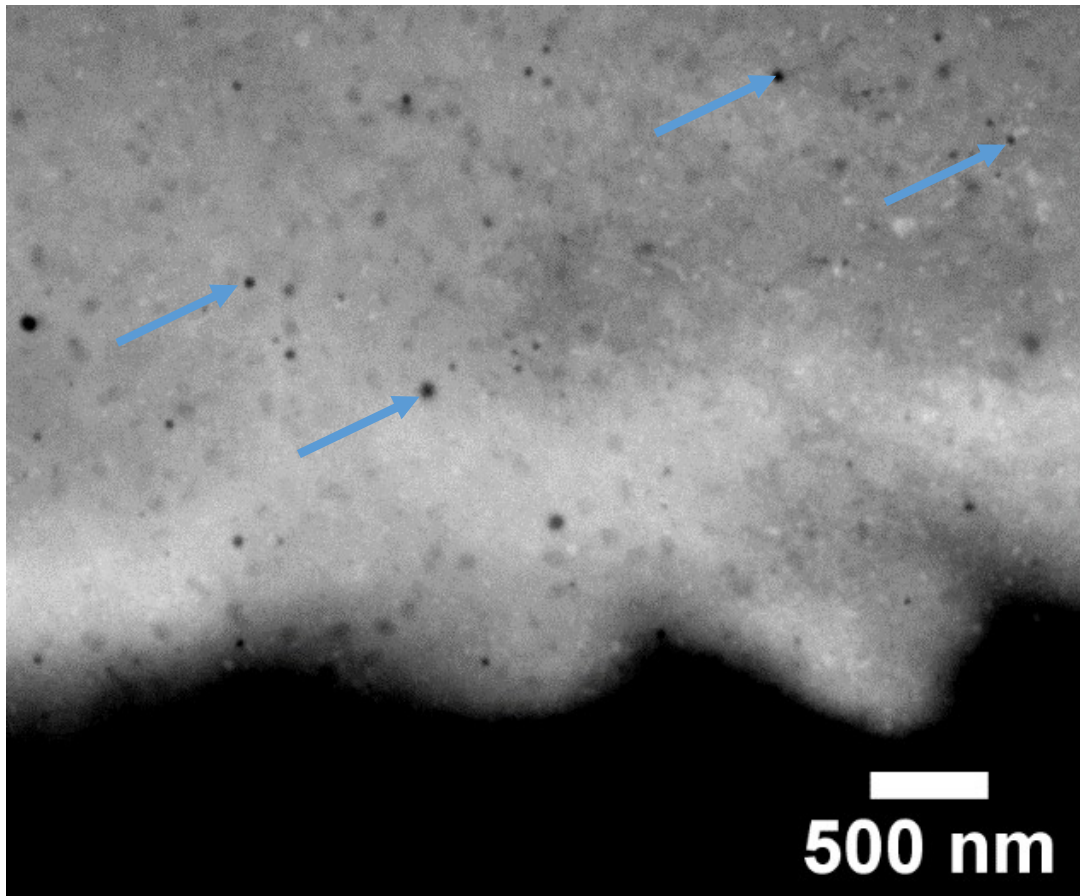


Figure 101 : Cavités potentielles observées avec le signal retrodiffusé dans la nuance L49 (15/15 Nb) suite à deux irradiations à 550°C (dose totale en surface de 135 dpa).

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2.1.1.3 Échantillons pré-irradiés à 600°C

La figure 7 est une micrographie de la face arrière électropolie de l'échantillon 15/15 Ti irradié à 600°C, réalisée avec le signal des électrons secondaires. Les zooms 1, 2 et 3 correspondent respectivement à des profondeurs d'irradiation croissantes. Le zoom 1 situé sur la zone mince du disque irradié analysable au MET est très proche de la surface irradiée. Le zoom 3 correspond probablement à la fin de la zone irradiée. On constate que l'intensité de la précipitation varie en fonction de la profondeur d'irradiation et n'apparaît pas dans les zones non irradiées de l'échantillon. Il n'y a pas eu de cavité détectée dans cet échantillon mais la forte précipitation pourrait masquer des cavités de petit diamètre.

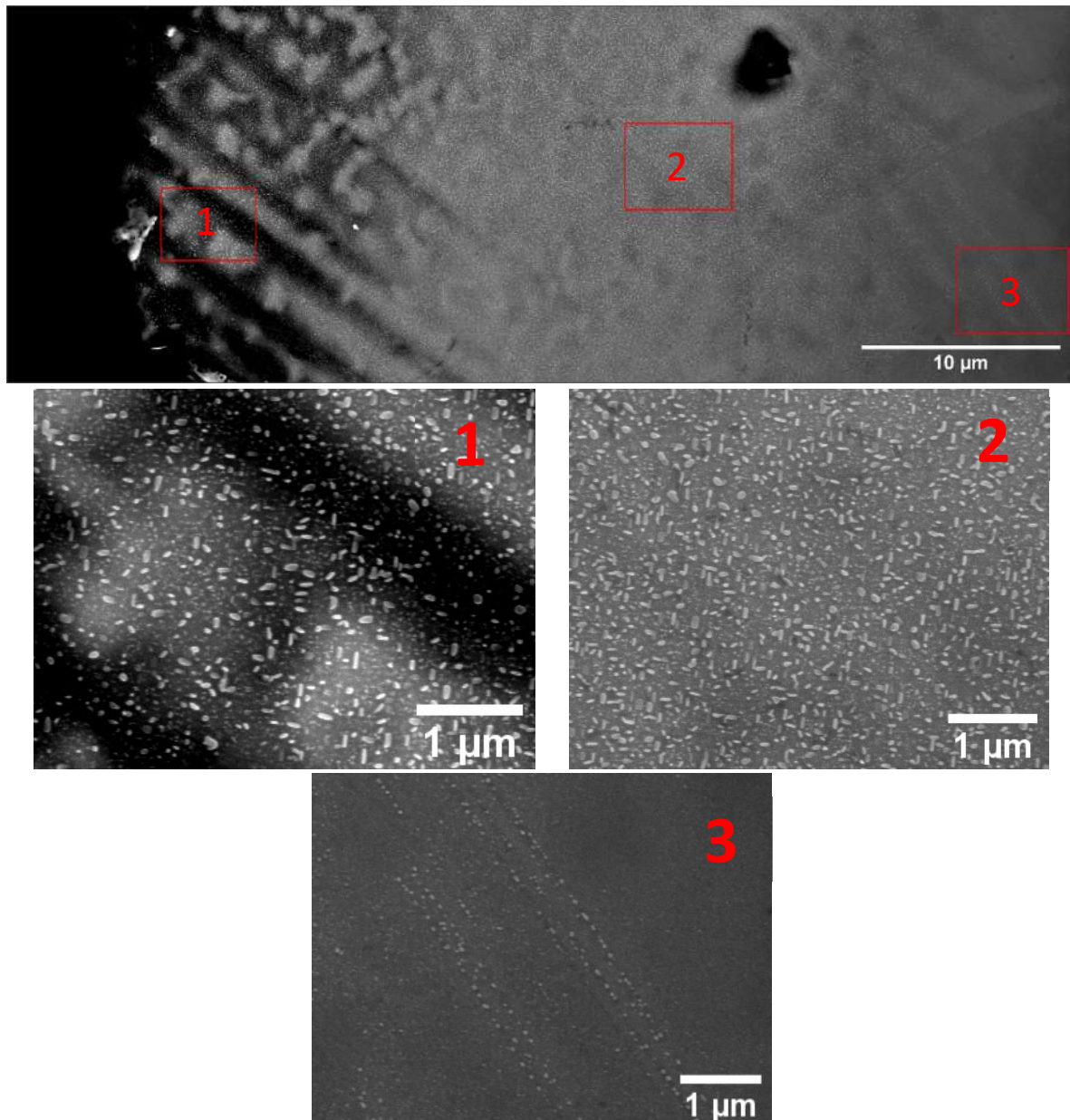


Figure 102 : Micrographie de la face arrière électropolie de l'échantillon 15/15 irradié à 600°C (76 dpa) puis à 550°C (59 dpa) avec le signal des électrons secondaires. Les clichés 1 2 et 3 sont des zooms réalisés sur l'image originale, ils correspondent à des profondeurs d'irradiation croissantes. On constate que la précipitation induite lors de l'irradiation est influencée par la microstructure du matériau (directions préférentielles, alignement de précipités).

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

La Figure 103 présente des micrographies de la face avant et arrière de l'échantillon 15/15 Ti Nb pré irradié à 600°C puis à 550°C pour un total de 135 dpa. Une très forte densité de cavités de grande taille (contraste noir) est constatée. Le diamètre moyen des cavités mesurées est de 65nm.

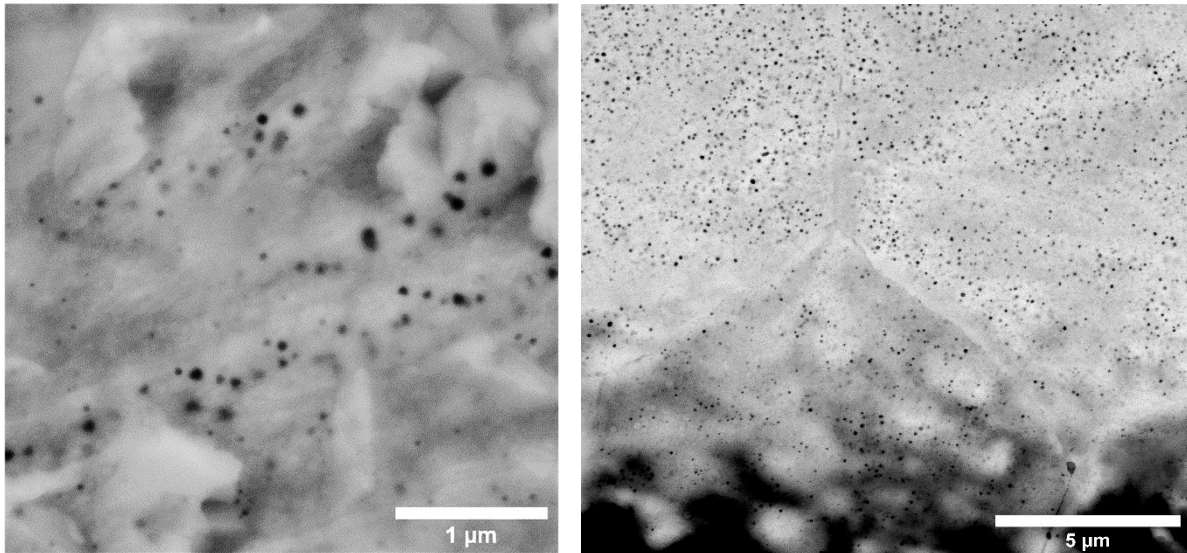


Figure 103 : Micrographies de l'échantillon 15/15 Ti Nb (L46) irradié à 600°C (76 dpa) puis à 550°C (59 dpa) avec le signal rétrodiffusé. A gauche : face avant brute d'irradiation. A droite face arrière électropolie près de la zone percée du disque (à droite). Des cavités sont observées grâce à leur contraste noir de forme ronde. Le diamètre Feret moyen des cavités, mesuré à partir du cliché de droite, est de 65 nm (1500 cavités ont été mesurées).

4.2.1.1.4 Conclusion sur l'effet de la température d'irradiation en fonction de la nature de la stabilisation

De nombreuses irradiations ont été réalisées pour étudier l'effet de la température et de la nature de la stabilisation sur le gonflement. Il a été nécessaire d'atteindre de très hautes doses d'irradiation pour induire l'apparition des cavités dans quelques échantillons.

Aucune cavité n'a été observée dans les échantillons irradiés à 500°C et très peu dans les échantillons irradiés à 550°C. Les seuls échantillons irradiés à la température de 600°C présentent un gonflement significatif.

L'observations des autres échantillons de la campagne confirment que le gonflement des trois nuances augmente avec la température d'irradiation entre 500°C et 600°C. La nuance 15/15 Ti (proche AIM1) est en règle générale la plus résistante et la nuance 15/15 Nb est la moins résistante au gonflement. Le remplacement du titane par du niobium dégrade la résistance au gonflement ce qui est en accord avec les résultats obtenus par Rouxel lors de sa thèse [40].

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2.1.2 Simulations numériques de l'effet de la température

Les observations MEB présentées montrent qu'expérimentalement, le gonflement est favorisé par l'augmentation de la température d'irradiation entre 500°C et 600°C.

Les résultats des simulations du gonflement à différentes températures sont présentés Figure 104. Ils indiquent que le gonflement est le plus fort entre 300°C et 550°C et diminue fortement pour des températures supérieures à 550°C ce qui est cohérent avec la littérature [125]. Les paramètres matériaux utilisés pour ces simulations correspondent à la microstructure M3_V (Vieillie à 800°C) contenant initialement très peu de puits de défauts.

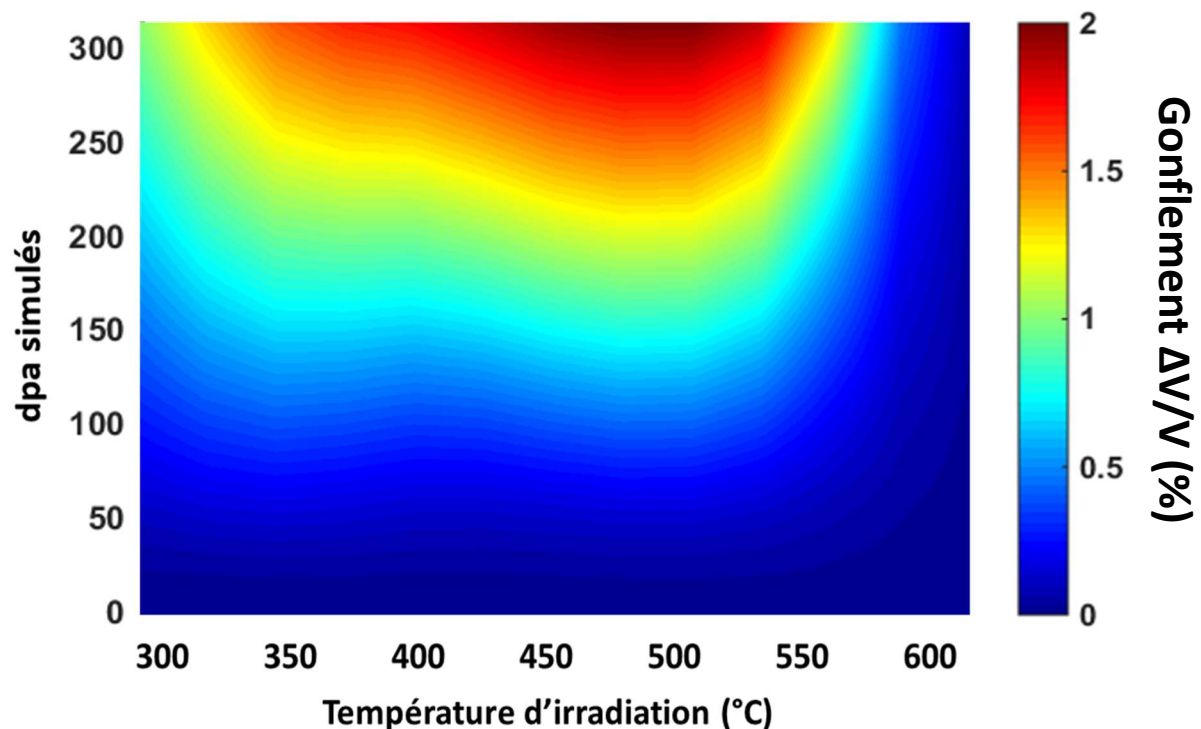


Figure 104 : Influence de la température d'irradiation sur le gonflement simulé par CRESCENDO. Les simulations montrent que le gonflement est le plus important vers 500°C et devrait être fortement limité à partir de 550°C.

La forte diminution du gonflement observée à haute température dans les simulations est associée à l'augmentation des émissions thermiques de lacunes par les amas. A ces températures, les amas de lacunes de petite dimension se décomposent spontanément par émission thermique de lacunes et il est alors plus difficile pour un germe d'atteindre la taille critique de stabilité. Expérimentalement, aucune cavité n'est observée à 500°C et les microstructures semblent avoir peu évoluées à la suite de l'irradiation. Au contraire, les nuances irradiées à 600°C présentent une forte densité de précipités induits par l'irradiation et montrent l'apparition de cavités dans les nuances contenant du Nb.

La formation de cavités dans les échantillons irradiés à 600°C pourrait être expliquée par la précipitation induite par l'irradiation car elle est associée à une perte d'une partie des éléments en solution solide lors de la formation des précipités.

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

Les analyses DRX in-situ de la précipitation à 650°C hors irradiation (chapitre II) ont montré que la nuance L49 (15/15 Nb) était celle dans laquelle il se forme le plus de phases secondaires grossières lors d'un traitement thermique et c'est également celle dont la résistance au gonflement diminue le plus avec la température sous irradiation.

Dans la simulation, les éléments comme la densité de précipités et les éléments en solution solide sont figés. Le matériau simulé reste donc résistant au gonflement même à haute température (>600°C) alors que dans la réalité les microstructures ont évolué et ne sont plus aussi résistantes au gonflement.

4.2.2 Études de microstructures modèles vieilles irradiées à 550°C (JANNuS J15-4)

Il a été fait le choix de simuler le gonflement d'échantillons pré-vieillis qui sont plus sensibles au gonflement que l'état métallurgique de référence M2 mais qui sont aussi plus stables thermiquement. Trois microstructures M3_V, M3_Ve et M6, irradiées lors de la campagne J15-4 par Rouxel [40] ont été étudiées. La figure 3 schématise les effets mis en évidence par la comparaison des microstructures irradiées lors de cette campagne.

M3_V	hypertrempée et vieilles
M3_Ve	hypertrempée vieilles et écrouie
M6	écrouie traitée thermiquement pour former des nano précipités.

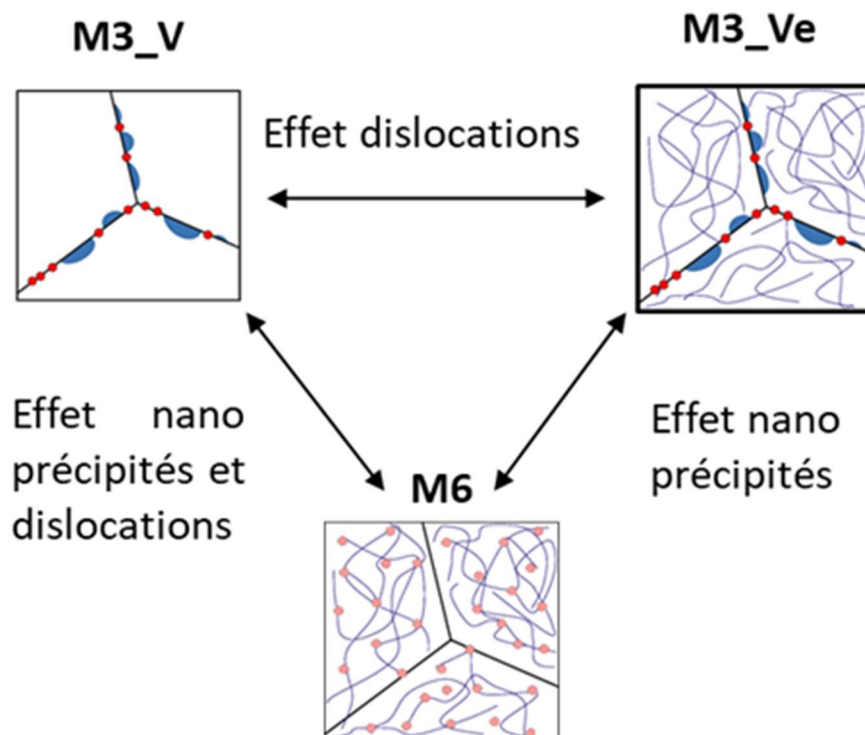


Figure 105 : Effets étudiés la campagne J15-4 [40].

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2.2.1 Résultats expérimentaux : Campagne J15-4 (550°C, 2MeV, 110dpa)

Le suivi de la température d'irradiation a été réalisé grâce à un thermocouple soudé à une lame, une caméra thermique permettait un contrôle de l'homogénéité de la température. La dose en surface est estimée à 110 dpa mais elle est soumise à une forte incertitude (+/- 30 dpa). Cette incertitude du calcul de la dose a été provoquée par un défaut de conception d'une cage de Faraday utilisée pour les mesures de flux. Une possible implantation de carbone, due à la source utilisée, a également été suspectée lors de l'irradiation [40]. Il reste possible d'adopter une démarche comparative des échantillons car ils ont tous été irradiés sur le même porte échantillon avec les mêmes conditions expérimentales.

Des micrographies tirées d'une banque de clichés MET créée par Rouxel ont été à nouveau analysés avec l'algorithme de segmentation (METIA). La segmentation automatisée fournit des résultats corrects bien que la reconnaissance des cavités soit parfois gênée par les contrastes de diffraction observés au MET.

La Figure 106 présente les clichés MET avant et après segmentation de ces trois microstructures après irradiation. La microstructure M3_V présente une forte densité de grandes cavités ce qui est synonyme d'un fort gonflement. La microstructure M3_Ve présente une population de cavités bien plus petites et réparties de manière hétérogène dans la microstructure. La microstructure M6 ne présente que très peu de cavités et ces dernières sont souvent associées à des précipités.

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

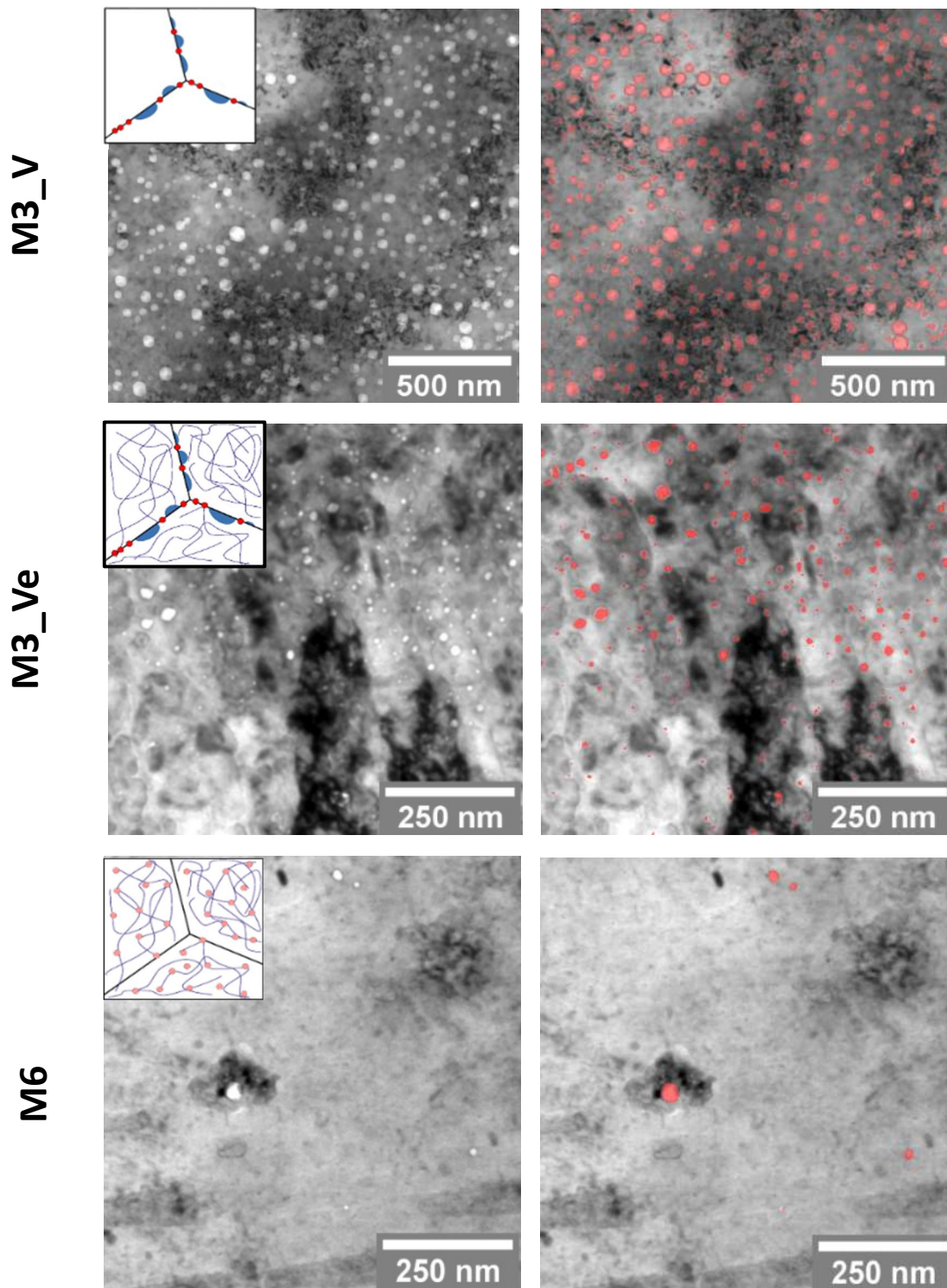


Figure 106 : Micrographies MET des microstructures M3_V, M3_Ve et M6 après irradiation lors de la campagne J15-4 (550°C, 110dpa). Les clichés originaux sont présentés à gauche avec une schématisation de la microstructure initiale avant irradiation. Les clichés de droite sont les clichés segmentés, la coloration rouge met en évidence les cavités mesurées.

4.2 Simulation du gonflement de microstructures irradiées aux ions sur la plateforme JANNuS Saclay

4.2.2.2 Simulation de la campagne expérimentale J15-4 (M3_V M3_Ve et M6)

L'évolution de microstructures numériques a été calculée à l'aide de CRESCENDO. Les microstructures modèles M3_V, M3_Ve et M6 sont simulées à partir des paramètres présentés dans le Tableau 11. Tous les autres paramètres de la simulation ont été fixés et sont fournis dans la partie 4.1.2 de ce chapitre.

Microstructure	Densité de dislocations (cm.cm⁻³)	Densité de nano précipités (m⁻³)	Rayon des Nano précipités (nm)
M3_V Vieillie	10 ⁹ (recristallisé)	10 ²⁰ (faible)	5
M3_Ve Vieillie écrouie	10 ¹¹ (écroui)	10 ²⁰ (faible)	5
M6 Traitement thermique nano précipités	7.10 ¹⁴ (écroui revenu)	5.10 ²² (nominale)	2
Précipités (saturables) : $E_{v,pn}^b = 1.4\text{eV}$ St = 1,5.10¹⁵cm⁻²			
Conditions irradiation : T=550°C ; G= 1.4E-03dpa/s			

Tableau 11 : Paramètres utilisés pour la modélisation des microstructures modèles.

La Figure 107 synthétise les résultats des simulations avec les quantifications réalisées par segmentation automatisée sur les clichés MET de la campagne J15-4. Les trois graphiques représentent la répartition des diamètres des cavités à 550°C.

La courbe bleue représente les densités volumiques d'amas en fonction de leur diamètre pour une dose simulée de 150 dpa. En rouge, la fréquence d'apparition de cavités en fonction de leur taille par intervalle de 3nm. Les densités volumiques de cavités n'ont pas été calculées car les épaisseurs n'ont pas été mesurées lors de la prise des clichés MET. Ces représentations ne sont pas équivalentes mais elles permettent de comparer les distributions de tailles des cavités qui ont été simulées et mesurées expérimentalement.

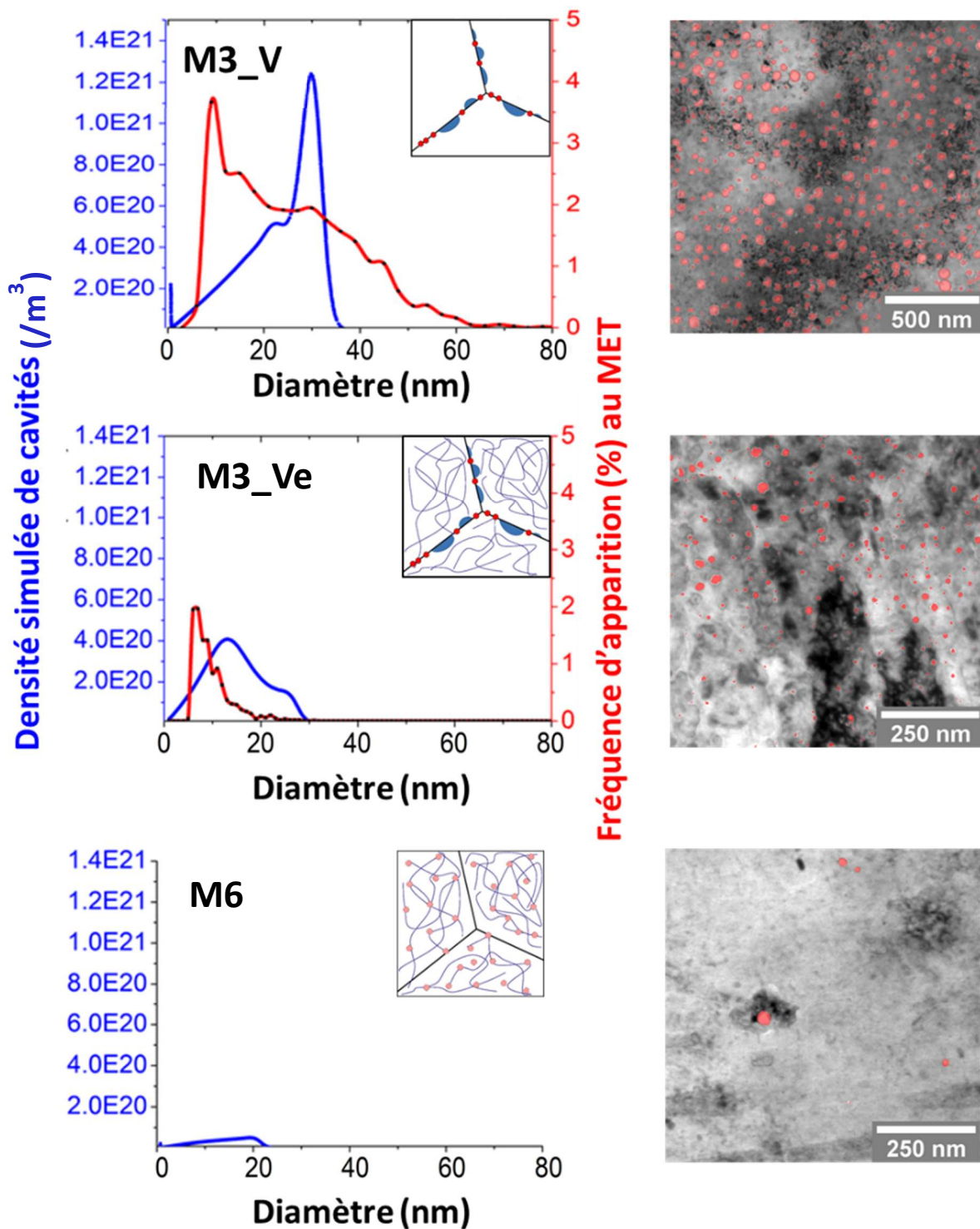


Figure 107 : Comparaison de la répartition à 550°C des diamètres de la population de cavités réelle en rouge (acier 15/15 Ti ~110dpa) avec les populations de cavités simulées pour les trois microstructures modèles (M3_V M3_Ve et M6) avec CRESCENDO en bleu. (T=550°C ; G= 1.4E-03dpa/s)

4.2.2.3 Discussion

Il y a un bon accord entre la simulation et les résultats expérimentaux : le classement de la résistance au gonflement des différentes microstructures simulées et observées expérimentalement est le même avec $M3_V < M3_Ve < M6$.

L'évolution du gonflement, tel qu'il a été calculé par CRESCENDO à chaque itération est présenté Figure 108. On note que la dose à partir de laquelle le gonflement apparaît (dose d'incubation) est très différente pour les trois microstructures et varie entre 0 et 140 dpa. Le gonflement de la microstructure M3_V (recristallisée) démarre immédiatement après l'irradiation. Dans le cas de la microstructure M3_Ve (écrouie) il y a une dose d'incubation d'environ 80 dpa avant que le gonflement n'apparaisse. Le gonflement de la microstructure M6 est sur le point de commencer à 140 dpa.

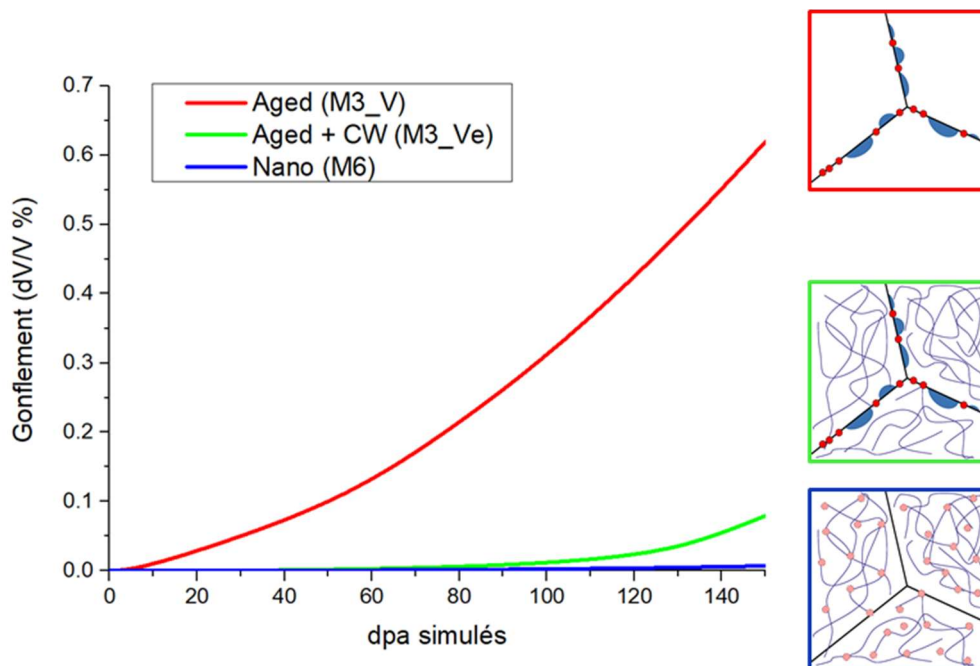


Figure 108 : Gonflement simulé des microstructures M3_V (vieille) M3_Ve (vieille écrouie) et M6 (écrouie et nano précipitation). On observe que l'écrouissage permet d'augmenter la dose d'incubation du gonflement tout comme l'ajout de nano précipités dans les simulations. (T=550°C ; G= 1.4E-03dpa/s)

L'effet des nano précipités sur le gonflement est développé dans la partie suivante avec des études de sensibilité du gonflement vis-à-vis de la densité de dislocations et de la nano précipitation.

4.3 Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.

4.3 ÉTUDE DE SENSIBILITE DE L'EFFET DES NANO PRECIPITES SUR LE GONFLEMENT SIMULE.

Le graphique de la Figure 109 montre l'évolution du gonflement en fonction de la présence ou non de nano précipités et de faibles variations de la densité de dislocations. On constate que pour une population de précipités donnée, de légères modifications de la densité initiale de dislocations peuvent avoir des conséquences majeures sur le gonflement, particulièrement en présence d'une population de nano précipités. Les caractéristiques des nanoprécipités (rayon 5 nm avec une densité de 10^{16} précipités/cm³) ont été fixées de façon arbitraire tout en restant proche de la densité et des tailles de nano précipités observées dans les aciers austénitiques stabilisés.

En dehors de la dose d'incubation qui est augmentée par la présence de nano précipités, on constate des fluctuations au début du gonflement et une diminution de la vitesse de gonflement par rapport aux microstructures sans nano précipités.

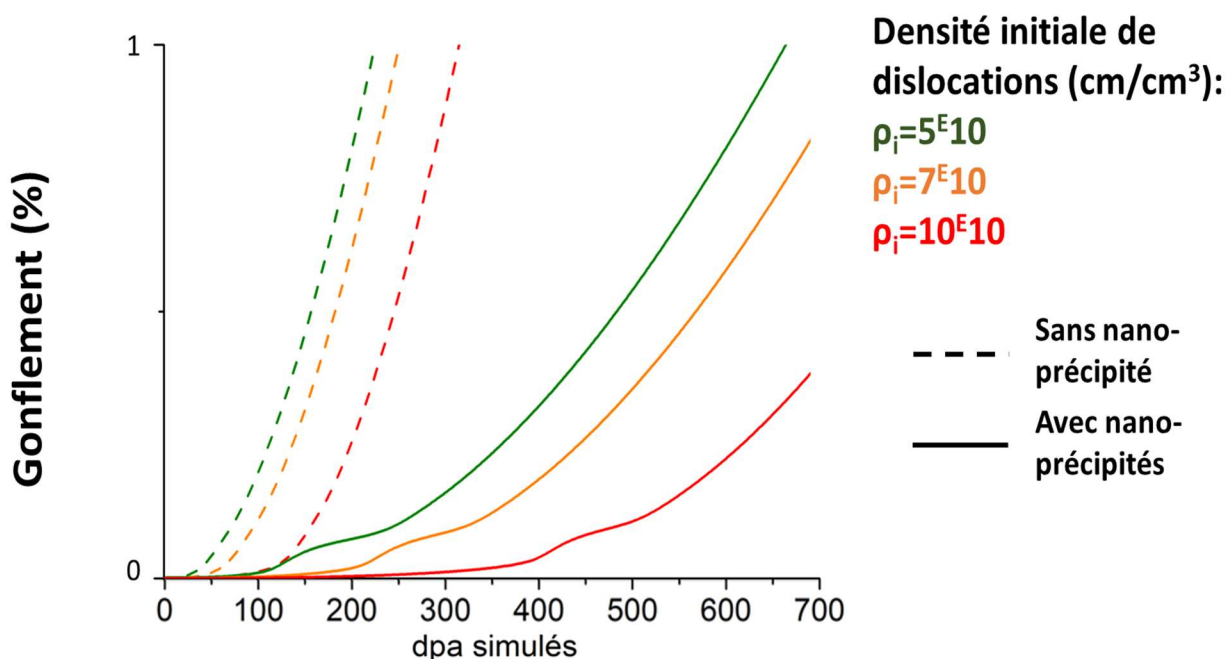


Figure 109 : Effet sur le gonflement de faibles variations de la densité initiale de dislocations en présence ou non de nanoprécipités. On observe que la dose d'incubation est fortement dépendante de la densité de dislocations initiale, particulièrement en présence de nano précipités (traits pleins). (T=550°C ; G= 1.4E-03dpa/s)

4.3 Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.

La Figure 110 présente l'évolution des densités de dislocations en fonction de la dose d'irradiation. Dans l'ensemble des cas, on constate un comportement similaire avec la chute de la densité de dislocations jusqu'à un minimum suivi d'une remontée et d'une saturation de la densité de dislocations de la microstructure.

La diminution du nombre de dislocations est due à l'annihilation assistée par l'irradiation. On constate un « emballement » de l'annihilation qui est provoquée par la diminution du nombre de puits (dislocations) qui entraîne une augmentation de la sursaturation de défauts, qui favorise à son tour l'annihilation des dislocations.

Après la forte diminution de la densité de dislocations on note qu'elle remonte légèrement avant d'atteindre la saturation qui correspond à un équilibre des mécanismes d'annihilation et d'incorporation. Cette remontée est due à l'incorporation des interstitiels dans les boucles de Frank qui grossissent et réalimentent le réseau de dislocations jusqu'à la densité d'équilibre.

D'après la simulation, il est intéressant d'essayer de conserver le réseau de dislocation initial le plus longtemps possible. L'ajout de précipités fait diminuer la valeur à saturation (à très forte dose) de la densité de dislocations. Ces valeurs sont relativement proches : environ $1,3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ en l'absence de nano précipités et de $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ en présence de nano précipités. Après la germination, la croissance des amas lacunaires est gouvernée par le biais de la microstructure. La diminution du nombre de puits biaisés (dislocations) pourrait en partie expliquer les vitesses de gonflement un peu plus lentes constatées en présence de nano précipités Figure 109.

Comme nous l'avons signalé, tous les mécanismes d'évolutions microstructurales ne sont pas pris en compte par la modélisation mais le scénario qu'elle propose est intéressant pour comprendre les évolutions du gonflement en fonction de la dose d'irradiation.

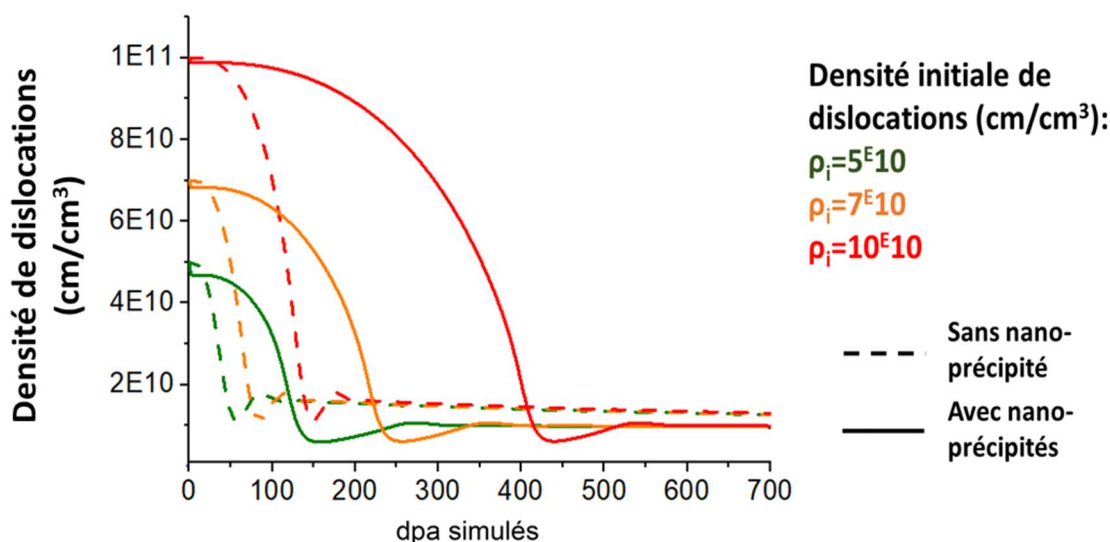


Figure 110 : Effet de faibles variations de la densité initiale de dislocations en présence ou non de nano-précipités l'évolution de la densité de dislocations de la microstructure. ($T=550^\circ\text{C}$; $G= 1.4 \cdot 10^{-2} \text{ dpa/s}$)
La suite de cette partie présente des études de sensibilités de l'apparition du gonflement vis-à-vis des densités de dislocations et des densités de nano précipités.

4.3 Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.

4.3.1 Effet de la variation de densité de dislocations initiale sans précipité

L'effet de la variation de densité de dislocations est présenté en l'absence de précipités Figure 111. On constate que les densités de dislocations en dessous de 10^{10} cm⁻² n'ont pas d'impact majeur sur le gonflement. Au-delà, aux valeurs correspondant à des densités de dislocations d'aciers écrouis, la dose d'incubation évolue rapidement.

Les simulations à ($T=550^{\circ}\text{C}$; $G= 1.4\text{E-}03\text{dpa/s}$) montrent que la dose d'incubation varie fortement au voisinage des densités de dislocations représentatives d'une microstructure écrouie (10^{11} cm⁻²). Expérimentalement, on constate que les microstructures écrouies présentent une répartition de cavités bien plus hétérogène que les microstructures recristallisées. Des variations locales de la densité de dislocations pourrait être à l'origine de la répartition hétérogène qui est observée expérimentalement dans le cas des nuances écrouies.

Inversement, les simulations montrent que le gonflement est peu sensible aux variations de densité de dislocations pour des microstructures recristallisées, cela pourrait expliquer l'apparition d'un gonflement plus homogène dans l'acier.

La simulation montre que maximiser le nombre de dislocations permet d'améliorer la résistance au gonflement comme cela est observé expérimentalement. En pratique, la densité de dislocations introduites sature du fait des recombinaisons des dislocations ce qui en fait un paramètre physiquement borné.

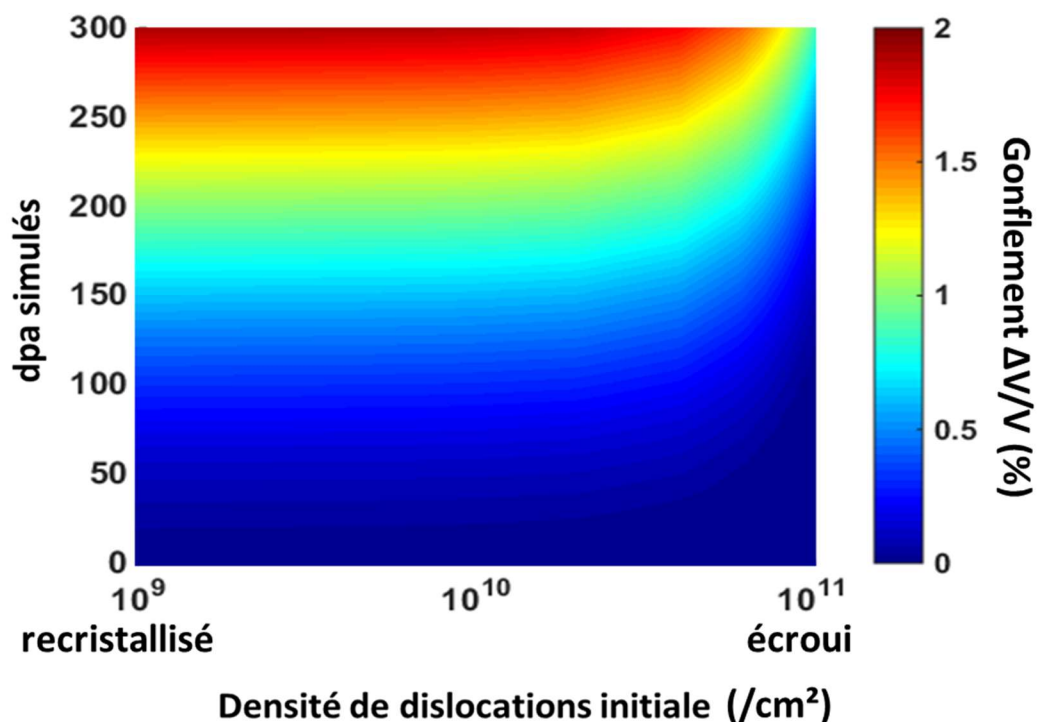


Figure 111 : Simulation de la variation du gonflement en fonction de densité de dislocations initiale.

4.3 Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.

4.3.2 Effet de nano précipités dans une microstructure recristallisée (faible densité de dislocations)

L'effet de la variation de la densité de précipités nanométriques est présenté Figure 112 avec une faible densité de dislocations (10^9 /cm²) et des nano précipités d'un rayon de 5 nm choisi arbitrairement. Cette microstructure n'est à priori par réalisable en réalité car il est nécessaire d'introduire, au contraire, une forte densité de dislocations pour former des carbures de titane de taille nanométrique en position intra granulaire. Cette démarche permet d'évaluer l'effet des nano précipités lorsque ces derniers sont les principaux puits de défauts initialement présents dans la microstructure simulée.

On constate une évolution de la résistance au gonflement pour des densités de précipités entre 10^{15} et 10^{16} précipité/cm³. En dessous d'une densité de 10^{15} précipités/cm³ les précipités ne semblent pas avoir d'effet sur le gonflement. Au-delà d'une densité de 10^{16} précipités/cm³ il n'existe plus du tout de gonflement.

La disparition totale du gonflement indique que la force de puits de la microstructure est suffisante pour empêcher la germination de germes stables.

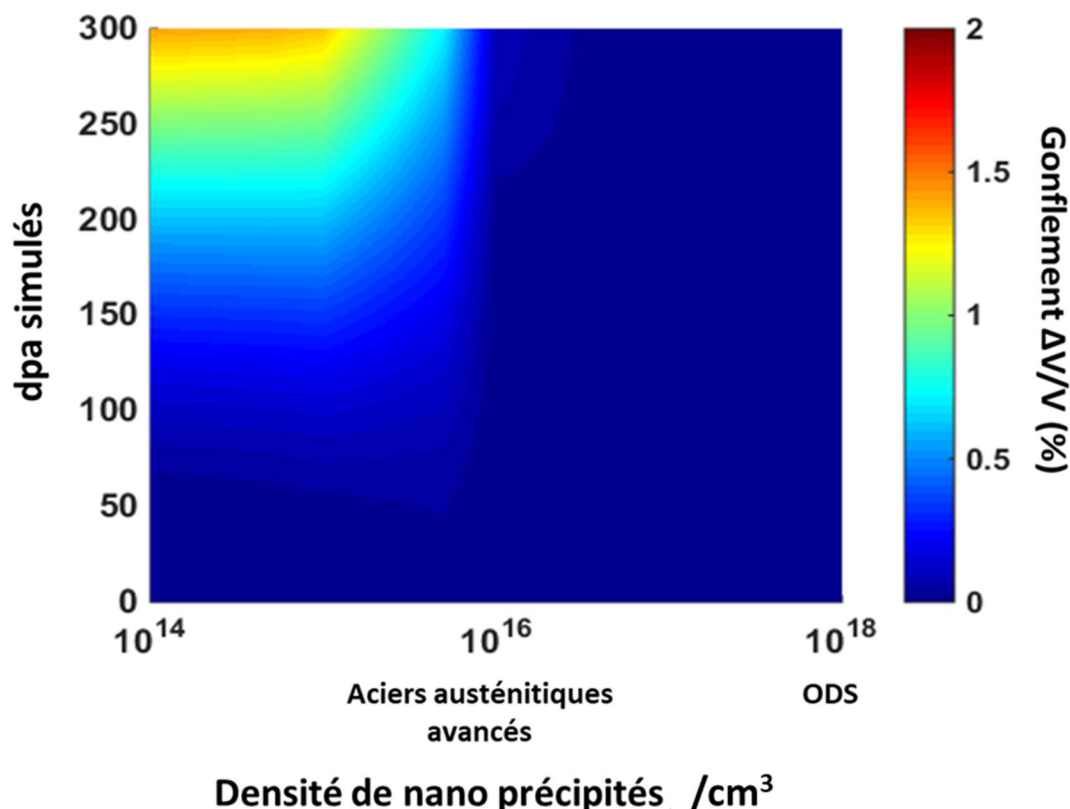


Figure 112 : Effet de la densité de nano précipités d'un rayon de 5 nm sur une microstructure présentant initialement une faible densité de dislocations. Le rectangle vert symbolise les densités des nano précipités généralement observées dans les aciers austénitiques stabilisés.

4.3 Étude de sensibilité de l'effet des nano précipités sur le gonflement simulé.

4.3.3 Effets conjugués des nano précipités et de la densité de dislocations initiale

L'effet conjugué d'une variation de la densité initiale de dislocations en présence d'une population stabilisatrice de nano précipités est présenté Figure 113. La population de nano précipités a été choisie avec un rayon de 5 nm et une densité de 10^{16} précipités/cm³. Leur nature a été choisie saturable avec une énergie de liaison précipités-lacune de 1,4eV.

Il apparaît que l'évolution de la densité initiale de dislocations n'a pas d'impact majeur sur le gonflement en dessous d'une densité de dislocations initiale de $5 \cdot 10^{10}$ cm/cm³. Paradoxalement, l'augmentation de la densité initiale de dislocations entre 10^9 cm/cm³ et $5 \cdot 10^{10}$ cm/cm³ fait même augmenter légèrement le gonflement. Au-delà, le gonflement diminue fortement ensuite jusqu'à une densité de dislocations initiales seuil de $7 \cdot 10^{10}$ cm/cm³ à partir de laquelle plus aucun gonflement n'apparaît.

L'association de nano précipités et de dislocations fait apparaître un seuil au-delà duquel il n'y a plus de germination des cavités. Au-delà de ce seuil, les populations de puits de défauts stables sont suffisantes pour empêcher la germination des cavités.

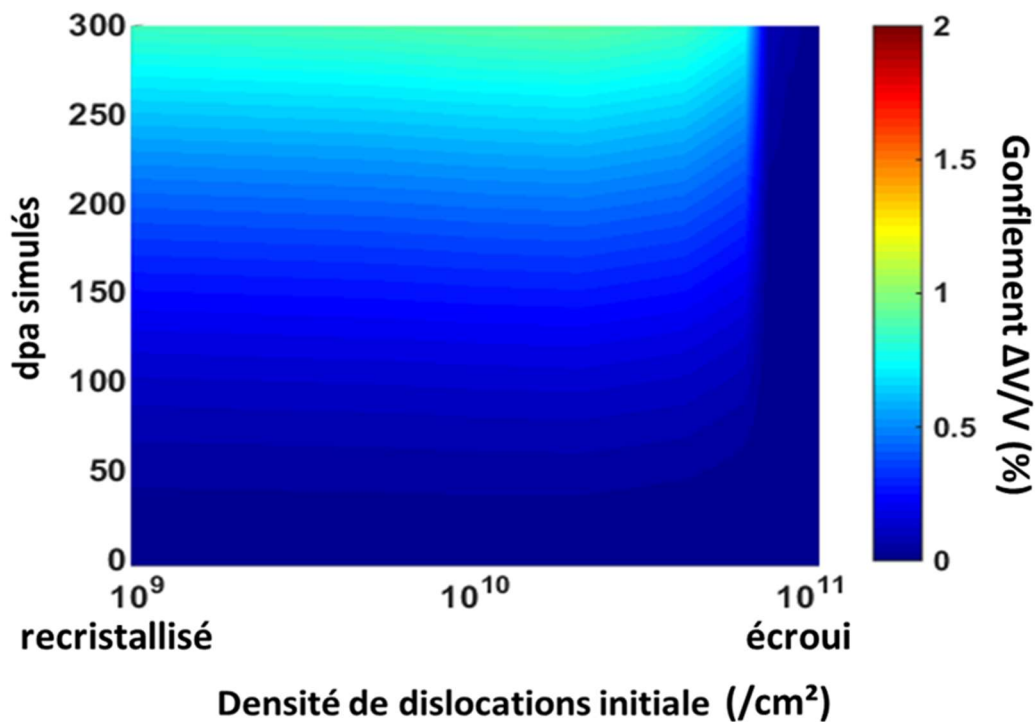


Figure 113 : Effet sur le gonflement de la densité de dislocations initiale en présence d'une population fixée de nano précipités.

4.4 Synthèse des résultats et perspectives

4.4 SYNTHÈSE DES RESULTATS ET PERSPECTIVES

Ce chapitre a présenté les résultats d'irradiations aux ions mis en perspective avec des simulations obtenues avec le code de dynamique d'amas CRESCENDO, codéveloppé par le CEA et EDF R&D.

Les simulations montrent que le gonflement devrait être favorisé par des températures d'irradiation inférieures à 550°C ce qui n'est pas le cas expérimentalement car au contraire le gonflement est favorisé avec la température entre 550°C et 600°C. Une origine possible de cet écart pourrait être la perte de résistance de la microstructure à haute températures. Schématiquement on peut distinguer deux domaines de température, qui correspondent aux conditions de températures des gaines de combustible en réacteur :

A basse température (<550°C), les aciers austénitiques avancés sont stables et les microstructures optimisées (hypertrempeée écrouies) sont particulièrement résistantes au gonflement. Expérimentalement, il est très difficile de faire apparaître des cavités à la température de 500°C lors d'irradiations aux ions (Fe^{3+} 2MeV) à très haute dose (135 dpa en surface et 300dpa au pic de dommage). Les microstructures semblent peu affectées par l'irradiation (observation MEB, face électropolie).

A haute température (vers 600°C), la microstructure est plus instable et les éléments en solution solide commencent à précipiter. Du fait de la précipitation, une partie des éléments en solution solide est consommée au fil du temps. La nature des phases formées sous irradiation influence la composition de la solution solide et cette dernière peut fortement influencer l'apparition de cavités. Il est plus difficile de lutter contre le gonflement à haute température.

Les simulations montrent qu'une forte densité de dislocations augmente le temps d'incubation du gonflement en retardant la germination des cavités. La prise en compte des précipités dans le code a permis de simuler le comportement de microstructures modèles préalablement vieilles. Les microstructures vieilles sont plus stables thermiquement et elles sont aussi plus sensibles au gonflement ce qui facilite leur étude.

Les simulations exploratoires montrent que des variations de résistance significatives sont possibles pour des variations de densités de dislocations qui sont habituellement considérées comme faibles, du même ordre de grandeur que l'incertitude des mesures classiquement utilisées. Les variations locales de la densité de dislocations se traduiraient par une dose d'incubation variable dans un même grain. La présence d'un seuil de comportement dans les gammes de densités de dislocations des aciers écrouis permettrait d'expliquer les répartitions hétérogènes de cavités régulièrement observées expérimentalement.

D'après les connaissances expérimentales dont nous disposons et les simulations réalisées, les microstructures les plus résistantes au gonflement seraient :

- une microstructure dans laquelle on aurait des éléments comme le titane en solution solide, avec en même temps une forte densité de dislocations et des nano-précipités.
- une microstructure dans laquelle on aurait une densité de précipités extrême (comme dans les ODS avec 10^{23} à 10^{24} particules / m³).

Chapitre V

Premiers résultats de caractérisations d'échantillons irradiés à très forte dose (JANNuS 7, 10MeV 46 à 300dpa)

« [...] Souvenez-vous que dans les champs de l'observation, le hasard ne favorise que les esprits préparés. »

Louis Pasteur (Université des Sciences de Lille, France, 1854)

Ce chapitre présente les caractérisations d'échantillons issus de la campagne d'irradiation de cette thèse JANNuS 7. Il a été fait le choix dans cette campagne de réaliser des irradiations avec des ions d'énergie supérieure aux précédentes irradiations pour faciliter l'étude des échantillons par approche MEBIA.

Les échantillons irradiés lors de cette campagne n'ont pas été polis en biseau et leur gonflement n'a pas pu être étudié. Une fiabilisation du protocole de polissage est en effet nécessaire avant de l'appliquer sur des échantillons précieux.

De très fortes doses ont été nécessaires car les matériaux étudiés sont déjà très optimisés vis-à-vis du gonflement. Il a été nécessaire de réaliser des irradiations sur 4 jours et 4 nuits pour induire la formation de cavités par irradiation dans au moins une partie des microstructures. Une des problématiques des irradiations prolongées est que l'on augmente les risques de contaminations et d'écarts lors de l'irradiation. Une coloration bleue du porte échantillon a d'ailleurs été constatée lors de la campagne d'irradiation, attestant une pollution (oxydation) lors de cette campagne d'irradiation.

Des observations fines ont été réalisées sur la surface brute d'irradiation avec l'approche MEBIA. Une forte précipitation est observée dont l'origine exacte n'a pas été établie. Ces précipités sont suspectés d'être liés aux contaminations ayant eu lieu lors de la campagne mais aussi d'avoir un lien avec le comportement intrinsèque des microstructures lors de l'irradiation. Ils pourraient être un marqueur de performances des microstructures vis-à-vis de paramètres influençant le gonflement.

Bien que ce chapitre ne présente pas de résultat de gonflement, les caractérisations standardisées de la précipitation en surface pourraient être utiles pour une approche plus holistique de l'étude de l'évolution du matériau sous irradiation.

5.1 PRESENTATION DE LA CAMPAGNE D'IRRADIATION JANNUS 7

Une expertise ayant eu lieu après la soutenance de la thèse montre que l'origine de la pollution était due à la microfissuration des passages en alumine permettant d'isoler électriquement le bloc four refroidisseur de l'enceinte tout en laissant circuler l'azote liquide et induisait une porosité avec l'air extérieur. Le vide de la chambre d'expérience, bien qu'inférieur au seuil pour réaliser une irradiation, était donc pollué par des espèces oxydantes (principalement de l'oxygène et de la vapeur d'eau).

L'objectif de la campagne JANNuS 7 est d'évaluer les possibilités d'optimisations microstructurales pour les spécifications du futur AIM2. Les conditions d'irradiation et la préparation des échantillons ont été choisies pour l'application de la méthodologie MEBIA présentée chapitre III.

Les influences des principaux éléments de microstructure qui modifient la résistance au gonflement (dislocations, solution solide, nano précipités) sont étudiées à l'aide de microstructures modèles. Certaines de ces microstructures ont été définies grâce aux résultats obtenus en simulation, elles présentent des variations significatives de différents paramètres microstructuraux. Excepté des échantillons d'AIM1 servant de référence industrielle, seule la nuance doublement stabilisée L46 (15/15 Ti Nb) a été irradiée lors de cette campagne.

Ce chapitre présente les premières caractérisations de ces échantillons par l'observation au MEB de la surface irradiée brute d'irradiation (contrôle non destructif). Par la suite il faudra réaliser un polissage en biseau des échantillons pour analyser l'ensemble du gradient d'irradiation avec l'approche présentée au chapitre III.

5.1.1 Microstructures irradiées dans JANNuS 7

Deux nouvelles microstructures originales (**E6_M6** et **M6_e**) ont été irradiées lors de cette campagne. L'élaboration de ces microstructures a nécessité des opérations de laminages en partie été réalisées grâce l'équipe du CEA (LTMEX, D.Sornin et D.Nunes) et une autre partie par G. SPARTACUS au laboratoire du SIMaP.

La microstructure **E6_M6** est plus faiblement écrouie initialement (5%), ce qui limite la formation de nano précipités. Cette microstructure est choisie pour compléter le plan d'expérience Taguchi présenté chapitre II et possède une densité de nano précipités inférieure à celle de la microstructure M6. La densité initiale de dislocations présente n'a pas été mesurée mais elle est attendue comme plus faible que les microstructures écrouies à 20%.

La microstructure **M6_e** a subi un ré écrouissage de 10% à la suite de la formation de nano précipités par traitement thermique. L'idée de cette microstructure provient des résultats de simulations montrant un effet marqué de l'association de nano précipités avec une densité de dislocations élevée. L'objectif du dernier écrouissage est donc de réintroduire les dislocations perdues par restauration lors du traitement thermique de 50h à 650°C et de potentiellement augmenter la densité initiale de dislocations par l'effet d'ancrage des nano précipités [126]. La densité de dislocations n'a pas été quantifiée mais elle est attendue comme plus forte que dans les autres microstructures.

5.1 Présentation de la campagne d'irradiation JANNuS 7

Les microstructures **M1** (hypertrempée) et de l'AIM1 (**M2** : hypertrempée écrouie) ont également été irradiées pour évaluer les effets de la solution solide et servir de référence industrielle.

Les microstructures irradiées lors de cette campagne sont schématisées Figure 114. Les niveaux qualitatifs des paramètres associés à chaque microstructure (densité de dislocations, solution solide, nano précipités) sont récapitulés dans le Tableau 12.

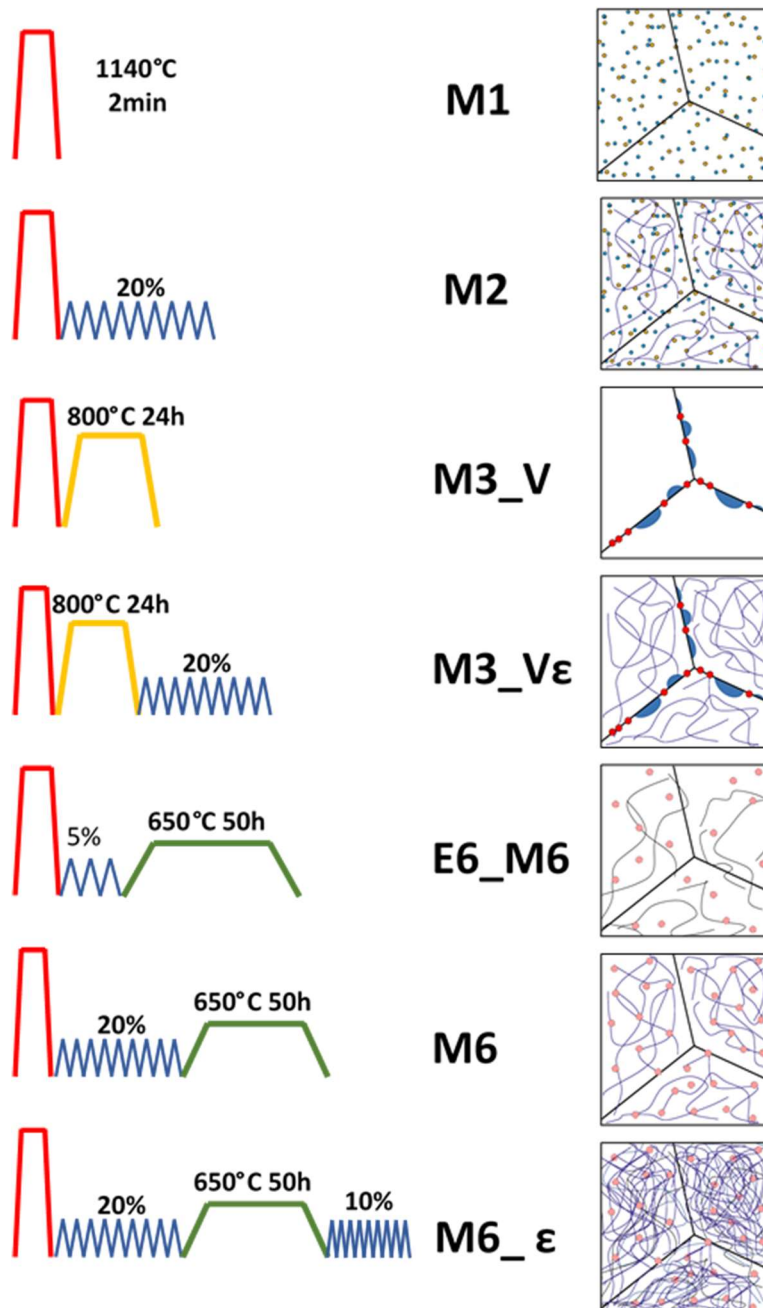


Figure 114 : Cycles thermo-mécaniques et schémas des microstructures modèles irradiées dans la campagne JANNuS 7.

5.1 Présentation de la campagne d'irradiation JANNuS 7

Paramètre / Microstructure	Densité de dislocations	Solution solide	Nano-Précipités
M3V	Faible	Faible	Faible
M3Ve	Fort	Faible	Faible
M1	Faible	Forte	Faible
E6M6	Intermédiaire	Intermédiaire	Intermédiaire
M6	Fort	Intermédiaire	Fort
M6e	(très ?) fort	Intermédiaire	Fort
M2 (ref AIM1)	Fort	Forte	Faible

Tableau 12 : Niveaux des paramètres des différentes microstructures modèles irradiées dans la campagne d'irradiation JANNuS 7.

5.1.2 Choix des conditions expérimentales JANNuS 7 :

Il a été fait le choix d'irradier les échantillons avec des ions fer accélérés à 10MeV et non plus avec une énergie de 2MeV comme les précédentes irradiations. Ce choix a été fait pour augmenter la profondeur irradiée et faciliter les observations au MEB pour l'étude du gradient de dommage. Cela permet également d'étudier un intervalle de dose plus étendu, avec une dose au pic d'irradiation plus de 6 fois supérieur à la dose en surface.

Le flux d'ions dépend de la tension de l'accélérateur ainsi que de l'énergie des ions que l'on utilise. L'utilisation d'une forte énergie permet d'augmenter le volume irradié, d'augmenter l'écart de dose entre la surface irradiée et le pic de dommage, mais diminue également le flux d'ions maximal atteignable. Il est donc nécessaire d'effectuer une irradiation sur des temps plus long pour atteindre une dose en surface équivalente avec des ions de 2 MeV.

La température de 600°C a été choisie pour favoriser l'apparition du gonflement comme cela a été constaté lors des irradiations 2MeV. Cette irradiation a été poursuivie sur quatre jours et divisée en deux parties. Les échantillons ont été irradiés lors de ces deux phases mais certains échantillons ont été remplacés entre les deux parties de l'irradiation pour obtenir différentes doses. Le résumé des conditions d'irradiation est donné dans les deux tableaux ci-après :

Irradiation	fluence		flux moyen	
Phase ①	1,34E+17	ions/cm2	1,81E+12	ions/cm2/s
Phase ②	2,2E+17	ions/cm2	1,99E+12	ions/cm2/s
Phase ①+ ②	3,54E+17	ions/cm2	1,9E+12	ions/cm2/s

Tableau 13 : Résumé du déroulement en deux parties de l'irradiation JANNuS 7.

5.1 Présentation de la campagne d'irradiation JANNuS 7

Zone	Profondeur	Dose d'irradiation		Taux de dommage	
Surface	0 - 0.1 μm	46	dpa	2,47E-04	dpa/s
début implantation	1.3 - 1.5 μm	191	dpa	1,02E-03	dpa/s
Pic de dommage	1.9 - 2 μm	308	dpa	1,66E-03	dpa/s

Tableau 14 : Dose d'irradiation et taux de dommage associés pour différentes profondeurs pour l'ensemble des deux parties de la campagne (①+ ②).

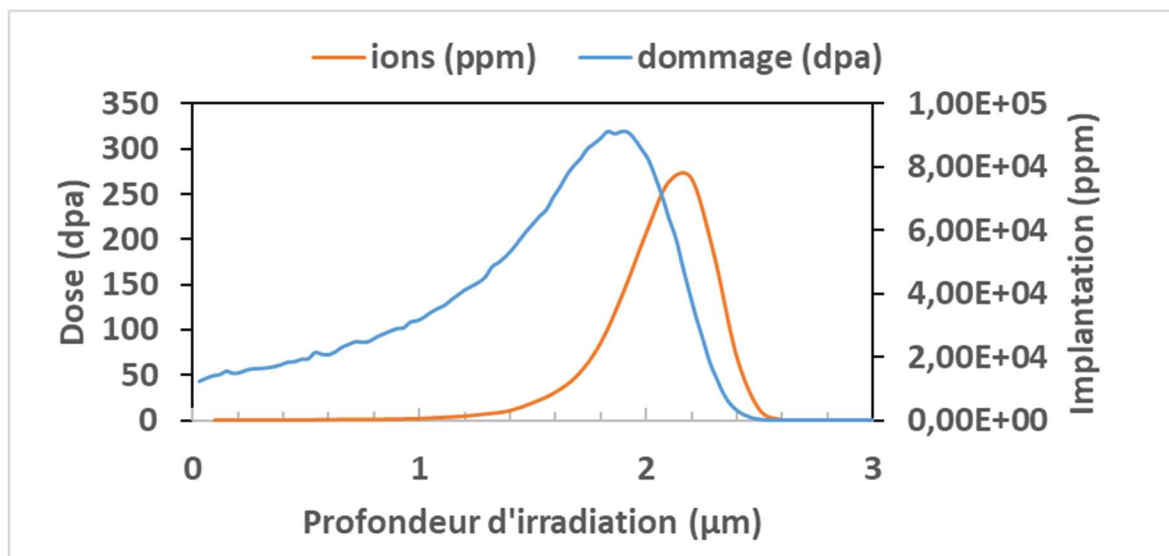


Figure 115 : Profils de dose et d'implantation correspondant à la campagne d'irradiation JANNuS 7 calculés à l'aide du logiciel SRIM.

5.2 Observations de la surface irradiée brute

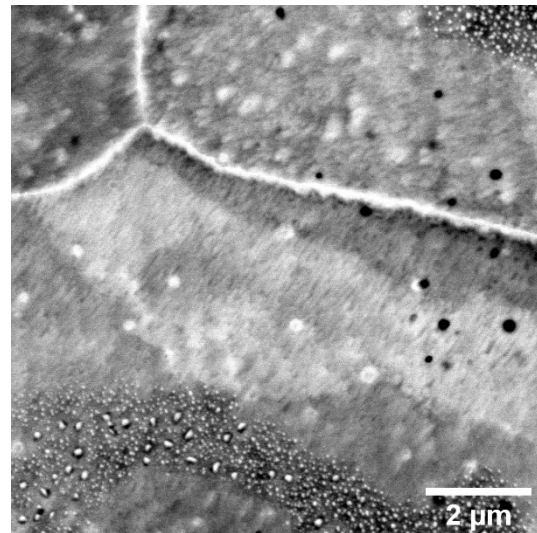
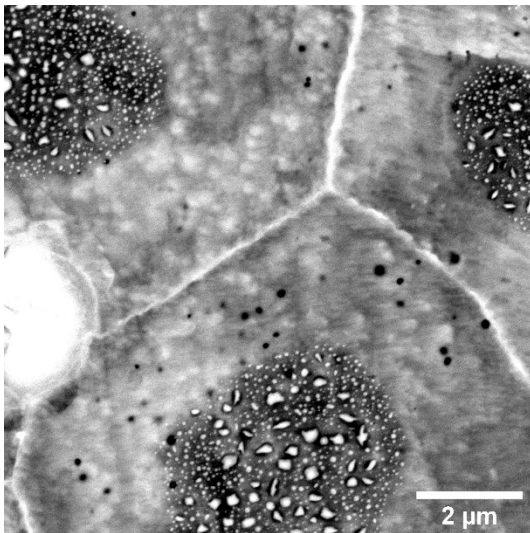
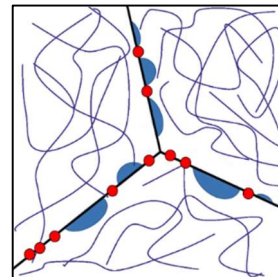
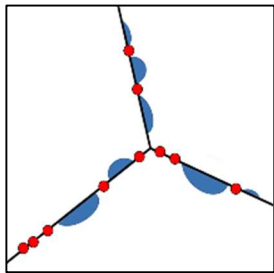
5.2 OBSERVATIONS DE LA SURFACE IRRADIÉE BRUTE

Des observations ont été réalisées au MEB sur la surface brute des échantillons. Elles mettent en évidence une très forte précipitation intra granulaire dont l'intensité varie en fonction des échantillons. L'absence de précipités sur les zones non irradiées des échantillons (face arrière, bord du disque) confirme que la précipitation est bien une conséquence de l'irradiation.

Il n'est pas habituel de s'intéresser à la surface brute d'irradiation, particulièrement dans le cas de contamination avérées. Cependant il semble que la précipitation induite soit sensible aux mêmes paramètres microstructuraux que le gonflement.

5.2.1 Observation de cavités induites par l'irradiation :

L'observation de la face brute après irradiation rend l'observation des cavités délicate. La présence de précipitation masque une partie des cavités ce qui limite la fiabilité des caractérisations. Il n'a pas été possible d'observer des cavités dans la majorité des échantillons. Les seules cavités détectées ont été observées dans les microstructures M3V et M3_Ve (initialement vieilles à 800°C) qui sont connues pour être très faiblement résistantes au gonflement.



Le fait d'observer des cavités dans ces microstructures confirme que nos conditions d'irradiation sont adéquates pour générer un gonflement par cavités dans au moins une partie de nos échantillons. Pour envisager une étude plus fine du gonflement et l'étude du gradient de gonflement il sera nécessaire de polir en biseau.

5.2.2 Morphologies des précipités en surface

Certains de ces précipités ont une relation d'orientation avec la matrice et forment des amas 3D qui dépassent de la surface. La Figure 117 montre des précipités qui ont été couchés à la surface de l'échantillon (L46M1). En dehors des zones où les précipités ont été abimés et couchés (Figure 117), les précipités sont observés par le dessus (Figure 116).

Trois morphologies principales de précipités ont été identifiées. En règle générale, ces trois types de précipités sont observés sur l'ensemble des échantillons mais l'importance relative des trois populations diffère selon la microstructure initiale. On peut par exemple noter que la proportion de précipités qui sont colorés en vert dans la Figure 116 semble liée à une mauvaise résistance au gonflement. On les retrouve en nombre dans les microstructures connues pour leur sensibilité au gonflement (M3_V, M3_Ve) et en moindre proportion dans les autres microstructures.

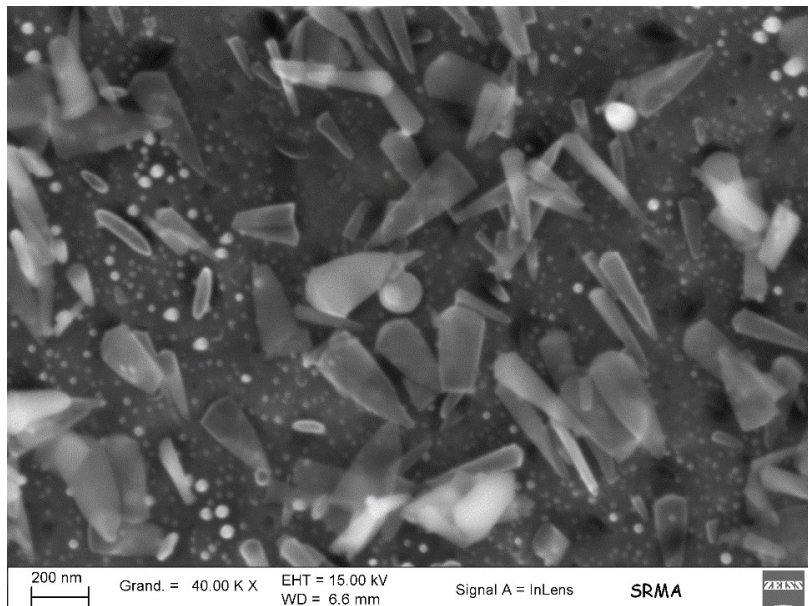


Figure 117 : Précipités couchés à la surface de l'échantillon

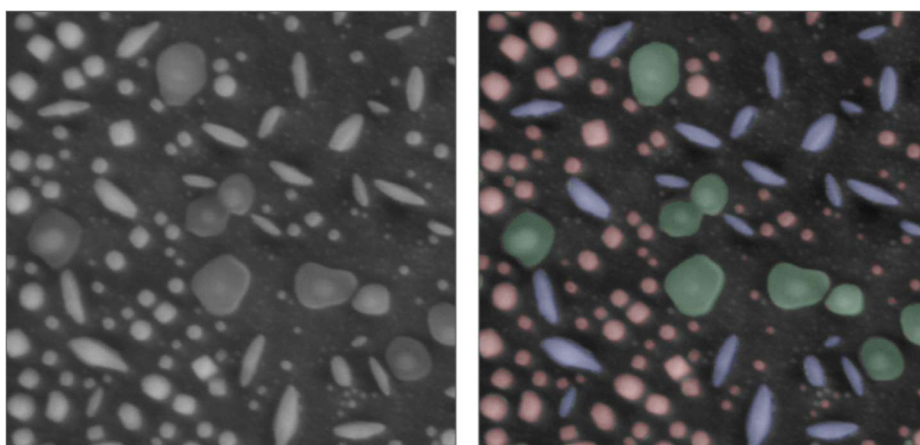


Figure 116 : Cliché MEB (InLens) original et colorisation des différents précipités en fonction de leur morphologie

5.2 Observations de la surface irradiée brute

5.2.3 Effet des joints de grains et des précipités primaires

Il y a un effet notable des joints de grains dont le voisinage est totalement dépourvu de précipitation. Cela donne une allure « cellulaire » à la microstructure sur les micrographies MEB (Figure 118). Pour un même échantillon, l'épaisseur de la zone dépourvue de précipités à proximité des joints de grains est globalement constante et des indices semblent indiquer que la formation des précipités est fortement liée aux phénomènes de diffusions dans le matériau (Figure 119). Il existe de nettes variations de comportement en fonction des différentes microstructures (Figure 120).

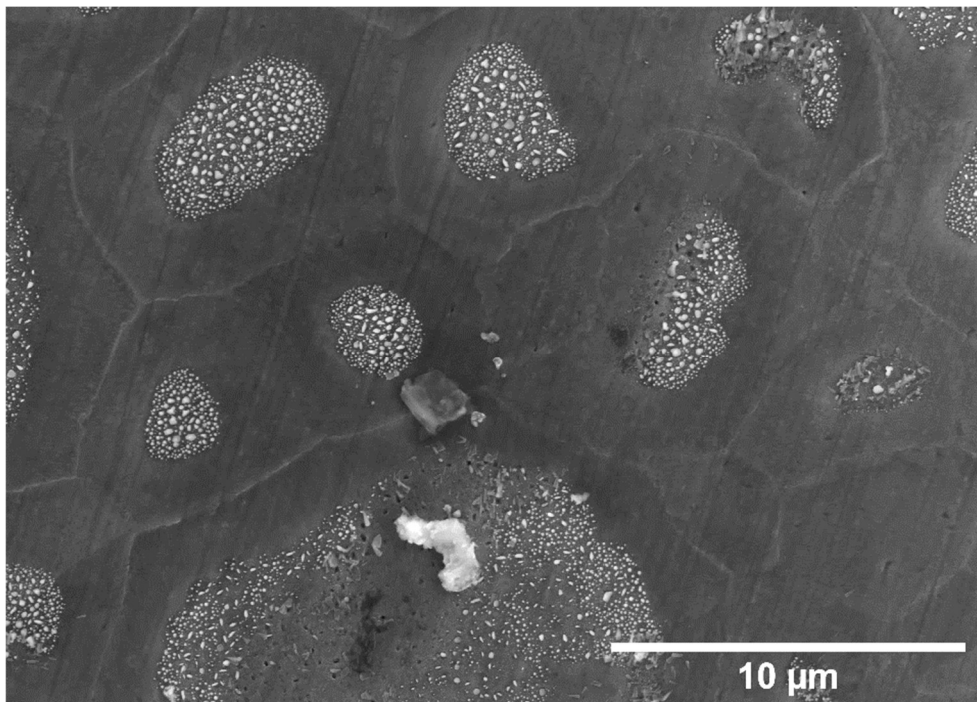


Figure 118 : Aspect cellulaire des différents grains du fait de la précipitation induite par l'irradiation.

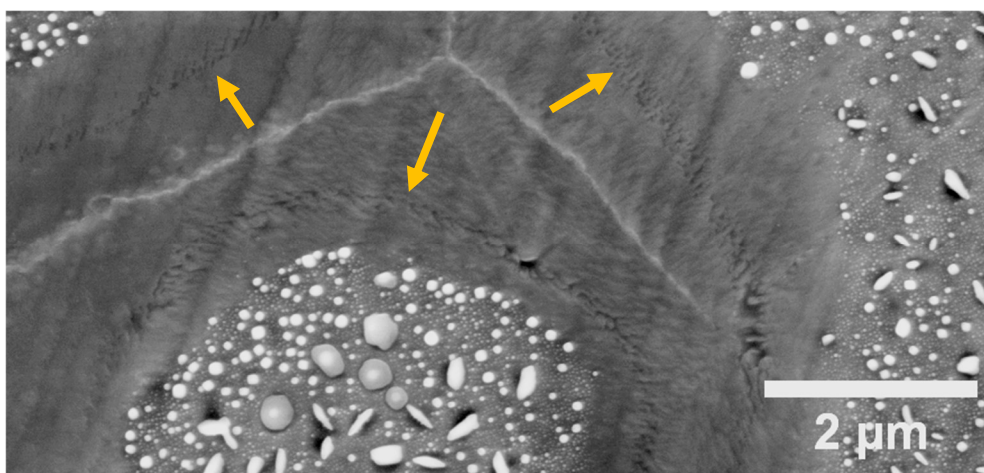


Figure 119 : Présence d'une interface entre les zone riches en précipités et les joints de grains.

5.2 Observations de la surface irradiée brute

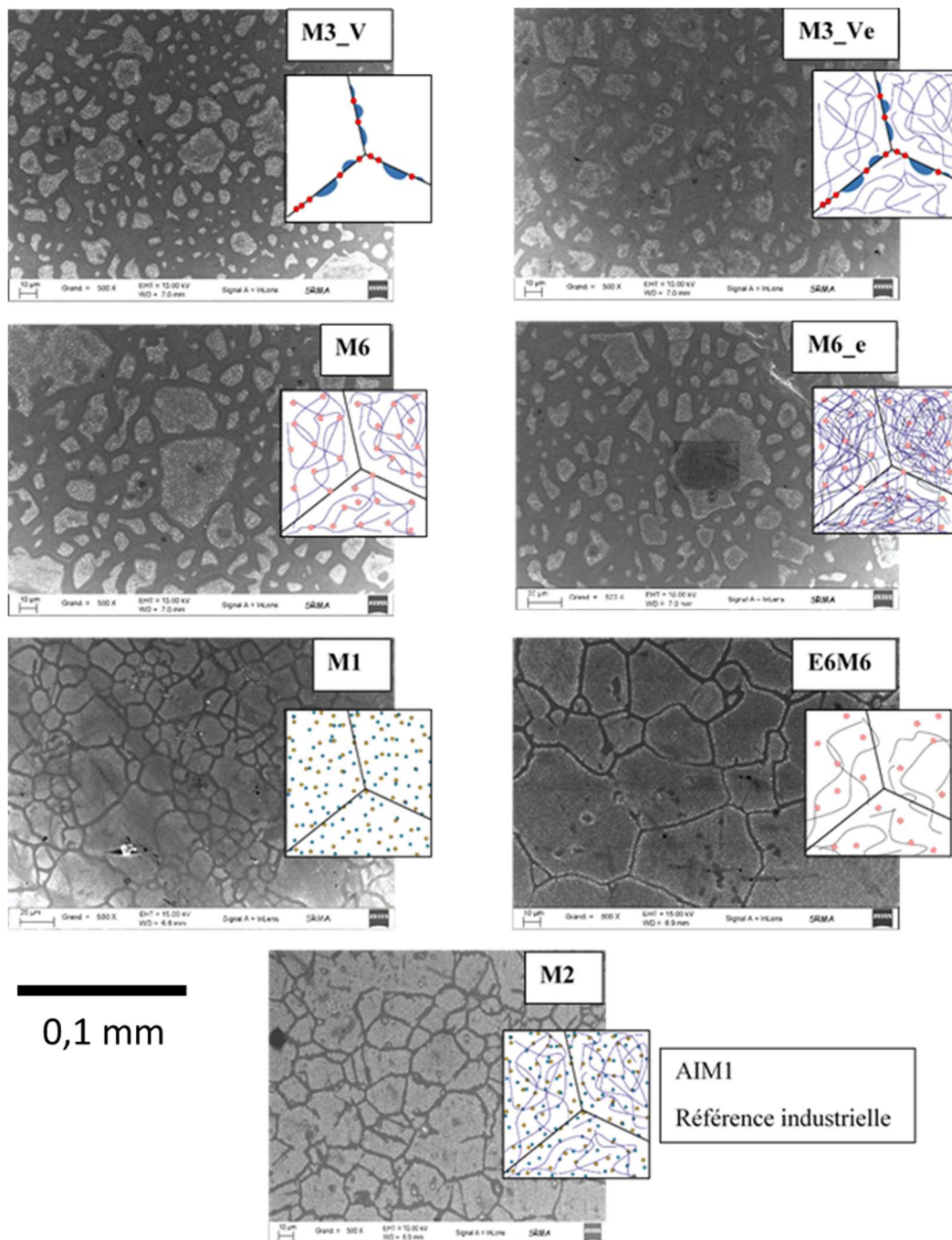


Figure 120: Vue à faible grandissement de la surface des différentes microstructures modèles irradiées.

5.2 Observations de la surface irradiée brute

Des zones dépourvues de précipité sont également visibles autour des interfaces qui peuvent servir de puits de défaut comme les précipités primaires. L'exemple donné visible Figure 121 provient de l'échantillon d'AIM1 irradié.

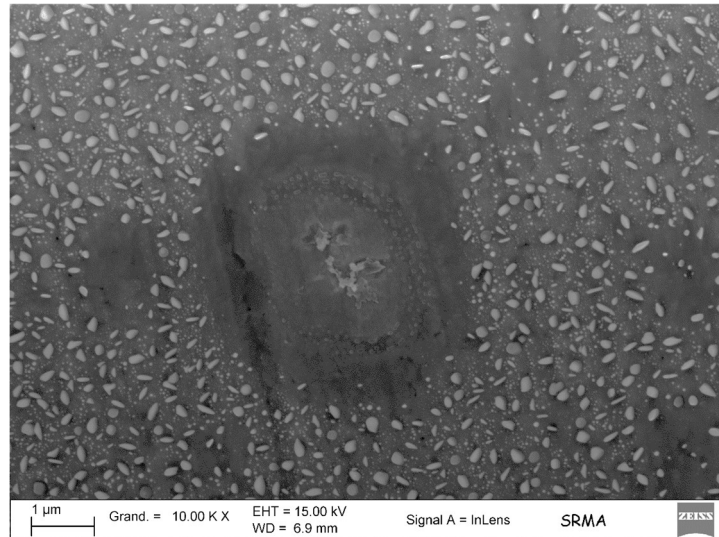


Figure 121 : Exemple d'une zone dépourvue de précipité en périphérie d'un précipité primaire Ti(Mo,C,N) dans l'échantillon d'AIM1.

5.2.4 Effet de la température sur la précipitation

En raison du faisceau d'ion très énergétique utilisé ($\sim 3\text{W}/\text{cm}^2$), il y a un échauffement des échantillons lors de l'irradiation. Par suite d'une perte de contact d'un des échantillons avec la platine, ce dernier a subi une surchauffe accidentelle continue d'environ 200°C en raison de l'énergie déposée par le faisceau d'ion et a donc été irradié à une température proche de 800°C . Cet échantillon ne présente aucune précipitation en position intra granulaire ni de cavités contrairement à un échantillon jumeau (même microstructure) qui a été irradié à 600°C .

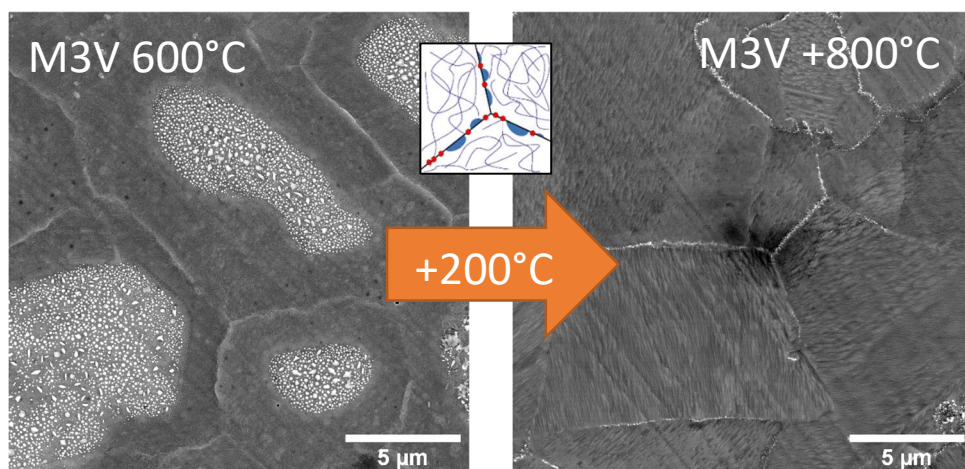


Figure 122 : Comparaison de deux échantillon jumeaux qui ont été irradiés à deux températures différentes. L'échantillon de droite a subi une surchauffe accidentelle de plus de 200°C .

5.3 Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation

5.3 INFLUENCE DES PARAMETRES DE MICROSTRUCTURE SUR LA PRECIPITATION

L'existence de zones sans précipitation à proximité des éléments de microstructures (joints de grains, précipités primaires) et la variation des populations de précipités entre les microstructures, suggèrent que les précipités induits sont un marqueur du comportement de la microstructure.

Des quantifications ont été réalisées de manière standardisée sur des zones de $20\mu\text{m} \times 15\mu\text{m}$ avec des clichés en haute résolution (taille de pixel de 6 nm). En raison de la forte influence des joints de grain, il a été choisi de quantifier la précipitation au cœur de grains de grande taille loin de tout joint de grains, plutôt que sur un ensemble de petits grains. Il y a plusieurs milliers de précipités par clichés ce qui offre une bonne statistique. Le tableau ci-dessous résume les quantifications qui ont été réalisées.

Echantillon	Nombre de précipités	Surface de précipités (% S_{totale})	Surface totale précipités (μm^2)	Surface moyenne (μm^2)	Diamètre Feret moyen (nm)	Circularité
M3_V	4944	7,71	23,119	0,005	85	0,948
M3_Ve	9605	8,952	26,843	0,003	66	0,954
M1	14540	9,5	28,485	0,002	60	0,922
E6M6	12032	11,149	33,429	0,003	68	0,935
M6	7969	10,201	30,588	0,004	70	0,942
M6_e	7275	8,671	25,999	0,004	74	0,943
AIM1	12680	20,531	61,561	0,005	87	0,872

Tableau 15 : Récapitulatif des mesures réalisées par segmentation automatisée. Les quantifications ont été réalisées sur des zones de $20\mu\text{m} \times 15\mu\text{m}$.

La suite de ce chapitre présente des comparaisons de microstructures modèles qui mettent en évidence les effets des dislocations, de la solution et l'effet croisé des nano précipités et des dislocations sur la précipitation induite en surface des échantillons.

5.3 Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation

5.3.1 Effet des dislocations

Les microstructures M3_V et M3_Ve sont vieilles à 800°C. La solution solide est appauvrie suite à la précipitation de $M_{23}C_6$ et de TiC localisés aux joints de grains. Dans ce cas, la solution solide est équivalente dans les deux microstructures et seule la densité de dislocations est différente suite à l'écroutissage de la microstructure M3_Ve.

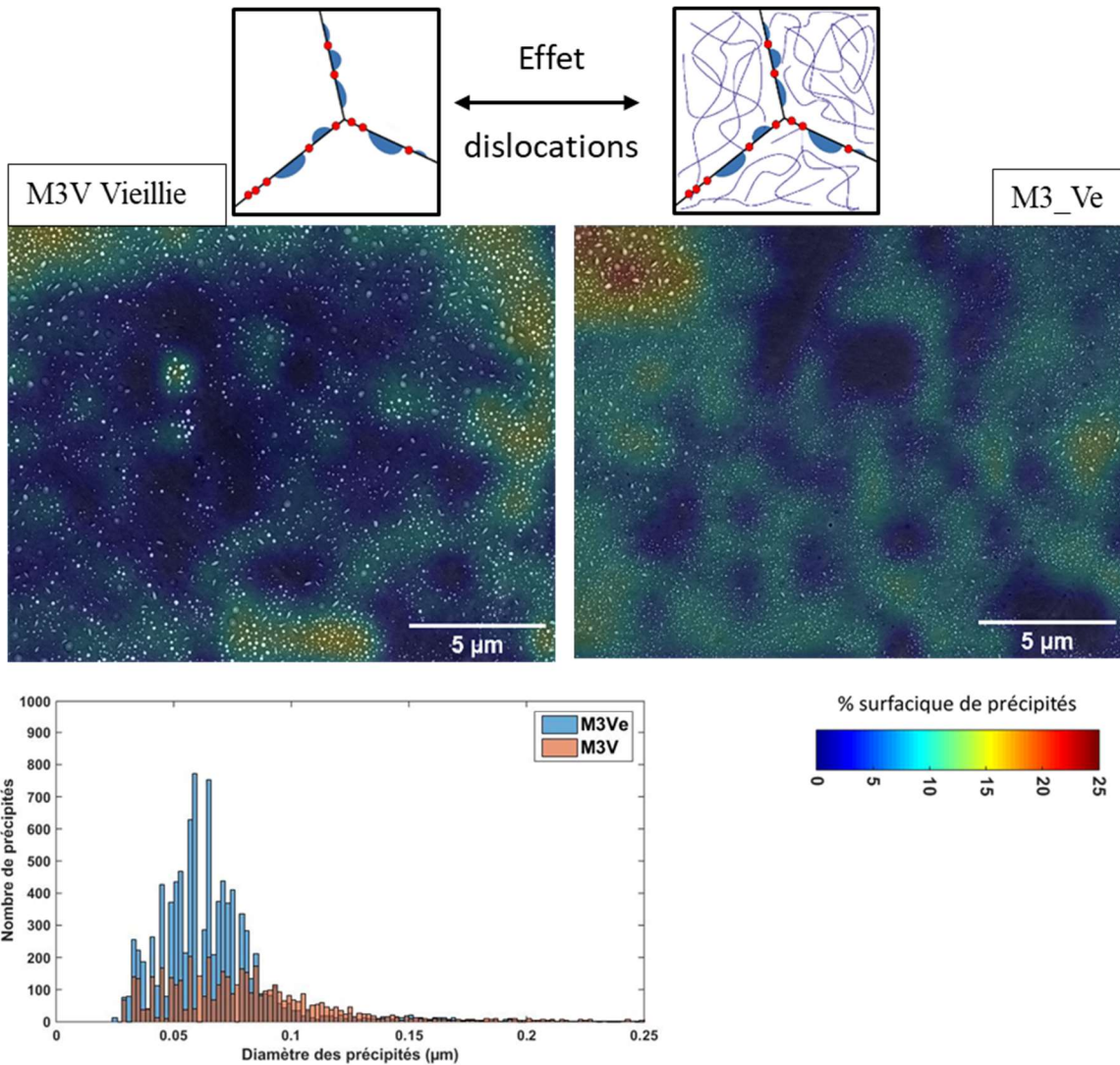


Figure 123 : Effet de la densité de dislocations sur la précipitation en surface des microstructures M3_V et M3_Ve.

La précipitation observée en surface est globalement faible dans la zone centrale des grains de grande taille. Les quantifications permettent de mettre en évidence que l'écroutissage (M3_Ve) provoque une augmentation de la densité de précipités en surface ainsi qu'une réduction de leur diamètre moyen à 66 nm contre un diamètre de 85nm dans la microstructure M3_V.

La répartition des précipités est hétérogène dans les deux microstructures, certaines zones sont très riches en précipités (en périphérie des joints de grains principalement) et d'autres en sont totalement dépourvues. Les cartographies de densité en pseudo couleur mettent en évidence les zones sans aucun précipité (coloration bleue) et les zones à forte précipitation (orange-rouge).

5.3 Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation

5.3.2 Effet de la solution solide

La comparaison des microstructures M3_V (vieillie 800°C) et M1 (hypertrempée) permet de mettre en évidence l'effet de la solution solide en l'absence d'un écrouissage initial et donc avec une faible densité de dislocations.

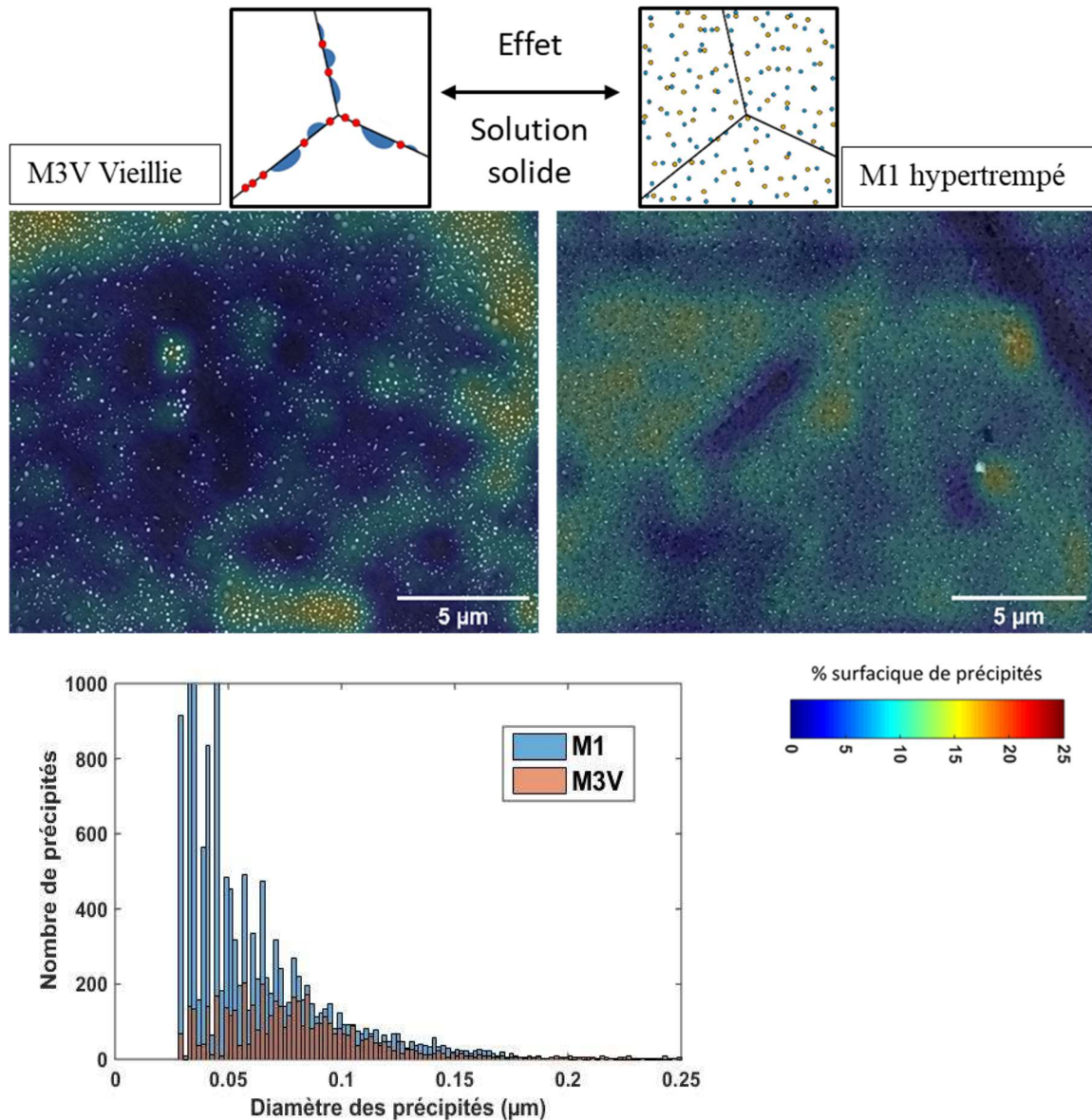


Figure 124 : Effet de la solution solide sur la précipitation en surface des microstructures M1 et M3V

La microstructure vieillie M3_V présente une population de précipités peu dense et de grande taille (diamètre moyen de 85 nm) dont la répartition est hétérogène (Figure 124). La microstructure hypertrempée présente une forte densité de précipités plus fins (diamètre moyen de 60 nm) et son comportement est globalement plus homogène.

5.3 Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation

5.3.3 Effet des nano précipités et dislocations : M6 et M6e

Les microstructures M6 et M6_e sont deux microstructures présentant une population stabilisatrice de nano précipités formés suite à un traitement thermomécanique (écrouissage + 650°C 50h). La microstructure M6_e a subi un second écrouissage afin de réintroduire des dislocations, elle a été irradiée dans le but d'évaluer un potentiel effet d'une augmentation de la densité de dislocations avec des nano-renforts. Elle a été proposée suite aux simulations réalisées avec CRESCENDO

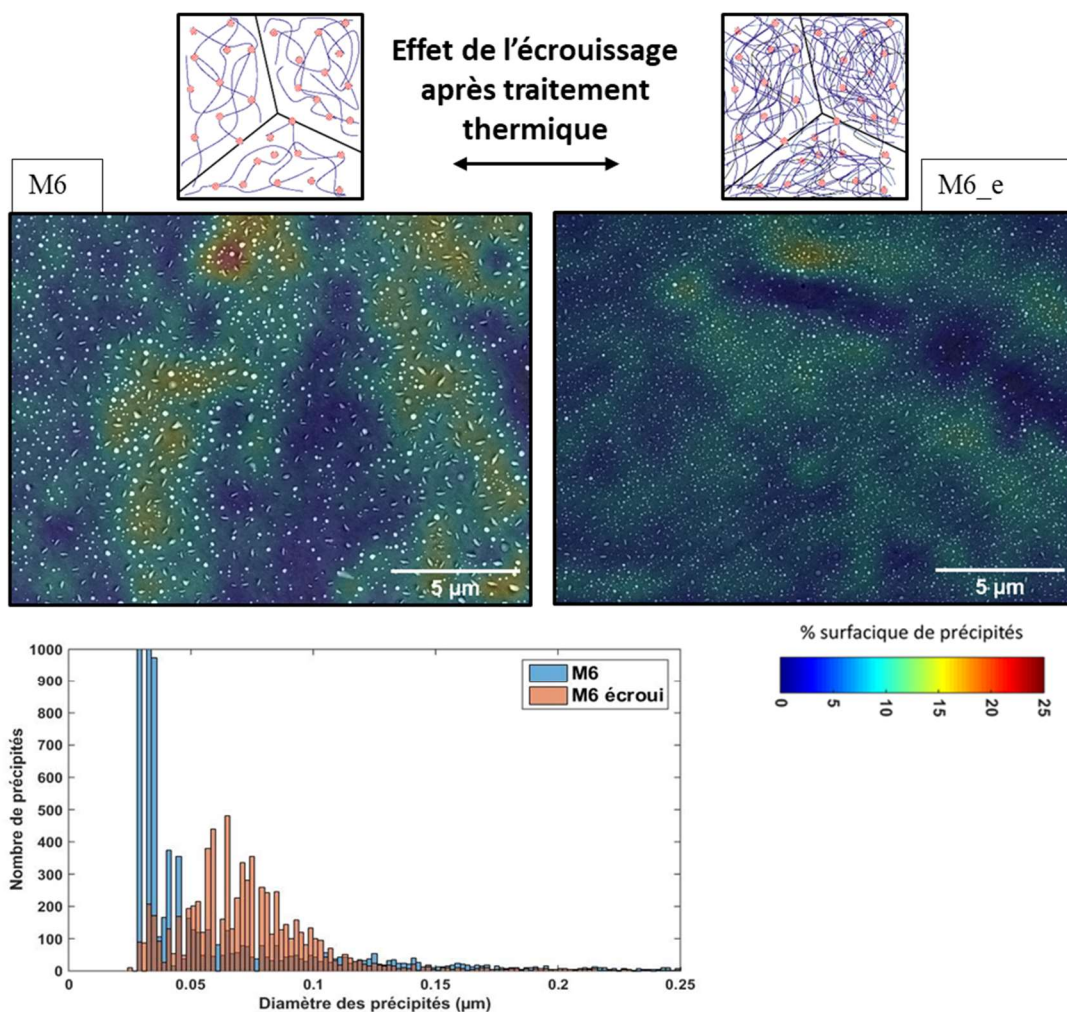


Figure 125 : Effet de la densité de dislocations associée à des nano-précipités sur la précipitation en surface des microstructures M6 et M6_e

La microstructure M6 présente une forte précipitation bimodale avec de très petits précipités de quelques dizaines de nanomètres (non visibles avec la résolution de la figure) et des précipités beaucoup plus larges. Bien que le diamètre moyen des précipités en surface soit proche de 70 nm dans les deux microstructures, M6e présente une précipitation mono modale dont la répartition est bien plus homogène. Contrairement aux microstructures Vieillies (M3V et M3_Ve), les microstructures stabilisées ne présentent pas de zones dépourvues de précipités en position intra granulaire.

5.3 Influence des paramètres de microstructure sur la précipitation

5.3.4 Comparaison M6_e (nano, ré-écrouie) avec l'AIM1 (référence industrielle)

La microstructure M6_e qui a été testée suite aux résultats obtenus avec le code CRESCENDO est comparée à la nuance référence industrielle AIM1. Cette nuance est connue pour être particulièrement résistante au gonflement ce qui en fait un bon référentiel pour évaluer la résistance au gonflement de nouvelles microstructures.

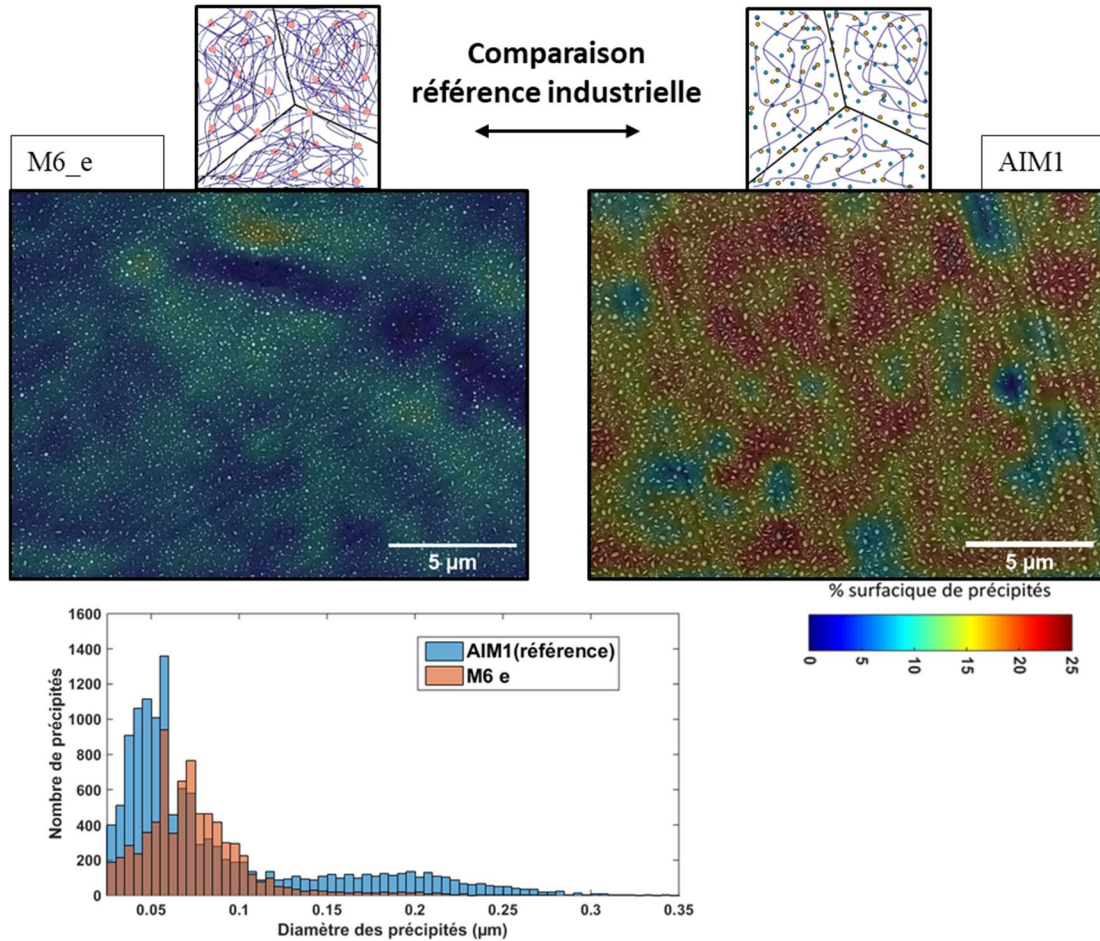


Figure 126 : Comparaison de la microstructure optimisée proposée et de l'AIM1.

La microstructure M6_e (nano + dislocations) et la référence industrielle AIM1 (hypertrempeée écrouie) sont comparées dans la Figure 126. On constate que l'AIM1 possède une population bimodale de précipités très dense qui recouvre un peu plus de 20% de la surface. De son côté la microstructure M6_e présente une population de précipités monomodale plus fine et recouvrant 8.6% de la surface. Dans les deux cas on constate une répartition homogène des précipités dans les échantillons.

5.4 CONCLUSION DU CHAPITRE V

Différentes microstructures modèles ont été irradiées lors de la campagne JANNuS 7 (Fe^{3+} , 10MeV), le but était d'évaluer expérimentalement l'effet de la densité initiale de dislocations et des nano précipités sur le gonflement. Dans l'idéal il faudrait effectuer un polissage biseau pour étudier le gonflement sous irradiation en fonction du gradient de dommage mais la mise en place de cette étape de polissage est encore à optimiser. Nous avons donc préféré dans un premier temps caractériser finement la surface brute d'irradiation avec l'approche MEBIA.

On observe une précipitation en surface qui à priori, n'a pas de relation avec la résistance au gonflement mais il a été constaté que l'état de précipitation était très différent suivant les microstructures. La précipitation observée en surface semble sensible aux mêmes paramètres que le gonflement et il existe peut-être une corrélation à établir avec la résistance au gonflement des microstructures.

Dans le cas des nuances vieilles M3V et M3_Ve (sans solution solide, sans précipité stabilisateur) le comportement est hétérogène avec des zones intra granulaires dépourvues de précipité ce qui n'est pas le cas des nuances non vieilles ou stabilisés. Des cavités sont visibles lors de l'observation de la face irradiée au MEB et de précédentes irradiations ont confirmé que ces microstructures sont très sensibles au gonflement.

Dans le cas de la comparaison de microstructures recristallisées avec (M1) et sans solution solide (M3V), on constate un comportement plus homogène dans les microstructures hypereupé (M1). A microstructure égale (M3V-M3Ve ; M6-M6e), l'ajout d'un écrouissage fait diminuer la taille moyenne des précipités en surface et c'est aussi un effet constaté de l'écrouissage qui permet de diminuer la taille des cavités et limiter le gonflement.

Pour terminer nous avons comparé la microstructure proposée à partir des simulations CRESCENDO M6_e (15/15 Ti+Nb nano ré-écrouie) avec la nuance de référence AIM1 (15/15 Ti hypereupé écrouie). La comparaison n'est donc pas à microstructure égale mais l'AIM1 est un alliage qui est connu pour sa résistance au gonflement. Des différences significatives sont constatées avec une intensité de précipitation en surface plus forte dans le cas de l'AIM1. Le fait d'observer la précipitation en surface répartie de manière très homogène pourrait suggérer un bon comportement de la microstructure sous irradiation et il sera particulièrement intéressant d'étudier les cavités en profondeur pour confirmer si cette microstructure est réellement intéressante.

Conclusions et perspectives

Ce travail de thèse avait pour objectif d'étudier les voies d'optimisation microstructurales et chimiques des aciers austénitiques pour améliorer leur résistance au gonflement sous irradiation. Ces matériaux sont utilisés, par exemple, pour le gainage de combustibles de réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na). Les principaux résultats obtenus sont résumés dans cette conclusion ainsi que des propositions pour la conception d'une future nuance AIM2 encore plus résistante au gonflement sous irradiation.

Trois alliages modèles ont permis d'étudier la double stabilisation titane et niobium et des microstructures types ont été définies pour mettre en évidence le rôle de paramètres microstructuraux influençant le gonflement (dislocations, solutés, nano-précipités). Des caractérisations par MEB, DRX et DNPA ont permis une meilleure compréhension des évolutions microstructurales des trois nuances à haute température dans l'état de référence (hypertrempé – écroui) et dans différents états métallurgiques.

Des irradiations à fortes doses (Fe^{3+} 2MeV 135 dpa) ont montré que le remplacement du titane par du niobium dans les trois nuances réduisait systématiquement la résistance au gonflement dans l'état de référence (hypertrempé – écroui). Les échantillons avec la plus forte densité de cavités sont ceux qui ont été irradiés à 600°C. Ils présentent de fortes évolutions microstructurales (précipitation). On note qu'au-delà de 600°C les microstructures montrent de fortes évolutions (précipitation, restauration) et le mauvais comportement des nuances contenant du niobium pourrait s'expliquer par l'instabilité plus prononcée de la microstructure. Nous l'avons aussi observée après des vieillissements thermiques caractérisés par diffraction au rayonnement synchrotron. Le niobium n'apparaît pas dans ces travaux comme efficace pour limiter le gonflement, au moins avec les microstructures testées. Il faudrait peut-être optimiser spécifiquement la microstructure (ajustement de la température et de la durée d'hypertrempé et des taux d'écrouissage) pour voir un effet positif.

Il n'a pas été possible de générer des cavités dans les échantillons irradiés à 500°C dans l'état de référence. Le titane en solution solide semble empêcher leur formation.

Une difficulté majeure identifiée lors de ce travail est de réussir à former des cavités par irradiations aux ions avec des matériaux qui sont déjà bien optimisés pour la résistance au gonflement. Il est nécessaire d'aller vers des très forts taux de dommages avec JANNuS. Les campagnes d'irradiations prolongées deviennent délicates (oxydation, pollution) ce qui peut provoquer des artefacts importants. La comparaison d'échantillons issus de différentes campagnes se révèle complexe car de faibles variations de conditions expérimentales peuvent fortement modifier l'évolution de la microstructure et/ou de la solution solide lors de l'irradiation. Pour limiter les doses nécessaires pour déclencher le gonflement, l'implantation d'hélium, connu pour favoriser la germination des cavités peut se révéler pertinente [122]. Une autre approche peut aussi être envisagée : pour tester des microstructures nouvelles (nanos + hypertrempé + dislocations) on pourrait considérer des matrices connues pour être peu résistante au gonflement (riches en Cr et à bas Ni par exemple), tester des optimisations microstructurales et ensuite les appliquer à des matrices déjà identifiées comme résistante au gonflement.

Pour faciliter l'acquisition de données, une nouvelle méthodologie de l'étude des cavités induites par irradiation aux ions a été proposée (approche MEBIA). Elle permet une étude statistique de la formation des cavités et repose sur l'utilisation de la Microscopie Electronique à Balayage. L'amélioration des détecteurs permet maintenant l'acquisition de clichés haute définition pouvant contenir sur une même micrographie plusieurs milliers de cavités. Ces clichés sont ensuite analysés à l'aide d'un algorithme d'intelligence artificielle à apprentissage supervisé pour reconnaître automatiquement les objets présents dans la microstructure (cavités, précipités, joints de grain, etc...). Cette nouvelle approche appliquée aux échantillons irradiés aux ions, permet de mesurer le gonflement sur un continuum de valeurs de doses et d'implantation sur un même échantillon. Elle permet aussi d'obtenir rapidement la distribution des précipités dans le matériau.

Des calculs par dynamique d'amas ont permis de simuler l'impact des nano-précipités et de la densité initiale de dislocations sur le gonflement mais aussi de faciliter l'interprétation des résultats obtenus expérimentalement et de proposer une origine possible du gonflement hétérogène, parfois observé dans les microstructures écrouies. Les simulations ont inspiré la microstructure M6_e qui a été ré-écrouie après un traitement thermique conduisant à la formation des nano précipités. Cette microstructure a été créée pour étudier l'intérêt d'introduire davantage de dislocations dans la microstructure lors de l'écrouissage par effet d'ancrage des nano précipités. La microstructure M6_e et d'autres microstructures modèles, ont été irradiées en vue d'une étude du gonflement par approche MEBIA. Des premières caractérisations ont été réalisées (observation de la face irradiée). Elles montrent l'apparition d'une population de précipités, probablement lié à l'oxydation de la surface, mais dont les caractéristiques semblent être un marqueur du comportement de la microstructure sous irradiation. Ce travail devra être poursuivi pour valider la pertinence des microstructures optimisées vis à vis de la résistance au gonflement en caractérisant les cavités dans les zones irradiées après avoir préparé les échantillons.

L'état de référence de l'AIM1 le rend très résistant au gonflement du fait de la forte densité de dislocations et des éléments dissous en solution solide. Cependant, ces populations de puits (on peut aussi considérer que le titane en solution solide en fait partie) ne sont pas stables lors de traitement thermiques au-delà de 600°C où après irradiation à forte dose.

Compte tenu de ces éléments et pour optimiser encore l'état métallurgique, il semble intéressant de rechercher des microstructures présentant une forte densité de puits qui vont rester stables le plus longtemps possibles. Nous avons commencé à tester une microstructure avec des nano-précipités et une augmentation de la densité de dislocations qu'il faudrait quantifier. On pourrait imaginer aller plus loin en concevant des traitements thermomécaniques qui permettent de conserver une partie des éléments comme le titane en solution solide mais une autre partie précipiterait sous forme de nano-précipités. Un écrouissage final permettrait d'augmenter la densité de dislocations. On aurait alors un état « semi-hypertrempé » avec des nano-précipités et un réseau dense de dislocations. Les simulations obtenues avec CRESCENDO accèdent l'idée d'une bonne performance de ce type de microstructure vis-à-vis du gonflement. Il conviendrait sans doute de modifier la chimie du matériau en augmentant les teneurs en titane et en augmentant aussi les températures d'hypertrempe pour disposer d'une réserve de titane plus importante. Une autre voie à explorer serait d'augmenter drastiquement la densité de nano-précipités dans le matériau et les ODS austénitiques seraient naturellement à considérer.

Références bibliographiques

- [1] IRSN, “La sureté Nucleaire.” [Online]. Available: https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/La_surete_Nucleaire/.
- [2] G. S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*. 2019.
- [3] G. S. Was and T. R. Allen, “Intercomparison of microchemical evolution under various types of particle irradiation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 205, pp. 332–338, 1993.
- [4] S. Mao, S. Shu, J. Zhou, R. S. Averback, and S. J. Dillon, “Quantitative comparison of sink efficiency of Cu-Nb, Cu-V and Cu-Ni interfaces for point defects,” *Acta Mater.*, vol. 82, pp. 328–335, 2015.
- [5] R. S. Averback, R. Benedek, and K. L. Merkle, “Efficiency of defect production in cascades,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 69–70, pp. 786–789, 1978.
- [6] P. Jung, “Atomic displacement functions of cubic metals,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 117, no. C, pp. 70–77, 1983.
- [7] G. Veliša *et al.*, “Delayed damage accumulation by athermal suppression of defect production in concentrated solid solution alloys,” *Mater. Res. Lett.*, vol. 6, no. 2, pp. 136–141, 2018.
- [8] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. A. Garner, “On the use of SRIM for computing radiation damage exposure,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 310, pp. 75–80, 2013.
- [9] C. Cawthorne and E. J. Fulton, “Void in Irradiated Stainless Steel,” *Nature*, vol. 214, pp. 572–573, 1967.
- [10] J. L. Seran, “Synthèse des études sur le gonflement des alliages austénitiques développés au CEA pour le gainage du combustible RNR Na - acier 316 à AIM1.”
- [11] F. A. Garner, “Recent insights on the swelling and creep of irradiated austenitic alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 123, pp. 459–471, 1984.
- [12] J.-L. Séran and M. Le Flem, *Irradiation-resistant austenitic steels as core materials for Generation IV nuclear reactors*. Elsevier Ltd, 2017.
- [13] F. A. Garner, “Irradiation Performance of Cladding and Structural Steels in Liquid Metal Reactors,” in *A comprehensive Treatment, Vol 10*, 1994.
- [14] V. S. Neustroev and F. A. Garner, “Severe embrittlement of neutron irradiated austenitic steels arising from high void swelling,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 386, pp. 157–160, 2009.
- [15] P. Yvon, M. Le Flem, C. Cabet, and J. L. Seran, “Structural materials for next generation nuclear systems : Challenges and the path forward,” *Nucl. Eng. Des.*, vol. 294, pp. 161–169, 2015.
- [16] CEA/Nuclear Energy Division, “La technologie des RNR-Na,” *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [17] N. Cautaerts, “Nanoscale study of ageing and irradiation induced precipitates in the DIN 1.4970 alloy,” 2019.

- [18] D. F. F. Pedraza and P. J. J. Maziasz, “Void-Precipitate Association During Neutron Irradiation of Austenitic Stainless Steel,” in *Radiation-Induced Changes in Microstructure: 13th International Symposium (Part I)*, ASTM STP 955, 1987, pp. 161-194.
- [19] H. Tsuchida and H. Takahashi, “In situ observation of austenitic stainless steels during dual-beam irradiation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 239, no. 1–3, pp. 112–117, 1996.
- [20] Y. Katoh, R. E. Stoller, Y. Kohno, and A. Kohyama, “The influence of He / dpa ratio and displacement rate on microstructural evolution: a comparison of theory and experiment,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 210, no. 3, pp. 290–302, 1994.
- [21] J. I. Cole and T. R. Allen, “Microstructural changes induced by post-irradiation annealing of neutron-irradiated austenitic stainless steels,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 283–287, no. PART I, pp. 329–333, 2000.
- [22] S. J. Zinkle, “Radiation-Induced Effects on Microstructure *,” in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier Inc., 2012, pp. 65–98.
- [23] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, and R. E. Stoller, “Dose dependence of the microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 206, no. 2–3, pp. 266–286, 1993.
- [24] D. Hull and D. J. Bacon, *Introduction to Dislocations*, vol. 53, no. 9. 2011.
- [25] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, and R. E. Stoller, “Dose dependence of the microstructural evolution in the neutron-irradiated austenitic stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 206, pp. 266–286, 1993.
- [26] P. J. Maziasz, “Temperature dependence of the dislocation microstructure of PCA austenitic stainless steel irradiated in ORR spectrally-tailored experiments,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 191–194, no. PART B, pp. 701–705, 1992.
- [27] D. J. Edwards, E. P. Simonen, and S. M. Bruemmer, “Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275 °C,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 317, pp. 13–31, 2003.
- [28] D. S. Gelles, “Effects of stress on microstructural evolution during irradiation,” vol. 5, pp. 146–161, 1993.
- [29] H. Tanigawa, A. Kohyama, and Y. Katoh, “A modeling of radiation induced microstructural evolution under applied stress in austenitic alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 239, no. 1–3, pp. 80–84, 1996.
- [30] A. Barbu and G. Martin, “Radiation effects in metals and alloys,” *Solide State Phenom.*, vol. 30–31, pp. 179–228, 1993.
- [31] H. H. Jin, E. Ko, S. Lim, J. Kwon, and C. Shin, “Effect of irradiation temperature on microstructural changes in self-ion irradiated austenitic stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 493, pp. 239–245, 2017.
- [32] P. J. Maziasz and C. J. McHargue, “Microstructural evolution in annealed austenitic steels during neutron irradiation,” *Int. Mater. Rev.*, vol. 32, no. 4, pp. 190–219, 1987.
- [33] P. J. Maziasz, “Temperature dependence of the dislocation microstructure of PCA austenitic stainless steel irradiated in ORR spectrally-tailored experiments,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 191–194, no. PART B, pp. 701–705, 1992.

- [34] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, and R. E. Stoller, "Dose dependence of the microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 206, no. 2–3, pp. 266–286, 1993.
- [35] A. Etienne, M. Hernández-Mayoral, C. Genevois, B. Radiguet, and P. Pareige, "Dislocation loop evolution under ion irradiation in austenitic stainless steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 400, pp. 56–63, 2010.
- [36] H. Tanigawa, A. Kohyama, and Y. Katoh, "A modeling of radiation induced microstructural evolution under applied stress in austenitic alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 239, pp. 80–84, 1996.
- [37] H. R. Brager, F. A. Garner, E. R. Gilbert, J. E. Flinn, and W. R. Wolfer, "Stress-affected microstructural development and the creep-swelling interrelationship," in *International conference on radiation effects in breeder Reactor Structural Materials*, 1977.
- [38] L. K. Mansur, "Correlation of neutron and heavy-ion damage PartII: The predicted temperature shift in swelling with changes in radiation dose rate," *J. Nucl. Mater.*, vol. 78, pp. 156–160, 1978.
- [39] T. Okita, W. G. Wolfer, F. A. Garner, and N. Sekimura, "Effects of titanium additions to austenitic ternary alloys on microstructural evolution and void swelling," *Philos. Mag.*, vol. 85, no. 18, pp. 2033–2048, 2005.
- [40] B. Rouxel, "Développement d'aciers austénitiques avancés résistants au gonflement sous irradiation," Université de Lille 1, 2016.
- [41] F. Menzinger and F. Sacchetti, "Dose-rate dependence of swelling and damage in ion-irradiated nickel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 57, pp. 193–197, 1975.
- [42] F. Sacchetti, "Simulation of the fast neutron void swelling in AISI 316 stainless steel. Dose and dose-rate dependences," *J. Nucl. Mater.*, vol. 64, no. 1–2, pp. 115–120, 1977.
- [43] T. Okita, T. Sato, N. Sekimura, F. A. Garner, and L. R. Greenwood, "The primary origin of dose rate effects on microstructural evolution of austenitic alloys during neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 307–311, no. 1 SUPPL., pp. 322–326, 2002.
- [44] O. V Borodin *et al.*, "Microstructure evolution and degradation mechanisms of reactor internal steel irradiated with heavy ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 385, no. 2, pp. 325–328, 2009.
- [45] J. L. Seran and J.-M. Dupouy, "The swelling of solution annealed 316 cladding in RAPSODIE and PHENIX," 1983.
- [46] S. J. Rothman, L. J. Nowicki, and G. E. Murch, "Self-diffusion in austenitic Fe-Cr-Ni alloys," *J. Phys. F Met. Phys.*, 10, vol. 383, 1980.
- [47] B. Esmailzadeh and A. S. Kumar, "Influence of composition on steady state void nucleation in irradiated alloys," *Eff. Radiat. Mater. 12th Int. Symp. ASTM STP 870*, pp. 468–480, 1985.
- [48] F. A. Garner and A. S. Kumar, "The influence of both major and minor element composition on void swelling in austenitic steels," *Radiation-Induced Chang. Microstruct. Int. Symp. (Part I)*, ASTM STP 955, pp. 289–314, 1987.
- [49] Y. Dong, B. H. Sencer, F. a. Garner, and E. a. Marquis, "Microchemical and

- microstructural evolution of AISI 304 stainless steel irradiated in EBR-II at PWR-relevant dpa rates,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 467, pp. 692–702, 2015.
- [50] K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, and Y. Kitsunai, “Evolution of Microstructure and Microchemistry in Cold-worked 316 Stainless Steels under PWR Irradiation,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 43, no. 2, pp. 159–173, 2006.
- [51] T. R. Allen, J. I. Cole, J. Gan, G. S. Was, R. Dropek, and E. A. Kenik, “Swelling and radiation-induced segregation in austenitic alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 342, no. 1, pp. 90–100, 2005.
- [52] F. A. Garner, *Radiation Damage in Austenitic Steels*. Elsevier Inc., 2012.
- [53] E. Curtet, “Evolution microstructurale et compréhension des mécanismes de déformation d’un acier austénitique stabilisé au titane pour les réacteurs de quatrième génération,” Université de Poitiers, 2019.
- [54] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, a.M. Turkalo, and T. Lauritzen, “An experimental survey of swelling in commercial Fe-Cr-Ni alloys bombarded with 5 MeV Ni ions,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 54, pp. 24–40, 1974.
- [55] F. A. Garner and H. R. Brager, “Swelling of Austenitic Iron Nickel Chromium ternary alloys during fast neutron irradiation,” in *Effects of radiation on materials: 12th international symposium, ASTM STP 870*, 1985, pp. 187–201.
- [56] J. F. Bates and R. W. Powell, “Irradiation-induced swelling in commercial alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 102, pp. 200–213, 1981.
- [57] C. Delalande, “Influence du phosphore sur le comportement hors et sous irradiation des aciers austénitiques multistabilisés,” 1992.
- [58] V. N. Voyevodin, I. M. Neklyudov, V. V Bryk, and O. V Borodin, “Microstructural evolution and radiation stability of steels and alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 271–272, pp. 290–295, 1999.
- [59] M. Desormeaux *et al.*, “Development of radiation damage during in-situ Kr⁺⁺ irradiation of FeNiCr model austenitic steels,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 475, pp. 156–167, 2016.
- [60] A. F. Padilha, R. L. Plaut, and P. R. Rios, “Annealing of Cold-worked Austenitic Stainless Steels,” *ISIJ Int.*, vol. 43, no. 2, pp. 135–143, 2003.
- [61] M. Vasudevan, S. Venkadesan, and P. V Sivaprasad, “Influence of Ti/(C + 6/7N) ratio on the recrystallization behaviour of a cold worked 15Cr-15Ni-2.2Mo-Ti modified austenitic stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 231, no. 3, pp. 231–241, 1996.
- [62] P. Maziasz, “Precipitation response of austenitic stainless steel to simulated fusion irradiation,” *Met. Sci. Stainl. Steels*, 1979.
- [63] P. Dubuisson, A. Maillard, C. Delalande, D. Gilbon, and J. L. Seran, “The effect of phosphorus on the radiation induced microstructure stabilize austenitic stainless steels,” *15th Symp. Eff. Radiat. Mater.*, 1990.
- [64] O. Ast, B. Jean-Cristophe, J. L. Béchade, and J. L. Seran, “NT-SRMA-1997-2245.”
- [65] I. Shibahara, N. Akasaka, and S. Onose, “Effects of Metallurgical variables on swelling of modified 316 and higher Ni austenitic stainless steels,” *Eff. Radiat. Mater. 17th Int.*

Symp. ASTM STP 1270, p. 858, 1996.

- [66] I. Shibahara, N. Akasaka, and S. Onose, "Effects of metallurgical variables on swelling of modified 316 and higher Ni austenitic stainless steels," in *Effects of Radiation on materials, 17th International Symposium, ASTM STP 1270*, 1996, pp. 858–873.
- [67] W. Kesternich and R. V Nandedkar, "Coprecipitation of M23C6 and MC type carbide under the influence of irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 179–181, P, no. 0, pp. 1015–1018, 1991.
- [68] W. Kesternich, "Microstructural titanium-stabilized," vol. 34, no. 6, pp. 1071–1082, 1986.
- [69] T. Muroga, K. Araki, Y. Miyamoto, and N. Yoshida, "Void swelling in high purity FeCrNi and FeCrNiTi alloys irradiated in JOYO," *J. Nucl. Mater.*, vol. 155–157, no. PART 2, pp. 1118–1122, 1988.
- [70] R. M. Boothby and T. M. Williams, "The effects of silicon and titanium on void swelling and phase transformations in neutron irradiated 12Cr-15Ni steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 152, no. 2–3, pp. 123–138, 1988.
- [71] H. Watanabe, T. Muroga, and N. Yoshida, "The influence of combined addition of phosphorus and titanium on void swelling of austenitic Fe-Cr-Ni alloys at 646–700 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 212, pp. 503–508, 1994.
- [72] C. David *et al.*, "A study of the effect of titanium on the void swelling behavior of D9 steels by ion beam simulation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 383, no. 1–2, pp. 132–136, 2008.
- [73] A. F. Padilha, Flavio Beneduce Neto, and L. G. de Carvalho, "Phase stability during solution annealing of a nuclear grade austenitic stainless steel stabilized with titanium," vol. 2, no. 1, 2019.
- [74] "Ehrlich, *Zeitschrift Fur Metallkunde*, vol. 94 p 485."
- [75] M. Gao and R. P. Wei, "Precipitation of intragranular M23C6 carbides in a nickel alloy: Morphology and crystallographic feature," *Scr. Metall. Mater.*, vol. 30, no. 8, pp. 1009–1014, 1994.
- [76] E. H. Lee and L. K. Mansur, "Fe-15Ni-13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications . II . Effects of minor elements on precipitate phase stability during thermal aging," *J. Nucl. Mater.*, vol. 278, pp. 11–19, 2000.
- [77] B. G. LACOMBE P., BAROUX B., *Les aciers inoxydables, Les éditions de physique*. 1990.
- [78] J. Kunze, B. Beyer, M. Leonhardt, and C. Mickel, "Precipitation during the solidification and cooling of microalloyed iron," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 173, no. 1–2, pp. 309–311, 1993.
- [79] A. F. Padilha, "Decomposition of Austenite in Austenitic Stainless Steels Decomposition of Austenite in Austenitic Stainless Steels," no. September 2015, 2002.
- [80] U. F. R. Sciences and A. Etienne, "Discipline : Physique," 2009.
- [81] A. Volgin, "Characterization and understanding of ion irradiation effect on the microstructure of austenitic stainless steels." 2012.

- [82] P. Dubuisson, A. Maillard, C. Delalande, D. Gilbon, and J. L. Seran, “The effect of phosphorus on the radiation induced microstructure stabilize austenitic stainless steels,” in *15th symposium of the Effects of Radiation on Materials*, 1990.
- [83] S. W. Yang, “Precipitate Evolution in Type 316 stainless Steels Irradiated in EBR-II,” in *Radiation-Induced Changes in Microstructure: 13th International Symposium (Part I)*, ASTM STP 955, 1987, p. 628.
- [84] P. J. Maziasz and C. J. McHargue, “Microstructural evolution in annealed austenitic steels during neutron irradiation,” *Int. Mater. Rev.*, vol. 32, no. 1, pp. 190–219, 1987.
- [85] A. S. Grot and J. E. Spruiell, “Microstructural stability of titanium-modified type 316 and type 321 stainless steel,” *Metall. Trans. A*, vol. 6, no. 11, pp. 2023–2030, 1975.
- [86] B. Weiss, R. Stickler, B. Weiss, and W. Re-, “Phase Instabilities During High Temperature Exposure of 316 Austenitic Stainless Steel,” vol. 3, no. April, 1972.
- [87] M. Kountchou, “Gonflement sous irradiation d ’ un acier de structure pour un réacteur de génération IV : rapport d ’ avancement de deuxième année de thèse .,” 2016.
- [88] B. Michaut, “Caractérisation et modélisation de l’évolution de la microstructure et du gonflement d’aciers austénitiques représentatifs des internes inférieurs de Réacteur à Eau Pressurisée sous irradiations aux ions.,” 2017.
- [89] W. Kesternich, M. K. Matta, and J. Rothaut, “Influence of TiC precipitation in austenitic stainless steel on strength, ductility and helium embrittlement,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 130–133, 1984.
- [90] E. H. Lee and L. K. Mansur, “Fe-15Ni-13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications. II. Effects of minor elements on precipitate phase stability during thermal aging,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 278, no. 1, pp. 11–19, 2000.
- [91] L. Courtin, “Laurine Courtin Optimisation de la transformation à froid des tubes de gaine en acier austénitique 15-15Ti AIM1,” 2015.
- [92] M. Jublot and A. Courcelle, “Propriétés microstructurales de la nuance DS4 (15 / 25Ti , Nb) irradiée dans le programme SUPERNOVA,” *Note Tech. SEMI/LM2E/NT/2017-012/A*, vol. 33, no. 0, pp. 1–35, 2017.
- [93] A. Vaugoude, “Données Synchrotron.” [Online]. Available: <https://tinyurl.com/y3gpbmcc>.
- [94] J. I. Langford and A. J. C. Wilson, “Scherrer after sixty years: A survey and some new results in the determination of crystallite size,” *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 11, no. 2, pp. 102–113, 1978.
- [95] M. H. Mathon and C. H. De Novion, “De l’intensité à la structure des matériaux,” *J. Phys. IV JP*, vol. 9, no. 1, pp. 127–146, 1999.
- [96] S. Mauriès, “Caractérisation et modélisation de la séquence de précipitation de carbures au cours du traitement thermique d’aciers martensitiques alliés,” Université de Toulouse, 2008.
- [97] M. H. Mathon, “Etude de la précipitation et des mécanismes microscopiques de durcissement sous irradiation dans des alliages ferritiques dilués,” Université de Paris-Sud, 1995.

- [98] “Données DNPA Rouxel-Vaugoude.” [Online]. Available: <https://tinyurl.com/yxc5st9z>.
- [99] S. G Taguchi, S. Chowdhury, and Y. Wu, *Taguchi's Quality Engineering Handbook*. 2004.
- [100] A. N. Vorobjev, N. I. Budylnkin, E. G. Mironova, S. I. Porollo, Y. V. Konobeev, and F. A. Garner, “Irradiation creep and stress-enhanced swelling of Fe–16Cr–15Ni–Nb austenitic stainless steel in BN-350,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 258, pp. 1618–1622, 1998.
- [101] P. Dubuisson, J. P. Massoud, C. Pokor, and J. Garnier, “L ’effet de l ’irradiation dans les aciers austénitiques, microstructure et conséquences macroscopiques,” pp. 1–14.
- [102] D. Gilbon, L. Le Naour, and C. Rivera, “Effect o Irradiation Temperature on the precipitation in Cold Worked Titanium stabilized Type 316 stainless steel,” in *Effects of radiation on materials : 12th international symposium, ASTM STP 870*, 1985, pp. 115–126.
- [103] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, “The depth distribution of void swelling produced by 5 MeV Ni ions,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 62, no. 2–3, pp. 167–180, 1976.
- [104] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission electron microscopy: a text book for materials science*. 2009.
- [105] M. Desormeaux *et al.*, “Development of radiation damage during in-situ Kr pp irradiation of Fe e Ni e Cr model austenitic steels,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 475, pp. 156–167, 2016.
- [106] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, “The depth distribution of void swelling produced by 5 MeV ions,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 62, pp. 167–180, 1976.
- [107] E. H. Lee, L. K. Mansur, and M. H. Yoo, “Spatial variation in void volume during charged particle bombardment - the effects of injected interstitials,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 85–86, pp. 577–581, 1979.
- [108] J. RUSTE, “Microscopie électronique à balayage Images, applications et développements,” *Tech. l'ingénieur Tech. d'analyse par Imag.*, vol. base docum, no. ref. article : p866, 2013.
- [109] V. I. Pastukhov *et al.*, “Application of backscatter electrons for large area imaging of cavities produced by neutron irradiation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 480, no. September, pp. 289–300, 2016.
- [110] B. Rouxel, C. Bisor, Y. De Carlan, A. Courcelle, and A. Legris, “Influence of the austenitic stainless steel microstructure on the void swelling under ion irradiation,” *EPJ Nucl. Sci. Technol.*, vol. 2, p. 30, 2016.
- [111] T. M. Williams, “The effect of soluble carbon on void swelling and low dose dislocation structures in type 316 austenitic stainless steel irradiated with 46,5MeV Ni ions,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 88, pp. 217–225, 1980.
- [112] S. Jublot-Leclerc, M. L. Lescoat, F. Fortuna, L. Legras, X. Li, and A. Gentils, “TEM study of the nucleation of bubbles induced by He implantation in 316L industrial austenitic stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 466, pp. 646–652, 2015.

- [113] C. Rieke and A. Erickson, “Deep Learning for Instance Segmentation of Agricultural Fields,” 2017.
- [114] ImageJ, “Plugin Trainable Weka Segmentation,” 2019. [Online]. Available: https://imagej.net/Trainable_Weka_Segmentation.
- [115] T. Jourdan, G. Bencteux, and G. Adjanor, “Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects: A cluster dynamics approach,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 444, no. 1–3, pp. 298–313, 2014.
- [116] T. Jourdan, G. Stoltz, F. Legoll, and L. Monasse, “An accurate scheme to solve cluster dynamics equations using a Fokker-Planck approach To cite this version :,” *Comput. Phys. Commun.*, vol. In press, 2016.
- [117] T. Jourdan and G. Adjanor, “User Documentation for CRESCENDO v3 . 1,” *Crescendo-DMN-SRMP-NT-2015-02*, no. 33, pp. 1–101, 2015.
- [118] C. Pokor, “Caractérisation microstructurale et modélisation du durcissement des aciers austénitiques irradié des structures internes des réacteurs à eau pressurisée,” INPG, 2002.
- [119] T. Jourdan, “NT-SRMP-2017-16 - Effet de la précipitation sur le gonflement des internes de cuve : approche qualitative à l’aide du code CRESCENDO,” no. 33, pp. 1–17, 2017.
- [120] A. D. Brailsford and L. K. Mansur, “The effect of precipitate-matrix interface sinks on the growth of voids in the matrix,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 104, no. C, pp. 1403–1408, 1981.
- [121] T. Jourdan, G. Bencteux, and G. Adjanor, “Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects: A cluster dynamics approach,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 444, no. 1–3, pp. 298–313, 2014.
- [122] M. Kountchou, “Gonflement sous irradiation d ’ un acier de structure pour un réacteur de génération IV : rapport d ’ avancement de deuxième année de thèse .,” *HAL Id tel-02003160 <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-02003160v2> Submitt. 1 Feb 2019 HAL*, 2016.
- [123] M. L. Zouari, “Modélisation par dynamique d’amas des évolutions microstructurales et du gonflement sous irradiation dans les aciers inoxydables austénitiques, Thèse de doctorat de l’université de Grenoble,” 2012.
- [124] M. L. Zouari, “Modélisation par dynamique d’amas des évolutions microstructurales et du gonflement sous irradiation dans les aciers inoxydables austénitiques, Thèse de doctorat de l’université de Grenoble,” 2012.
- [125] J. P. Foster and R. V Strain, “Empirical swelling equation for solution annealed type 304 stainless steel,” *Nucl. Technol.*, vol. 24, pp. 93–98, 1974.
- [126] F. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallization and related annealing phenomenon*. 2004.
- [127] P. J. Maziasz and J. T. Busby, “Properties of austenitic steels for nuclear reactor applications,” in *Comprehensive Nuclear Materials*, Oak Ridge: Elsevier Inc., 2012, pp. 267–283.
- [128] H. R. Brager, “The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 57, no. 1, pp. 103–118, 1975.

- [129] E. Wakai, N. Hashimoto, J. P. Robertson, T. Sawai, and A. Hishinuma, “Swelling of cold-worked austenitic stainless steels irradiated in HFIR under spectrally tailored conditions,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 307, pp. 352–356, 2002.
- [130] E. H. Lee and L. K. Mansur, “Fe-15Ni-13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications . III . Phase stability during heavy ion irradiation,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 278, no. 2000, pp. 20–29, 2008.
- [131] K. Fukumoto, H. Matsui, T. Donomae, I. Yamagata, and N. Akasaka, “Solute Addition Effect for Fe-15cr-20Ni Austenitic steels Irradiated in Joyo,” *Eff. Radiat. Mater. 21th Int. Symp. ASTM STP 1447*, no. 1, pp. 1–5, 2004.
- [132] P. J. Doyle, K. M. Benensky, and S. J. Zinkle, “Modeling the impact of radiation-enhanced diffusion on implanted ion profiles,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 509, pp. 168–180, 2018.
- [133] S. J. Zinkle and L. L. Snead, “Scripta Materialia Opportunities and limitations for ion beams in radiation effects studies : Bridging critical gaps between charged particle and neutron irradiations,” *Scr. Mater.*, vol. 143, pp. 154–160, 2018.
- [134] P. R. Rios and A. F. Padilha, “Precipitation from Austenite,” in *Reference Module in Materials Science and Materials Engineering*, Elsevier, 2016.
- [135] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. a. A. Garner, “On the use of SRIM for computing radiation damage exposure,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 310, pp. 75–80, 2013.
- [136] A. D. Brailsford and L. K. Mansur, “The effect of precipitate-matrix interface sinks on the growth of voids in the matrix,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 104, no. C, pp. 1403–1408, 1981.
- [137] D. Buckthorpe, “Introduction to Generation IV nuclear reactors,” *Struct. Mater. Gener. IV Nucl. React.*, pp. 1–22, 2016.
- [138] D. R. Olander, *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements : solution to problems / Donald R. Olander*. 1976.
- [139] H. R. Brager, F. A. Garner, E. R. Gilbert, J. E. Flinn, and W. G. Wolfer, “Stress-affected microstructural development and the creep-swelling interrelationship .pdf,” in *international conference on radiation effects in breeder Reactor Structural Materials*, 1977.
- [140] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, “Nickel Ion Bombardment of Types 304 and 316 Stainless Steels : Comparison with Fast-Reactor Swelling Data,” in *Effects of Radiation on Substructure and Mechanical Properties of Metals and Alloys*, ASTM STP 529, 1973, pp. 213–227.
- [141] P. J. Maziasz and D. N. Braski, “Improved swelling resistance for PCA austenitic stainless steel under HFIR irradiation through microstructural control,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 311–316, 1984.
- [142] C. David *et al.*, “Void swelling in ion irradiated (15Ni-14Cr), Ti-modified stainless steel: A study using positron annihilation and step height measurements,” *Surf. Coatings Technol.*, vol. 203, no. 17–18, pp. 2363–2366, 2009.

- [143] P. J. Cunat, “Aciers inoxydables: Critères de choix et structure,” *Tech. l’Ingenieur*, vol. 33, no. 0, p. 18, 2000.

Annexes

ANNEXE A : Conditions des Campagnes d'irradiations Jannus

Cette annexe résume les conditions d'irradiation (température, dose, échantillons) des campagnes d'irradiations menées pendant cette thèse.

J1 - 600°C			Echantillon	Dose 1	Dose 2	Dose 3		
			L50M2	2	2	2		
			L46M2	2	2	2		
			L49M2	2	1	2		
			L48M2	1		1		
Température	Id	Energie						
600°C	100517E	2MeV						
Dose 1	surface	dpa max	Dose 2	surface	dpa max	Dose 3	surface	dpa max
Dose (dpa)	75,7	166,5	Dose (dpa)	53,5	117,7	Dose (dpa)	1,7	3,7
Taux de dommage (dpa/s)	7,33E-04	1,61E-03	Taux de dommage (dpa/s)	6,66E-04	1,46E-03	Taux de dommage (dpa/s)	8,49E-04	1,87E-03

J2 - 500°C			Echantillon	Dose 1	Dose 2	Dose 3		
			L50M2	2	2	2		
			L46M2	2	2	2		
			L49M2	2	1	2		
			L48M2	1		1		
Température	Id	Energie						
500°C	200617E	2MeV						
Dose 1	surface	dpa max	Dose 2	surface	dpa max	Dose 3	surface	dpa max
Dose (dpa)	75,7	166,5	Dose (dpa)	55,0	120,9	Dose (dpa)	1,7	3,7
Taux de dommage (dpa/s)	7,72E-04	1,70E-03	Taux de dommage (dpa/s)	7,09E-04	1,56E-03	Taux de dommage (dpa/s)	7,43E-04	1,63E-03

J3 - 500°C			Echantillon	Dose 1	Dose 2	Dose 3		
			L50M2	4	1	1		
			L46M2	4 (+2grilles)	1	1		
			L49M2	3	1	1		
			L48M2	1 (grille)	1			
Température	Id	Energie						
500°C	061117E	2MeV						
Dose 1	surface	dpa max	Dose 2	surface	dpa max	Dose 3	surface	dpa max
Dose (dpa)	96,7	212,5	Dose (dpa)	75,7	166,4	Dose (dpa)	1,7	3,7
Taux de dommage (dpa/s)	8,48E-04	1,86E-03	Taux de dommage (dpa/s)	7,39E-04	1,63E-03	Taux de dommage (dpa/s)	6,69E-04	1,47E-03

J4 - 550°C			Echantillon	
			L50M2	2
			L46M2	3
			L49M2	2
			Taguchi	E1 -> E12
Température	Id	Energie		
550°C	180205E	2MeV		
dose unique	surface	pic de dommage		
Dose (dpa)	75,7	166,5		
Taux de dommage (dpa/s)	9,60E- 04	2,11E-03		

J5 - 550°C			Pré-irradiation	L50	L46	L49
			500 D1	1	1	1
			500 D2	2	1	1
			550 D1	1	1	1
			600 D2	1	1	1
			600 D1	1	1	
			500 D3	1	1	1
Température	Id	Energie				
550°C	180321E	2MeV				
	surface	pic de dommage				
Dose (dpa)	59,3	130,4				
Taux de dommage (dpa/s)	1,13E- 03	2,49E-03				

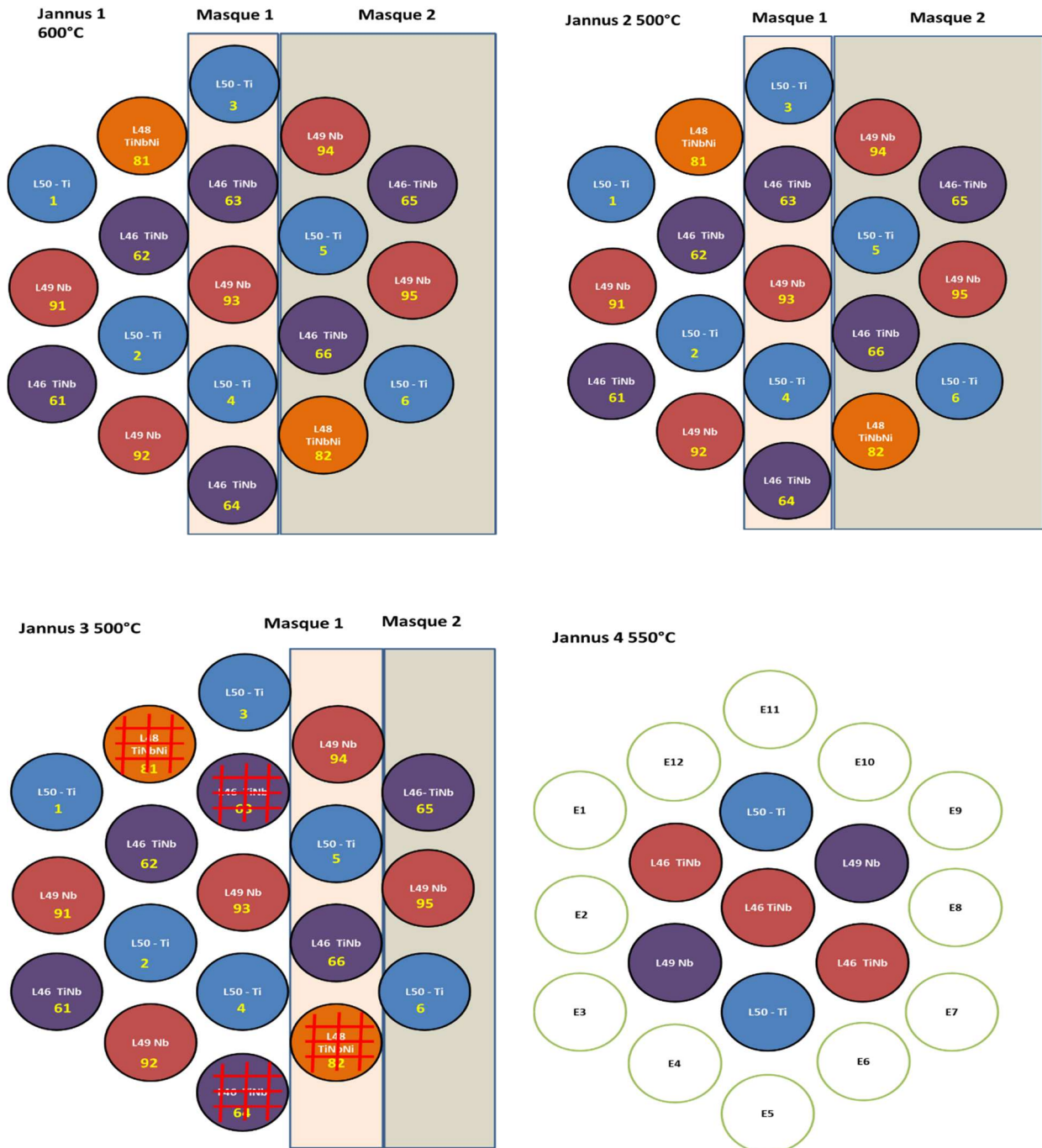
J6 - 600C 10MeV			190204E		
Zone	Profondeur	Dose d'irradiation	taux de dommage		
Surface	0 - 0.1 μm	17,5 dpa	2,36E-04 dpa/s		
début implantation	1.3 - 1.5 μm	72,3 dpa	9,76E-04 dpa/s		
Pic de dommage	1.9 - 2 μm	120,2 dpa	1,62E-03 dpa/s		
Echantillons					
M1	M3V	M3Ve	M6	M6e	E6M6
1	2	2	2	2,00E+00	2

J7 - 600C 10MeV			190207E		
Zone	Profondeur	Dose d'irradiation	taux de dommage		
Surface	0 - 0.1 μm	32,2 dpa	3,14E-04 dpa/s		
début implantation	1.3 - 1.5 μm	133,2 dpa	1,30E-03 dpa/s		
Pic de dommage	1.9 - 2 μm	221,6 dpa	2,16E-03 dpa/s		
Echantillons					
M1	M3V	M3Ve	M6	M6e	E6M6
1	2	2	1	2	1

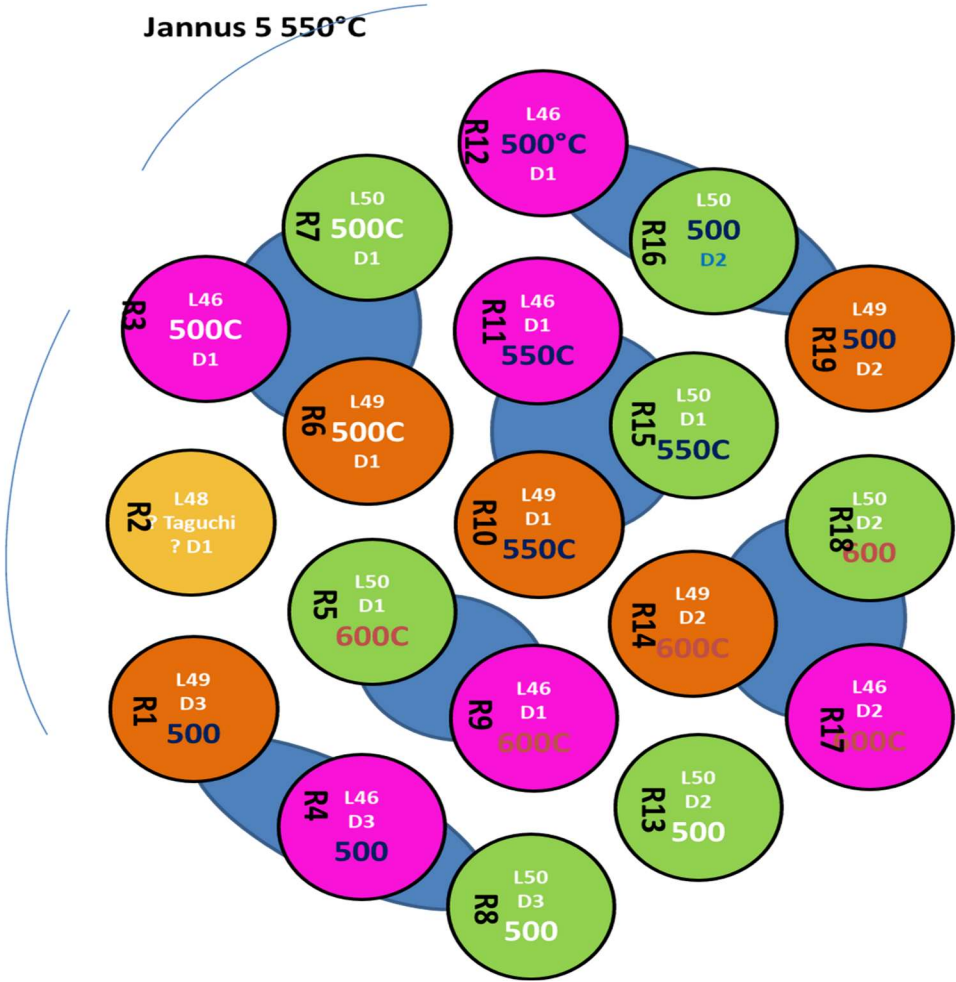
J6+J7 600°C 10MeV					
Zone	Profondeur	Dose d'irradiation			
Surface	0 - 0.1 μm	49,6 dpa			
début implantation	1.3 - 1.5 μm	205,5 dpa			
Pic de dommage	1.9 - 2 μm	341,9 dpa			
Echantillons					
M1	M3V	M3Ve	M6	M6e	E6M6
1	1	1	1	1	1

ANNEXE B : Plans de montage des Campagnes d'irradiations Jannus

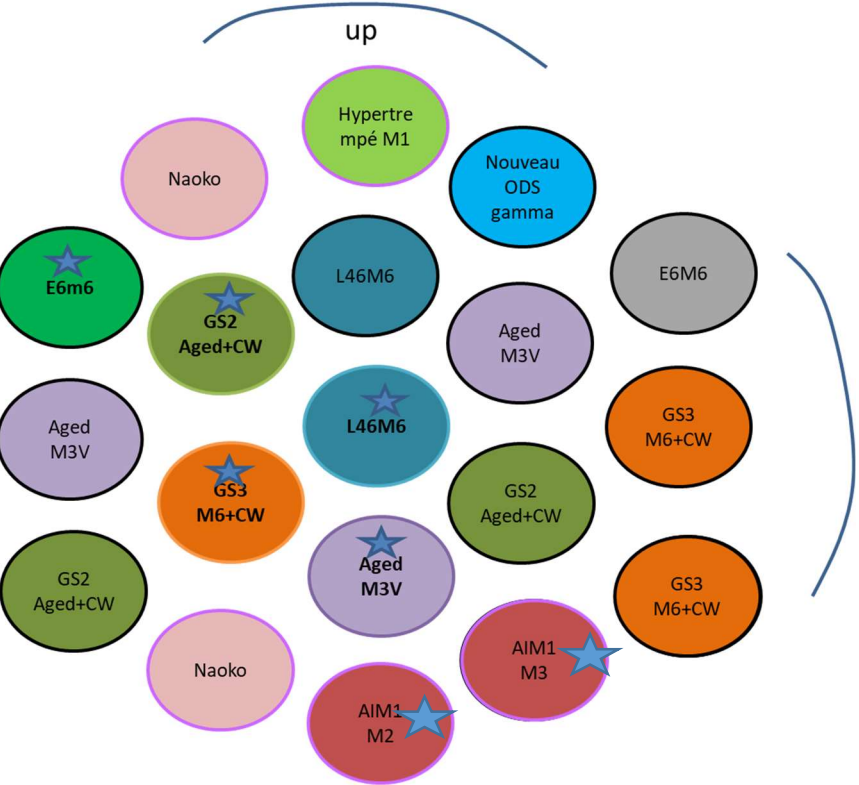
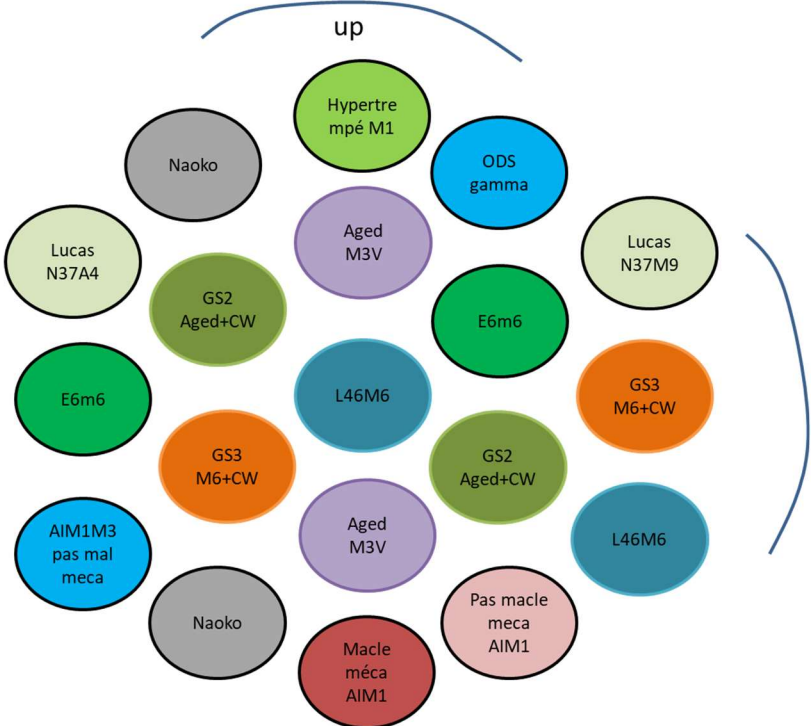
Synthèse des plans de montages des portes échantillons lors les campagnes d'irradiation aux ions JANNuS 1 à 4. Les campagne J1 à J3 ont été réalisées avec un masque permettant d'obtenir plusieurs doses.



Plan de montage de la campagne J5 qui a servie à ré-irradier les échantillons issus des précédentes irradiations à 500°C, 550°C et 600°C.

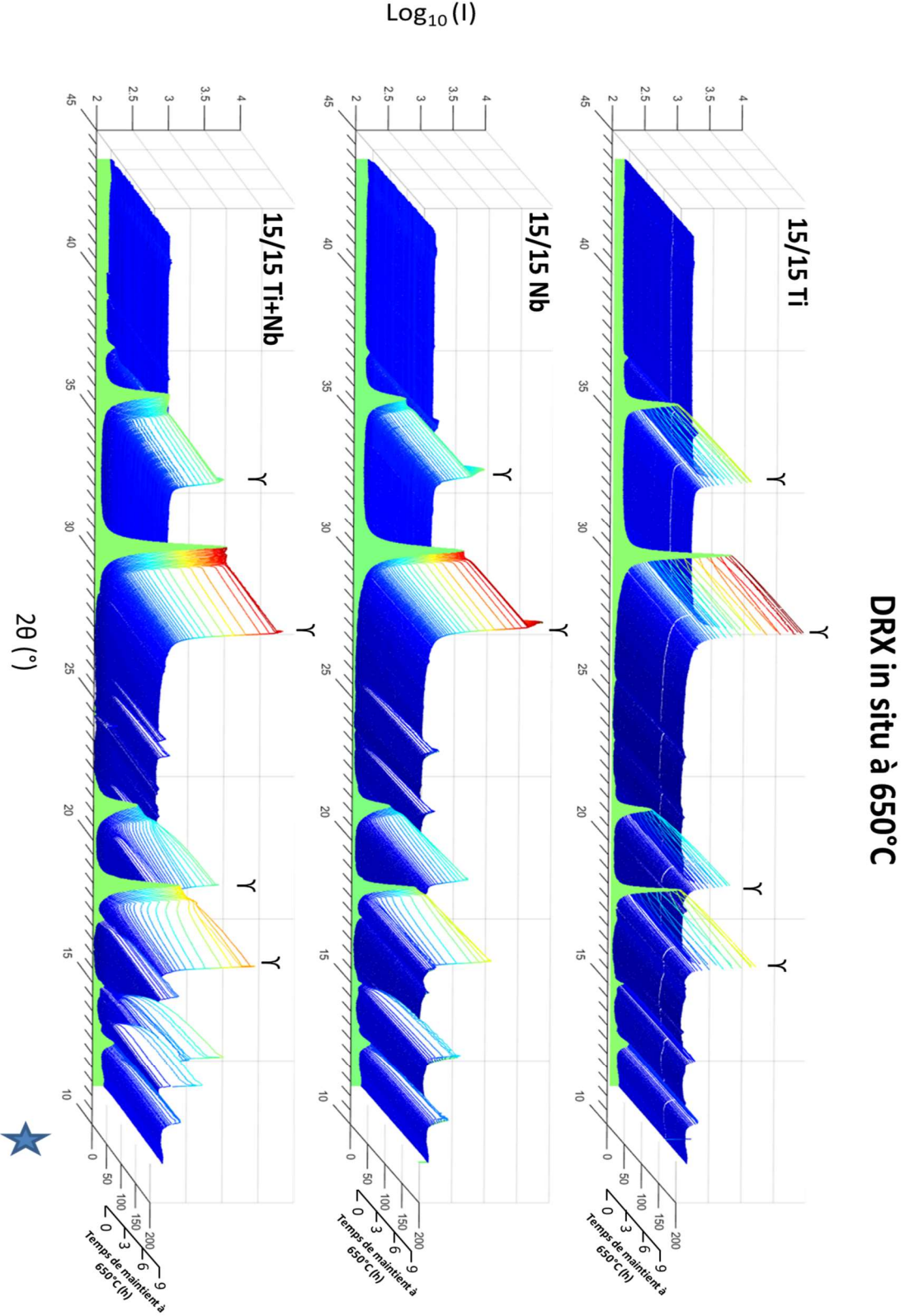


Plan de montage des campagnes JANNuS 6 et 7 : (10MeV 600°C)



ANNEXE C : Caractérisations par diffraction des rayons X

Représentation 3D des caractérisations DRX in-situ des nuances L50 (15/15 Ti), L49 (15/15 Nb) et L46 (15/15 Ti+Nb) lors d'un traitement thermique à 650°C.



Mesures des largeurs intégrales de pics de diffraction à l'état hypertrempé (M1), hypertrempé écrouie (M2) et lors de traitements thermiques (Résultats présentés dans le chapitre II).

Pic 30° (220)				Pic 35,7 (311)			
L50	Area	Height	Surface intégrale	L50	Area	Height	Surface intégrale
M1 (SA)	581,032	8314,123	0,070	M1 (SA)	262,682	3395,618	0,077
M2 (CW)	1433,620	8263,024	0,173	M2 (CW)	258,033	1005,292	0,257
500°C	1368,257	8198,123	0,167	500°C	284,204	1151,209	0,247
600°C	1322,574	8931,747	0,148	600°C	258,041	1155,530	0,223
650°C	614,624	6177,475	0,099	650°C	344,799	2749,458	0,125
L46	Area	Height	Surface intégrale	L46	Area	Height	Surface intégrale
M1 (SA)	775,458	11958,428	0,065	M1	176,488	3395,618	0,077
M2 (CW)	1180,325	5216,913	0,226	M2	202,284	1005,292	0,334
500°C	1262,890	7468,734	0,169	500°C	259,086	1151,209	0,247
600°C	1539,238	10364,712	0,149	600°C	247,600	1155,530	0,210
650°C	1401,094	9778,491	0,143	650°C	283,945	2749,458	0,208
L49	Area	Height	Surface intégrale	L49	Area	Height	Surface intégrale
M1 (SA)	656,297	9148,914	0,072	M1	204,979	2306,002	0,085
M2 (CW)	1221,083	6920,291	0,176	M2	269,017	605,962	0,273
500°C	1289,613	7643,762	0,169	500°C	294,696	1047,957	0,250
600°C	985,875	6230,943	0,158	600°C	260,167	1180,516	0,249
650°C	758,059	9057,391	0,084	650°C	243,717	2460,627	0,099

L50	L1 (pic 30,5)	L2 pic 35,6	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	9,01	9,83	9,42
M2 (CW)	2,71	3,96	3,34
500°C	2,82	4,12	3,47
600°C	3,12	4,64	3,88
650°C	5,56	6,90	6,23
L46	L1 (pic 30,5)	L2 pic 35,6	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	9,10	10,59	9,85
M2 (CW)	2,09	3,04	2,56
500°C	2,82	4,06	3,44
600°C	3,32	4,63	3,97
650°C	3,34	4,79	4,07
L49	L1 (pic 30,5)	L2 pic 35,6	Moyenne L1 L2
M1 (SA)	8,22	9,58	8,90
M2 (CW)	2,55	3,89	3,22
500°C	2,78	4,07	3,43
600°C	2,80	4,34	3,57
650°C	7,03	8,21	7,62

ANNEXE D : Article soumis lors de la conférence ICAPP2019

Influence of the Austenitic Stainless Steel Microstructure on the Void Swelling under Ion Irradiation

A. VAUGOUDE^{1*}, T. JOURDAN², M-H MATHON³, D. THIAUDIERE⁴, A. LEGRIS⁵, Y. DE CARLAN¹

¹ DEN-Service de Recherches Métallurgiques Appliquées (SRMA), CEA, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France

² DEN-Service de Recherches de Métallurgie Physique (SRMP), CEA, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France

³ DRF – Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France

⁴ Synchrotron SOLEIL, St Aubin, France

⁵ Unité Matériaux et Transformations – UMR8207 (UMET), Centre National de la Recherche Scientifique : UMR8207 – Université Lille 1 Bâtiment C6 59655 Villeneuve d'Ascq, France

*Corresponding Author: adrien.vaugoude@cea.fr

As part of the research program on generation IV reactors, CEA is developing new grades of austenitic steels for the fuel cladding of Sodium Fast Reactors (SFR). Austenitic stainless steels show excellent properties in SFR's operating conditions but the phenomenon of swelling under irradiation limits their lifespan. A sensitivity study on microstructural parameters that impact swelling was conducted using cluster dynamics and experimental tools.

The studied material is a 15Cr-15Ni, close to most advanced French grade AIM1, which sustain doses up to 100dpa. Samples were irradiated with heavy ions (Fe³⁺, 2MeV, 110dpa) on the JANNuS platform at CEA Saclay. CRESCENDO code simulations are compared with the evolution of irradiated samples. Microstructural features such as dislocation and nano-carbides densities impact on swelling are discussed.

KEYWORDS: *Austenitic Stainless steels, AIM1, swelling, cluster dynamic, ion irradiation*

1 -Introduction

In the framework of the GEN IV Sodium Fast Reactors (SFR) program, CEA studies the effects of irradiation on austenitic stainless steels (ASS) for nuclear fuel cladding. SFR's cladding are exposed in a corrosive environment, at service temperature of 400-700°C under fast neutron spectrum. ASS are a widely used class of material because of their corrosion resistance and excellent mechanical properties. ASS are used for cladding; however, their lifespan is limited in dose (dpa) because of the swelling under irradiation. Swelling is a radiation-induced phenomenon caused by neutrons collisions with matrix atoms that induce a vacancy oversaturation. Under particular conditions, vacancies condense and grow into cavities.

Swelling causes macroscopic dimensional changes of fuel assemblies and limits the fuel exploitation thus increase the waste volume and exploitation cost. This behavior was not initially anticipated, it was observed for the first time in 1967 by Cawthorne and Fulton in the Dounreay Fast Reactor [1]. Since then, numerous optimizations have allowed a significant increase in the service life of fuel cladding. Early on, it became clear that microstructure and chemical composition had a determining role to play on swelling resistance.

Major advances have been made concerning the optimization of microstructure and alloy chemical composition design. The most advanced French grade is the ASS AIM1 (15Cr-15Ni Ti Cold Worked) which has been developed with previous generation of SFR. Swelling under irradiation highly depends on microstructural parameters such as the dislocation density [127]–[129], precipitates [130] and the chemical elements in solid solution [131]. Swelling is a complex phenomenon that depends on numerous factors that evolve during the irradiation. These factors include irradiation conditions history (flux, dose), microstructure and material composition.

As neutron irradiations are quite long and difficult to perform, ion irradiation platforms have numerous advantages. Heavy ions re-create the collision cascades in the materials, making it possible to experimentally recreate the swelling phenomenon observed under neutron irradiation. They also have a much greater flexibility of parameters (flow rate, temperature, etc.) than in-reactor irradiation. Moreover, due to their high flux, they shorten the irradiation time required to produce the swelling

phenomenon to a few hours compared to years in a reactor. Although transposition between ion and neutron irradiations have to be carefully handled [132], [133], ion irradiations are a very important first step to study material behavior under irradiation.

One way to limit the swelling of ASS steels is to increase sinks and traps densities. It has been noticed for a long time that microstructural features such as dislocation network, precipitation or atoms in solid solution strongly influence material evolution under irradiation [58].

In this context, modelling can be used as a tool to guide exploratory experimental studies. Cluster dynamics simulation is a medium-field modeling that simulates the evolution of irradiation-induced defect clusters up to very high doses. By targeting microstructures with characteristic sink populations, it is possible to highlight the effects and synergies between specific microstructural parameters.

The objective of this work is to study the behavior under irradiation of stabilized ASS with or without a fine nano-precipitates' network. Ion irradiated microstructures are observed by Transmission Electron Microscopy (TEM) and cavities population are compared with cluster dynamics numerical simulations. The impact of these nano-precipitates on cavity growth is then discussed.

2- Studied materials

Metallurgy of stabilized SSAs

In this study, the material studied is L50 (15Cr/15Ni Ti CW), a semi-industrial grade stabilized with titanium, very close to AIM1 specifications. Its composition is given in Table 1. The role of the stabilizing element is to capture the carbon available in solid solution by rapidly forming MC carbides. As a result, the formation of carbon-rich deleterious phases such as $M_{23}C_6$ or G phase, which have a slower onset kinetics, is limited. When the thermomechanical treatment is optimized, these titanium carbides have a nanometric size finely distributed in intragranular position.

	Fe	C	N	Cr	Ni	Ti	Mo
L50	Bal	0.09	0.005	14.3	16	0.42	1.5

Table 1: Chemical composition of L50

Titanium has a major beneficial effect on swelling. The mechanisms are complex but the effect of titanium in solid solution could be explained by the high binding energy Ti-vacancies which could favor the mutual recombination of Frenkel pairs [58]. At high temperatures (>550°C), titanium tends to precipitate. Historically, an addition of Ti to the composition of 316 austenitic steel has removed the "second bump" of the swelling that occurred at high temperature. This has been explained by the limitation of recrystallization and recovery of the dislocation network at high temperature by anchoring effect of nano-carbides [60], [61], which is favorable for swelling resistance.

Thermomechanical treatment and microstructures description

In this study, the role of titanium carbides is investigated. Microstructures have all been previously aged to obtain different precipitate populations. Thermomechanical treatments were conducted to obtain different type of microstructures and are summarized Figure 127.

Nano-precipitates were characterized using SANS (Small Angle Neutron Scattering) and dislocation densities were measured using the intercept method by TEM (results presented in Table 2). They are consistent with the literature but have not been subject of extensive statistical studies and measure uncertainty was estimated at 50%.

	Volumic Fraction	Radius (nm)	Ellipse factor	Precipitate density (m^{-3})	Dislocation density ($m.m^{-3}$)
1- Aged 800°C 24h	0,06%	4,6	1,4	9,8E+20	10 ¹³
2- Aged +CW 800°C 24h + CW	0,06%	4,6	1,4	9,8E+20	7.10 ¹⁴
3- Nano 650°C 50h	0,25%	2	1,2	6,2E+22	1.10 ¹⁵

Table 2: Nano-carbides SANS analysis for different heat treatment

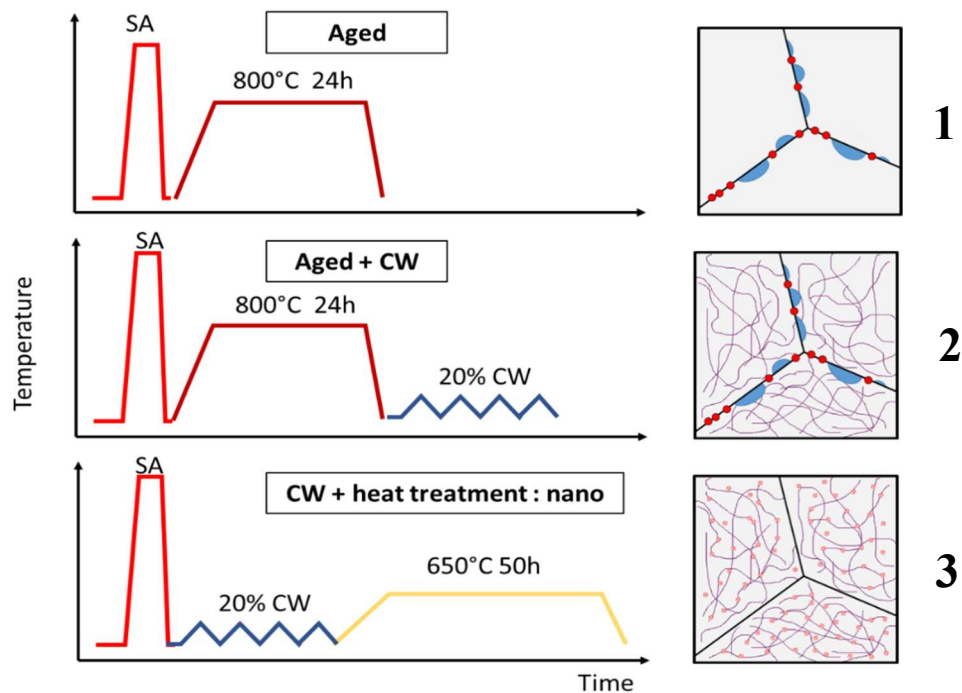


Figure 127: Thermomechanical cycles and associated microstructures

Aged and Aged+CW microstructures (microstructures 1 and 2)

Aged and Aged+CW microstructures are used to study the role of dislocations and the matrix on swelling. The objective of the ageing is to deplete the matrix as much as possible in dissolved elements (like titanium) by forcing a complete precipitation. The annealing temperature of 800°C was used to form mainly coarse $M_{23}C_6$ and MC phases. After 24h at 800C, the precipitation of molybdenum-rich Laves phases is limited, and appears with much slower kinetics, after about 100 hours of annealing [134]. As there are few germination sites available, precipitation is coarse and mainly localized at grain boundaries. The more precipitate are coarse, the less they affect the swelling. We will assume that a decorated grain boundary will have the same effect on swelling as a normal grain boundary. The dislocation density measurement is estimated at $10^{13}/m^2$ in the aged microstructure and at $10^{15}/m^2$ for the aged cold worked microstructure having undergone a 20% thickness reduction.

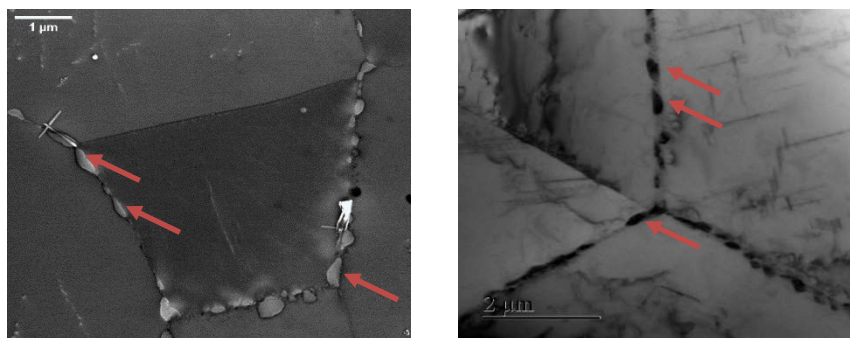


Figure 128: Aged microstructure observed by SEM (left) and TEM (right). Arrows show intergranular $M_{23}C_6$ precipitate

Cold worked and heat-treated microstructure (microstructure 3)

First, a solution annealing at high temperature ($>1100^\circ C$) must be carried out to put the elements in solid solution. A cold 20% reduction in thickness introduced a high dislocation density as well as nucleation sites for precipitation. A subsequent heat treatment at 650°C generates a fine nanometric carbides network. Nanoprecipitate density was measured on bulk sample by SANS and was estimated at $5 \cdot 10^{22} m^{-3}$ and has been confirmed with TEM observations.

Dislocation density after final heat treatment was estimated at $7 \cdot 10^{14}/m^2$ from TEM clichés, slightly lower than after cold working. It is not surprising that part of the dislocation network is recovered during the heat treatment, also visible by a small decrease in hardness not presented in this paper.

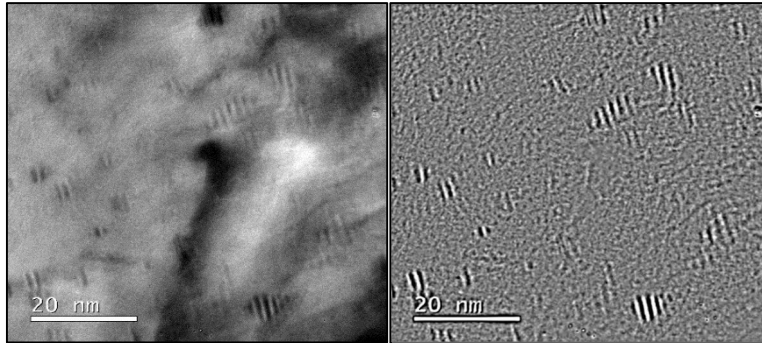


Figure 129: nano-precipitate revealed by their moiré fringes. On the left is a TEM image of the L50 nanoprecipitates. On the right is an FFT treatment to highlight the fringes of moiré

3- Irradiation conditions and description of the modelling

Irradiation conditions:

Samples were irradiated at 550°C with 2MeV Fe ions in JANNuS facility in CEA Saclay. The experiment lasted 21h under a flux of $2.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Average doses are calculated with SRIM using the Kinchin Pease method, following Stoller recommended parameters [135] with a displacement threshold energy of 40eV. On the TEM analyses depth, the damage have been estimated at 110dpa, with $1,4 \cdot 10^{-3} \text{ dpa/s}$ rate damage. To take into account the mutual recombination occurring in collision cascades, the point defect generation rates used in the cluster dynamics simulations corresponds to 1% of the damage rate.

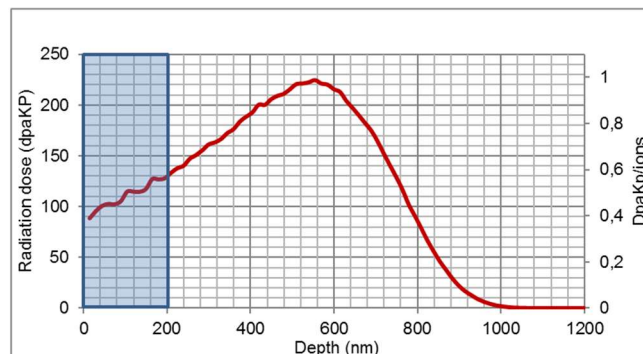


Figure 130: Calculated damage on SRIM

Swelling modeling by cluster dynamics:

CRESCENDO is a cluster dynamics code co-developed by CEA and EDF R&D. Details of the model and numerical resolution method are given in [115], [116].

The mean field approach to cluster dynamics considers that the material is homogeneous and changes in chemical composition are not directly taken into account. Different grades are modelled as grey alloys where the differences are accounted from certain model parameters such as migration or binding energy of self-defects and self-defect clusters. The initial parameter set is taken from Michaut's CEA thesis [88] on the 3xx ASS series but with a higher vacancy migration energy of 1,4eV. For the modeling, in this study all samples have the same parameter set except for some microstructural parameters measured experimentally on the three microstructures.

In cluster dynamics a system of differential equations on concentrations C_n is solved. By convention, n refers to the number of vacancies in the cluster if $n < 0$ or the number of interstitials if $n > 0$.

The evolution of the concentration of n -type immobile clusters is governed by an irradiation source term G_n , as well as emission and absorption of mobile clusters. In our study only point defect are mobile: vacancies ($n=-1$) and interstitials ($n=1$).

The immobile defects evolution is governed by the following master equation:

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in [-1;1]} J_{n-m,n} - \sum_{m \in [-1;1]} J_{n,n+m} + G_n \quad (1)$$

$$J_{n,n+m} = \beta_{n,m} C_n C_m - \alpha_{n+m,m} C_{n+m} \quad (2)$$

G_n is the source term for creation of n size cluster under irradiation

$J_{n,n+m}$ is the net flux of n size clusters passing to the $n+m$ class by absorption of a mobile cluster m .

β_n and α_n are the absorption and emission coefficient respectively.

Since point defects are mobile, they may also disappear by diffusion to sinks or interact with other clusters. The master equation for mobile clusters is then:

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in [-1;1]} J_{n-m,n} - \sum_{m \in [-1;1]} J_{n,n+m} + G_n - \sum_j J_{m,n+m} - \sum_j k_{j,n}^2 D_n (C_n - \overline{C_{n,j}}) \quad (3)$$

With

j the type of sink (dislocation, precipitate, ...)

$k_{j,n}^2$: type j sink strength

D_n : cluster n diffusion coefficient

$\overline{C_{n,j}}$: sink j local thermal equilibrium concentration

The possibility to add a population P_n of precipitates in the microstructure was recently introduced in the code and it is now possible to enter precipitate density evolution over time as an input. Their constant radius r , their binding energy with vacancies ($E_{b,v}P$) and their surface density St of sites likely to accept vacancies, define precipitates.

Precipitates may be fixed as **saturable** or **unsaturable** sites. They act as sinks for point defects. A **saturable** precipitate means that it can only accept a finite number of vacancies or interstitials. Once all the sites are occupied, the precipitate then becomes infinitely biased in favor of the point defects of the opposite type. It is a privileged recombination site but cannot be a nucleation site for cavities. An **unsaturable** precipitate can continue to receive vacancies and become a nucleation site for cavities.

As early as 1981, Brailsford and Mansur predicted that precipitates could impact swelling as point defect traps [136]. Depending on their relationship with the matrix, they could be nucleation site for cavities or not. Mansur predicted that in the case of coherent precipitates, the defect sinks would only accommodate a finite number of vacancies and would be saturable. In the case of incoherent precipitates, they would be unsaturated and then could serve as a nucleation site for the cavities. These predictions are in agreement with the MET experimental observations where we do not see any coherent MC precipitate associated with cavities when it has been regularly reported with the G phases (incoherent). In our modeling, coherent nano precipitates will be set as saturable defect sinks.

Experimentally, during irradiation, dislocation density tends towards a saturation value, which is the result of the competition between two mechanisms with opposite effects: 1/ Frank's loops unfauling that supply the dislocation network; 2/ Recovery of the dislocation network. Due to the competition between these mechanisms, both quenched and cold worked steels have an evolution of their dislocation density and tends towards a similar equivalent dislocations network after a few dpa [14]. With CRESCENDO, dislocation loops cannot grow indefinitely as they interact with each other or with network dislocations when they are sufficiently large. Dislocations can climb and disappear through absorption and the emission of point defects.

4- Experimental and modelling results

For each calculation, all parameters are set equal except for dislocation densities, nano-precipitate radius and density. Table 3 summarize parameters used to model the three microstructures.

microstructure	Dislocation density (m.m ⁻³)	Nano precipitate density (m ⁻³)	Nano precipitate radius (nm)
1) Aged	10 ¹³	10 ²¹	5
2) Aged + CW	10 ¹⁵	10 ²¹	5
3) CW + HT (Nano)	7.10 ¹⁴	5.10 ²²	2

$E_{bVP} = 1.4\text{eV}$ and $St = 1,51.10^{15}\text{cm}^{-2}$

Table 3: Input parameters for CRESCENDO

Figure 131 summarizes experimental results of ion irradiation and CRESCENDO calculations. On the left, the schematic microstructure before irradiation is drawn. In the middle, TEM micrographs show the microstructure after irradiation at 110dpa. Cavities were analyzed with image segmentation and are highlighted in red. On the right, comparison of cavities diameters distribution counted on the TEM micrograph (blue) and simulated with CRESCENDO (black) are presented.

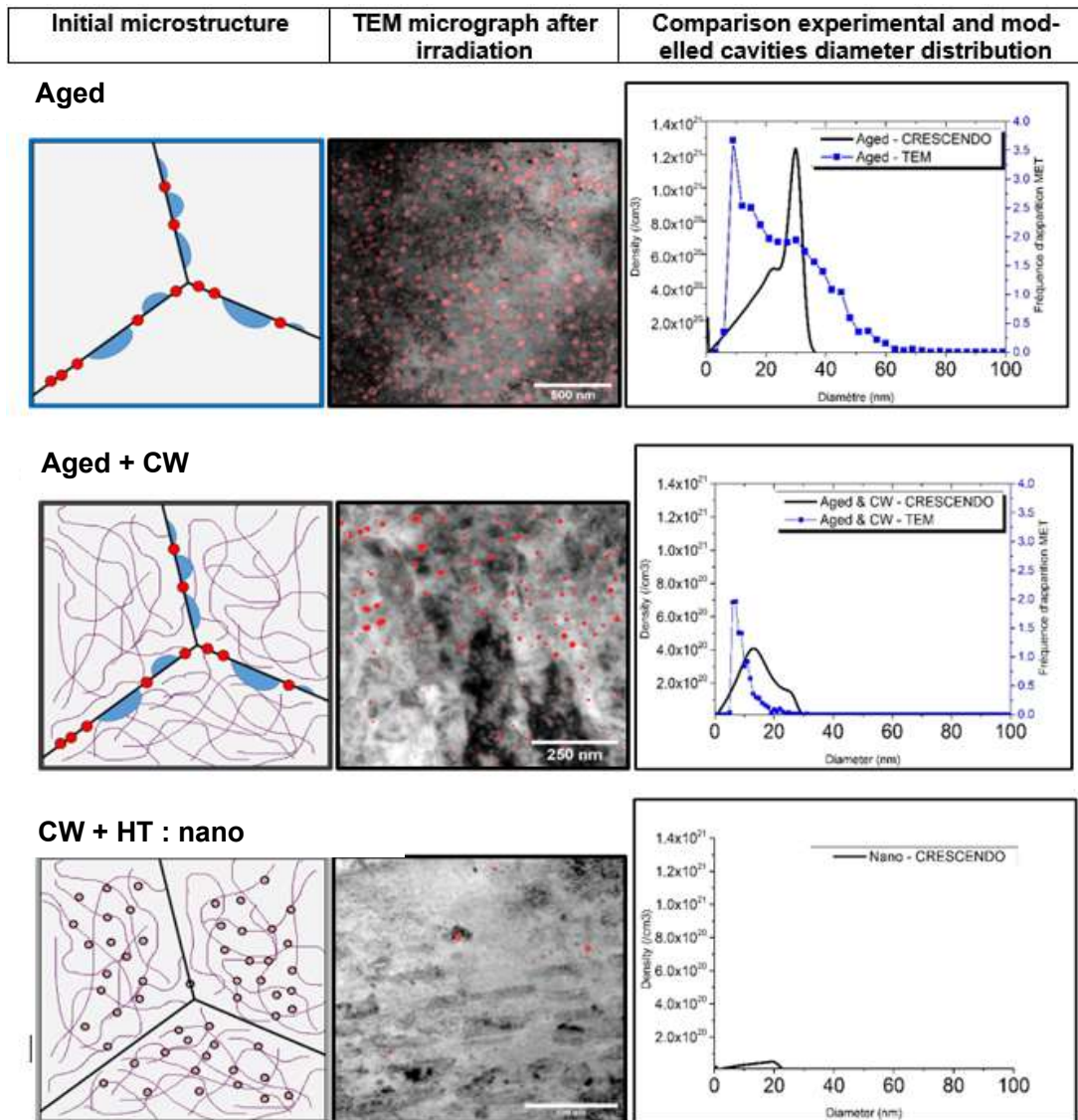


Figure 131: Model microstructures, TEM micrographs and cavities segmentation after irradiation. Comparison of diameter cavities distributions obtained by TEM and with CRESCENDO modelling.

The irradiated microstructures present clear differences in cavity diameters. **Aged** microstructure has the largest cavities with an average diameter of 24nm. The **Aged+CW** microstructure shows smaller cavities, 9nm in average diameter. The **CW + HT** microstructure did not have enough cavities to perform a statistically quantification by TEM.

Simulations with CRESCENDO reflect well the different microstructure performances. Aged microstructure has a cavity peak diameter of 30nm, **Aged+CW** microstructure of 15nm and the **CW + HT** microstructure has only a very low density of small cavities. The equivalent swelling of each microstructure is show figure 7.

Nano-precipitates are an additional population of sinks in the microstructure, adding recombination sites helps to limit swelling as a direct effect. As sinks density increase, supersaturation of mobile defects decreases and limits cavities nucleation and growth.

One other interesting effect of nanoprecipitates is the climbing drop, visible in figure 8.

- In **Aged** microstructure, with initially low dislocation density, Frank loop incorporation mechanism is dominant. Dislocation density increase to reach a stationary value of $1,5 \cdot 10^{14} m^{-2}$.
- In **Aged + CW** microstructure, with high dislocation density, recovery mechanism is dominant and dislocation density decrease tends towards the same equilibrium value as the aged microstructure.
- In **CW+ HT** microstructure, the recovery mechanism is also predominant and leads to a decrease in dislocation density to the same stationary value. The difference with the Aged +CW microstructure is that the presence of nano-precipitates significantly slows down the recovery and maintain a higher dislocation density in the microstructure during irradiation.

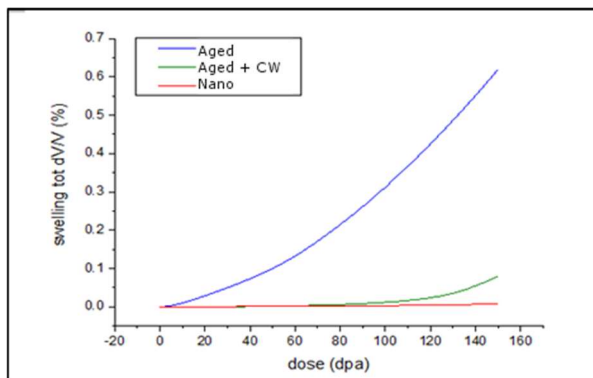


Figure 7: Swelling simulation as function of dose

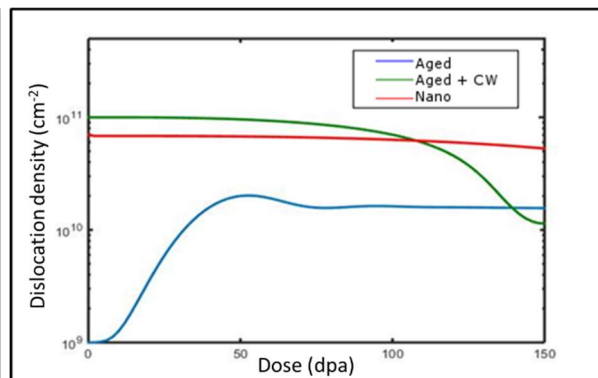


Figure 8: Evolution of dislocation density for each microstructure

Nano-precipitates have therefore two effects on swelling. A direct effect of absorbing point defects and an indirect effect of preserving the initial dislocation network (which is very efficient to improve the swelling resistance).

5 - Conclusion

This study shows the response to ion irradiation of different microstructures of a stabilized austenitic steel. It appears that the presence of dislocations and nano-precipitates strongly limits swelling.

A modeling of the phenomena was carried out using the CRESCENDO code. The aim was not to carry out an accurate modeling of the nucleation and growth of cavities but to evaluate, from a set of parameters already used for steels of the 300 series, the influence of the dislocation density and the nano-precipitates density on the formation of cavities.

It appears that modelling provides a good account of the observed phenomena and provides a better understanding of the resistance to swelling. Modelling makes it possible to report phenomena that are difficult to identify experimentally and study specific microstructures (e.g. with more precipitates, with other dislocation network, etc.) before testing them experimentally.

Results seem to show that the higher the initial density of dislocation and precipitation is, the slower the dislocation network recovers. A more stable high dislocation density in our materials could highly improve their swelling resistance and lifespan. If confirmed, these results could open new microstructure optimization, by seeking to maximize the dislocation density initially present and associating it with a high density of fine precipitates.

Acknowledgment

The authors would like to thank warmly Baptiste Rouxel and the JANNuS team for the irradiation of the samples. They would like to thank also Emilien Curtet and Patrick Olier from CEA/DEN/LTMEX and Nico WISPEALARE from OCAS Gent for the help in the fabrication of the model steels. CRESCENDO is co-developed in collaboration with EDF R&D within the framework of I3P institute.

References

- [1] P. J. Maziasz and J. T. Busby, "Properties of austenitic steels for nuclear reactor applications," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Oak Ridge: Elsevier Inc., 2012, pp. 267–283.
- [2] H. R. Brager, "The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 57, no. 1, pp. 103–118, 1975.
- [3] E. Wakai, N. Hashimoto, J. P. Robertson, T. Sawai, and A. Hishinuma, "Swelling of cold-worked austenitic stainless steels irradiated in HFIR under spectrally tailored conditions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 307, pp. 352–356, 2002.
- [4] E. H. Lee and L. K. Mansur, "Fe-15Ni-13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications . III . Phase stability during heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 278, no. 2000, pp. 20–29, 2008.
- [5] K. Fukumoto, H. Matsui, T. Donomae, I. Yamagata, and N. Akasaka, "Solute Addition Effect for Fe-15Cr-20Ni Austenitic steels Irradiated in Joyo," *Eff. Radiat. Mater.* 21th Int. Symp. ASTM STP 1447, no. 1, pp. 1–5, 2004.
- [6] P. J. Doyle, K. M. Benensky, and S. J. Zinkle, "Modeling the impact of radiation-enhanced diffusion on implanted ion profiles," *J. Nucl. Mater.*, vol. 509, pp. 168–180, 2018.
- [7] S. J. Zinkle and L. L. Snead, "Scripta Materialia Opportunities and limitations for ion beams in radiation effects studies : Bridging critical gaps between charged particle and neutron irradiations," *Scr. Mater.*, vol. 143, pp. 154–160, 2018.
- [8] V. N. Voyevodin, I. M. Neklyudov, V. V. Bryk, and O. V. Borodin, "Microstructural evolution and radiation stability of steels and alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 271–272, pp. 290–295, 1999.
- [9] A. F. Padilha, R. L. Plaut, and P. R. Rios, "Annealing of Cold-worked Austenitic Stainless Steels.," *ISIJ Int.*, vol. 43, no. 2, pp. 135–143, 2003.
- [10] M. Vasudevan, S. Venkadesan, and P. V. Sivaprasad, "Influence of Ti/(C + 6/7N) ratio on the recrystallization behaviour of a cold worked 15Cr-15Ni-2.2Mo-Ti modified austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 231, no. 3, pp. 231–241, 1996.
- [11] Rios PR, Padilha AF. Precipitation from austenite. In: *Precipitation from austenite : reference module in Materials Science and Materials Engineering 2016*. Amsterdam: Elsevier; 2016.
- [12] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. a. A. Garner, "On the use of SRIM for computing radiation damage exposure," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 310, pp. 75–80, 2013.
- [13] T. Jourdan, G. Bencteux, and G. Adjanor, "Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects: A cluster dynamics approach," *J. Nucl. Mater.*, vol. 444, no. 1–3, pp. 298–313, 2014.
- [14] T. Jourdan, G. Stoltz, F. Legoll, and L. Monasse, "An accurate scheme to solve cluster dynamics equations using a Fokker-Planck approach To cite this version :," *Comput. Phys. Commun.*, vol. In press, 2016.
- [15] B. Michaut, "Caractérisation et modélisation de l'évolution de la microstructure et du gonflement d'aciers austénitiques représentatifs des internes inférieurs de Réacteur à Eau Pressurisée sous irradiations aux ions.," 2017.
- [16] A. D. Brailsford and L. K. Mansur, "The effect of precipitate-matrix interface sinks on the growth of voids in the matrix," *J. Nucl. Mater.*, vol. 104, no. C, pp. 1403–1408, 1981.

ANNEXE E : Microstructures modèles du chapitre II

Synthèse des cycles thermomécaniques menant aux microstructures modèles utilisées au chapitre II

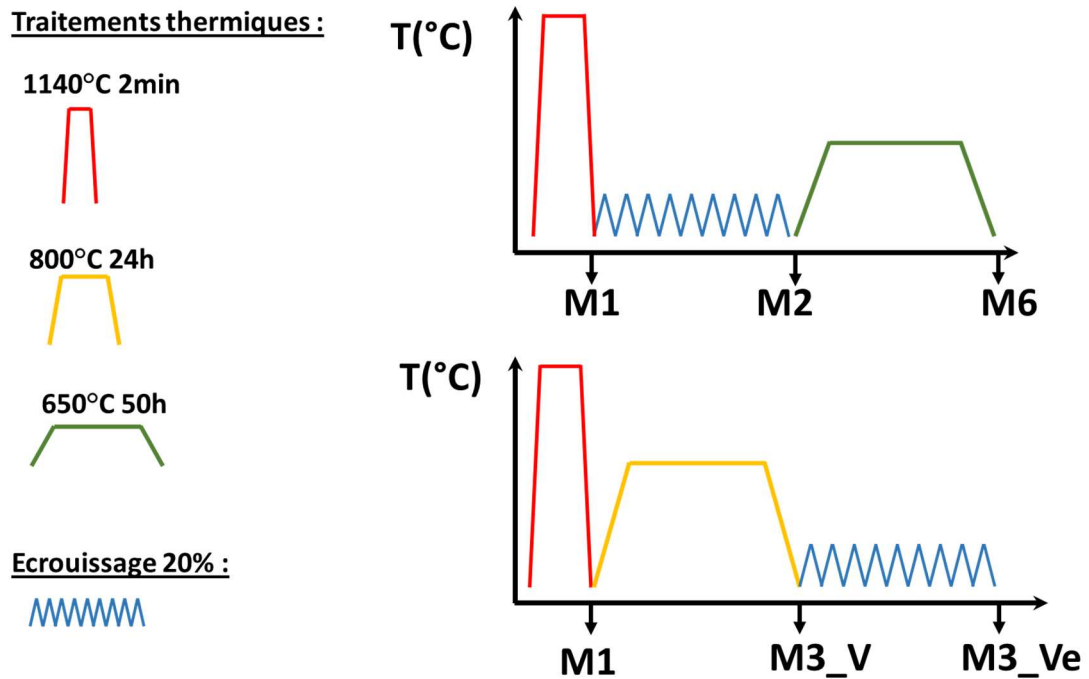


Figure 132 : cycles thermomécaniques

Le tableau suivant est une synthèse qualitative des caractéristiques microstructurales des différentes microstructures modèles.

	M1	M2	M3Ve	M3V	M6
Densité de dislocations m/m^3	0 10^{13}	1 10^{15}	1 10^{15}	0 10^{13}	1 5.10^{14}
Densité précipités nanométriques $/m^3$	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	0 $<10^{20}$	1 10^{22}
Solution solide (niveau)	1	1	0	0	0

Tableau 16 : valeurs de paramètres microstructuraux (0 : faible ; 1 : fort) dans les différentes microstructures modèles.

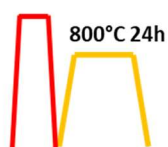
ANNEXE F : Microstructures modèles du chapitre V

Synthèse des cycles thermomécaniques menant aux microstructures modèles utilisées au chapitre V

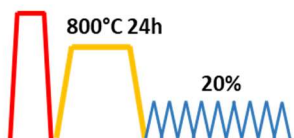
1140°C 2min



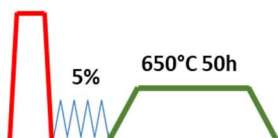
Hypertrempé M1



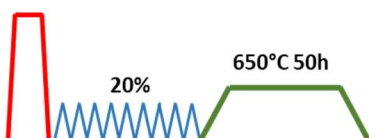
M3V
Vieillie



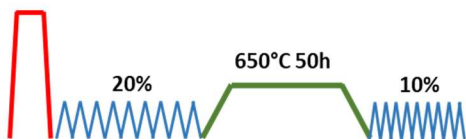
M3Ve
Vieillie écrouie



E6M6
Dislocation faible et nano faible

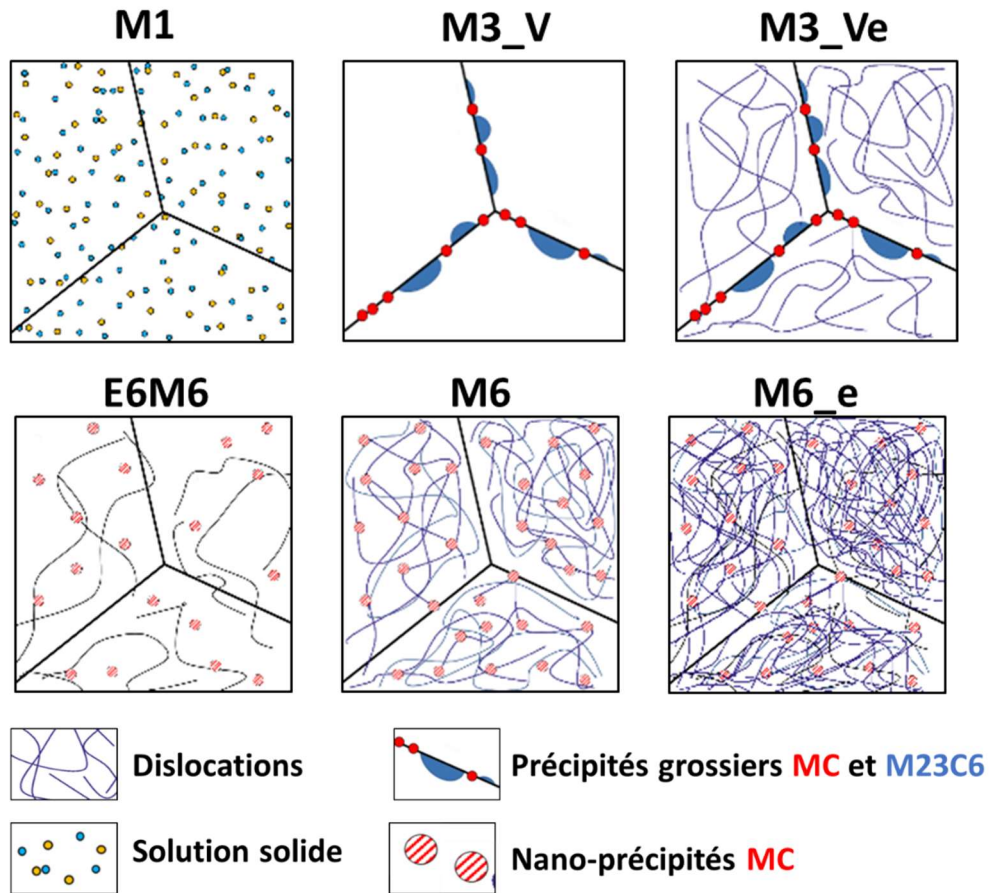


M6
Dislocation nominale et nano nominale



M6e
Dislocation forte et nano nominale

Représentation des microstructures irradiées lors des campagnes JANNuS 6 et 7.



Niveau des paramètres microstructuraux des microstructures irradiées dans J6 et J7.

Microstructure/paramètre	Densité dislocations	Solution solide	Nano-Précipités
M3V	faible	faible (800°C)	faible
M3Ve	fort	faible (800°C)	faible
M1	faible	fort	faible
E6M6	intermédiaire	Intermédiaire (650°C)	intermédiaire
M6	fort	Intermédiaire (650°C)	fort
M6e	(très ?) fort	Intermédiaire (650°C)	fort
M2 (réf AIM1)	fort	fort	faible