

# **Title: Ion irradiation effects on high purity bcc Fe and model FeCr alloys**

## **Titre: Effets de l'irradiation d'ions sur fer cubique centrée de haute pureté et FeCr alliage modèle.**

par

**Arunodaya BHATTACHARYA<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>CEA, DEN, Service de Recherches de Métallurgie Physique, F-91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM/IN2P3/CNRS), Université Paris Sud, Bâtiment 108, F-91405 Orsay Campus, France

### Composition du Jury

Nom Prénom	Titres	Fonction	Université ou Organisme d'appartenance
<b>MONNET</b> Isabelle	Ingénieur de recherche	Rapporteur	Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), CEA/DSM/IRAMIS/CIMAP
<b>VERMAUT</b> Philippe	Maître de conférences	Rapporteur	Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris (ENSCP), UMR-CNRS 7045
<b>ARAKAWA</b> Kazuto	Associate Professor	Examineur	Shimane University, Department of Materials Science, Faculty of Science and Engineering.
<b>GARRIDO</b> Frédéric	Professeur	Examineur	Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM), CNRS-UMR 8609
<b>BECHADE</b> Jean-Luc	Professeur INSTN	Examineur	CEA-Saclay, DEN/DANS/DMN/SRMA/LA2M
<b>DÉCAMPS</b> Brigitte	Directrice de recherche CNRS	Directrice de these et Examineur	Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM), CNRS-UMR 8609

**Date de soutenance :** 9 Decembre 2014

**Mots Clés:** Alliage FeCr, Microscopie électronique en transmission (MET), gonflement, spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS), sonde atomique tomographie (SAT), irradiation aux ions, boucle de dislocation

**Résumé:** Les alliages binaires FeCr de structure FM (ferrito/martensitique) sont actuellement les candidats les plus prometteurs comme matériaux de structure pour les réacteurs rapides refroidis au sodium (SFR) et les futurs systèmes de fusion. Une étude fondamentale centrée sur le comportement sous irradiation ionique de ces alliages binaires pourrait aider à prévoir la stabilité des aciers FM industriels complexes. Une optimisation de la teneur en Cr est nécessaire afin d'obtenir la réponse souhaitée matériau. Cependant, l'impact de Cr sur l'évolution de la microstructure irradié dans ces matériaux n'est pas bien compris. De plus, particulièrement pour les applications de fusion, le scénario de dégâts d'irradiation devrait être compliquée en outre par la présence de grandes quantités d'hélium (He) produit par transmutation nucléaire des aciers (~ 10 appm He / dpa).

Dans ce contexte, une étude spécifique des effets de l'irradiation ionique (influence du Cr et de l'He sur l'évolution de la microstructure) a été menée à 500 °C sur une grande variété d'alliages FeCr de haute pureté (à teneur en Cr allant de ~ 3 wt.% À 14 wt.%) ainsi que sur du Fe pur (structure fcc). Les irradiations ont été effectuées à l'aide ions Fe, en mode mono-faisceau (dégâts d'irradiation introduits par des ions Fe) et mode dual-beam (irradiation par des ions Fe et co-implantation d'He) afin de pouvoir séparer le dommage ballistique de l'implantation couplée avec de l'He. Trois différentes doses ont été étudiées: une dose élevée (157 dpa, co-implanté avec 17 appm He / dpa), une dose intermédiaire (45 dpa, co-implanté avec 57 appm He / dpa) et in situ à faible dose (0,33 dpa, co-implanté avec 3030 appm He / dpa). Les expériences ont été effectuées en utilisant l'installation JANNuS triple faisceau du CEA-Saclay et la plateforme irradiation in-situ en double faisceau du CSNSM à Orsay. L'évolution microstructurale des échantillons est essentiellement faite par TEM (microscopie électronique en transmission) classique. Des analyses par sonde tomographique (APT) et par EDS en mode STEM ont également été effectuées afin d'étudier en détail la distribution de Cr au voisinage direct des boucles de dislocations créées lors de l'irradiation. Une partie de l'étude a été couplée avec des simulations en utilisant le code de dynamique d'amas CRESCENDO développé au CEA et EDF R & D. Les principaux résultats sont les suivants:

- L'étude détaillée de la population (taille et densité) des cavités dans du Fe irradié à forte dose a révélé une forte réduction du gonflement du fait de l'ajout d'He. Une réduction drastique de la taille des cavités en dépit d'une densité plus élevée a été observée. Ce comportement a été observé tout au long zone irradié, jusqu'au pic d'endommagement.

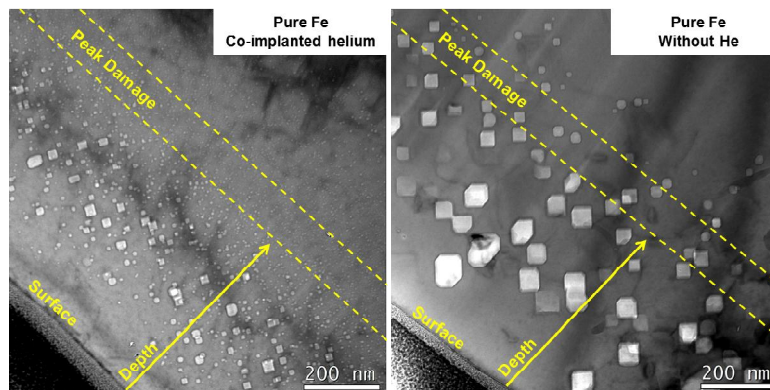


Fig.1: Micrographies MET de la distribution en profondeur des cavités dans le Fe irradié. (a) Microstructures des cavités quand He est co-implanté et (b) sans He. Irradiation de 157 dpa, 17 appm He/dpa pour le double faisceau, à 500 °C. (BF,  $s \gg 0$ , under focus = -1136 nm).

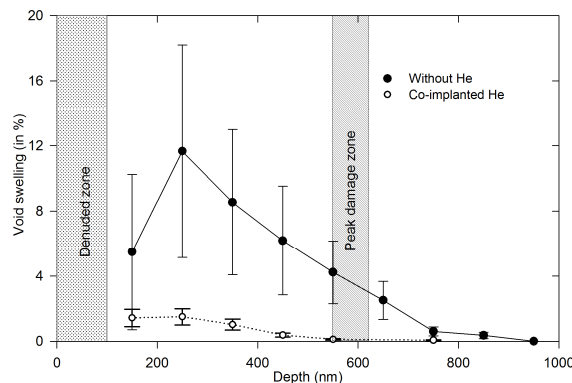
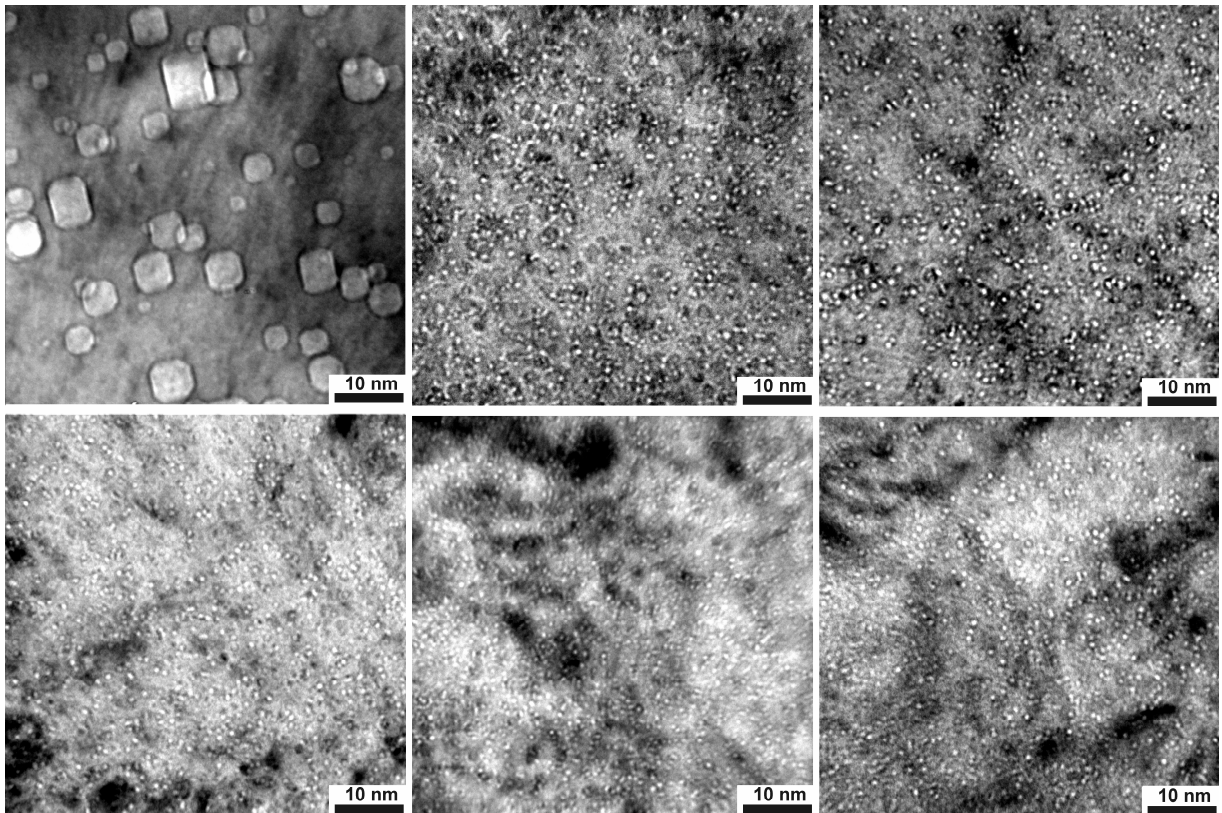


Fig.2: Comparaison de la distribution en profondeur du gonflement dans le Fe irradié avec et sans co-implantation d'He.

- Le couplage de l'analyse par TEM du Fe irradié à forte dose avec des simulations utilisant le code de dynamique d'amas CRESCENDO met en évidence la suppression du gonflement au voisinage du pic d'endommagement en raison de l'implantation d'ions Fe lors de l'irradiation. Ces ions implantés pourraient se comporter comme des interstitiels injectés et supprimer artificiellement le gonflement. Expérimentalement, le gonflement au début de la région du pic d'endommagement était de l'ordre d'un tiers de la valeur mesurée dans les profondeurs intermédiaires. Ceci constitue un artefact et pour obtenir des valeurs correctes de gonflement, la zone du pic d'endommagement doit être évitée.
- La microstructure de cavités a également été étudiée dans les alliages FeCr irradiés en double faisceau à forte dose, et les résultats ont été comparés à ceux obtenus dans le Fe pur. L'analyse a été effectuée à une profondeur intermédiaire de 300 à 400 nm sous la surface (pour éviter les effets des interstitiels injectés et les effets de surface), correspondant à 128 dpa, 13 appm He / dpa. L'étude par TEM a montré que l'addition de petites quantités de Cr, aussi basse que 3WT.%, est très efficace pour réduire fortement le gonflement. Une réduction drastique de la taille des cavités a été mise en évidence. Par exemple, la taille moyenne des cavités pour l'alliage Fe3% Cr est de l'ordre de 0,9 nm alors qu'elle est voisine de 6,8 nm pour le Fe pur. De plus, la variation du gonflement en fonction de la teneur en Cr n'est pas monotone et présente un maximum local à environ 9 - 10wt% Cr.



*Fig.3: Micrographies MET des cavités dans le Fe et les alliages FeCr irradiés à 500°C. Les images sont prises dans une zone située à 300 - 400 nm en dessous de la surface irradiée correspondant à 128 dpa ( $2.6 \times 10^{-3}$  dpa/s), 13 appm He/dpa. (BF,  $s \gg 0$ , under-focus = -1136 nm).*

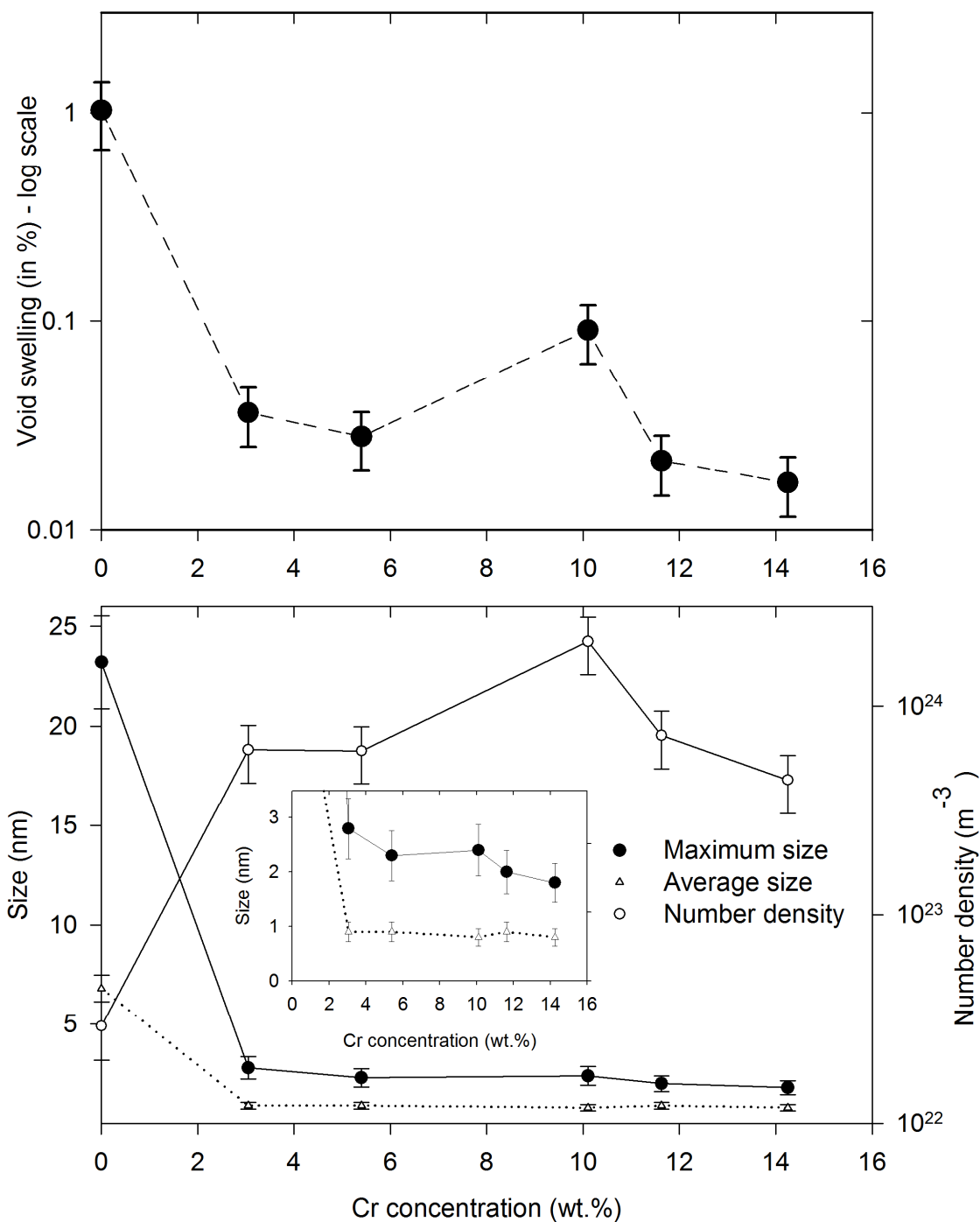


Fig.4: Variation du gonflement, de la taille de la cavité, et la densité en fonction de la concentration en Cr pour les alliages FeCr et le Fe irradiés en double faisceau jusqu'à 128 dpa, 13 appm He / dpa à 500 °C. Le gonflement varie de façon non monotone avec la concentration en Cr. Un graphe montrant la taille maximale et moyenne des la cavités dans les alliages FeCr est donnée séparément au centre de la figure. La taille maximale correspond à la plus grande cavité observée dans l'image; tandis que la taille moyenne correspond à la valeur moyenne calculée en utilisant toutes les tailles mesurées. Nous pouvons voir que la différence entre la taille maximale et moyenne des cavité est très petite pour tous les alliages FeCr, alors que la différence est importante pour le Fe.

- Le couplage des différentes techniques d'analyse , TEM classique, STEM / EDS et analyse APT appliqué à l'étude des alliages FeCr irradiés à faible et moyenne dose révèle la présence de zones enrichies en Cr sur le plan d'habitat des boucles de dislocation. Ce phénomène est relié à un phénomène de ségrégation induite par irradiation (RIS) de Cr au voisinage du coeur des boucles de dislocation. Quand la boucle se développe sous irradiation, les zones de ségrégation ne peuvent probablement pas se redissoudre du fait de la présence d'impuretés telles que le C. Lorsque les boucles sont imagées par MET en utilisant des techniques d'imagerie à contraste de diffraction conventionnelle classique, ces zones enrichies produisent des franges de contraste au voisinage du plan de la boucle. Une estimation quantitative de cet enrichissement a été déduite par STEM / EDS et l'APT. La teneur en Cr dans ces domaines se situe entre 23 - 35% par EDS et  $22 \pm 2\%$  par APT, ce qui est bien en dessous de la teneur en Cr de la phase  $\alpha'$  riche en Cr.

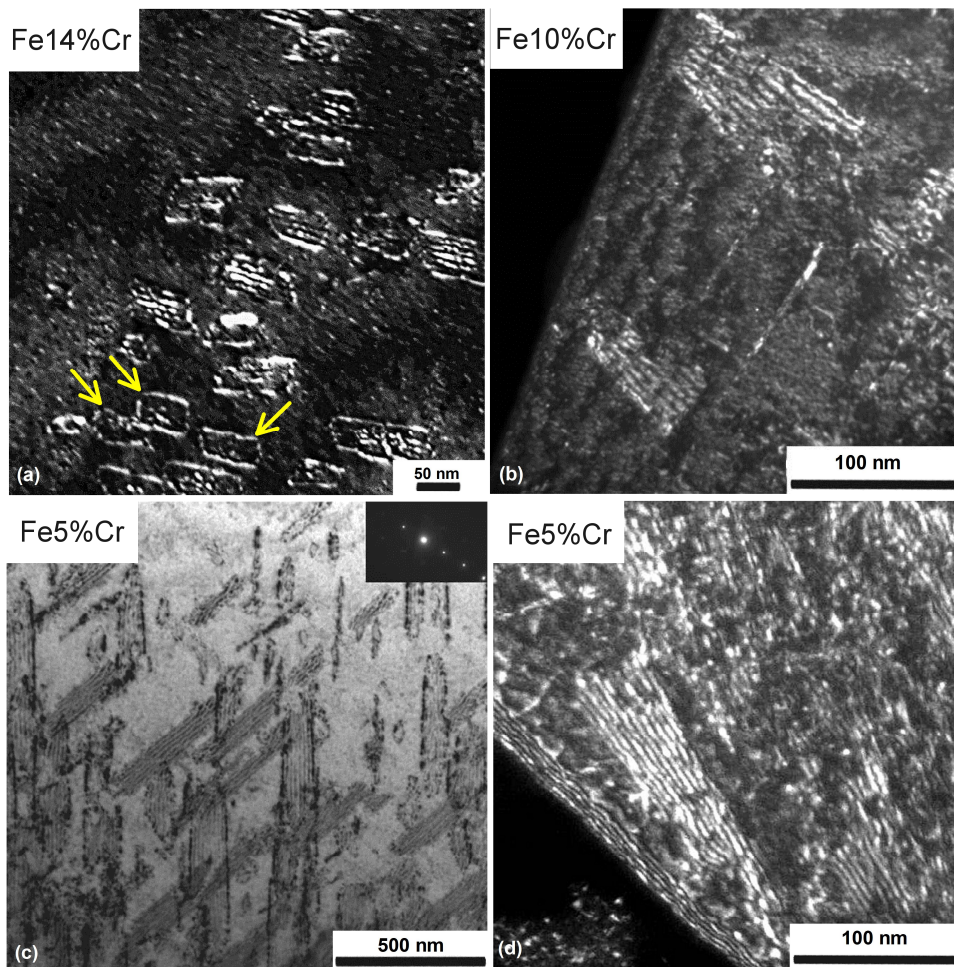


Fig.5: Caractérisation de la microstructure des boucles de dislocation par MET. Présence de franges l'intérieur des boucles de dislocation en (a). FE14% Cr, double faisceau irradié à 0,33 dpa (disque mince) - image WBDF; (b). Fe10% Cr, double faisceau irradié à 45 dpa (échantillon FIB) - WBDF image; (c), (d). FE5% Cr, simple et double faisceau irradié à 45 dpa respectivement (disque mince en aluminium et échantillon FIB) - FRB et images WBDF.

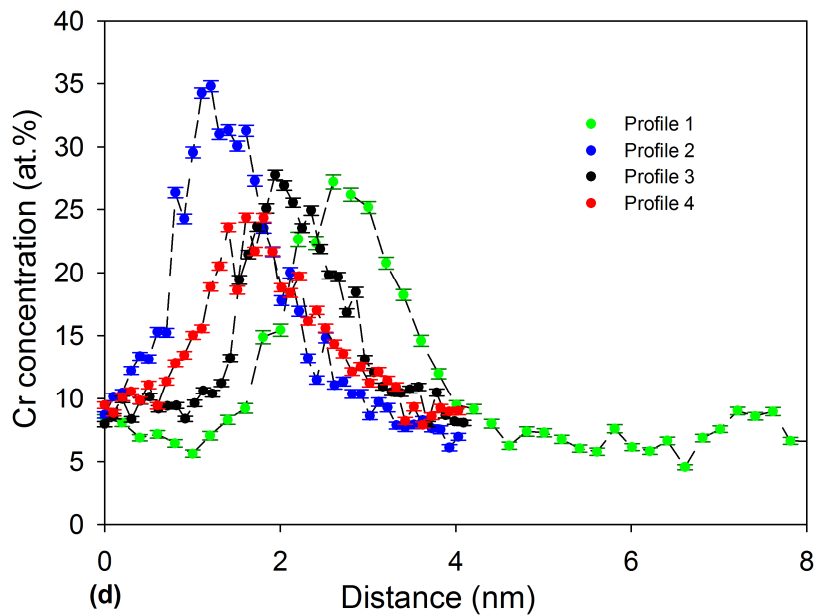
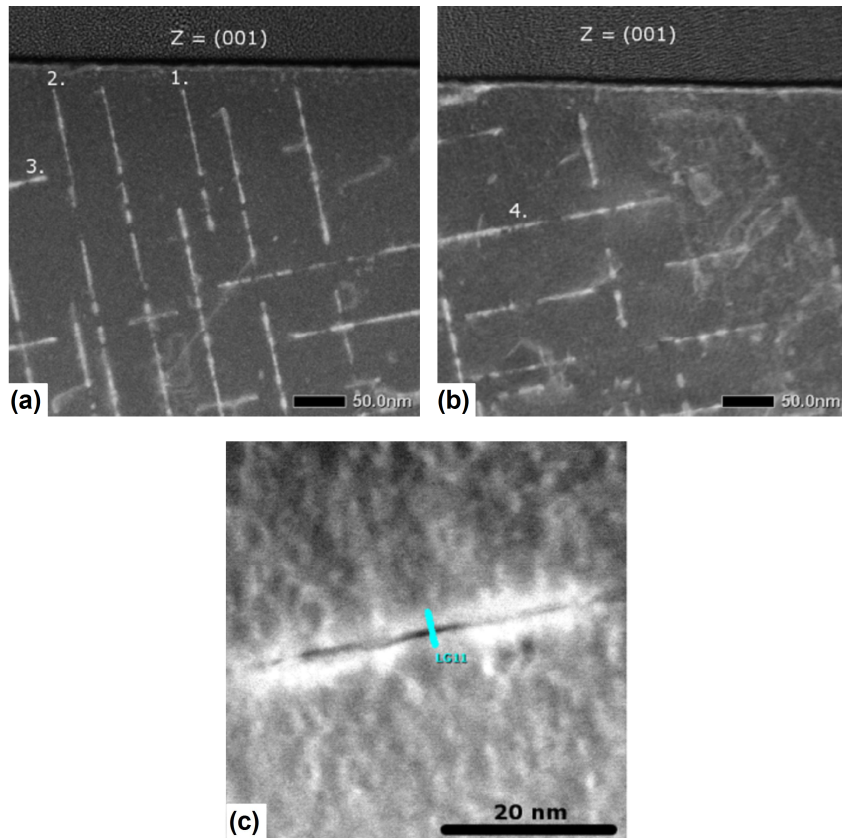


Fig.6: Caractérisation de l'alliage FE10% Cr, irradié à 45 dpa, avec 58 appm He / dpa. (a), (b) image STEM-LAADF sur tavez boucles de dislocation de type  $a <100>$  dans un échantillon FIB orienté proche de l'axe de zone (001). (c) STEM-HAADF de la boucle 3; la ligne bleue représente la trace de la ligne de balayage pour la mesure EDS. (d) Profils d'enrichissement de Cr en pour cent atomique sur les boucles de dislocations obtenues par l'analyse EDS (résolution: 2 Å) en utilisant un MET Jeol ARM200.

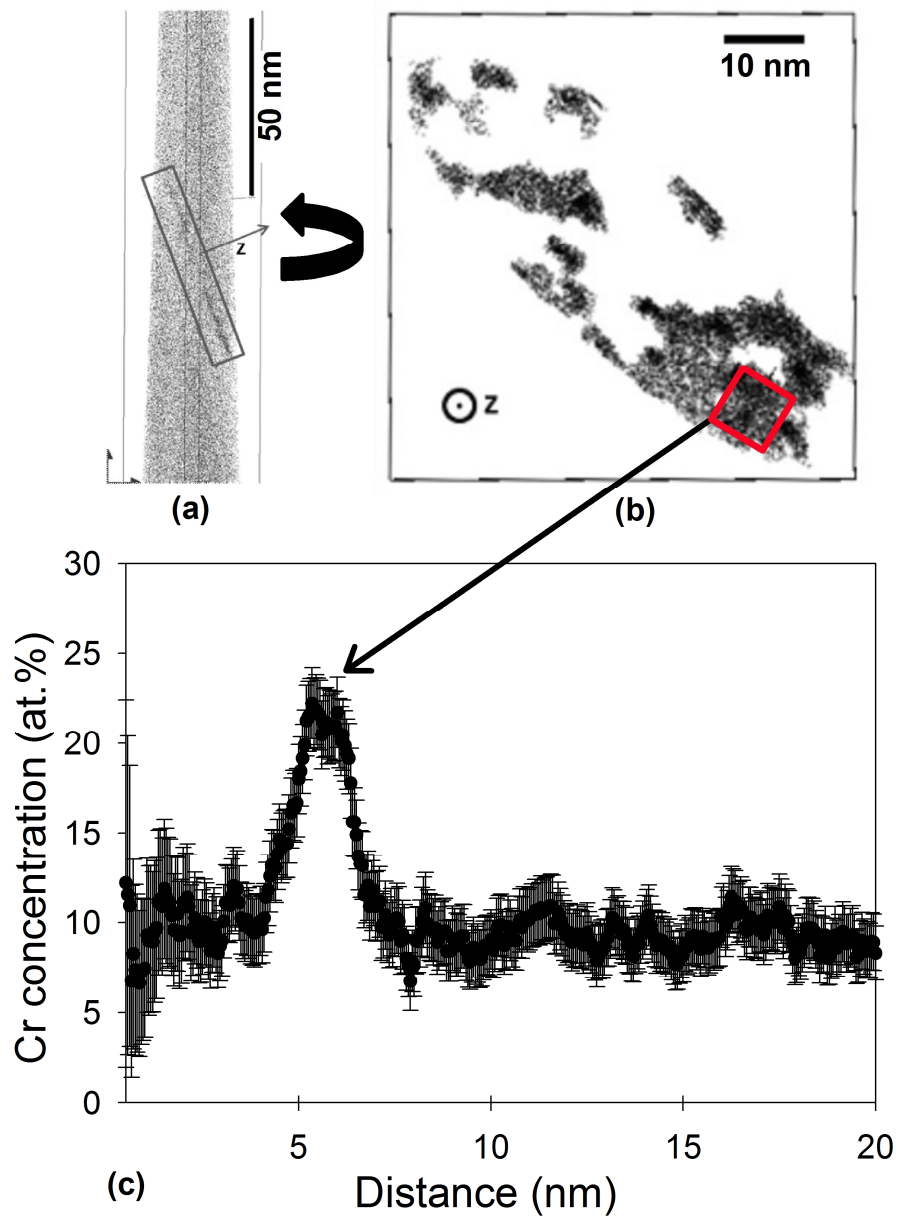


Fig.7: Etude APT sur FE10% Cr, irradié à 45 dpa, avec 58 appm He / dpa. (a). Reconstruction 3D de la pièce en forme d'aiguille montrant seulement les atomes de Cr; la boucle de dislocation est marquée dans une boîte. (b). La boucle de dislocation montrant des régions enrichies en Cr sur le plan de l'habitude. (c). Profil de Cr en pour cent atomique obtenue à partir d'une région enrichie (marqué par un carré).

- L'alliage Fe14%Cr irradié en mono faisceau à faible dose été analysé in situ après irradiation à 0,33 dpa à 500 °C. Les observation en MET in situ n'ont montré aucune mobilité des boucles, conformément à d'autres expériences d'irradiation ioniques et électroniques. La caractérisation post-mortem par MET de la nature des boucles de dislocation a révélé la présence à la fois de boucles  $a\langle 100 \rangle$  et  $a/2 \langle 111 \rangle$ . Cependant, à 500 °C, seules des boucles de type  $a\langle 100 \rangle$  sont susceptibles d'être présentes dans le Fe pur selon la bibliographie. Nous en concluons donc que l'addition de Cr (14WT.%Cr dans notre cas) dans le Fe pur stabilise les boucles glissiles  $a/2 \langle 111 \rangle$ . Cette stabilisation peut conduire à des densités élevées de boucles dans les alliages FeCr par rapport au Fe.

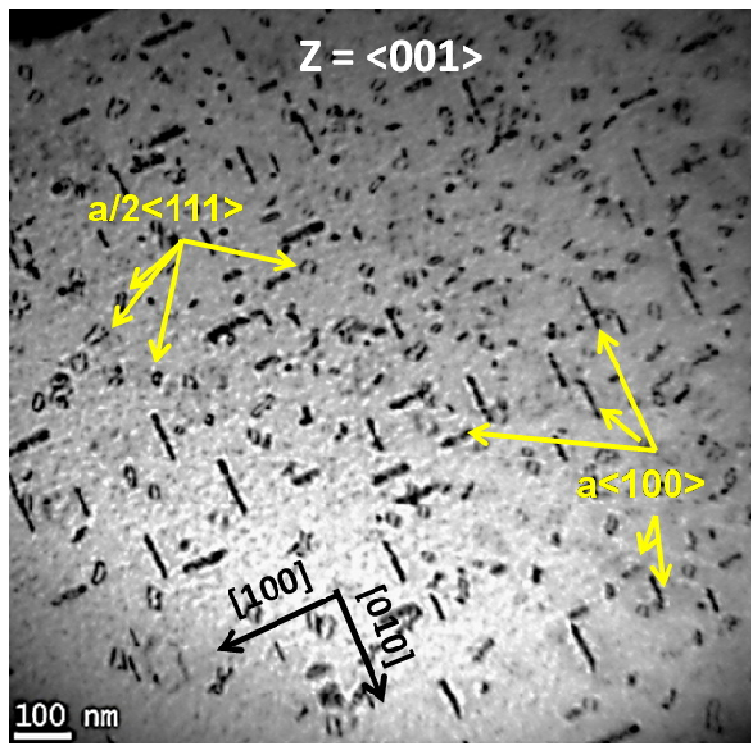


Fig.8: Micrographie en champ clair de boucles de dislocations dans FE14% Cr irradié à 0,33 dpa à 500 °C. L'étude a été réalisée au voisinage de l'axe de zone  $\langle 001 \rangle$ , où les boucles de type  $a\langle 001 \rangle$  sont debout. Toutes les autres familles de boucle qui ne sont pas debout sont de type  $a/2 \langle 111 \rangle$ .