



HAL
open science

**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**

Bertrand Michaut

► **To cite this version:**

Bertrand 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. Matériaux. Université Paris-Saclay, 2017. Français. NNT : 2017SACLS046 . tel-01553340

HAL Id: tel-01553340

<https://theses.hal.science/tel-01553340>

Submitted on 3 Jul 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
PRÉPARÉE À L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD

SERVICE DE RECHERCHES MÉTALLURGIQUES APPLIQUÉES
CEA-SACLAY

ÉCOLE DOCTORALE N°576

Particules Hadrons Énergie et Noyau : Instrumentation, Image, Cosmos et Simulation
(PHENIICS)

Spécialité de doctorat : Énergie Nucléaire

Par

Michaut Bertrand

**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**

Thèse présentée et soutenue à Saclay, le 16 mars 2017

Composition de jury:

M. Frédéric Garrido, <i>Professeur, Université Paris-Sud,</i>	Président
M. Frédéric Momprou, <i>Chargé de Recherche CNRS, Université de Toulouse</i>	Rapporteur
M. Robin Schäublin, <i>Professeur, ETH Zürich,</i>	Rapporteur
M Philippe Pareige, <i>Professeur, Université de Rouen Normandie,</i>	Examineur
Mme Brigitte Décamps, <i>Directeur de Recherche CNRS, Directrice de Thèse,</i>	Examinatrice
M. Joël Malaplate, <i>Ingénieur-Chercheur CEA, Encadrant,</i>	Examineur

Membres invités:

Mme. Alexandra Renault-Laborne, *Ingénieur-Chercheur CEA, Encadrant*
Mme. Faiza Sefta, *Ingénieur de recherche, EDF*
M. Thomas Jourdan, *Ingénieur-Chercheur CEA, Encadrant*

Titre: 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

Mots clés: Réacteur à Eau Pressurisée, Irradiations aux ions, Gonflement, Caractérisation microstructurale, Microscopie Electronique en Transmission, Aciers austénitiques inoxydables, Dynamique d'amas

Résumé: Le contexte industriel actuel, animé d'un désir de prolonger la durée de fonctionnement des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) jusqu'à des durées de 60 ans, nécessite la compréhension de l'évolution de la microstructure et notamment d'un éventuel gonflement en conditions REP.

Deux nuances de 304 (haut et bas carbone), représentatives des internes inférieurs de REP, ont été irradiées aux ions depuis les faibles doses jusqu'à des doses supérieures à la centaine de dpa, à 450 °C (proche des conditions REP par la prise en compte d'un décalage flux/température), ainsi qu'à une dose intermédiaire à plus haute température 550 °C. Sur la base des résultats expérimentaux des modélisations par dynamique d'amas avec le code CRESCENDO ont été réalisées afin d'étudier l'évolution de la microstructure.

Les microstructures de boucles de Frank, du réseau de dislocations, des cavités et de la précipitation ont été caractérisées par Microscopie Électronique en Transmission (MET) à chacune des doses et par Sonde Atomique Tomographique (SAT) à 100 dpa. À 450 °C, les conditions d'irradiations conduisent à une saturation du réseau de dislocations et des boucles de Frank, les cavités sont en faible densité induisant une fraction volumique faible (<0,1%) même dans la nuance bas carbone plus sensible au gonflement. La précipitation observée est principalement composée de carbures. En plus de l'évolution avec la dose, cette étude a permis d'analyser les effets de températures, de composition chimique et d'irradiation aux ions. Un jeu de paramètres d'entrée permettant de modéliser l'évolution de la microstructure avec la dose et le long du profil de dommage a été établi. Par modélisation il a été étudié les effets des interstitiels injectés, de la surface d'irradiation ou de la modification de l'efficacité des cascades avec la profondeur d'irradiation.

Title: Microstructural characterizations of austenitic stainless steels representative of PWR internals irradiated with ions and comparison to cluster dynamic simulations

Key words: Pressurized Water Reactor, Ion irradiations, Swelling, Microstructural characterization, Transmission electron microscopy, Austenitic stainless steels, Cluster dynamics

Abstract: The French nuclear industry is looking into the extension of the operation time of pressurized water reactors (PWR) up to 60 years. This implies a good comprehension of the microstructural evolution under irradiation in Pressurized Water Reactors' conditions.

Two representatives stainless steels from PWR's internals, 304 type steels, which differ in carbon content, has been irradiated from low to high doses (more than 100 dpa) at 450 °C, irradiation at a second temperature (550 °C) has also been performed at an intermediate dose. The choice of the temperature (450 °C) was motivated by considering a temperature shift between neutron and ion irradiations due to their large difference in term of dose rate. The microstructural evolution has been characterized by transmitted electron microscopy on each conditions and by atom probe on highest irradiated samples. And modelling of the microstructure was performed using cluster dynamics code CRESCENDO.

For both steels, at 450 °C the dislocation network and Frank loops reach a saturation regime. As the cavity size and density are low the volume fraction is also low, even in the low carbon content steels, which is more favorable to swelling. The precipitation is mainly carbides. The effects of temperature, chemical composition and of ion irradiation were also investigated. Based on experimental results, a set of parameters which reproduces the evolution of the microstructure in respect to the dose and the depth of observation has been established. It has allowed to understand the effects of the irradiated surface, the injected interstitials and a possible evolution of the cascade efficiency along the damage profile.



Table des matières

Table des matières	iii
Remerciements	vii
Introduction	1
Contexte de l'étude	2
Problématique	3
Objectifs et démarche	6
Organisation du Manuscrit	6
1 Synthèse bibliographique des effets d'irradiation dans les aciers austénitiques inoxidables	7
1.1 Généralités sur les irradiations	8
1.1.1 Interactions particule matière	8
1.1.2 Évaluation du dommage d'irradiation	10
1.1.3 Logiciel d'aide aux calculs de doses	11
1.1.4 Transmutation	12
1.2 Évolution de la microstructure sous irradiation	13
1.2.1 Black spots	14
1.2.2 Tétraèdres de faute d'empilement	14
1.2.3 Dislocations	14
1.2.3.1 Boucles de Frank	14
1.2.3.2 Réseau de dislocations	19
1.2.4 Ségrégations chimiques	19
1.2.5 Précipités	21
1.2.6 Cavités et bulles	22
1.3 Conséquence macroscopique : le gonflement	25
1.3.1 Effets d'irradiation influant sur le gonflement	26
1.3.1.1 Dose	26
1.3.1.2 Température	26
1.3.1.3 Taux de dommages	28
1.3.1.4 Effet de l'hélium	30
1.3.2 Effets intrinsèques aux matériaux influant sur le gonflement	32
1.3.2.1 Composition chimique	32
1.3.2.2 État métallurgique	34
1.4 Représentativité des irradiations aux neutrons par des particules chargées	35
1.5 Modélisation des évolutions de la microstructure sous irradiation	36
1.5.1 Différentes méthodes de simulation des défauts d'irradiation	36
1.5.2 Approche en dynamique d'amas	37
1.6 Synthèse	39

2	Techniques expérimentales et Matériaux	41
2.1	Les irradiations aux ions	42
2.1.1	Conditions d'irradiation	42
2.1.2	Plateformes d'irradiation	43
2.1.2.1	JANNuS - Saclay	43
2.1.2.2	JANNuS - Orsay	47
2.2	Préparation des échantillons	50
2.2.1	Lames minces non irradiées	50
2.2.2	Échantillons irradiés	50
2.2.2.1	Pré-irradiation	50
2.2.2.2	Polissage en face avant - Post-irradiation	50
2.3	Caractérisations microstructurales	53
2.3.1	Microscopie Électronique en Transmission	53
2.3.1.1	Imagerie conventionnelle des défauts microstructuraux	53
2.3.1.2	Visualisation des défauts	55
2.3.1.3	Analyses quantitatives des défauts	58
2.3.1.4	Analyse chimique	61
2.3.2	Sonde Atomique Tomographique	61
2.4	Caractérisation de l'état de réception des matériaux	64
2.4.1	Matériaux d'étude	64
2.4.2	Caractérisations microstructurales	65
2.5	Conclusion	69
3	Caractérisation et discussion de la microstructure des matériaux irradiés aux ions	71
3.1	Évolution de la microstructure après irradiation aux ions sur échantillons massifs	72
3.1.1	Cavités	73
3.1.1.1	Irradiations à 450 °C	73
3.1.1.2	Irradiation à 550 °C	77
3.1.2	Boucles de Frank	80
3.1.2.1	Irradiations à 450 °C	80
3.1.2.2	Irradiation à 550 °C	83
3.1.3	Réseau de dislocations	86
3.1.4	Précipités	87
3.1.4.1	Par Microscopie Électronique en Transmission	87
3.1.4.2	Par Sonde Atomique Tomographique	96
3.1.5	Évolution de la microstructure le long du profil de dommage	100
3.2	Évolution de la microstructure lors d'irradiations aux ions sur lames minces	105
3.2.1	Irradiations mono-faisceau	105
3.2.2	Irradiations bi-faisceau	109
3.3	Synthèse des microstructures	111
3.4	Discussion des résultats expérimentaux	112
3.4.1	Évolution de la microstructure avec la dose	112
3.4.2	Effet de la température	118
3.4.3	Effet de la composition chimique	120
3.4.4	Effet de l'hélium	121
3.4.5	Limites des irradiations aux ions	121
3.4.5.1	Surface irradiée	121

3.4.5.2	Interstitiels injectés	125
3.4.5.3	Contamination	125
3.4.6	Comparaison avec les irradiations aux neutrons	126
3.4.6.1	En conditions Réacteur à Neutrons Rapides	126
3.4.6.2	En conditions Réacteur à Eau Pressurisée	129
3.5	Conclusion	130
4	Simulation par dynamique d'amas	133
4.1	Présentation du modèle	134
4.1.1	Équations générales	134
4.1.1.1	Amas immobiles	135
4.1.1.2	Amas mobiles	136
4.1.2	Évolution du réseau de dislocations	137
4.1.2.1	Incorporation des boucles de Frank dans le réseau de dislocations	137
4.1.2.2	Annihilation des dipôles de dislocations	138
4.1.3	Dépendance spatiale	139
4.1.4	Paramètres régissant le modèle	139
4.1.4.1	Les énergies de formation	140
4.1.4.2	La diffusion et migration des défauts ponctuels	141
4.1.4.3	Les puits	141
4.1.4.4	Les cascades	142
4.1.4.5	Les paramètres d'irradiation	143
4.2	Évolution de la microstructure avec la dose à 450°C dans le 304L	144
4.2.1	Paramétrisation	144
4.2.2	Résultats et discussion	146
4.2.3	Étude de sensibilité	149
4.3	Effets propres des irradiations aux ions	152
4.3.1	Insertion du profil de dommage	152
4.3.2	Effet de la surface	156
4.3.3	Effet des interstitiels injectés	158
4.3.4	Effet de la cascade	160
4.4	Conclusions	164
	Conclusion Générale et Perspectives	167
	Références	189

Remerciements

Je vais commencer par remercier Frédéric Momprou et Robin Schaublin qui ont bien voulu lire avec attention cette thèse et qui ont accepté d'en être rapporteurs. Je remercie Fredérico Garrido et Philippe Pareige pour avoir accepté d'être membres du jury.

Je remercie particulièrement Brigitte Décamps qui a su diriger ma thèse avec caractère. Tu as su me passionner pour la microscopie toujours à la recherche de la plus belle photo. J'ai découvert, qu'il était aussi simple d'utiliser les cartes de Kikuchi en microscopie pour se repérer dans un échantillon que d'utiliser des cartes autoroutières en voiture. Les sessions au microscope ensemble étaient toujours assorties de franches rigolades et rythmées par des expressions bien à toi comme par exemple « fouette cochet! ». Je te remercie d'avoir dirigé ma thèse avec conviction et franc parlé ainsi qu'énergie afin de me permettre de réaliser conférences et expériences sans accros!

Un grand merci à Joël Malaplate pour avoir pendant ces trois ans encadré ma thèse quotidiennement avec passion, patience et bonne humeur. Un grand merci de m'avoir laissé l'autonomie qui m'était nécessaire pour mener ma thèse. Ton sens de l'humour n'a d'égale qu'une bonne Danette chocolat en dessert! J'ai d'ailleurs entendu dire qu'un nouveau mot était entré dans le Larousse cette année : « Malaplaterie », boutade pouvant être légèrement provocatrice prenant à contrepied l'interlocuteur mais toujours finement drôle.

Je souhaite aussi remercier Alexandra Renault-Laborne et Thomas Jourdan qui m'ont aussi permis de mener à bien cette thèse. Alexandra merci de m'avoir formé et aidé dans la réalisation de certaines analyses sur le microscope du laboratoire mais aussi pour ton regard critique sur mes résultats où l'approximation n'était pas permise. Thomas, alors que je redoutais la partie de simulation en début de thèse, il s'est avéré que je me suis vraiment amusé à comprendre et dompter la dynamique d'amas, pour cela un grand merci. Je tiens d'ailleurs à m'excuser de t'avoir imposé des réunions d'avancement parfois interminables où la simulation était reléguée à la fin!

Je tiens à remercier Faiza Sefta d'EDF qui a suivi l'avancement de ma thèse, et ne m'a pas tenu rigueur des délais parfois très (trop) court que j'imposai pour avoir des retours sur mes communications externes.

Au-delà de l'aide technique et scientifique qu'ils ont pu m'apporter je voudrais remercier l'ensemble des techniciens et ingénieurs du laboratoire pour l'ambiance chaleureuse qui a régné au LA2M.

Qu'aurait été cette thèse sans les "collègues" et non amis du labo?! Sans qui les cafés, sorties et vacances n'auraient pas la même saveur. Merci au gang des montrougiens,

Gilles qui malgré sa volonté forte d'exhiber sa virilité a toujours réussi à laisser transparaître une certaine touche de féminité et Sylvain avec qui j'ai refait le monde (et pas que sur Europa Universalis) chez Friloux. Merci à Pierre qui fut un vrai compagnon de voyage aux Etats-Unis toujours à la recherche des best "hot-dog in town"; Baptiste toujours partant pour tout et qui sait maintenant bramer comme un vrai cerf; Alexia pilote de la mort pour nous avoir fait goûter tout et surtout n'importe quoi au café du matin; Benjamin qui nous rappelle que l'homme est bel est bien le plus grand prédateur; Vianney que j'ai laissé gagner beaucoup trop souvent au badminton. Je n'oublie pas non plus Nesrine pour m'avoir appris quelques phrases de tunisien, Olivier, Camille, Nicolas, Esther, Emilie. Enfin je souhaite remercier Marine cobureau d'exception qui aime râler autant que moi mais toujours avec le sourire et qui fait quand même vachement bien du Ski!

Je remercie infiniment mes parents mes sœurs et mon frère qui se sont intéressés à mon travail et m'ont soutenu durant ces trois belles années de thèses.

Enfin je remercie Séverine qui m'a accompagné tout au long de cette thèse et sans qui les week-ends de rédaction auraient été quand même beaucoup moins sympas!

Un grand merci à tous pour ces trois belles années.

Introduction

Contexte de l'étude

En France, le parc nucléaire est composé de 58 Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) répartis dans 19 centrales. L'électricité fournie par ces réacteurs représente 75% de l'énergie produite en France. Le plus vieux réacteur a été mis en service en 1978 à Fessenheim. Aujourd'hui l'âge moyen des REP du parc français est d'environ 32 ans. Lors de leur mise en place, les réacteurs ont été conçus avec un objectif d'une durée de fonctionnement de quarante ans. Cependant tous les dix ans une visite décennale est réalisée autorisant ou non le fonctionnement de chacun des réacteurs pour les dix années suivantes. L'objectif souhaité par l'exploitant est maintenant de pouvoir aller jusqu'à 60 ans. La tenue des réacteurs (évolution sous irradiation) soulève donc la question de la possibilité de prolonger leur fonctionnement de vingt années supplémentaires. En particulier, l'apparition d'un gonflement macroscopique au niveau des internes inférieurs pourrait être contraignante.



FIGURE 1 – Cuve de Réacteur à Eau Pressurisée (REP).

Dans les Réacteurs à Eau Pressurisée (figure 1), la réaction nucléaire a lieu dans des gaines en zirconium contenant les pastilles de combustible. Les gaines sont plongées dans de l'eau liquide sous pression servant de caloporteur et de modérateur. Elles sont maintenues dans la cuve par des structures en aciers inoxydables austénitiques, appelées internes de cuve. Ceux-ci servent à la protection neutronique de la cuve du réacteur, au maintien des assemblages combustibles ainsi qu'à la canalisation de la circulation de l'eau. Ils sont en acier de la série des 300, alliages de type Fe-Ni-Cr avec ajout d'autres éléments d'alliages tels que le manganèse et le molybdène. Ces structures sont donc proches du combustible et sont soumises à un environnement extrême. Les conditions de fonctionnement sont une immersion dans de l'eau à 330 °C sous 155 bar de pression, avec un débit d'eau très important 60 000 m³/h et en milieu irradiant. Localement, la température peut atteindre 375 °C par échauffement gamma [BRUEMMER et collab., 1999; GARNER et collab., 1993].

Dans les REP, les internes inférieurs comprennent l'enveloppe de cœur, les cloisons verticales, les renforts horizontaux ainsi que les quelques 960 vis qui les assemblent (partie verte sur la figure 1). Traditionnellement les cloisons et renforts sont réalisés en acier de type 304, cet acier contient environ 18% de chrome et 10% de nickel. Deux nuances sont utilisées, l'une contenant une teneur en carbone limité < 0,3%, désignée par un L

(pour Low carbon) 304L, et l'autre contenant une teneur plus forte. Cet acier est souvent utilisé à l'état hypereffluant. La visserie est faite en acier 316 ou 316L écrouis contenant 17% de chrome et 12% de nickel.

La proximité avec les assemblages combustibles induit une forte irradiation des composants des internes. Afin de quantifier les doses reçues par les matériaux, une unité, le « dpa » (déplacement par atome), est utilisée. Cette dose pourrait atteindre 120 dpa après 60 ans de fonctionnement dans certaines parties des internes inférieurs. En température, de telles doses vont alors profondément modifier la microstructure des matériaux, entraînant inévitablement des modifications de certaines propriétés macroscopiques telles que le durcissement, le fluage, la résistance à la corrosion, et l'apparition du gonflement. L'étude menée ici va se concentrer sur le phénomène de gonflement. Le gonflement est une modification macroscopique des dimensions d'un composant sans perte de masse. Il est le résultat de l'évolution des défauts induits par l'irradiation tels que la formation de bulles ou de cavités ainsi que potentiellement de certains changements de phases. Le gonflement peut entraîner des modifications de dimension suffisamment importantes pour conduire à l'apparition de phénomènes néfastes. Par exemple, sur les vis en 316 le gonflement va potentiellement induire des contraintes supplémentaires dans les congés de raccordement de la vis, cette augmentation de la contrainte va pouvoir alors favoriser la corrosion sous contrainte assistée par irradiation (IASCC) [CONERMANN et collab., 2002]. De plus, un trop fort gonflement amènerait la structure à se déformer énormément et potentiellement rentrer en contact avec les assemblages combustibles [MATSUBARA et collab., 2010].

Problématique

C'est en 1967 que les premières observations de gonflement ont été faites par Cawthorne et Fulton dans un acier 316 irradié en réacteur à neutrons rapides [CAWTHORNE et FULTON, 1967].

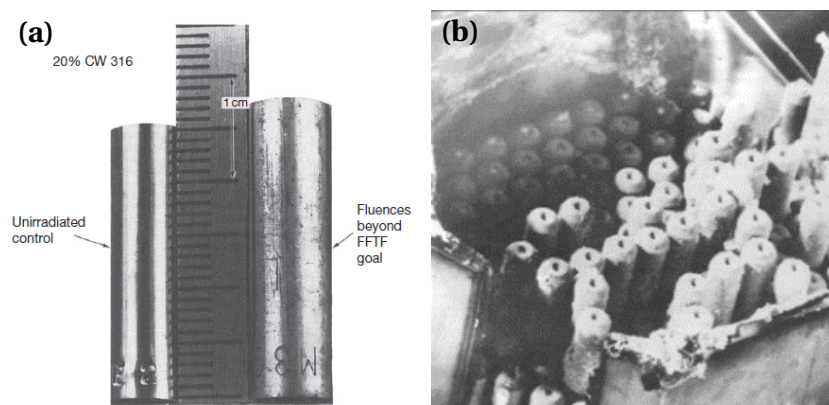


FIGURE 2 – Gonflement macroscopique après irradiation d'un acier 316 écroui dans EBR-II (a) [STRAALSUND et collab., 1982], et allongement de gaines combustibles dans Phénix (b)[DUBUISSON, 2011].

Le gonflement a par la suite été beaucoup étudié dans les Réacteurs expérimentaux à Neutrons Rapides (RNR) ainsi que par des irradiations aux ions [MAZIASZ, 1993; ZINKLE

et collab., 1993]. Straalsund et al. mettent par exemple en évidence en 1982 un gonflement macroscopique de plusieurs pourcents dans une gaine de 316 écroui irradiée en RNR à 75 dpa. Dans Phénix, des allongements de gaines combustibles ont aussi été observés (figure 2). La compréhension que l'on a du gonflement est ainsi fortement associée à ce type de réacteurs et la question de la possibilité de transposer les résultats RNR aux REP est soulevée.

Le gonflement est un phénomène à seuil, c'est-à-dire qu'il présente une période d'incubation pendant laquelle le gonflement et la vitesse de gonflement associée sont faibles. Durant cette période d'incubation, une population croissante de cavités ou bulles s'établit. Une fois la taille critique de croissance des cavités atteinte celles-ci vont croître par absorption de lacunes. Le gonflement entre alors dans un régime linéaire de croissance avec la dose. La figure 3 illustre l'évolution du gonflement avec la dose pour un acier austénitique 316 écroui à 20% irradié en réacteur à neutrons rapides. Une période d'incubation est bien visible, suivie d'un régime de gonflement macroscopique qui ne semble pas montrer de signe de saturation, même pour des gonflements de plusieurs dizaines de pourcents. Un certain nombre d'expérience indiquent que le taux de gonflement en régime de croissance est de l'ordre de $1\%.\text{dpa}^{-1}$ [GARNER, 2012].

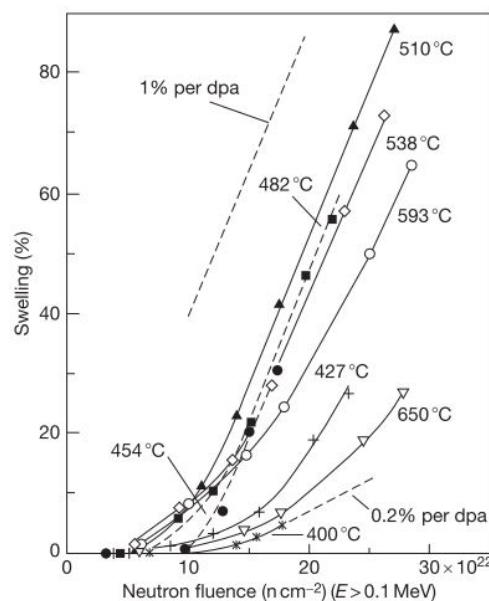


FIGURE 3 – Évolution du gonflement avec la dose à différentes températures dans un 316 irradié dans EBR-II. Un régime d'incubation plus ou moins long est suivi d'un régime de gonflement avec un taux de $1\%.\text{dpa}^{-1}$ pour les températures supérieures à 400°C [GARNER, 2012].

En figure 3, il est à noter l'effet très important de la température sur l'apparition du régime linéaire de gonflement. La température a sur le gonflement un effet en cloche, avec la présence d'une température optimale pour le gonflement. D'après Garner, la température influence seulement sur le transitoire [GARNER, 1984; GARNER et WOLFER, 1984]. Ainsi, dans la gamme des « basses » températures, une diminution de la température augmenterait la dose d'incubation, retardant ainsi l'apparition d'un gonflement notable. En REP, les températures de fonctionnement sont de l'ordre de $300\text{-}370^\circ\text{C}$, soit bien inférieures à celles présentées sur la figure 3. L'évolution du gonflement à 400°C en RNR semblait donc indiquer que pour des températures encore plus faibles, le gonflement resterait limité. Donc, en conditions REP le phénomène de gonflement serait restreint, pour des

durées d'irradiation de 40 ans.

Toutefois, d'une part avec une prolongation de la durée de fonctionnement, le gonflement pourrait être plus prononcé, en particulier dans les parties les plus chaudes. D'autre part, la comparaison des flux de neutrons entre les REP et les RNR met en évidence deux différences majeures qui pourraient conduire à une réponse différente au gonflement. En REP, le flux de neutrons rapides responsable du dommage est plus faible qu'en RNR mais le flux de neutrons thermiques responsable de la transmutation est très supérieur.

- Les neutrons rapides d'énergie supérieure à 0,1 MeV sont à 95% responsables des dommages d'irradiation induits dans les matériaux [WAS, 2007]. Cette réduction de flux, en neutrons rapides, implique donc une diminution du taux de dommage. Les résultats ne conduisent pas à un consensus, toutefois des travaux indiquent un accroissement du gonflement, que les travaux d'Okita et al. associent à une diminution de la dose d'incubation [OKITA et collab., 2007].
- Les neutrons thermiques sont responsables de la transmutation du bore et du nickel engendrant la création d'hélium. Là encore, l'effet n'est pas clairement établi, mais des travaux suggèrent qu'une plus forte production d'hélium dans les REP pourrait conduire à augmenter le gonflement [KATOH et collab., 1992].

La réponse des aciers des internes de REP au gonflement n'est donc pas si claire. En tout cas, des études récentes montrent la présence de cavités pouvant être des bulles pour des températures inférieures à 350 °C et des doses modérées, sur des vis en aciers austénitiques 316 retirées du réacteur Belge Tihange [EDWARDS et collab., 2003a; ETIENNE et collab., 2008], et même pour des températures inférieures à 300 °C dans des doigts de gants prélevés en REP [EDWARDS et collab., 2009; FOSTER et collab., 1995; FUKUYA et collab., 2006]. Ces microstructures seraient donc en accord avec une partie des études menées sur des aciers austénitiques dans des RNR montrant que des cavités pouvaient apparaître à faible débit de dose et températures correspondant aux conditions REP [GARNER et collab., 2006; MAKSIMKIN et collab., 2004, 2007; POROLLO et collab., 2006, 2002], dès les très faibles doses (0,64 dpa) [POROLLO et collab., 2006]. Les gonflements mesurés par microscopie électronique en transmission sont toutefois très faibles, au maximum de l'ordre de 0,24% à 55 dpa [EDWARDS et collab., 2003a]. Néanmoins, l'état écroui des vis, en 316, est plus résistant au gonflement que l'état hyperecroui utilisé pour les cloisons, en 304, ce qui pourrait laisser penser à un plus fort gonflement des cloisons [GARNER, 1994; SERAN et DUPOUY, 1983; ZINKLE et collab., 1993]. Toutefois, aucun gonflement macroscopique n'a actuellement été mesuré en REP, malgré la présence de cavités.

De plus, des matériaux extraits de réacteurs comme la vis de Tihange 1 en acier 316 écroui présentent des écarts de gonflement microscopique au sein même du matériau. Ces variations sont attribuées aux variations de température, flux, production d'hélium. Il est donc nécessaire de comprendre leurs effets sur l'évolution de la microstructure et du gonflement, chacun de ces paramètres pouvant modifier la cinétique du gonflement dans les aciers inoxydables austénitiques des internes inférieurs. Le peu de données sur l'évolution de ces aciers en conditions REP ne permet pas à l'heure actuelle de décrire correctement l'évolution de la microstructure sous irradiation et son impact sur l'évolution du phénomène de gonflement. Garner avance en particulier que le passage en régime de gonflement n'a lieu qu'une fois que la structure de dislocations glissiles est mise en place [GARNER, 2012; GARNER et collab., 2006].

Il apparaît donc que la compréhension de l'évolution de la microstructure sous irradiation est indispensable pour mieux comprendre le phénomène de gonflement en

conditions REP pour les internes inférieurs, d'autant plus dans le contexte actuel d'une volonté de prolongement de la durée de fonctionnement des réacteurs.

Objectifs et démarche

Le gonflement a été très étudié pour les réacteurs à neutrons rapides mais beaucoup de questions sont encore sans réponse sur le gonflement en conditions REP. En effet, la différence des spectres neutroniques des réacteurs ajoute de nouveaux facteurs pouvant fortement influencer sur la cinétique du gonflement.

L'objectif de cette thèse est de compréhension sur la microstructure et le gonflement (en ReP) au travers d'une caractérisation fine de la microstructure d'irradiation (dislocations, boucles de Frank, précipitation, cavités, ...) couplée à de la modélisation par dynamique d'amas de l'évolution de la microstructure.

Le comportement sous irradiation de deux aciers hypereutectés 304, avec des teneurs en carbone différentes, représentatifs des cloisons et renforts a été étudié. Afin de simuler les irradiations aux neutrons en conditions REP, les irradiations ont été faites aux ions lourds pour obtenir rapidement des doses importantes. Afin de décrire l'influence de différents paramètres (température, dose, teneur en hélium, composition chimique), quatre campagnes d'irradiation ont été réalisées sans implantation d'hélium jusqu'aux fortes doses, à JANNuS-Saclay (CEA), afin d'étudier l'évolution avec la dose et la température. Une autre campagne d'irradiation in-situ (avec et sans implantation d'hélium) a aussi été faite à JANNuS-Orsay, situé au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM), afin d'étudier l'apparition et l'interaction des défauts.

Les évolutions des microstructures des matériaux avec la dose, la température, et la teneur en l'hélium ont été principalement caractérisées par Microscopie Électronique en Transmission (MET) pour les défauts induits par irradiation et par Sonde Atomique Tomographique (SAT) pour d'éventuelles ségrégations et précipitations. La comparaison des différents matériaux a permis l'analyse des effets de composition chimique, plus spécifiquement de la teneur en carbone.

Enfin une analyse par modélisation en dynamique d'amas a été appliquée aux conditions d'expériences afin d'établir un jeu de paramètres permettant de reproduire l'évolution de la microstructure de ces matériaux sous irradiation. Il est ensuite étudié l'influence de certains paramètres sur la microstructure. Le code de dynamique d'amas utilisé est le code CRESCENDO (Chemical Rate Equations for the Simulation of Clustering and the Evolution of the Number or Density of Objects), co-développé par le CEA et EDF.

Organisation du manuscrit

Le manuscrit s'articule en quatre chapitres. Les irradiations d'aciers austénitiques étant un sujet fortement étudié, le but du premier chapitre est donc de faire une synthèse de la littérature sur l'évolution de la microstructure et du phénomène de gonflement, sous irradiation. Le second chapitre a pour objectif de présenter les différentes techniques de caractérisations utilisées, ainsi que les expériences d'irradiation et le matériau utilisé. La caractérisation des microstructures, à différentes doses et températures, par les techniques présentées dans le chapitre 2, est exposée dans une première partie du chapitre 3 et discutée dans une seconde. Le dernier chapitre est consacré à la dynamique d'amas, il y est décrit le modèle et la paramétrisation utilisés puis les différents résultats sont discutés.

Chapitre 1

Synthèse bibliographique des effets d'irradiation dans les aciers austénitiques inoxydables

Sommaire

1.1 Généralités sur les irradiations	8
1.1.1 Interactions particule matière	8
1.1.2 Évaluation du dommage d'irradiation	10
1.1.3 Logiciel d'aide aux calculs de doses	11
1.1.4 Transmutation	12
1.2 Évolution de la microstructure sous irradiation	13
1.2.1 Black spots	14
1.2.2 Tétraèdres de faute d'empilement	14
1.2.3 Dislocations	14
1.2.4 Ségrégations chimiques	19
1.2.5 Précipités	21
1.2.6 Cavités et bulles	22
1.3 Conséquence macroscopique : le gonflement	25
1.3.1 Effets d'irradiation influant sur le gonflement	26
1.3.2 Effets intrinsèques aux matériaux influant sur le gonflement	32
1.4 Représentativité des irradiations aux neutrons par des particules chargées	35
1.5 Modélisation des évolutions de la microstructure sous irradiation	36
1.5.1 Différentes méthodes de simulation des défauts d'irradiation	36
1.5.2 Approche en dynamique d'amas	37
1.6 Synthèse	39

1.1 Généralités sur les irradiations

1.1.1 Interactions particule matière

Sous irradiation la particule incidente (neutron, ion, électron) va interagir avec les atomes constituant le matériau cible. La collision de la particule avec la matière peut être décrite par des interactions inélastiques ou élastiques.

- Les *collisions inélastiques*, correspondent à un processus d'interactions entre les nuages électroniques de la particule incidente et de la cible. Un échauffement important a alors lieu.
- Les *collisions élastiques* quant à elles correspondent à un transfert d'énergie cinétique aux atomes cibles du réseau par la particule incidente. On parle de choc balistique. L'approximation souvent faite est celle des sphères dures ou boules de billard.

Dans le cas des collisions élastiques, le comportement de l'atome cible va dépendre de la quantité d'énergie cinétique T , qui lui aura été transféré par la particule incidente. Si cette énergie est supérieure à une énergie seuil de déplacement E_d (environ quelques dizaines d'eV) l'atome va alors changer de position cristalline de façon permanente. Il y a création d'une paire de Frenkel (une lacune et un interstitiel). L'atome déplacé par la particule incidente est appelé PKA (Primary Knock-on Atom). Le PKA est alors libre d'interagir avec d'autres atomes du réseau. Si l'énergie transférée au PKA est suffisamment élevée $T \gg E_d$, il va à son tour pouvoir provoquer des déplacements en chaîne d'autres atomes (qui pourront aussi provoquer de nouveaux déplacements) jusqu'à avoir une énergie ne permettant plus de créer de paires de Frenkel, cet atome sera alors en position d'interstitiel dans le réseau. L'ensemble de ces déplacements en chaînes est communément appelé cascades de déplacement.

TABLEAU 1.1 – Chronologie de l'évolution des défauts dans une cascade [ULLMAIER et SCHILLING, 1980].

Temps (s)	Evènements	Résultats
10^{-18}	Transfert d'énergie de la particule incidente à la cible.	Création du PKA.
10^{-13}	Déplacement des atomes du réseau par le PKA.	Cascade de déplacement.
10^{-11}	Dissipation d'énergie et recombinaisons spontanées.	Paires de Frenkel stables (interstitiels et lacunes isolés), amas de défauts.
$>10^{-8}$	Interactions des défauts par activation thermique.	Recombinaisons d'interstitiels et de lacunes, agglomération, diffusion de défauts.

Au cours de la cascade, de nombreux défauts ponctuels tels que les interstitiels et les lacunes ainsi que des petits amas de défauts sont créés. Le déroulement d'une cascade est extrêmement rapide, de l'ordre de la picoseconde (10^{-12} s) et elle est très spatialement réduite, environ 10 nm. Bien que très rapide, la cascade peut être décomposée en plusieurs étapes résumées dans le tableau 1.1. Après la collision, le PKA va à son tour déplacer différents atomes de la matrice impliquant la création de sous-cascades. Une étape présentant un pic thermique a lieu, entraînant la forte augmentation du nombre d'atomes déplacés

sans la création de nouvelles sous cascades [WAS, 2007] suivie d'une phase de restauration pendant laquelle la grande majorité des atomes déplacés se recombinent avec des lacunes, et au final seulement quelques défauts persistent. La fraction de défauts persistante à la fin de la cascade est appelée efficacité de cascade. Celle-ci a été mesurée ou calculée par dynamique moléculaire (DM) à des ratios proches de 30% [AVERBACK et collab., 1978a,b; JUNG, 1983; KINNEY et collab., 1984; OSETSKY et BACON, 2003] pour des irradiations à basse température. À plus haute température ($\sim 350^\circ\text{C}$), la diffusion thermique des défauts est activée et des efficacités de cascades d'environ 1% sont mesurées [MAO et collab., 2015; REHN, 1990; REHN et collab., 1984, 1978]. Des études par DM dans des métaux purs montrent que les défauts lacunaires sont situés en grande concentration au centre des cascades tandis que les interstitiels sont principalement en périphérie [BACON et collab., 1997].

Suivant la nature de la particule incidente et de son énergie, le nombre et la taille des cascades et la zone irradiée ne seront pas identiques. En effet, l'interaction de la particule incidente avec les atomes du réseau va dépendre de sa section efficace, dépendant elle-même de la taille et de la charge de la particule. La figure 1.1 schématise les types de cascades et les zones irradiées obtenues suivant la particule incidente. Il est aussi reporté sur cette figure un ordre de grandeur de l'efficacité de cascade et de l'énergie moyenne des PKA formés.

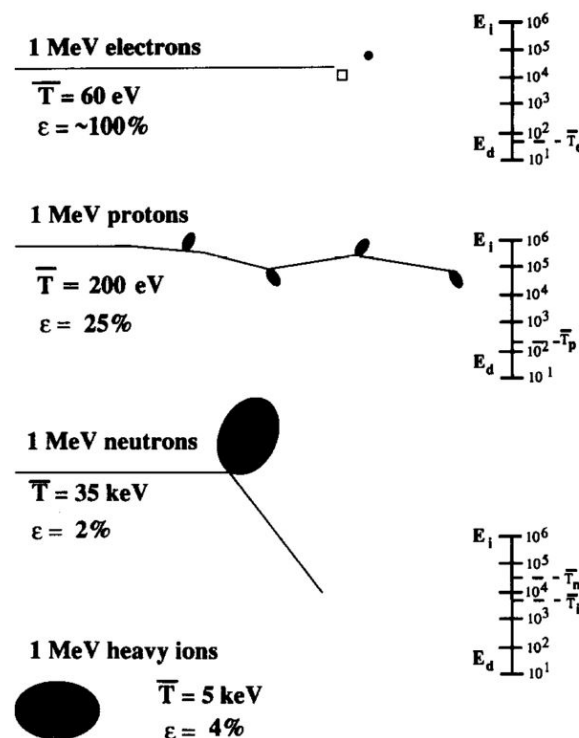


FIGURE 1.1 – Morphologie des dommages suivant le type de particule incidente de même énergie. L'énergie moyenne des PKA, \bar{T} , et un ordre de grandeur de l'efficacité de cascade, ϵ , sont donnés.

- *Les neutrons* sont des particules neutres et de petite taille, l'interaction avec le noyau d'un atome du réseau peut être interprétée comme une collision élastique entre deux sphères dures. La faible section efficace des neutrons leur permet de pénétrer profondément dans le matériau et ainsi d'irradier de façon homogène une grande profondeur.

- *Les ions lourds* peuvent être considérés comme le PKA des irradiations aux neutrons. Comme ils sont chargés électroniquement et de grandes tailles, leur section efficace est grande. Leur distance de pénétration est donc limitée. Ils permettent d'étudier les phénomènes d'irradiation faisant intervenir les cascades de déplacement permettant de créer des défauts ponctuels et des amas de types interstitiels ou lacunaires. Les irradiations aux ions lourds sont de plus en plus utilisées afin de reproduire les irradiations aux neutrons et certaines études tendent à montrer des convergences de résultats [WAS, 2007].
- *Les protons* permettent la création de nombreuses petites cascades dispersées et donc d'obtenir des irradiations sur des profondeurs importantes comparées aux ions lourds, avec un profil de dommage homogène de l'ordre de quelques micromètres. Dans certaines conditions des études ont montré que les microstructures obtenues par irradiation aux protons à basse température sont semblables à celles réalisées après irradiation aux neutrons [WAS et collab., 2002].
- *Les électrons* créent seulement des paires de Frenkel [WAS, 2007]. Les irradiations sont habituellement réalisées à l'aide de microscopes électroniques en transmission à haute tension.

1.1.2 Évaluation du dommage d'irradiation

Étant donnée la différence des effets d'irradiation suivant le type de particules incidentes, une unité de mesure du dommage a été mise en place afin d'avoir un point de comparaison. Le déplacement par atome (dpa) est l'unité permettant de mesurer le dommage induit par irradiation dans un matériau. Il correspond au nombre moyen de fois qu'un atome est déplacé de sa position cristallographique initiale. Il est à noter que les calculs de dpa ne tiennent pas compte des recombinaisons lacunes/interstitiels et sont faits pour des températures de 0 K.

Le nombre de déplacements par unité de volume et par seconde est défini par l'équation suivante dont les paramètres sont calculés suivant différents modèles,

$$\frac{\text{dpa}}{\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}} = \rho * \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \phi(E_i) \sigma(E_i, T) v(T) dT dE_i. \quad (1.1)$$

- $\phi(E_i)$, le flux de particules incidentes d'énergie E_i ,
- $\sigma(E_i, T)$, la probabilité qu'une particule incidente d'énergie E_i transfère une énergie T à un PKA,
- $v(T)$, le nombre de déplacements d'atomes par PKA,
- ρ , la densité du matériau.

Afin de pouvoir remonter au « déplacement par atome », il est donc nécessaire de calculer le nombre de déplacements induits par PKA ainsi que de connaître la probabilité qu'une particule incidente crée un PKA par collision élastique. Pour cela, différents modèles ont été développés.

Le modèle sûrement le plus connu est celui développé par Kinchin et Pease [KINCHIN et PEASE, 1955]. Ce premier modèle simple repose sur le principe que la relation entre le nombre de paires de Frenkel et l'énergie initiale du PKA est linéaire entre une énergie de seuil de déplacement (E_d) et une énergie limite haute (E_c). En dessous de l'énergie de seuil, la particule n'a pas assez d'énergie pour provoquer un déplacement d'atome, aucun déplacement n'a lieu. Au-dessus de l'énergie limite haute, l'énergie en excès est dissipée par excitation électronique et par ionisation.

Kinchin et Pease proposent donc pour un PKA d'énergie T que le nombre de déplacements induits soit décrit par :

$$v(T) = \begin{cases} 0 & \text{si } T < E_d \\ 1 & \text{si } E_d < T < 2E_d \\ \frac{T}{2E_d} & \text{si } 2E_d < T < E_c \\ \frac{E_c}{2E_d} & \text{si } T \geq E_c \end{cases} \quad (1.2)$$

Depuis de nombreuses modifications ont été apportées à ce modèle afin de prendre en compte les collisions élastiques, pertes électroniques, effets de cristallinité, transfert d'énergie, ... Ces modifications ont donné lieu à d'autres modèles [ETHERINGTON et collab., 1975; NORGETT et collab., 1975; ROBINSON, 1994]. C'est en 1975 que Norgett, Robinson et Torrens développent le modèle NRT [NORGETT et collab., 1975] permettant de déterminer le déplacement par atome induit par un PKA d'énergie T . Ce modèle est maintenant largement utilisé, il est basé sur la formule modifiée de Kinchin-Pease.

$$v_{\text{NRT}}(T) = 0,8 * \frac{\hat{E}}{2E_d} = 0,8 * \frac{T_{\text{dam}} * T}{2E_d}. \quad (1.3)$$

Avec, \hat{E} l'énergie disponible pour générer un déplacement atomique par collision élastique, T_{dam} la portion d'énergie du PKA disponible pour les interactions élastiques du PKA avec les atomes du réseau.

Il est impossible de comparer directement des irradiations aux neutrons et aux particules chargées en termes de fluences. Cependant, le dpa NRT est indépendant des conditions d'irradiation et ne prend en compte que le spectre d'énergie des PKA qui est connu pour chaque irradiation. Cela autorise ainsi à corréler des données obtenues par irradiation aux neutrons avec des irradiations aux particules chargées. Le dpa NRT est certes indépendant des conditions d'irradiation, mais des paramètres (transmutation, températures, débit de dose, ...) ne sont pris en compte par aucun modèle et sont déterminants lors de comparaison des résultats [STOLLER et collab., 2013].

1.1.3 Logiciel d'aide aux calculs de doses

Deux principaux logiciels basés sur l'approximation de collisions binaires, ont été développés afin de déterminer le nombre et la position de défauts créés sous irradiation.

MARLOWE est un code développé par Robinson [ROBINSON, 2002; ROBINSON et TORRENS, 1974], à la base pour des cibles amorphes, puis il a été modifié pour prendre en compte la cristallinité des matériaux. Il permet de simuler les cascades dans des cristaux et donne des résultats proches de l'expérience, cependant son utilisation n'est pas aisée.

Le logiciel Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM) [ZIEGLER et collab., 2008], développé par Ziegler, permet la simulation d'irradiations et d'implantations d'ions. Il repose sur une approche Monte Carlo. SRIM se base seulement sur des collisions binaires entre deux particules. 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. En aucun cas, le logiciel ne prend en compte les phénomènes tels que la cristallinité, le recouvrement potentiel de cascades, les recombinaisons ainsi que les interactions avec les atomes proches de la trajectoire. Il n'est donc pas possible de considérer les résultats de SRIM comme exacts mais comme une aide aux prédictions de dommage. Pour ces calculs, le matériau cible est considéré comme amorphe. Le logiciel ne prend en compte que l'énergie seuil de déplacement ce qui le rend simple d'utilisation et

permet de remonter rapidement au calcul de dpa.

Deux méthodes de calculs sont notamment proposées :

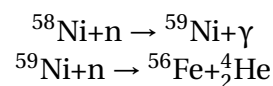
- *Ion distribution and quick calculation damage* (Kinchin-Pease, K-P)
- *Detailed calculation with full damage cascades* (Full cascades, F-C)

La première méthode se base sur le formalisme de Kinchin et Pease (K-P). Le logiciel ne fait simplement que calculer le spectre des PKA par ion incident et calcule le nombre d'atomes déplacés induit par ces PKA avec la formule de Kinchin et Pease. Ce qui se passe au sein même d'une cascade n'est pas décrit. La seconde méthode (F-C) se veut plus précise en détaillant précisément l'évolution de chaque cascade.

Cependant dans une publication de 2013, Stoller montre pour les métaux une divergence des résultats suivant l'utilisation des fichiers résultats [STOLLER et collab., 2013]. De plus, alors que les résultats obtenus en K-P se rapprochent de ceux de la dynamique moléculaire et du modèle NRT, ceux obtenus par F-C s'en éloignent sensiblement. Stoller conseille donc l'utilisation de la méthode utilisant le formalisme K-P, avec des énergies de seuil de 40 eV pour les alliages à base de fer. Etant donné que SRIM permet d'obtenir des résultats proches du model NRT devenu un standard depuis les années 1970, ce logiciel simple sera utilisé pour préparer les irradiations.

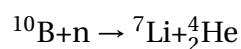
1.1.4 Transmutation

Lors de l'interaction entre le neutron et la matière, en plus du dommage et de la modification microstructurale, le neutron peut interagir avec les noyaux des atomes du matériau irradié pouvant aller jusqu'à la transmutation de l'atome cible. Plusieurs réactions de transmutation avec production d'hélium sont possibles lors d'irradiations aux neutrons, pour les aciers austénitiques, la plus importante sur le long terme est celle mettant en jeu le nickel. Les neutrons responsables de la transmutation du nickel sont les neutrons thermiques ou de faibles énergies. La transmutation du nickel peut être décrite par les réactions suivantes :



En REP, la production d'hélium par transmutation dans les aciers austénitiques est souvent estimée à environ 15-25 appm.dpa⁻¹ [GARNER, 2012; GARNER et collab., 1993]. Cependant de récents dosages d'hélium sur des vis d'internes de REP montrent des taux d'hélium plus faibles, d'environ 5-10 appm.dpa⁻¹ [EDWARDS et collab., 2009, 2003a; FUKUYA et collab., 2006].

D'autres transmutations peuvent mener à la production d'hélium, telle que celle du bore, cependant la contribution est limitée (<< 50 appm) [GARNER et collab., 2006] car il est observé une saturation rapide due à la disparition précoce par transmutation de cet isotope (teneur limitée en bore) [BYRNE et collab., 2001]. Au contraire, aucune saturation avec le nickel n'est attendue en condition REP [GREENWOOD, 1983].



La création d'hélium par transmutation va influencer sur l'évolution des cavités. L'hélium n'étant pas soluble, de fines bulles d'hélium peuvent se former dans le matériau et ainsi potentiellement créer des sites préférentiels pour la germination de cavités [GARNER, 2012]. L'hélium est donc un facteur pouvant modifier la cinétique du gonflement

en conditions REP en comparaison aux RNR. Enfin, de l'hydrogène très mobile [GARNER et collab., 2006] peut aussi être créé par transmutation induite par des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV. Une étude montre que l'hydrogène a un effet plus important que l'hélium sur le gonflement pour des températures supérieures à 525 °C tandis que pour des températures inférieures l'hélium a un effet plus important [BORODIN et collab., 2013]. Cette même étude propose que l'hélium et l'hydrogène augmente la gamme de température pour laquelle le gonflement a lieu [BORODIN et collab., 2013].

1.2 Évolution de la microstructure sous irradiation

Sous irradiation, la microstructure des aciers austénitiques va donc évoluer. Les défauts ponctuels et les amas formés lors des cascades vont interagir. L'évolution des amas lacunaires ou interstitiels ainsi que la mobilité des défauts ponctuels dans le matériau vont permettre aux défauts de plus grande taille de se former et de croître. Dans les aciers austénitiques, les amas interstitiels s'organisent sous la forme de boucles de Frank tandis que les amas lacunaires sont sous forme de cavités ou de tétraèdres de faute d'empilement. La diffusion des défauts mobiles sous irradiation vers des puits (dislocations, cavités, joints de grain, black spots, boucles de Frank, ...) va faire évoluer le réseau de dislocations et des phénomènes de ségrégation ou de précipitation peuvent apparaître. Cette partie a pour but de présenter l'évolution des différents défauts microstructuraux, sous irradiation, dans les aciers austénitiques afin d'aborder dans une partie suivante une conséquence macroscopique que peuvent engendrer de telles modifications de la microstructure et qui est le gonflement.

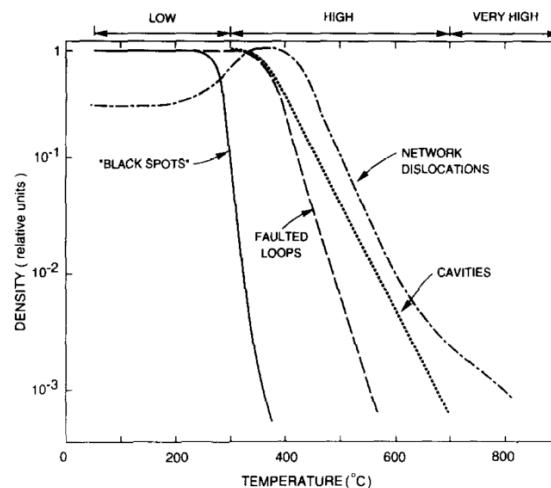


FIGURE 1.2 – Dépendance en température des densités de différents défauts d'irradiations aux neutrons dans des aciers austénitiques [ZINKLE et collab., 1993].

Ainsi, Zinkle résume (figure 1.2) l'évolution de la microstructure, sous irradiation aux neutrons, en trois régimes de températures [ZINKLE et collab., 1993]. Les basses températures (50-300 °C), pour lesquelles la microstructure d'irradiation est principalement composée de petits défauts, difficilement identifiables et présentant un contraste noir en champ clair, de ce fait ils sont appelés black spots. Ils sont généralement présents en très grand nombre. En régime des hautes températures (300-700 °C), la mobilité des lacunes et des interstitiels, va permettre à la microstructure d'évoluer et de former des amas de plus grandes tailles. Les black spots vont disparaître ou évoluer en faveur des boucles de Frank, des cavités ainsi que d'un réseau de dislocations. À très hautes températures (> 700 °C) la

dissociation des amas lacunaires et interstitiels est suffisamment importante pour que les défauts d'irradiation soient recuits et ne soient plus visibles.

1.2.1 Black spots

Les black spots ou black dots sont de petits défauts qui se forment en début d'irradiation. Ils tiennent leur nom du contraste observé en MET en champ clair. Leur petite taille ($< 2-3$ nm) ne permet pas une réelle identification sur la nature interstitielle ou lacunaire du défaut. Leur taille proche de la limite de résolution des observations MET ne rend pas l'identification aisée. Les black spots sont décrits comme étant soit des boucles de dislocations interstitielles [EDWARDS et collab., 2006; FUKUYA et collab., 2006] soit comme des amas de type lacunaires [EDWARDS et collab., 2003b; MAZIASZ, 1993; ZINKLE et collab., 1993]. Des études menées sur des alliages ternaires FeCrNi montrent que les black spots seraient formés lors de la trempe des cascades de déplacement [YOSHIDA, 1990]. Lors d'irradiations à basse température (< 300 °C) les black spots sont les principaux défauts observables et leur densité à saturation (maximum 10^{24} m⁻³) est relativement indépendante de la température [ZINKLE et collab., 1993]. À partir de 250 °C, la densité des black spots diminue fortement jusqu'à disparaître pour des températures supérieures à 400 °C (figure 1.2).

1.2.2 Tétraèdres de faute d'empilement

Les tétraèdres de faute d'empilement (SFT, pour Stacking Fault Tetrahedra) sont des amas de type lacunaire tri-dimensionnel. Ils sont délimités par quatre fautes d'empilement situées sur les plans denses de type {111}. Les quatre fautes d'empilement sont reliées par une dislocation vis partielle de type $\frac{a_0}{6}\{110\}$ [SCHÄUBLIN et collab., 2005]. Ces défauts d'irradiation ne sont observables que dans les structures cubiques faces centrées qui présentent des plans denses ainsi qu'une énergie de fautes d'empilement faible.

Sous irradiation des SFT peuvent se former dans les métaux comme souligné par Schibli et Schäublin dans une revue de la littérature à ce sujet [SCHIBLI et SCHÄUBLIN, 2013]. Au-delà des matériaux modèles tels que le cuivre, nickel et palladium où les SFT sont observés [KIRITANI, 1994; KIRITANI et collab., 1990; SCHÄUBLIN et collab., 2005; ZINKLE et collab., 1986], ils peuvent aussi être observés dans les aciers austénitiques modèles [KOJIMA et collab., 1986; SATOH et collab., 2007; STOLLER et ODETTE, 1988]. Dans les aciers austénitiques commerciaux la présence de SFT ne fait pas consensus, un certain nombre d'étude n'observent pas de SFT [HASHIMOTO et collab., 2006; STOENESCU et collab., 2007; WAS et collab., 2002], plus rarement quelques études ont mis en évidence des SFT pour des irradiations à basses températures, inférieures à 300 °C [DAI et collab., 2001; SAWAI et collab., 2006; SEKIMURA et collab., 1988]. Edwards montre que dans certaines conditions d'observation, si deux boucles proches mais situées dans deux plans distincts sont imagées sur la tranche, le contraste observé peut induire en erreur vers la présence d'un SFT [EDWARDS et collab., 2003b].

1.2.3 Dislocations

1.2.3.1 Boucles de Frank

Les boucles de Frank se forment par agglomération de défauts (interstitiels ou lacunaires) dans les quatre plans {111} de l'austénite et présentent une faute d'empilement

avec la matrice. Il existe deux types de boucles de Frank, lacunaires ou interstitielles schématisées sur la figure 1.3.

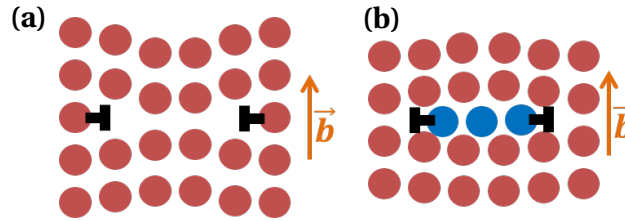


FIGURE 1.3 – Schémas des boucles fautées lacunaires (a) et interstitielles (b).

De manière générale les boucles fautées formées sous irradiations aux neutrons à haute température dans les aciers austénitiques, d'un diamètre supérieur à 10 nm, sont des boucles interstitielles [EDWARDS et collab., 2003a]. Il est cependant possible d'obtenir des boucles lacunaires. Par exemple Stoenescu observe dans du 304 irradié aux neutrons des boucles interstitielles et lacunaires à basse température ($< 300^\circ\text{C}$) et faible dose ($< 1 \text{ dpa}$) [STOENESCU et collab., 2007]. La température de 300°C est une température limite au-delà de laquelle les amas lacunaires commencent à émettre des lacunes et sont alors moins stables [ZINKLE et collab., 1993] ce qui peut expliquer que certaines études montrent des boucles lacunaires à faible température tandis qu'il a longtemps été considéré que les boucles de Frank sont de natures interstitielles, lors d'irradiations à plus haute température.

La taille, la densité et l'apparition des boucles de dislocations sous irradiation sont des paramètres fortement dépendant des conditions d'irradiations (flux, dose, température) ainsi que de la composition chimique et de l'état métallurgique du matériau.

Les boucles de Frank formées sous irradiation ont un vecteur de Burgers de type $\mathbf{b} = \frac{a}{3} \langle 111 \rangle$ et présentent une faute d'empilement, elles sont dites fautées, le vecteur de Burgers est perpendiculaire au plan d'habitat de la boucle. Les boucles de Frank sont alors sessiles, c'est-à-dire qu'elles ne glissent pas dans leur plan d'habitat. Le fait que les boucles soient sessiles entraîne un durcissement du matériau sous irradiation [EDWARDS et collab., 2003b]. Cependant dans certaines conditions (haute température, boucles de grande taille) il est possible que les boucles de Frank se défautent et s'incorporent au réseau de dislocations par interaction. Plusieurs mécanismes sur le défautement des boucles ont été émis.

Le premier mécanisme décrit en figure 1.4, correspond à l'interaction d'une dislocation parfaite mobile de vecteur de Burgers $\mathbf{b} = \frac{a}{2} [\bar{1}\bar{1}0]$ du réseau avec une boucle de Frank $\mathbf{b} = \frac{a}{3} [111]$, conduisant à la formation de deux partielles permettant le défautement de la boucle de Frank et son incorporation au réseau de dislocations. Les deux équations suivantes présentent le mécanisme [GELLES, 1981, 1993] :

$$\frac{a}{3} [111] + \frac{a}{2} [\bar{1}\bar{1}0] \rightarrow \frac{a}{6} [2\bar{1}\bar{1}] + \frac{a}{6} [\bar{1}\bar{2}\bar{1}]$$

$$\frac{a}{6} [2\bar{1}\bar{1}] + \frac{a}{6} [\bar{1}\bar{2}\bar{1}] + \frac{a}{3} [111] \rightarrow \frac{a}{2} [\bar{1}\bar{1}0]$$

Le second mécanisme de défautement (fig. 1.5) passe par la formation d'une boucle partielle de Shockley de type $\frac{a}{6} [11\bar{2}]$ dans la boucle de Frank. Cette boucle partielle va interagir avec la boucle de Frank suivant le mécanisme [TANIGAWA et collab., 1996].

$$\frac{a}{6} [11\bar{2}] + \frac{a}{3} [111] \rightarrow \frac{a}{2} [110]$$

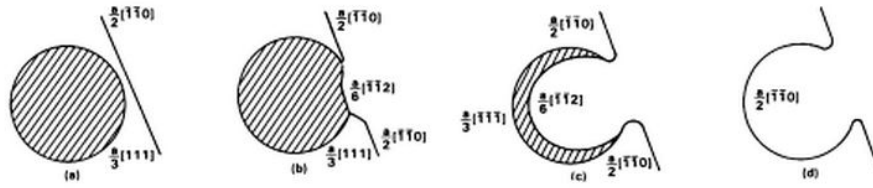


FIGURE 1.4 – Défautement des boucles de Frank et incorporation au réseau de dislocations d’après le mécanisme proposé par Gelles [GELLES, 1981, 1993].

Après le défautement, il ne reste alors qu’une boucle de dislocation parfaite, glissile et qui peut ensuite interagir avec le réseau.

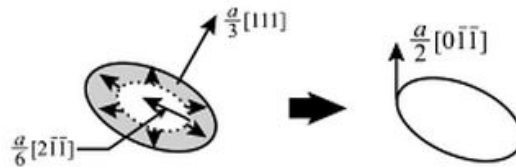


FIGURE 1.5 – Défautement des boucles de Frank par une boucle de Shockley.

D’un point de vue énergétique, l’énergie de formation d’une boucle de Frank représente la somme de l’énergie d’une faute d’empilement, proportionnelle à la surface de la boucle de rayon R ($\gamma\pi R^2$) et de l’énergie de ligne de dislocation de vecteur de Burgers b_F ($2\pi R \frac{\mu b_F^2}{2}$). Si l’on compare à l’énergie de la boucle parfaite ($2\pi R \frac{\mu b_P^2}{2}$), il est possible de déterminer un rayon critique à partir duquel la boucle parfaite devient énergétiquement favorable ($R_c = \mu \frac{b_P^2 - b_F^2}{\gamma}$). Au-delà de ce rayon critique, les boucles de Frank auront tendance à se défauter afin de minimiser leur énergie libre [BARBU et MARTIN, 1993]. Ce phénomène de défautement peut expliquer en partie l’observation d’une saturation du durcissement d’irradiation avec la dose des aciers austénitiques. Certaines études montrent que la saturation de la densité et de la taille des boucles de Frank serait le résultat d’un équilibre entre le taux de création des boucles et celui de défautement des grandes boucles de Frank [FUKUYA et collab., 2006].

Que ce soit par irradiation aux neutrons ou aux ions, les boucles de Frank se forment dès les premiers instants [LE MILLIER, 2014]. La structure de dislocations évolue en fonction de la dose et en fonction de la gamme de température jusqu’à atteindre un équilibre dynamique [BRUEMMER et collab., 1999; GAN et collab., 2004; ZINKLE et collab., 1993]. Quelle que soit la température, la densité et la taille des boucles croissent rapidement lors des premiers dpa jusqu’à saturation. Cela est dû à un équilibre dynamique du flux de défauts ponctuels interstitiels et lacunaires ainsi qu’au phénomène d’interaction entre boucles et/ou interaction avec le réseau de dislocations. Cette saturation, en taille et densité des boucles, intervient pour des doses relativement faibles aux basses températures, 1 dpa pour des irradiations à 320-380 °C [ETIENNE et collab., 2010b; POKOR, 2002] et peut être supérieure à plus forte température, de l’ordre de 10 dpa à 500 °C [GAN et collab., 2004]. Cette saturation est observable aux ions, la figure 1.6 met en évidence cet effet à différentes températures pour la densité et la taille des boucles de Frank.

Sur la figure 1.6, il est possible d’observer l’effet de la température sur la densité et la taille des boucles lors d’irradiation aux ions, on note qu’une augmentation de la température entraîne une augmentation de la taille moyenne ainsi qu’une diminution de la

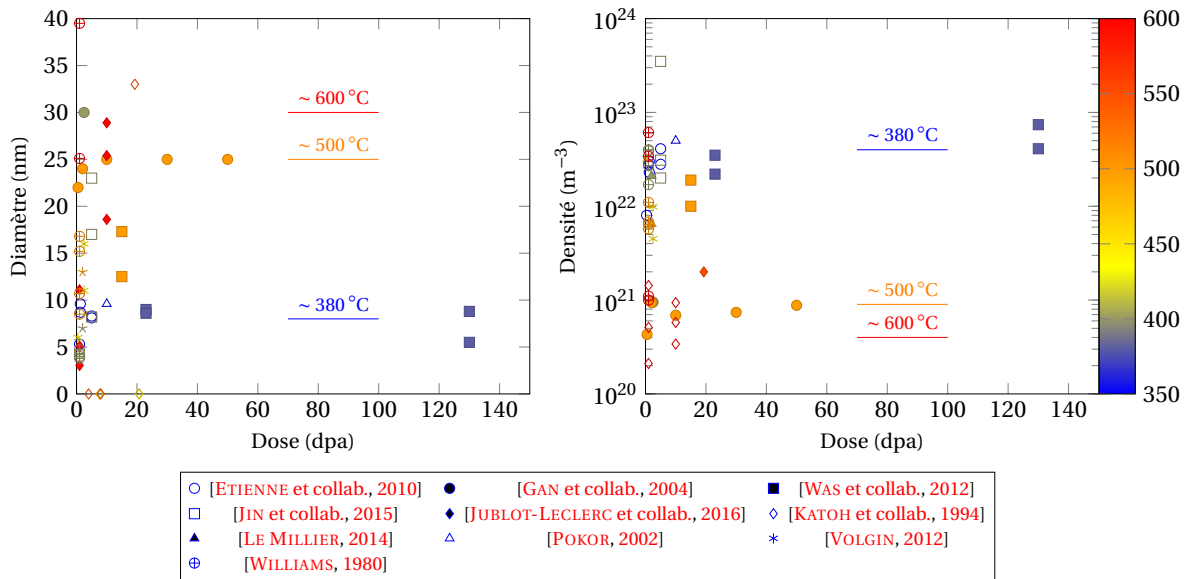


FIGURE 1.6 – Diamètre et densité des boucles de Frank formées dans du 304 et 316 irradiés aux ions.

densité. Peu de données sont disponibles concernant les fortes doses. Deux études [GAN et collab., 2004; WAS et collab., 2012] montrent la saturation en taille et en doses à deux températures différentes pour ce type d'irradiations.

La figure 1.7 est inspirée de Zinkle [ZINKLE et collab., 1993] et mise à jour avec des données plus récentes obtenues en RNR. Pour une augmentation de la température au-delà de 300 °C il est observé une diminution de la densité des boucles d'un facteur supérieur à 100 entre 300 et 600 °C. La taille des boucles de Frank augmente quant à elle avec la température [COLE et collab., 2006], température qui potentiellement augmente le taux de défautement pouvant ainsi contribuer à la réduction de la population de boucles à haute température [WAS, 2007].

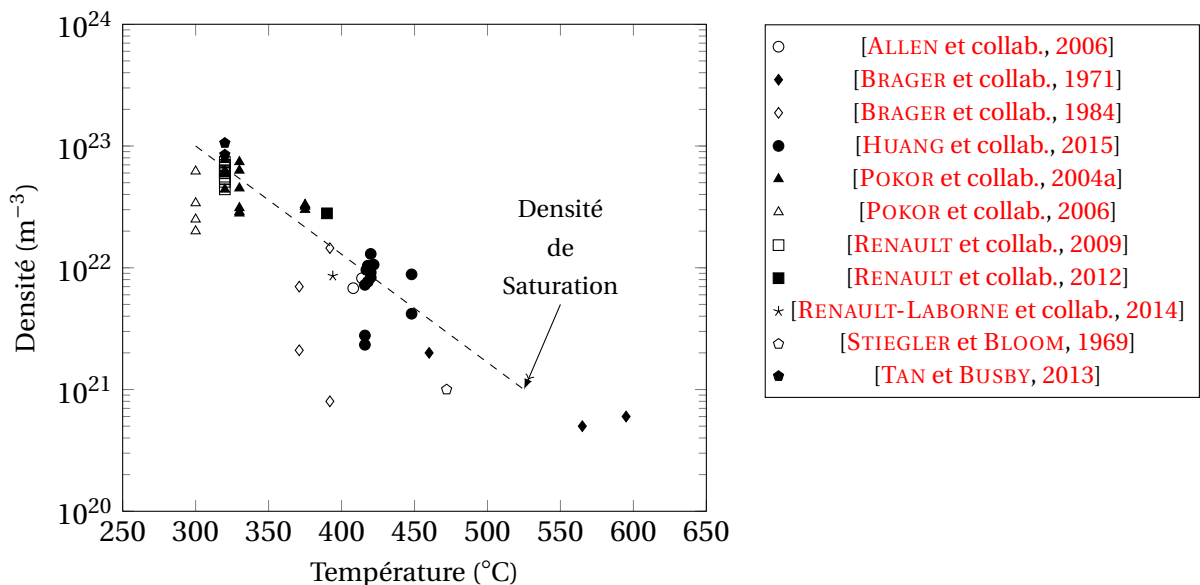


FIGURE 1.7 – Évolution de la densité des boucles de Frank avec la température dans les aciers austénitiques 304 et 316, après irradiation aux neutrons.

En conditions REP, dans les aciers 304 et 316 et pour des températures de fonction-

nement comprises entre 290 °C et 360 °C, la taille et la densité à saturation sont respectivement de l'ordre de ~ 10 -15 nm et $\sim 10^{22}$ - 10^{23} m^{-3} . La figure 1.8 illustre cette saturation, elle est basée sur une compilation de résultats disponibles dans la littérature pour des conditions d'irradiation REP.

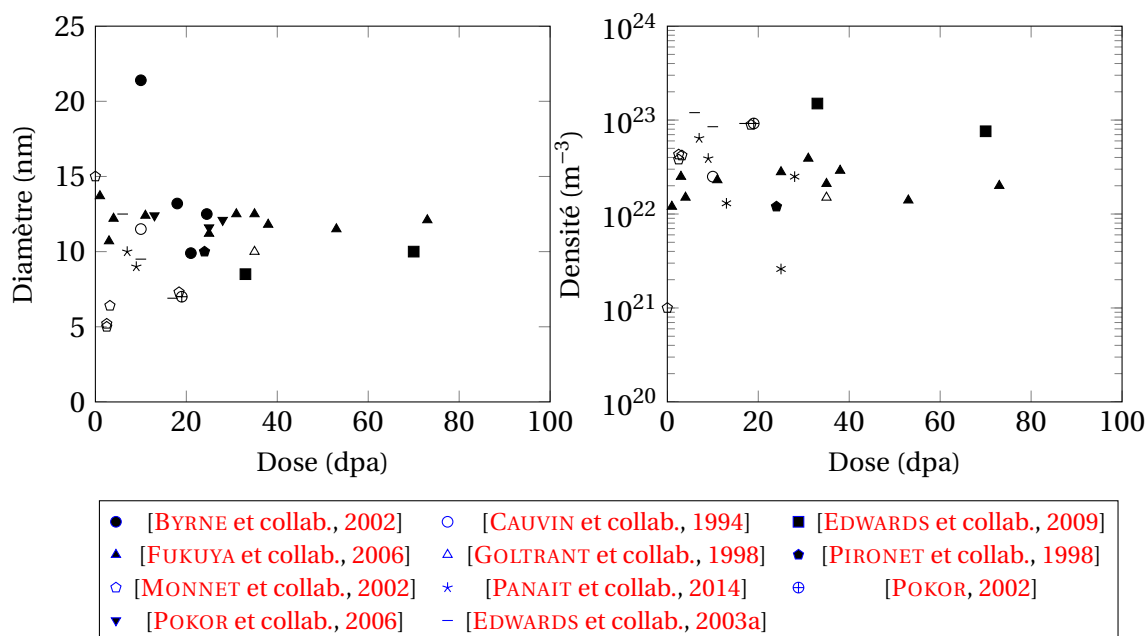


FIGURE 1.8 – Taille et densité des boucles de Frank dans des aciers 304 et 316 irradiés en conditions REP pour des température comprises entre 290 et 360 °C.

Quel que soit le type d'irradiation, une saturation en taille et en densité des boucles de Frank est atteinte rapidement. Il a été avancé que l'état métallurgique ou la composition n'avait pas d'effet majeur sur les diamètres et densités de saturation des boucles de Frank mais principalement sur la dose de saturation [BRAGER et collab., 1977; ZINKLE et collab., 1993]. Cependant des études récentes [RENAULT et collab., 2009; RENAULT LABORNE et collab., 2015] ont montré lors d'irradiations dans Phénix et BOR-60, qu'à basse température l'effet de la composition et de l'état métallurgique ne sont en effet pas visibles, alors que à plus haute température (390 °C) des différences entre nuances et états métallurgiques sont observables. Les états écrouis présentent une densité et un diamètre moyen de boucles de Frank respectivement plus grand et plus petit à saturation. La dose de saturation des boucles est retardée par les basses températures et l'écrouissage (voir paragraphe suivant). En effet, une réduction de la densité de dislocations linéaires est d'abord nécessaire avant d'atteindre un régime de saturation [BRAGER et collab., 1977; ZINKLE et collab., 1993].

Enfin, il est à noter que, pour de faibles doses (< 5 dpa) dans les aciers austénitiques hypereutectés, la distribution des boucles de dislocations peut être hétérogène au sein d'un même grain. En effet, il a été montré l'existence d'une zone de quelques dizaines de nanomètres située aux joints de grains où aucune boucle de Frank n'est observable [EDWARDS et collab., 2003b]. Ces observations ont été faites pour des irradiations aux neutrons. La taille des zones diminue avec la dose jusqu'à disparaître au-delà de 10 dpa [EDWARDS et collab., 1999; FUKUYA et collab., 2006]. Une hypothèse permettant d'expliquer ce phénomène est la présence du joint de grain à proximité, qui agit comme un puits pour les défauts. Le joint de grain permet d'annihiler les défauts ponctuels, la sursaturation en interstitiels est plus faible proche des joints de grains. Ceci empêche la formation des

boucles de Frank jusqu'à une dose de quelques dpa au-delà de laquelle la sursaturation nécessaire à la nucléation des boucles est atteinte [EDWARDS et collab., 2003b, 1999].

1.2.3.2 Réseau de dislocations

Suivant l'état métallurgique du matériau, le réseau de dislocations avant irradiation n'est pas le même. Les aciers austénitiques écrouis présentent à l'état de réception un réseau de dislocations organisé sous forme de cellules [ETIENNE, 2009; POKOR, 2002]. La densité de dislocations est typiquement comprise entre 10^{14} m.m⁻³ et 10^{16} m.m⁻³ [ETIENNE, 2009; MAZIASZ, 1993]. Pour les aciers hypereutectés, au contraire, on trouve une microstructure de dislocations isolées, et une densité comprise entre 10^{10} m.m⁻³ et 10^{12} m.m⁻³.

Sous irradiation, la densité de dislocations va évoluer jusqu'à saturation [BRAGER et collab., 1984, 1977; BRAGER et STRAALSUND, 1973]. Des études ont mis en évidence que l'état métallurgique du matériau n'a pas d'influence sur la densité de saturation des dislocations [AZAM et collab., 1979; BRAGER et STRAALSUND, 1973]. Cependant peu d'études sont disponibles sur l'évolution du réseau avec la dose et la température. La densité de dislocations d'un état écroui diminue d'un ordre de grandeur tandis que la densité des états hypereutectés augmente de deux [MAZIASZ, 1992]. Pour des irradiations aux neutrons à 550 °C la densité de saturation serait proche de 10^{15} m⁻² [BRAGER et collab., 1977]. L'évolution de la densité de dislocations est associée au défautement de boucles de Frank et de leur incorporation au réseau de dislocations pour les états hypereutectés, tandis que la diminution de la densité dans les états écrouis serait due à la restauration. L'absorption préférentielle d'interstitiels par les dislocations leur permet de monter et de s'annihiler sur des joints de grains ou autres défauts, ou de s'annihiler entre elles. Cela expliquerait le fait que la dose à saturation est plus grande pour les états hypereutectés (20-25 dpa) qu'écrouis (< 5 dpa). La forte densité de dislocation dans les états écrouis n'empêche pas la formation de boucles interstitielles mais la limite fortement lors des premiers dpa. Enfin les études à basse température sur le réseau de dislocations aux fortes doses sont rares voir inexistantes, aucune information en conditions REP n'est disponible.

1.2.4 Ségrégations chimiques

Sous irradiation, le déplacement des atomes et la diffusion des défauts peuvent amener le matériau dans un état chimique local hors équilibre. On parle de ségrégation induite par irradiation car ce phénomène est dû à la redistribution des atomes en solution solide en lien avec la diffusion des défauts d'irradiation. La ségrégation ou la déplétion de certains éléments d'alliage est la conséquence de deux processus de diffusion l'un est interstitiel et l'autre est lacunaire. Les effets de ségrégation ont généralement lieu aux joints de grains mais aussi au niveau des boucles de Frank, bulles d'hélium et cavités. La rétrodiffusion est très rapide au-delà de quelques nanomètres des puits où la diffusion induite par irradiation est prédominante, ce qui explique que les ségrégations induites par irradiation soient très localisées au niveau des puits.

Le mécanisme lacunaire (fig.1.9), ou effet Kirkendall lacunaire inverse, est la conséquence de la diffusion des lacunes vers les puits. En effet, si un élément d'alliage présente un coefficient de diffusion lacunaire supérieur au coefficient moyen de diffusion, l'élément va alors interagir préférentiellement avec les lacunes appauvrissant les puits en cet élément [ALLEN et collab., 2005; SIMONEN et BRUEMMER, 1996]. Les éléments avec un coefficient de diffusion lacunaire plus faible enrichiront alors les puits.

Le mécanisme interstitiel, provient des interactions élastiques entre les éléments en solution solide et les interstitiels (fig. 1.9). Les éléments ayant une petite taille vont préférentiellement interagir avec les interstitiels qui vont les entrainer aux puits [REHN et collab., 1978], au dépens des éléments plus volumineux.

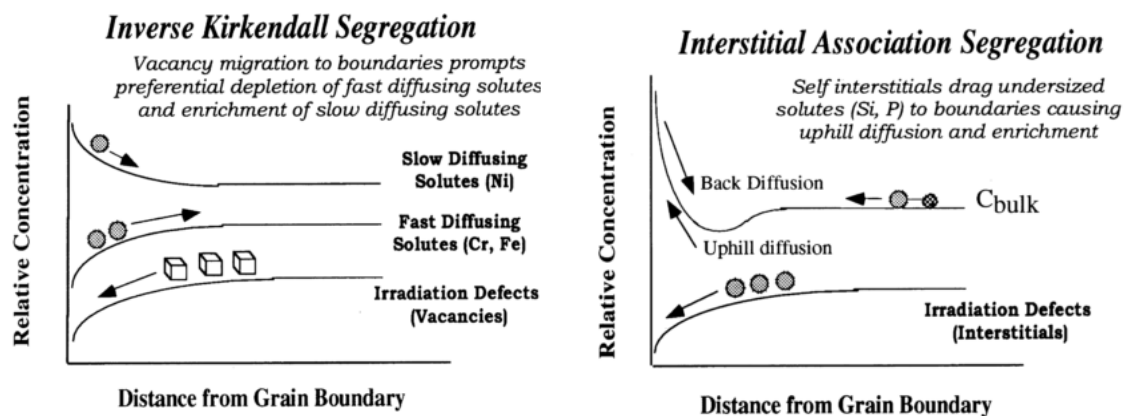


FIGURE 1.9 – Mécanismes lacunaire et interstitiel de ségrégation sous irradiation aux puits de défauts [BRUEMMER et collab., 1999].

De nombreuses études, utilisant différentes techniques, notamment par Microscopie Électronique en Transmission [ALLEN et collab., 2005], ou par Sonde Atomique Tomographique [DONG et collab., 2015; ETIENNE et collab., 2010a; JIAO et WAS, 2011] portent sur les ségrégations aux joints de grains. Toutes observent des déplétions en chrome, molybdène et fer associées à des enrichissements en nickel (diffuseur lent, effet Kirkendal inverse) et silicium (petit élément, mécanisme interstitiels) aux joints de grains. Pour les joints de grains, la température et le flux d'irradiation sont des paramètres contrôlant le phénomène de ségrégation, cependant aucune réelle dépendance n'a pu être établie étant donné que le niveau de ségrégation est très impacté par la désorientation du joint de grain [HASHIMOTO et collab., 1996].

La SAT, ainsi que les analyses par MET-EDX avec une sonde très fine permettent d'observer les ségrégations sur des défauts plus fins tels que les dislocations. Certaines études SAT montrent la présence de ségrégations en silicium, nickel sur des boucles de dislocations (fig.1.10) ou des dislocations linéaires lors d'irradiations aux ions [ETIENNE et collab., 2010a; JIAO et WAS, 2011; VOLGIN, 2012] ou aux neutrons [DONG et collab., 2015].

Volgin dans un acier 316 irradié aux ions montre que les ségrégations le long de 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 est conclu que les dislocations sont des sites préférentiels de germination de ces précipités. [VOLGIN, 2012].

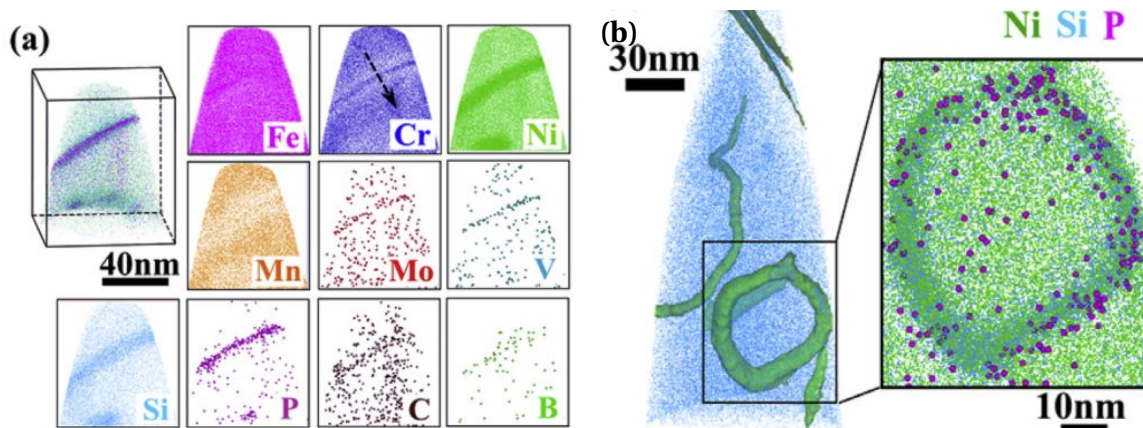


FIGURE 1.10 – Ségrégations au joint de grain (a), sur une boucle de dislocation (b), observées par SAT dans du 304 irradié jusqu'à 0,4 dpa dans EBR-II à 416 °C [DONG et collab., 2015].

1.2.5 Précipités

Sous irradiation, plusieurs types de précipitation sont possibles. L'irradiation peut soit accélérer soit retarder la précipitation de phases qui se forment normalement au cours de traitements thermiques, par exemple les phases $M_{23}C_6$ (τ), M_6X (η), MC, Laves, Sigma (σ), Chi (χ). Ces phases seront en quantités différentes ou peuvent apparaître à des températures où elles ne sont pas observables après un vieillissement thermique. D'autres phases peuvent également être modifiées chimiquement sous irradiation (M_2P , Laves, M_6C). Enfin certaines phases sont induites par l'irradiation c'est-à-dire qu'elles ne sont pas observées au cours d'un vieillissement thermique ($M_6Ni_{16}Si_7$ (G), Ni_3Si (γ'), M_3P , MP, ...).

Maziasz a établi une cartographie des différents types de précipitation et de phases présentes suivant la dose et la température d'irradiation dans les aciers 316 hypertrem-pés irradiés en RNR [MAZIASZ et MCHARGUE, 1987]. Sur cette cartographie, seule la plage de température 400 °C-800 °C permettrait une précipitation dès les premiers dpa. Des résultats plus récents ont cependant montré que la précipitation est tout de même possible pour des températures inférieures à 400 °C. Ainsi, des nano-précipités, pour des températures comprises entre 300 °C et 390 °C dans des aciers austénitiques irradiés en RNR et en REP, ont été mis en évidence [EDWARDS et collab., 2003a; RENAULT, 2012; RENAULT et collab., 2009; RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. Busby et Kenik ont donc par la suite mis à jour cette cartographie (fig.1.11) [KENIK et BUSBY, 2012].

En REP, la phase γ' ainsi que des précipités de type τ , η et/ou G ont été identifiés pour les aciers 316 et 316L écrouis, pour des doses allant de 1 à 73 dpa et pour des températures de l'ordre de 300 °C [EDWARDS et collab., 2003a; RENAULT et collab., 2010]. Dans une vis en acier 316 provenant de Tihange, il a aussi été observé en MET conventionnelle des précipités dont la nature n'est pas identifiée [EDWARDS et collab., 2003a], ces précipités ont une forme allongée et sont présents en forte densité.

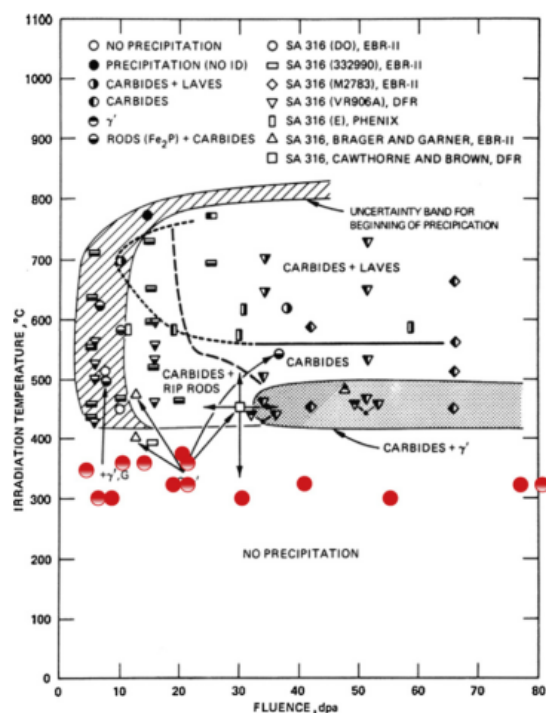


FIGURE 1.11 – Domaines de températures et doses pour lesquels la précipitation apparaît en RNR dans un acier 316. Cartographie de Maziasz mise à jour par Busby et Kenik [KENIK et BUSBY, 2012; MAZIASZ et MCHARGUE, 1987]

1.2.6 Cavités et bulles

Il est nécessaire de distinguer les cavités des bulles. En effet, les cavités sont des amas tridimensionnels purement lacunaires ou présentant une faible pression interne de gaz, tandis que les bulles contiennent une forte pression de gaz tels que l'hélium [EDWARDS et collab., 2009, 2003a; FUKUYA et collab., 2006], l'hydrogène [EDWARDS et collab., 2009; GARNER et collab., 2006; SENCER et collab., 2003] ou l'oxygène [MAZIASZ, 1993].

Sous irradiation les amas lacunaires sont produits dans le cœur de la cascade. Il existe une température critique (environ 300 °C) au-delà de laquelle ces petits amas lacunaires ne sont thermiquement plus stables et commencent à émettre des lacunes dans le réseau. Pour de plus basses températures, il y a présence de petites boucles et d'amas lacunaires et interstitiels. Pour des températures plus élevées, les boucles de Frank lacunaires sont instables et disparaissent en émettant leurs lacunes tandis que les boucles de Frank interstitielles continuent à croître. La sursaturation de lacunes augmente alors et permet la création de bulles d'hélium ou de cavités dans la matrice [EDWARDS et collab., 2003b]. Il semble toutefois que de fines bulles d'hélium sont observées en dessous de 300 °C [EDWARDS et collab., 2009; MAZIASZ, 1993; POROLLO et collab., 2002; ZINKLE et collab., 1993].

- Les *bulles* sont le résultat de l'accumulation de gaz provenant des réactions de transmutation, elles présentent une surpression en gaz (He et H). Les réacteurs à neutrons rapides ne forment pas ou peu de bulles, cependant le spectre des REP présente un flux important de neutrons thermiques et épithermiques qui permettent la création d'hélium induisant la formation de bulles. Les bulles croissent par absorption de lacunes et de gaz ou par coalescence. Elles sont sphériques et leur taille est de quelques nanomètres. Si elles dépassent un rayon critique de stabilité, les bulles peuvent par accumulation de lacunes évoluer en cavités [ZINKLE et collab., 1993]. Fukuya et al. montrent, pour un doigt de gant en 316 écroui issu d'un REP, que les

bulles sont stables jusqu'à 73 dpa pour des températures inférieures à 320 °C [FUKUYA et collab., 2006].

- Les *cavités* sont reconnaissables par leur forme facettée. Elles sont généralement constituées de vide. Elles germent soit au sein d'une cascade soit par une sursaturation de lacunes, puis croissent par accumulation de lacunes. Ceci est appuyé par les observations d'Edwards et al. sur une vis provenant d'un REP, dans laquelle une distribution bi-modale des cavités pour des doses proches de 10 dpa et des températures supérieures à 330 °C a été trouvée [EDWARDS et collab., 2003a]. La distribution bi-modale peut s'expliquer par le fait que certaines bulles ont dépassé une taille critique, à partir de laquelle elles croissent par accumulation de lacunes, la microstructure est alors composée de fine bulles d'hélium et de cavités [EDWARDS et collab., 2003a]

La taille et la densité des bulles et des cavités sont très fortement liées à la température, à l'état métallurgique du matériau, au flux ainsi qu'à la composition chimique de l'acier. Ces effets sont largement discutés en conditions RNR et aux ions. La figure 1.12 est une compilation de résultats disponibles dans la littérature concernant les aciers austénitiques de type 304 et 316 irradiés en RNR. Sur cette figure la couleur de chaque marque donne une indication sur la température d'irradiation (en degrés celsius). Cette figure montre bien qu'une augmentation de la température va augmenter la taille moyenne des cavités et diminuer leur densité. Au-delà d'une certaine température, les cavités ne sont plus observées, Sandusky n'observe plus de cavités dans du 304 pour des températures supérieures à 660 °C en réacteur à neutrons rapides [SANDUSKY et collab., 1972].

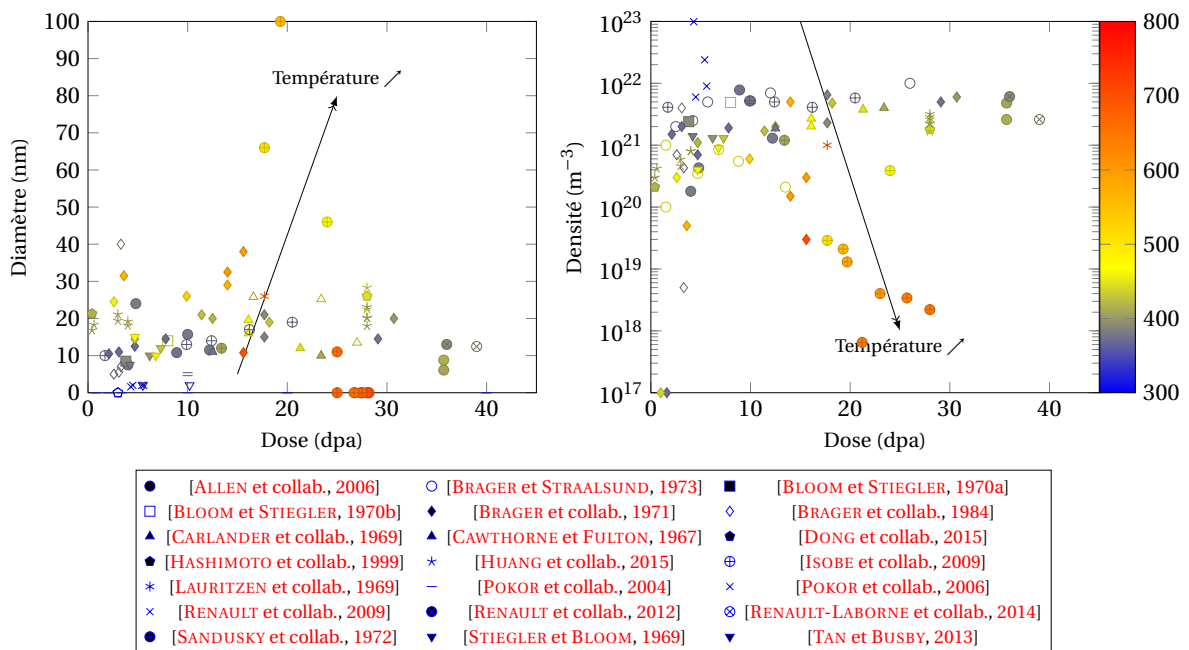


FIGURE 1.12 – Compilation des données de la littérature concernant l'évolution du diamètre moyen et de la densité des cavités dans les aciers austénitiques inoxydables de types 304 et 316 irradiés en réacteur expérimental à spectre neutronique rapide, en fonction de la dose et de la température.

En REP, à des températures où les cavités ne sont pas observées aux neutrons rapides, une grande quantité de petites cavités sont observables [FUKUYA et collab., 2006]. De plus, en REP, des microstructures très différentes peuvent être observées localement

la température ou la dose change légèrement. La vis de Tihange en est un exemple [EDWARDS et collab., 2003a]. La figure 1.13 montre la microstructure de cavités/bulles en trois positions de la vis. On constate immédiatement que la microstructure évolue entre ces trois positions. La tête de la vis est la partie ayant été exposée à une dose plus importante (19,5 dpa), les cavités/bulles qui y sont observées ont une taille inférieure à 2 nm. Dans le centre de la vis, pour des températures un peu plus élevées et avec une dose plus faible, il est observé des cavités en plus grande densité et de taille beaucoup plus grande (environ 8 nm) [EDWARDS et collab., 2003a]. Ces observations montrent bien que la température et le débit de dose sont des paramètres régissant la microstructure de cavités, l'effet de la température semblant de premier ordre.

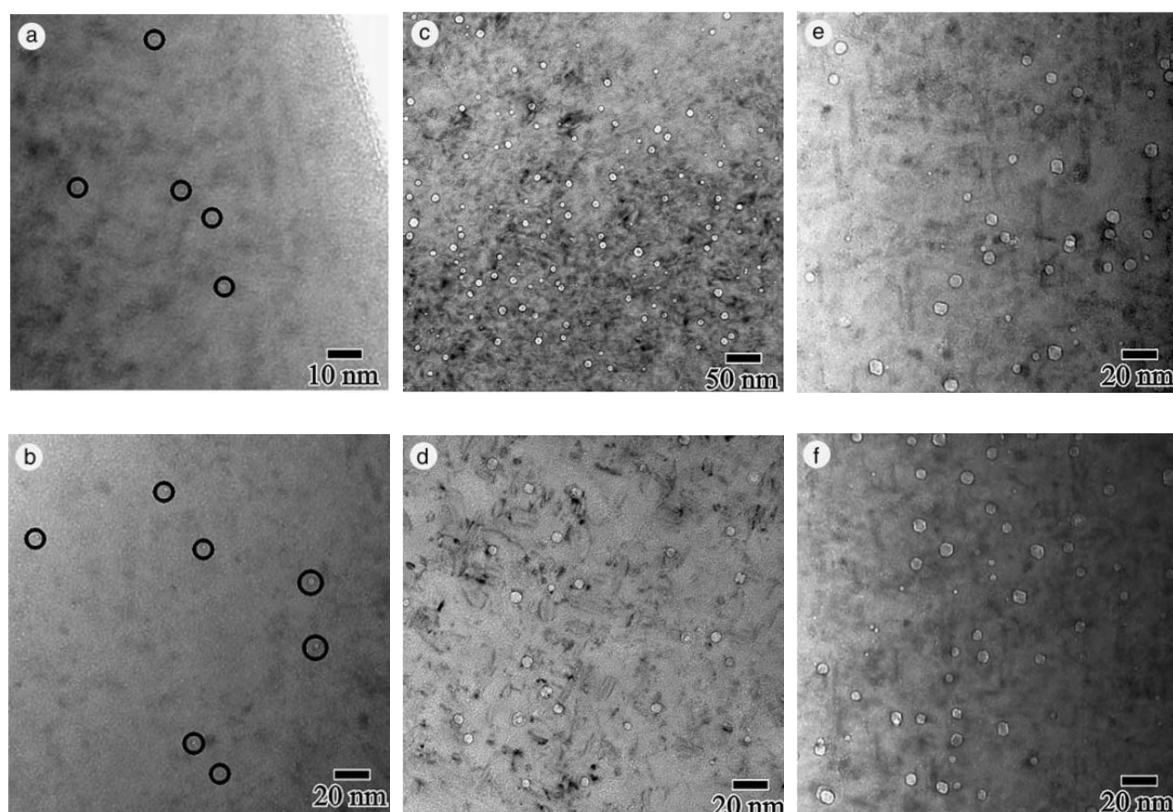


FIGURE 1.13 – Microstructures de cavités/bulles observées à différents endroits d'une vis extraite du réacteur de Tihange [EDWARDS et collab., 2003a]. (a) et (b) dans la tête de vis à 1 mm du bord (19,3 dpa, 320 °C), (c) et (d) dans le corps de la vis à 25 mm de la tête de vis (12,2 dpa, 343 °C), (e) et (f) à 55 mm de la tête de vis (7,5 dpa, 333 °C).

Dans la littérature en RNR, il est souvent mis en avant l'association de cavités avec des précipités [HAMADA et collab., 1991; LEE et collab., 1981; RENAULT et collab., 2012; RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. Une répartition bi-modale de la taille des cavités peut alors être observée. Les petites cavités sont situées dans la matrice, elles sont généralement distribuées de manière homogène. Les plus grosses sont celles associées à des précipités.

Expérimentalement la répartition bimodale des cavités/bulles est aussi observée sans association aux précipités mais due à la présence d'hélium. Pour une large gamme de température (320 - 600 °C), une répartition bimodale est ainsi visible dans différentes études [EDWARDS et collab., 2003a; HASHIMOTO et collab., 2000; KATO et collab., 1994].

Ceci est expliqué par l'accumulation de lacunes des bulles qui vont favoriser leur croissance en cavités. Pour des températures proches de 300 °C des distributions de bulles monomodales sont observées jusqu'à forte doses [EDWARDS et collab., 2009; FUKUYA et collab., 2006] ceci montre qu'une température suffisante est nécessaire afin d'obtenir une transformation des bulles en cavités. A basse température l'hélium va stabiliser la microstructure de bulles mais si la température augmente, elles deviennent alors des sites préférentiels pour les cavités. On peut aussi penser qu'à basse température la microstructure de bulles réduit le gonflement jusqu'à une dose suffisamment importante avant que les bulles deviennent des cavités par accumulation de lacunes.

1.3 Conséquence macroscopique : le gonflement

Les modifications microscopiques induites par irradiation peuvent avoir des conséquences sur le comportement des matériaux d'un point de vue macroscopique. En effet plusieurs phénomènes ont été observés et étudiés lors d'irradiations RNR et/ou REP :

- modification des propriétés mécaniques;
- fissuration par corrosion sous contrainte assistée par irradiation (IASCC);
- fluage d'irradiation;
- gonflement...

Il ne sera ici question que du gonflement mais il est nécessaire de garder en mémoire qu'il ne représente qu'un des phénomènes induits par irradiation, chacun pouvant favoriser l'une ou l'autre des conséquences (ex. le gonflement des cloisons peut favoriser l'IASCC sur la tête des vis).

Le gonflement est une augmentation du volume avec conservation de la masse et de la forme. Il a été observé pour la première fois par Cawthorne et Fulton en 1967 [CAWTHORNE et FULTON, 1967]. Il a été admis pour les RNR que le gonflement est principalement associé à la croissance des cavités. Différentes manières de mesurer le taux de gonflement à différentes échelles sont possibles.

Une première méthode consiste à mesurer le gonflement par microscopie électronique en transmission à partir de la mesure de la fraction volumique des cavités. Cette méthode est efficace pour calculer localement le gonflement cependant la résolution rend difficile la prise en compte des très fines cavités. En outre, elle ne prend pas en compte de potentielles variations de volume par des changements de phases. La densification à faibles doses sur des aciers austénitiques a en effet déjà été observée [ALLEN et collab., 2006].

Une seconde méthode très utilisée actuellement pour les mesures macroscopiques, utilise la variation de masse volumique pour remonter au gonflement. Elle permet une mesure couvrant toutes les tailles de cavités. Cette méthode n'est toutefois pas possible à appliquer dans tous les cas, notamment pour les irradiations aux ions ou le profil de dommage n'est pas homogène dans tout l'échantillon, et les épaisseurs irradiées sont trop faibles, ce qui est le cas dans cette étude. D'autres méthodes macroscopiques existent, des méthodes par profilométrie qui permettent de mesurer par exemple la variation de hauteur entre deux zones irradiée et non irradiée ou encore une méthode de mesure de changement de volume avant et après irradiation. D'après des études sur le 316 Ti, l'origine de cette densification provient de la restauration du réseau de dislocations pour les matériaux écrouis et surtout par la précipitation de carbures [GARNER, 2012].

Comme le gonflement est la conséquence macroscopique de l'évolution microstructurale sous irradiation du matériau, ce phénomène va aussi être impacté par les différents facteurs tels que la dose, la température, le flux, la composition, l'état métallurgique, et la teneur en hélium. Etant donné que la majorité des résultats présents dans la littérature sont pour des conditions RNR, les phénomènes vont être décrits sur la base des connaissances RNR mais quelques résultats REP et aux ions seront également discutés.

1.3.1 Effets d'irradiation influant sur le gonflement

Pour un acier austénitique donné, les conditions d'irradiation vont influencer sur l'évolution de la microstructure, le gonflement pouvant en résulter va alors être impacté par ces conditions.

Les paramètres ayant un effet prononcé sur la gonflement sont la dose d'irradiation, la température et le débit de dose. D'autres effets plus spécifiques aux types d'irradiation, tels que les effets d'interstitiels injectés ou de balayage de faisceau lors d'irradiations aux ions peuvent aussi modifier l'évolution du gonflement sous irradiation [GETTO et collab., 2015; GIGAX et collab., 2015; SHORT et collab., 2016].

1.3.1.1 Dose

Le gonflement présente un régime d'incubation ou transitoire, suivi d'un régime de gonflement. L'incubation ou transitoire est une période durant laquelle un très faible gonflement macroscopique, voire aucun, est observé. Durant cette étape la microstructure de dislocations évolue et de fines cavités/bulles se forment. Le régime de gonflement est caractérisé par un taux de gonflement, qui, d'après Garner, serait constant et de $1 \text{ \%} \cdot \text{dpa}^{-1}$ pour les températures supérieures à 400°C [GARNER, 1984, 2012; GARNER et collab., 1997]. Ce régime correspond à la croissance de cavités par accumulation de lacunes.

La dose, à partir de laquelle la microstructure est en régime de gonflement est appelée la dose d'incubation. Celle-ci dépend non seulement de la température d'irradiation et du taux de dommage, mais aussi de l'état métallurgique et de la composition [GARNER et collab., 1997; KALCHENKO et collab., 2010]. D'après Okita, afin d'entrer en régime de gonflement, une microstructure de dislocations établie est nécessaire [OKITA et collab., 2007].

La figure 3 (en introduction) réalisée par Garner met en évidence le régime d'incubation et de gonflement pour des irradiations aux neutrons dans du 316 écroui [GARNER, 2012]. La figure 1.14 est réalisée à partir de données de gonflement sur du 304 hyper-trempé irradié dans EBR-II, une conversion fluence/dose a été faite en utilisant un taux de $5 \text{ dpa} = 10^{22} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ pour des neutrons d'énergie supérieures à $0,1 \text{ MeV}$ [GARNER, 2012; ZOUARI, 2012]. On constate sur cette figure qu'une dose d'environ 10 dpa est nécessaire pour obtenir un gonflement significatif en RNR. De plus, d'après le critère d'un taux de gonflement de $1\% \cdot \text{dpa}^{-1}$ de Garner afin de considérer un régime de gonflement, le 304 serait alors encore en régime transitoire à 40 dpa . Bien que le 304, ne soit pas en régime de gonflement il semble évident qu'il n'est pas possible pour des raisons de sûreté que le gonflement atteigne de telles valeurs en REP.

1.3.1.2 Température

Comme le montre la figure 1.14, la température va modifier de façon importante le gonflement. Précédemment, il a été montré que la taille et la densité des cavités sont

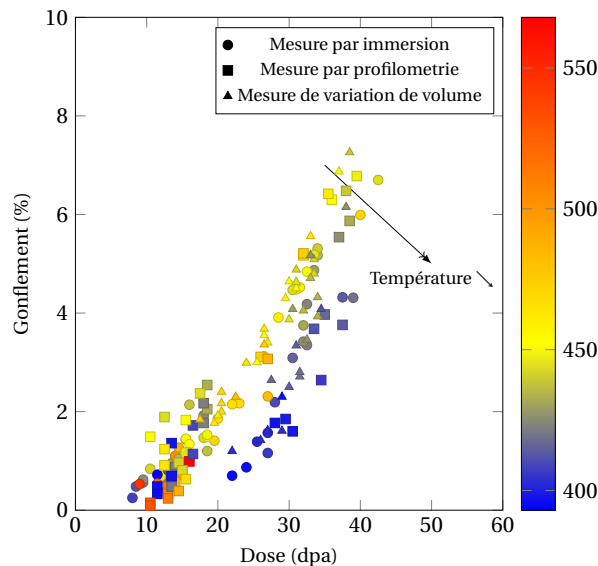


FIGURE 1.14 – Évolution du gonflement mesuré, par différentes techniques, d'un 304 hypertrempé irradiés dans EBR-II d'après les données de Foster [FOSTER et STRAIN, 1974] avec une conversion de fluence, $5 \text{ dpa} \sim 10^{22} \text{ n.cm}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ MeV}$). La couleur indique la température en degrés celsius.

impactées par la température. Une augmentation de cette dernière résulte en une augmentation de la taille moyenne des cavités et une diminution de leur densité [SANDUSKY et collab., 1972]. Ces évolutions en sens opposé, se retrouvent sur l'évolution en cloche du gonflement avec la température (fig 1.15), obtenue à partir des données de gonflement répertoriées par Foster dans EBR-II dans le 304 [FOSTER et STRAIN, 1974]. En effet, au-dessous d'une température de gonflement maximal, l'augmentation de la taille moyenne des cavités avec la température est suffisante pour compenser la diminution de densité, et permettre une augmentation du gonflement. Au-delà de cette température, l'augmentation de la taille moyenne n'est plus suffisante par rapport à la diminution de densité, le gonflement diminue. Cette figure est à mettre en parallèle avec la figure 3 de l'introduction, qui montre une température optimale favorisant le régime linéaire de gonflement. La dose d'incubation augmente avec une diminution de la température. Il est considéré que le taux de gonflement ($1\%.\text{dpa}^{-1}$) en régime de gonflement est inchangé avec la température, et donc qu'un taux inférieur montre que la microstructure est encore dans un régime d'incubation [GARNER, 2012; GARNER et collab., 1997].

La faible mobilité des lacunes à basse température limite le gonflement (recombinaison favorisée), tandis qu'à haute température, l'émission de lacunes thermiques limite la croissance des cavités [WAS, 2007]. Pour des conditions d'irradiation similaires et en ne faisant varier que la température, le 304 présente un pic de gonflement à dose fixe pour une température proche de $450 \text{ }^\circ\text{C}$ en RNR, tandis que le pic semble être proche de $500 \text{ }^\circ\text{C}$ pour le 316 écroui d'après la figure 3 (cf. Introduction).

Cet effet de la température sur le gonflement a longtemps laissé penser que le gonflement n'aurait pas lieu en REP ou du moins serait négligeable. En effet, la figure 1.14 montre qu'à $400 \text{ }^\circ\text{C}$, le matériau n'est alors pas encore en régime de gonflement linéaire même à de fortes doses, le taux de gonflement est alors de $0,2\%.\text{dpa}^{-1}$. De plus, une diminution de la température augmente la dose d'incubation. Donc, en REP (faibles doses, basse température) il a été estimé en considérant la température comme le facteur impactant le plus le gonflement, que ce dernier serait retardé et négligeable.

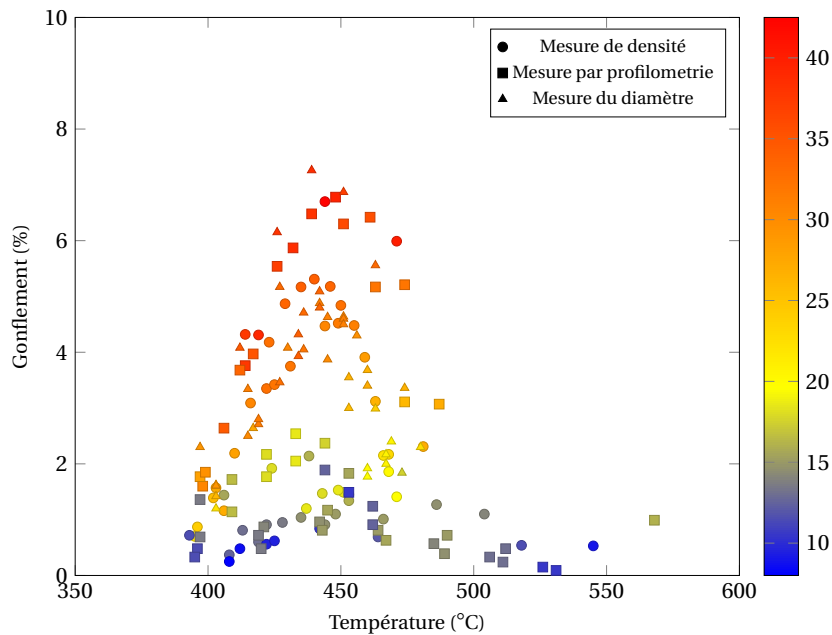


FIGURE 1.15 – Évolution du gonflement en fonction de la température pour différentes doses dans un acier 304 irradié dans EBR-II à partir des données de la publication de Foster [FOSTER et STRAIN, 1974]. La couleur indique la dose en dpa calculée à partir de la fluence avec le même taux de conversion qu'à la figure 1.14.

1.3.1.3 Taux de dommages

Tout comme la température, le flux affecte la dose d'incubation et donc le gonflement. Cependant son effet semble être inverse à la température. En 1975, les premières observations de l'influence du flux sur le gonflement sont faites par Westmoreland dans du Nickel pur à l'aide d'irradiations aux particules chargées [WESTMORELAND et collab., 1975]. Ce phénomène a par la suite été étudié dans des matériaux cubiques faces centrées purs, ainsi que les aciers austénitiques 316 [GLOWINSKI et collab., 1976; MENZINGER et SACCHETTI, 1975; SACCHETTI, 1977]. Le pic de gonflement est décalé de l'ordre de 50 °C vers de plus basses températures pour un flux d'une décade plus faible dans le cuivre et le nickel [PACKAN et collab., 1978]. Il a longtemps été admis que ce décalage « température/débit de dose » était valable pour les aciers austénitiques. Une étude semble valider ce constat pour les aciers de type 18Cr-10Ni-Ti irradiés dans BOR-60, il est proposé un décalage d'environ 37-65 °C par décade de flux [NEUSTROEV et collab., 1998].

Etant donné que pour les aciers austénitiques il est avancé que le taux de gonflement en régime linéaire de gonflement est indépendant de la température ($1\% \cdot \text{dpa}^{-1}$), le décalage en température du pic de gonflement dans ces aciers serait alors dû à une réduction du transitoire avec le débit de dose et non à un changement du taux de gonflement [ALLEN et collab., 2006; OKITA et collab., 2005; SERAN et DUPOUY, 1983].

Certaines études suggèrent que l'effet du débit de dose sur le gonflement est dépendant de la température d'irradiation. Seran et Dupouy montrent ainsi un effet du débit de dose sur le gonflement, dépendant de la température [SERAN et DUPOUY, 1983]. Pour des irradiations à 500 °C et 550 °C dans le réacteur Rapsodie, une diminution de la dose d'incubation est mesurée avec la réduction du débit de dose. Cet effet est plus marqué à 550 °C qu'à 500 °C, tandis qu'à 450 °C aucun effet du débit de dose n'est observable (fig.1.16). L'effet du débit de dose serait directement lié à la température. Cette dernière accentuant plus ou moins l'effet du taux de dommage.

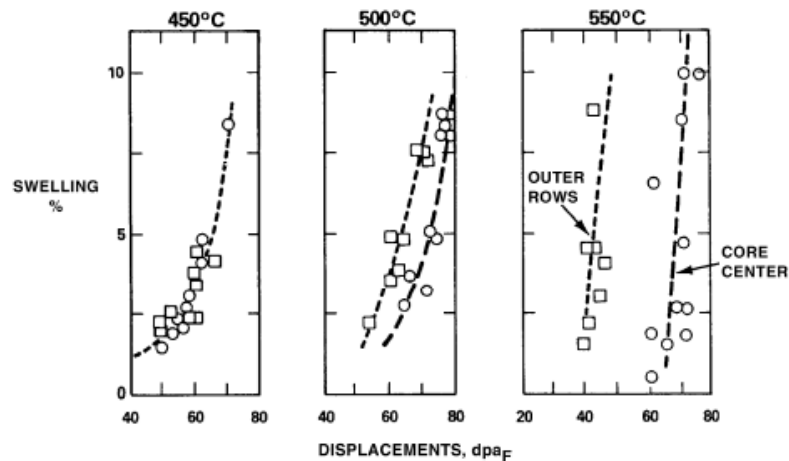


FIGURE 1.16 – Influence de la température sur l'effet du débit de dose, dans un acier 316 pour des irradiations réalisées dans RAPSODIE [SERAN et DUPOUY, 1983], le faible flux correspond à outer core et le fort flux à center core.

Cependant des études à des températures inférieures à 450 °C montrent que l'effet du débit de dose serait tout de même visible pour certains cas. L'étude d'Allen et al. (fig.1.17) porte sur des aciers 304 et 316 irradiés aux neutrons dans EBR-II à des températures inférieures à 400 °C. Ils observent un effet fort et systématique du débit de dose sur le gonflement dans l'acier 304 tandis que les résultats sur le 316 ne peuvent apporter de conclusions [ALLEN et collab., 2006]. Okita montre aussi une diminution de la dose d'incubation pour une réduction du débit de dose dans des aciers modèles Fe-Cr-Ni à la température de 420 °C [OKITA et collab., 2005]. D'après Okita et al. le taux de gonflement dans le régime linéaire ne semble pas affecté par le débit de dose [OKITA et collab., 2005], l'effet étant seulement sur le régime d'incubation en modifiant la microstructure de boucles de dislocations. D'ailleurs à faible flux, le régime de gonflement avec un taux de 1%.dpa⁻¹ est observable dès 1 dpa. Cela va dans le sens de la thèse de modélisation par dynamique d'amas de Zouari selon laquelle, en REP, pour un débit de dose faible et représentatif de REP, la cinétique de gonflement est linéaire dès les premiers dpa [ZOUARI, 2012]. Cependant Zouari calcul un taux de gonflement 50 à 100 fois plus faible que le taux de 1%.dpa⁻¹.

Sur le postulat d'un taux de gonflement à 1%.dpa⁻¹, pour des températures et flux proches des conditions REP, Garner dit que l'acier 304 n'est pas encore en régime linéaire de gonflement [GARNER, 2012].

La diminution de la dose d'incubation par une diminution de flux aura pour conséquence d'augmenter le gonflement à dose équivalente [GARNER, 2012]. Porter et Hudman montrent ainsi pour un acier 304L hyperefflué une augmentation du gonflement avec une diminution du débit de doses lors d'irradiations dans EBR-II à 390 °C [PORTER et collab., 1991].

En conclusion, ces études montrent qu'une diminution du débit de dose semble réduire la dose d'incubation dans les aciers austénitiques, cependant ce phénomène pourrait être dépendant de la température d'irradiation ainsi que de la composition. Le débit de dose va donc modifier la cinétique du gonflement. Le faible débit de dose en REP inciterait donc à penser à une réduction de la dose d'incubation. Cependant les effets inverses d'une baisse de température et du débit de dose ainsi que la présence d'hélium en REP ne permettent pas à l'heure actuelle de trancher. Il existe des études permettant d'estimer un décalage en température nécessaire afin de prendre en compte l'effet de flux [MANSUR,

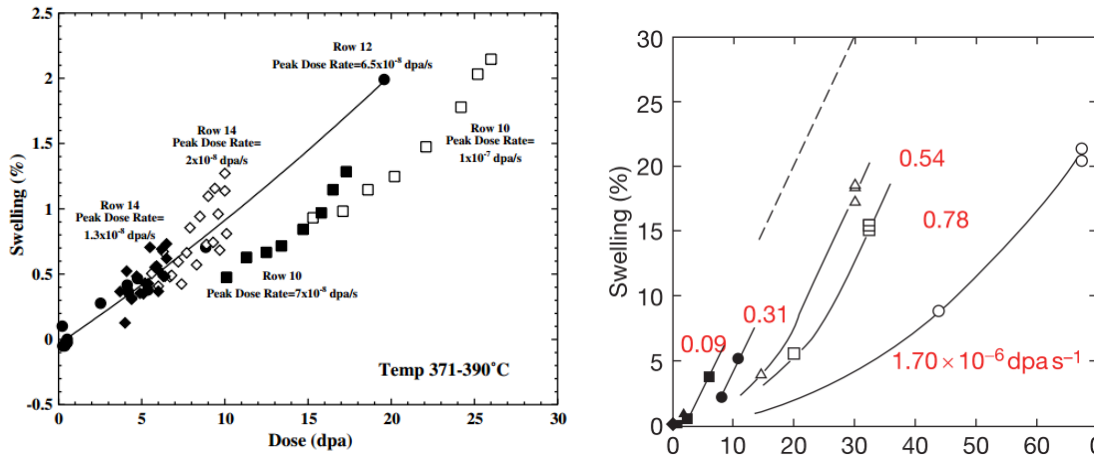


FIGURE 1.17 – Effet de flux sur le gonflement dans du 304 pour des irradiations aux neutrons rapides à $\sim 400^\circ\text{C}$ d'après l'étude d'Allen [ALLEN et collab., 2006] (à gauche), ainsi que dans un acier modèle ternaire à 420°C d'après l'étude d'Okita (à droite) [OKITA et collab., 2005].

1978].

1.3.1.4 Effet de l'hélium

En REP, de l'hélium peut être produit par la transmutation du nickel et du bore, du fait de la présence dans le spectre neutronique de neutrons thermiques. Il serait généré dans des proportions non négligeables, pouvant être de l'ordre de $15 - 20 \text{ appm.dpa}^{-1}$, calculé par des modèles et confirmé par des mesures expérimentales [FUJIMOTO et collab., 2005; KATOH et collab., 1994, 1992; STOLLER, 1990]. L'hélium est donc présent dans les structures des internes inférieurs de REP, des mesures sur une vis ont confirmé la présence d'hélium dans le matériau $\sim 53 \text{ appm}$ pour 25 dpa [EDWARDS et collab., 2003a]. L'étude d'Edwards, mais aussi celle de Fujimoto mettent aussi en évidence la présence d'hydrogène en conditions REP [EDWARDS et collab., 2003a; FUJIMOTO et collab., 2005].

L'effet de l'hélium sur la microstructure, en conditions REP mais aussi aux ions est fortement étudié, du fait des modifications microstructurales qu'il peut engendrer. L'hélium est un gaz insoluble dans les aciers austénitiques. Lors d'irradiations, ils se forment alors de fines bulles pressurisées en hélium à basse température [ZHANG et collab., 1998] le gonflement associé est légèrement plus important que sans hélium [BORODIN et collab., 2013], à haute température les auteurs ne sont pas tous en accord sur l'effet de l'hélium [JOHNSTON et collab., 1973a,b; KATOH et collab., 1994; TSUCHIDA, 1996],

Ces bulles d'hélium, avec l'augmentation de la dose sont susceptibles de se transformer en cavités par accumulation de lacunes. En favorisant la formation des bulles, qui sont potentiellement des puits pour les lacunes, elles pourraient alors être considérées comme des sites préférentiels de nucléation des cavités [GARNER, 2012] et favoriser le gonflement. Il peut aussi être considéré que la création d'un grand nombre de bulles, va stabiliser la microstructure de cavités, en réduisant le flux de lacunes vers chacune des bulles et donc ralentissant leur croissance. En effet Katoh et al. observe une évolution du gonflement en cloche avec la quantité d'hélium implantée, et a modélisé un l'évolution du gonflement avec la dose et suivant la quantité d'hélium. Le maximum de gonflement à 600°C serait pour des teneurs d'hélium comprises entre $4 \text{ et } 15 \text{ appm.dpa}^{-1}$ [KATOH et collab., 1994].

Pour tenter de répondre à la problématique de l'effet de l'hélium, de nombreuses irradiations aux ions avec implantation d'hélium ont été menées. Suivant les méthodes d'irradiation aux ions, avec pré-implantation ou co-implantation d'hélium, les résultats diffèrent [BORODIN et collab., 2013; JOHNSTON et collab., 1973b; KATOH et collab., 1994, 1992; LEVY et collab., 1985].

Borodin et al. observe une réduction du gonflement en présence d'hélium à haute température, cependant pour les basses températures le gonflement est plus important avec hélium [BORODIN et collab., 2013], tandis que Johnston et al. observent à haute température une augmentation du gonflement, lorsque de l'hélium a été pré-injecté [JOHNSTON et collab., 1973b]. Les auteurs s'accorde à dire qu'à basse température une germination importante de petite bulles est observable. En effet, à basse température, 340 °C, Sencer observe qu'après implantation de 15 appm d'hélium une microstructure de cavités/bulle est observable dans du 304 et 316 respectivement à 1 et 3,5 dpa, tandis qu'aucune cavité/bulle n'est observée sans implantation d'hélium [SENCER et collab., 2003]. Parallèlement Zhang montre dans du 316 que pour une gamme de température de 300-400 °C la taille et densité des bulles n'évoluent pas. Au-delà de cette gamme de température la taille des cavités augmente et la densité diminue [ZHANG et collab., 1998]. Ceci serait induit pas la mobilité de l'hélium aux plus hautes températures.

L'effet de l'hélium sur les autres défauts d'irradiation n'est pas maîtrisé, certaines études proposent que l'hélium n'impacte pas le réseau de dislocations [SENCER et collab., 2003], tandis que d'autres avancent un modification importante de la microstructure de dislocations en présence d'hélium [TSUCHIDA, 1996].

A l'heure actuelle, peu de données sur le gonflement dans les aciers austénitiques en conditions REP sont disponibles. Aucun gonflement macroscopique n'a pour l'instant été observé, cependant des bulles d'hélium nanométriques ont été mises en évidence en forte densité laissant penser à la possibilité de l'apparition d'un gonflement macroscopique à plus fortes doses. La figure 1.18 référence les fractions volumiques de cavités mesurées par MET observées en REP.

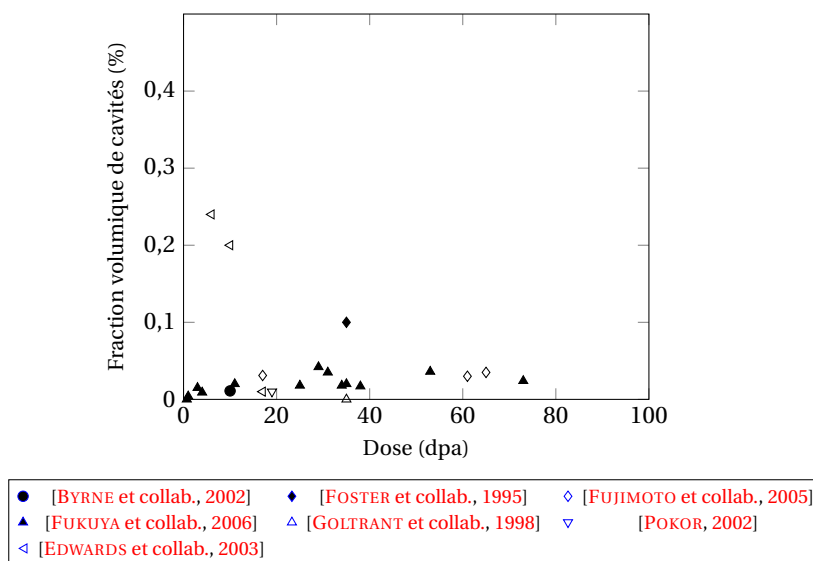


FIGURE 1.18 – Évolution de la fraction volumique de cavités mesurée par MET dans des aciers 304 et 316 irradiés en REP pour des températures comprises entre 290 et 360 °C.

Les valeurs maximales de gonflement ont été mesurées par MET dans des aciers 316L écrouis. Une vis provenant de Tihange (figure 1.13) présente un gonflement microscopique.

rique estimé à 0,24% pour 7,5 dpa à 330 °C [EDWARDS et collab., 2003a]. Les autres données proviennent de vis en acier 316 écroui et le gonflement est en moyenne de 0,05% pour des températures inférieures à 330 °C [EDWARDS et collab., 2009; FUKUYA et collab., 2006]. L'effet de la température et/ou de la teneur en carbone semble important. Certaines études par modélisation en dynamique d'amas indiquent que, en conditions REP, le phénomène de gonflement ne présente plus de période d'incubation et que l'effet de l'hélium est non significatif pour des taux de production inférieurs à 100 appm/dpa [ZOUARI, 2012]. Cependant aucune donnée expérimentale ne vient confirmer ou infirmer ces conclusions.

Fukuya montre par l'étude d'un doigt de gant provenant de REP qu'aucun gonflement macroscopique n'est observé jusqu'à 70 dpa. De fines bulles, de l'ordre du nanomètre, en très forte densité (10^{23} m^{-3}) sont formées sans la formation de cavités [FUKUYA et collab., 2006]. Cependant, à des doses et températures relativement faibles, il est identifié des cavités dans une étude sur une vis extraite de Tihange du fait de la forme facettée de celles-ci [EDWARDS et collab., 2003a].

1.3.2 Effets intrinsèques aux matériaux influant sur le gonflement

En plus des effets sur le gonflement induits par les caractéristiques propres aux irradiations, chaque matériau du fait de la structure cristalline, composition chimique ou état métallurgique va se comporter différemment vis-à-vis du gonflement. Comme dans cette étude deux nuances hypereffrées ayant des teneurs en certains éléments d'alliages différentes sont étudiées, il est reporté les données disponibles dans la littérature sur l'effet de la composition chimique et de l'état métallurgique sur le gonflement.

1.3.2.1 Composition chimique

Les éléments d'alliages, sous irradiation influent sur les sursaturations en lacunes ou interstitiels modifiant la cinétique de germination et croissance des cavités. Les effets sur le gonflement ne seront pas les mêmes suivant la taille et le mode de diffusion des éléments. Quelques éléments sont succinctement décrits pour illustrer ce propos.

L'évolution du gonflement avec la teneur en *nickel* à dose et température fixes n'est pas monotone. Pour des teneurs comprises entre 10 et 40%, le nickel réduit fortement le gonflement [ALLEN et collab., 2005; GARNER et collab., 1986; JOHNSTON et collab., 1974], au-delà de 40-60%, il est constaté l'effet inverse dans des aciers modèles [BATES et POWELL, 1981]. À basse teneur (< 10%) l'effet du nickel est peu étudié. Différents mécanismes sont proposés pour expliquer la diminution du gonflement, comme par exemple une augmentation de la diffusion des lacunes par le nickel ce qui se traduit par une diminution de la densité des cavités [ESMAILZADEH et KUMAR, 1985], ou par modification du biais des dislocations par ségrégation autour des dislocation réduisant leur efficacité à absorber les lacunes [MUROGA et collab., 1991]. À haute teneur, il est observé une augmentation de gonflement probablement causée par une instabilité microstructurale dû à la décomposition spinodale [GARNER et collab., 1986].

Les deux nuances de cette étude présentent des teneurs proches en nickel et inférieures à 20 %, L'effet du nickel ne devrait donc pas être observé sur le gonflement. Des ségrégations de nickel sur des puits tels que les dislocations ont été mesurées par SAT lors d'irradiations aux ions et aux neutrons [DONG et collab., 2015; ETIENNE et collab., 2010a; VOLGIN, 2012]. Le nickel pourrait alors agir sur le biais des dislocations [HOYT et GARNER, 1991; MUROGA et collab., 1991].

Le *chrome*, quant à lui, est un atome plus volumineux que le nickel, il réduit l'efficacité de la diffusion lacunaire entraînant des sursaturations en lacunes. Ces sursaturations vont se traduire par la germination de cavités, réduisant ainsi la dose d'incubation [GARNER, 1984; GARNER et BRAGER, 1988; HORIKI et collab., 2013]. Cependant, son effet devient très faible en dessous de 400 °C [BYRNE et collab., 2001], il a donc peu d'impact sur l'évolution du gonflement en conditions REP. Dans une étude, Bates montre que le chrome n'a pas d'effet sur le gonflement dans les aciers commerciaux entre 400 et 650 °C [BATES et POWELL, 1981], l'impossibilité de voir cet effet vient probablement des variations de teneur en éléments minoritaires.

Les éléments minoritaires en solution solide peuvent en effet fortement modifier la cinétique de gonflement. Ainsi, le carbone et l'azote ainsi que le phosphore et le silicium sont connus pour modifier le gonflement.

- Le *carbone* et l'*azote* sont des atomes de petite taille diffusant rapidement de façon interstitielle. L'azote ainsi que le carbone en solution solide semblent réduire le gonflement [HAMADA et collab., 1991; WAKAI et collab., 2002; WILLIAMS, 1980]. Une augmentation de la composition en carbone entraîne une augmentation de la dose d'incubation (figure 1.19.a) et déplace le pic de gonflement vers les hautes températures [BYRNE et collab., 2001]. Enfin le carbone semble ségréger aux dislocations, pouvant alors diminuer le biais des dislocations pour les lacunes [COTTRELL et BILBY, 1949; HEPBURN et collab., 2013; HOYT et GARNER, 1991].
- Le *silicium* et le *phosphore*, quant à eux, diffusent rapidement par substitution. Si les compositions en silicium et phosphore sont supérieures respectivement à 0,2% et 0,01% massique une augmentation de leur concentration aura tendance à diminuer le gonflement (fig.1.19.b) [GARNER et KUMAR, 1987; HORIKI et collab., 2013; POROLLO et collab., 2008]. Cependant le silicium va aussi favoriser la précipitation de phases riches en nickel telles que la phase G ou γ' qui pourront être des sites de germination préférentiels des cavités [BOOTHBY et WILLIAMS, 1988; RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. Parallèlement la densité de boucles de Frank semble être réduite par l'augmentation de la teneur en silicium [CHEN et collab., 2015a].

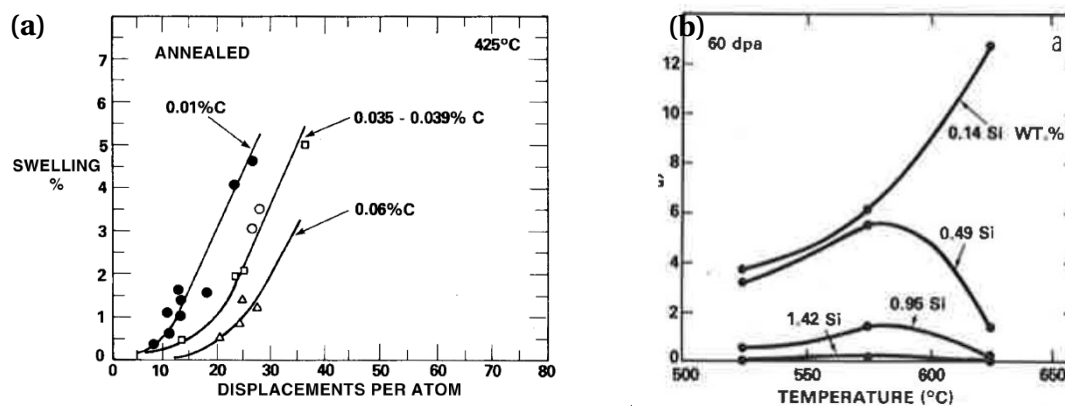


FIGURE 1.19 – Effet du carbone (a) sur le gonflement dans l'acier 316 à 425 °C par Bramman dans [BYRNE et collab., 2001], effet du silicium (b) sur un alliage ternaire Fe-12Cr-15Ni d'après Mazey dans [GARNER et KUMAR, 1987].

Pour le nickel, le silicium et le carbone, les évolutions des ségrégations ainsi que de la précipitation va conduire à appauvrir la matrice en ces éléments et donc potentiellement

favoriser le gonflement. De plus la précipitation favorisée par ces éléments d'alliages peut aussi favoriser le gonflement par la croissance de cavités en association avec les précipités [GARNER et collab., 2002].

1.3.2.2 État métallurgique

L'état microstructural initial influe aussi sur l'évolution du gonflement. Il est admis que l'écroissage réduit de façon importante le gonflement par une augmentation de la dose d'incubation, aux neutrons [BRAGER, 1975; GARNER et collab., 1981; HAMADA et collab., 1988; RENAULT LABORNE et collab., 2015; WAKAI et collab., 2002] et aux ions [BORODIN et collab., 2009].

La figure 1.20 représente le gonflement de différents aciers austénitiques à l'état hyperecroui et écroui. On constate que l'écroissage prolonge considérablement la dose d'incubation pour l'acier 316. Un écroissage de 20-25% dans les aciers austénitiques commerciaux est considéré comme optimal pour réduire le gonflement [GARNER, 2012]. Cette évolution du gonflement est à mettre en parallèle avec l'évolution de la densité initiale de dislocations. En effet, dans l'état écroui, les dislocations sont nombreuses et sont des puits pour les lacunes. Elles vont alors réduire la sursaturation en lacunes empêchant/ralentissant la formation et la croissance de cavités. Une fois le régime de saturation atteint pour les dislocations, l'état métallurgique avant irradiation n'a plus d'importance, les aciers écrouis et hyperecrouis vont se comporter de manière semblable. Aucune différence de taux de gonflement dans le régime linéaire n'est ainsi observée. Cet effet de l'écroissage a été bien identifié pour des hautes températures ($> 400\text{ }^{\circ}\text{C}$) mais n'est pas clairement avéré pour des températures proches de celles obtenues en REP. Des résultats récents lors d'irradiations aux neutrons rapides confirment qu'un effet de l'écroissage est observé pour des températures comprises entre 380 et $400\text{ }^{\circ}\text{C}$, se rapprochant des conditions REP [RENAULT LABORNE et collab., 2015].

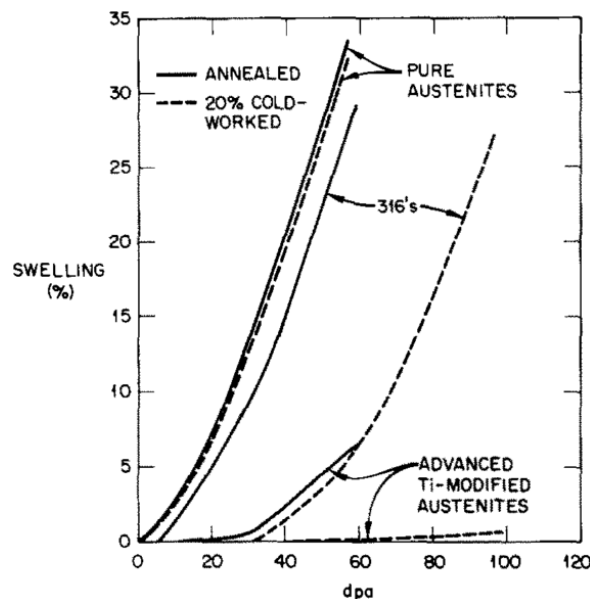


FIGURE 1.20 – Effet de l'écroissage sur le gonflement induit dans des aciers austénitiques lors d'irradiation dans EBR-II [ZINKLE et collab., 1993].

1.4 Représentativité des irradiations aux neutrons par des particules chargées

Les irradiations aux particules chargées sont souvent utilisées afin de produire des dommages d'irradiation dans les aciers. L'utilisation de particules chargées telles les ions ou les électrons permet d'obtenir des flux importants de dommage comparé aux neutrons. Ceci permet de réduire fortement les temps d'irradiation tout en atteignant la même dose visée. De plus, lors des irradiations aux particules chargées, le contrôle de paramètres d'irradiation tels la température ou le taux de dommage est plus aisé. Ainsi, ceci permet de mieux dissocier les effets des paramètres d'irradiations sur les évolutions microstructurales. Enfin, les irradiations aux particules chargées présentent un avantage non négligeable, qui est la non activation du matériau par l'irradiation, facilitant ainsi les manipulations.

Les ions lourds utilisés lors d'irradiations reproduisent les phénomènes de cascades de manière relativement fidèles aux neutrons, contrairement aux électrons [WAS, 2007]. Il est donc particulièrement intéressant d'utiliser ce type de particules. De plus, ils permettent d'atteindre des doses importantes en quelques heures. Dans de nombreuses études, ils sont utilisés dans le but de simuler l'endommagement obtenu en réacteur par des irradiations aux neutrons.

Cependant, les irradiations aux particules chargées ont leurs propres contraintes. Contrairement aux neutrons, la distance de pénétration est généralement faible dans le matériau, et induit un profil de dommage non homogène. La surface peut alors avoir un effet sur la diffusion des défauts mobiles et donc sur l'évolution de la microstructure [VOLGIN, 2012]. Il va résulter, de la faible distance de pénétration des ions dans la matière, une implantation en position interstitielle des atomes injectés proche du pic de dommage. Cette implantation peut modifier localement le gonflement dans des proportions non négligeables [SHORT et collab., 2016]. Enfin, en REP notamment, les neutrons thermiques sont responsables de la transmutation du bore et du nickel créant de l'hélium [GARNER et collab., 1993]. Les irradiations aux ions n'induisant pas ces transmutations, afin de simuler par des irradiations aux ions, on réalise les irradiations en double faisceau. Des ions lourds sont utilisés d'une part, pour reproduire les cascades de déplacement (neutrons rapides) et d'autre part une implantation simultanée d'hélium est réalisée, afin de simuler la production d'hélium par transmutation (neutrons thermiques).

Il est donc nécessaire de choisir des conditions qui permettent de minimiser certains effets néfastes des irradiations aux ions, notamment des effets de surface et d'interstitiels injectés.

Enfin les irradiations aux ions sont réalisées avec des flux pouvant être de plusieurs ordres de grandeurs supérieurs aux irradiations neutroniques. L'influence du débit de dose, de la température et du type de particules incidentes n'interviennent pas dans le calcul de dpa. Cependant, comme ces paramètres sont déterminants lors des comparaisons de résultats d'irradiations, des études sur différents matériaux ont été réalisées afin de comparer les effets d'irradiation aux neutrons ou aux ions [KALCHENKO et collab., 2010; SENCER et collab., 2003]. Pour obtenir des microstructures ou évolutions chimiques similaires entre deux irradiations, aux ions et/ou aux neutrons, une augmentation de température (50-150 °C), dépendante des flux utilisés, est nécessaire pour l'irradiation aux ions par rapport aux neutrons [BORODIN et collab., 2009; KALCHENKO et collab., 2010; WAS et collab., 1999, 2002]. En effet, cette augmentation de température permet d'augmenter la mobilité des défauts d'irradiation afin de compenser la diminution du temps de diffu-

sion.

Des relations de correspondance entre flux et température permettant d'obtenir des caractéristiques d'irradiation similaires entre des irradiations aux neutrons et celles aux ions sont proposées [MANSUR, 1978; WAS et AVERBACK, 2012]. Elles se basent sur le nombre de recombinaisons lacune-interstitiel par unité de volume, et l'annihilation des défauts ponctuels aux puits. Suivant que l'on veuille obtenir une microstructure (cavités, boucles de Frank) ou une évolution chimique (ségrégations) proche de celle obtenue aux neutrons, un changement de la température des irradiations aux ions est nécessaire afin de compenser l'effet de flux.

En théorie, si l'on souhaite reproduire une microstructure obtenue aux neutrons avec un flux K_1 à une température T_1 par des irradiations avec un taux de dommage K_2 , la température T_2 préconisée est celle calculée par la relation suivante,

$$T_2 - T_1 = \frac{\left(\frac{-kT_1^2}{E_{vm} + 2E_{vf}}\right) \ln\left(\frac{K_2}{K_1}\right)}{1 - \left(\frac{kT_1}{E_{vm} + 2E_{vf}}\right) \ln\left(\frac{K_2}{K_1}\right)} \quad (1.4)$$

Dans le cas d'évolutions chimiques, la différence de température est telle que :

$$T_2 - T_1 = \frac{\left(\frac{-kT_1^2}{E_{vm}}\right) \ln\left(\frac{K_2}{K_1}\right)}{1 - \left(\frac{kT_1}{E_{vm}}\right) \ln\left(\frac{K_2}{K_1}\right)} \quad (1.5)$$

La première équation est établie sur l'hypothèse d'un maintien des saturations en défauts ponctuels identiques, pour les deux irradiations, dans le volume, dans le but d'obtenir les mêmes sursaturations en défauts et donc théoriquement des microstructures identiques pour les deux irradiations. La deuxième équation est basée sur des flux de défauts ponctuels identiques vers les puits pour les deux conditions d'irradiation afin de reproduire les ségrégations. Dans le cas de notre étude, il sera utilisé la relation 1.4 afin d'obtenir une microstructure de cavités et boucles proche de celle obtenue en REP.

1.5 Modélisation des évolutions de la microstructure sous irradiation

La modélisation a pour objectif de permettre de prédire ou de comprendre certains phénomènes à des échelles où l'expérience atteint ses limites. L'objectif de cette partie est de décrire les différents modèles utilisés lors d'études d'évolution de la microstructure sous irradiation suivant les échelles considérées, ainsi que de situer l'approche en dynamique d'amas vis-à-vis des modèles disponibles.

1.5.1 Différentes méthodes de simulation des défauts d'irradiation

La modélisation physique des évolutions microstructurales passe par la modélisation du comportement du matériau à différentes échelles d'espace, de l'atome à la structure, et de temps, de la picoseconde à des années. Les différentes méthodes, telles les calculs ab-initio, de dynamique moléculaire, Monte-Carlo ou de cinétique chimique, ont leur propres intérêts et échelles d'action. Dans certains cas, les résultats des échelles inférieures sont introduits dans les modèles aux échelles supérieures.

Ab-initio Les méthodes ab-initio ne nécessitent pas de paramètres ajustables, elles sont basées sur la résolution approchée des équations de Schrödinger. Ces méthodes sont principalement utilisées pour des systèmes simples et permettent de déterminer des caractéristiques physiques statiques pour des configurations atomiques. Ces approches ont pour objectifs de déterminer des paramètres énergétiques telles les énergies de formation, de surface ou de migration des éléments. Les calculs sont réalisés pour des systèmes de l'ordre de la centaine d'atomes.

Potentiels empiriques Pour ces méthodes, les systèmes étudiés ont des tailles maximales de quelques centaines de milliers d'atomes et sont pour des temps de l'ordre de la dizaine de picosecondes. La physique y est introduite en considérant que les forces entre atomes sont décrites par des potentiels inter-atomiques obtenus par exemple en ajustant certaines propriétés sur des calculs obtenus en ab-initio. En dynamique moléculaire (DM), la résolution des équations de mouvement des atomes dans un volume donné permet de décrire l'évolution au cours du temps d'un système modèle. Grâce à la dynamique moléculaire, il est possible d'étudier l'évolution des cascades, des amas de défauts créés dans les cascades ou des phénomènes de diffusion des défauts ponctuels. Cependant, les très faibles temps et volumes étudiés sont limitant pour traiter des systèmes réels.

Méthodes Monte-Carlo Deux types de méthodes existent; le Monte Carlo Cinétique à l'échelle Atomique (AKMC) et le Monte Carlo sur Objet (OKMC). En AKMC, on considère tous les atomes comme pour les calculs de DM, mais les fréquences de saut sont connues a priori grâce à un modèle d'énergie et en général les atomes sont positionnés sur un réseau rigides. Le taux de transition (saut par exemple) sont connus et l'évolution du temps se fait grâce à un algorithme de temps de résidence, ce qui accélère considérablement les calculs. Cependant, cette méthode se prête mal à la modélisation des dommages d'irradiation. A l'inverse, l'OKMC est particulièrement bien adapté à l'étude de la formation des boucles et des cavités : il n'existe pas de réseau et seuls les amas de défauts sont simulés. En général, les boîtes simulées sont de plus grande taille qu'en AKMC. Chaque amas est considéré comme un unique amas pouvant diffuser, être absorbé ou émettre d'autres espèces. La corrélation spatiale des défauts étant conservée dans ces méthodes, les temps de calculs sont très longs, et les doses visées sont limitées si l'on souhaite conserver les informations de structures atomiques.

Méthodes continues en champ moyen Ces méthodes sont basées sur la cinétique chimique homogène (Rate Theory). La corrélation spatiale des défauts est abandonnée. On considère que le système est un gaz de particules (les amas de défauts) pouvant diffuser dans un solvant (la matrice). Dans ces approches dites de dynamique d'amas, les défauts considérés sont les défauts ponctuels, les amas, les dislocations, les joints de grains. Le système est considéré comme localement homogène et les interactions d'amas se produisent de façon continue dans l'espace et le temps. Ces méthodes se placent à l'échelle mésoscopique, elles sont peu consommatrices en temps de calculs et les doses visées peuvent atteindre la centaine de dpa. Le système est décrit par des variables continues qui sont les concentrations en défauts de type donné.

1.5.2 Approche en dynamique d'amas

Plusieurs modèles d'évolution des microstructures sous irradiations dans les aciers austénitiques ont été développés par les méthodes continues en champ moyen. Les pre-

miers modèles de germination/croissance développés ont par la suite été remplacés par les modèles de dynamique d'amas. En effet, contrairement à la dynamique d'amas, les premiers modèles développés traitaient séparément la phase de germination de celle de croissance.

Les modèles de croissance permettent de calculer le taux de croissance d'un amas de taille donnée par le flux net d'arrivée des défauts ponctuels, il est ensuite possible en connaissant la densité de remonter à un taux de gonflement [BRAILSFORD et MANSUR, 1977; BRAILSFORD et BULLOUGH, 1972; MANSUR, 1994; MANSUR et YOO, 1979; SIZMANN, 1968]. Les approches de germination sont basées sur celles de Russel et Wiedersich [RUSSELL, 1971, 1978; WIEDERSICH et KATZ, 1979]. Ces modèles ont été fortement utilisés dans les années 1970. Bien que la dynamique d'amas les ait peu à peu remplacés, des études sont toujours réalisées [SHORT et collab., 2016]. Dans tous les cas ces approches reposent sur deux hypothèses fortes, seuls les mono-défauts sont mobiles et les petits amas sont dans un état d'équilibre contraint.

En effet, la dynamique d'amas est basée sur les équations de rate theory en tenant compte de la totalité des amas. Contrairement à l'approche classique, la dynamique d'amas permet de traiter simultanément les phases de germination et de croissance. De plus, les amas lacunaires et interstitiels sont aussi traités simultanément. Enfin, l'hypothèse de l'état stationnaire des densités de mono-défauts n'est pas nécessaire. Du fait du grand nombre d'équations, des approximations de regroupement d'équations ont été faites dans un premier temps [KIRITANI, 1973]. Des améliorations ont par la suite été apportées concernant les approximations et des premiers calculs avec présence d'hélium ont été menés. [GOLUBOV et collab., 2001, 2007]. D'autres approximations de types Fokker-Planck ont été faites afin de résoudre les systèmes d'équations [GHONEIM et SHARAFAT, 1980]. D'autres modèles améliorant la description en loi de croissance en ajoutant la présence d'amas de plus grande taille (jusqu'à quatre lacunes ou interstitiels), ont été proposés [STOLLER et ODETTE, 1987].

Plus récemment, Barbu a développé avec Hardouin-Duparc [HARDOUIN DUPARC et collab., 2002] puis Pokor et Zouari [POKOR, 2002; ZOUARI, 2012] un code de dynamique d'amas permettant de prendre en compte simultanément les amas de type lacunaire, interstitiel ainsi que la présence de soluté. Dans l'approche de Zouari, il est considéré que l'hélium n'influe pas sur la microstructure de boucles de Frank mais seulement sur les cavités. Cette approximation permet de réduire considérablement le nombre d'équation à résoudre pour décrire l'évolution de la microstructure.

Dernièrement, Jourdan a développé le code CRESCENDO de dynamique d'amas en collaboration avec EDF R&D [JOURDAN, 2015; JOURDAN et collab., 2014]. Comparés aux modèles précédents, ce modèle a bénéficié de nombreux développements numériques. Notamment la résolution des équations pour les amas de grande taille sont résolus par une approche de type Fokker-Planck, ce qui permet de réduire considérablement le temps de calcul. CRESCENDO permet la prise en compte de l'effet de l'hélium dans des alliages de type ferritique et austénitique. Il est possible de traiter simultanément pour les amas lacunaires ou interstitiels différents types d'amas (par exemple différents types de boucles de dislocations). De plus, dans ce modèle les boucles de dislocations sont limitées en taille car l'interaction avec le réseau de dislocations est considérée. Enfin, il est possible de considérer une évolution du taux de dommage avec la profondeur dans le but de représenter les irradiations aux ions. Le modèle permet ainsi d'étudier l'évolution de la microstructure le long du profil de dommage en considérant la mobilité des défauts suivant la profondeur.

1.6 Synthèse

Dans ce chapitre, une synthèse bibliographique des évolutions microstructurales sous irradiation dans les aciers austénitiques inoxydables a été faite, ainsi que du phénomène de gonflement.

Pour des températures supérieures à 300 °C, il n'est pas rapporté, dans la littérature, la présence d'amas lacunaires de type SFT dans les aciers austénitiques commerciaux. Des black spots peuvent être observés mais sont généralement présents à basse température. Les boucles de Frank sont des boucles de dislocations fautées, elles sont généralement de nature interstitielle. À haute température, la microstructure de boucles de Frank évolue rapidement dès les premiers instants de l'irradiation et tend vers une saturation dynamique en taille et densité. Les boucles de Frank peuvent se défaire par différents mécanismes et ainsi alimenter le réseau de lignes de dislocations. Des ségrégations chimiques le long de défauts (dislocations, joints de grains, ...) ont été observées par différentes techniques et auteurs. Ces ségrégations peuvent être à l'origine de la germination de certains précipités. Il est maintenant admis que la précipitation a lieu pour des faibles températures en réacteur. Enfin, les cavités sont des amas lacunaires. Elles sont très sensibles à la température, l'état métallurgique et la présence d'hélium. L'état métallurgique initial du matériau permet de retarder la germination des cavités par écrouissage. Une augmentation de la température aura pour conséquence de favoriser la croissance des cavités par rapport à leur germination. La taille des cavités augmentera d'autant plus vite qu'elles sont en association avec des défauts microstructuraux permettant de capturer un plus grand nombre de lacunes.

Finalement, il est constaté que les interactions entre défauts vont perturber leurs évolutions respectives, à ceci, s'ajoute les effets de paramètres extérieurs (température, flux, ...) qui vont modifier fortement les cinétiques. Afin de comprendre comment les microstructures des internes de REP vont évoluer avec un prolongement de fonctionnement, il est indispensable d'améliorer les connaissances des microstructures par des caractérisations fines, pour des conditions se rapprochant de celles en REP et pour des dommages bien supérieurs.

De plus, le gonflement, est un phénomène macroscopique pouvant avoir lieu sous irradiation et qui a été fortement étudié pour des conditions RNR (fort flux et haute température). Il est le résultat d'une évolution microstructurale importante du matériau, et a longtemps été associé à la croissance de cavités. C'est un phénomène à seuil, qui nécessite la mise en place d'une microstructure de dislocations établie, c'est-à-dire une saturation en taille et en dose des boucles de Frank ainsi qu'une saturation du réseau de dislocations linéaires. Après la germination des cavités et au-delà d'une dose d'incubation un régime de gonflement peut s'établir avec un taux de gonflement constant. Le gonflement est fortement dépendant de la température et du flux. Il existe une température où le gonflement est maximal, aux neutrons rapides cette température est comprise entre 450 et 500 °C. La dose d'incubation, correspond à la dose au-delà de laquelle la microstructure est en régime de gonflement. Cette dose est dépendante de la température ainsi que du débit de dose. Une diminution du taux de dommage tend à réduire la dose d'incubation et par conséquent à déplacer la courbe de gonflement vers les plus faibles températures, dans les aciers austénitiques. De plus, il a été observé l'effet d'éléments chimiques sur le gonflement. Certains, comme le carbone peuvent réduire le gonflement lorsqu'ils sont en solution solide, mais la formation de carbures, favorisée par le carbone, peut quant à elle, aller vers une augmentation du gonflement. En effet, les précipités peuvent servir de site de recombinaison des défauts mobiles ou comme site de nucléation des cavités ce qui

peut avoir comme conséquence de favoriser le gonflement.

À partir des résultats obtenus en RNR la faible température et les faibles doses atteintes en REP pour les internes ont laissé penser que le régime de gonflement n'aurait pas lieu. Des études sur l'influence d'une diminution du flux entre RNR et REP montrent une diminution de la dose d'incubation, pouvant aller jusqu'à la disparition du régime d'incubation pour des flux proches de ceux en REP. De plus, de l'hélium est produit par la transmutation du nickel. Il peut provoquer la formation d'un grand nombre de fines bulles aux faibles températures REP. Enfin les observations menées sur des matériaux extraits de REP ont montré la présence de bulles ou cavités en forte densité, pouvant induire un gonflement de 0,24 %, mais aucun gonflement macroscopique n'est associé. Ceci montre, que le phénomène de gonflement, en conditions REP, n'est pas encore bien compris.

Afin d'appréhender, l'évolution du gonflement en conditions REP il est nécessaire de comprendre comment les défauts se forment et interagissent entre eux jusqu'aux fortes doses. Pour cela les irradiations aux ions s'y prêtent particulièrement bien, elles permettent, avec les précautions nécessaires d'atteindre rapidement des doses très supérieures à celles réalisables en réacteurs et d'obtenir des microstructures s'en rapprochant sensiblement. Pour tenter d'être représentatif d'irradiations aux neutrons par des irradiations aux ions, il est appliqué un décalage température/flux d'environ 35 - 65 °C par décade de flux. Les irradiations ont été préparées en utilisant le code de calcul de dommage SRIM en mode Kinchin-Pease.

À notre connaissance aucune irradiation aux ions à fortes doses couplées à des simulations par dynamique d'amas n'existent. D'autant plus que les irradiations aux ions sont réalisées dans des conditions permettant de s'affranchir de certains effets particuliers aux ions, suivis de caractérisations fines de la microstructure ne sont disponibles dans la littérature pour des conditions se voulant proches de celles en REP.

Ce couplage expérience / modélisation a pour objectif, dans un premier temps, de reproduire les évolutions microstructurales, afin de réaliser des études comparatives avec l'état irradié de référence par la modification de certains paramètres. Dans un second temps, les simulations par dynamique d'amas après une calibration sur le cas des irradiations mono-faisceau au ions puis avec implantation d'hélium, des simulations considérant les conditions REP pourront être faites.

Chapitre 2

Techniques expérimentales et Matériaux

Sommaire

2.1 Les irradiations aux ions	42
2.1.1 Conditions d'irradiation	42
2.1.2 Plateformes d'irradiation	43
2.2 Préparation des échantillons	50
2.2.1 Lames minces non irradiées	50
2.2.2 Échantillons irradiés	50
2.3 Caractérisations microstructurales	53
2.3.1 Microscopie Électronique en Transmission	53
2.3.2 Sonde Atomique Tomographique	61
2.4 Caractérisation de l'état de réception des matériaux	64
2.4.1 Matériaux d'étude	64
2.4.2 Caractérisations microstructurales	65
2.5 Conclusion	69

Ce chapitre a pour but de présenter les conditions expérimentales mises en place pour la réalisation des irradiations aux ions de cette étude. Il sera aussi présenté le type d'échantillon irradié ainsi que les protocoles de préparation. Les deux principales techniques expérimentales utilisées que sont la microscopie électronique en transmission (MET) et la sonde atomique tomographique (SAT) seront expliquées. Enfin, les matériaux d'études à l'état de réception sont décrits.

2.1 Les irradiations aux ions

Dans le chapitre précédent, certains avantages des irradiations aux ions ont été présentés, il a donc été choisi dans cette étude de travailler avec des ions lourds, sur les plateformes d'irradiation à proximité JANNuS-Saclay (CEA) et Orsay (CSNSM).

2.1.1 Conditions d'irradiation

Un objectif de cette thèse est d'affiner la compréhension de l'évolution des défauts ainsi que l'étude du gonflement en conditions REP, pour des durées de fonctionnement pouvant avoisiner quarante-soixante ans. Pour cela, il est donc nécessaire d'étudier l'évolution de la microstructure jusqu'à des doses importantes et représentatives de celles pouvant être obtenues en réacteur. Trois doses d'irradiations ont ainsi été réalisées 5-40 et 100 dpa. Les caractérisations des microstructures pour ces trois doses ont été faites post-irradiation.

Il a été observé dans la littérature [FUKUYA et collab., 2006; KATOH et collab., 1994; POKOR, 2002; VOLGIN, 2012] ainsi que lors de nos expériences une très forte évolution des défauts avant 5 dpa. Des irradiations in-situ ont donc aussi été réalisées jusqu'au maximum 1,5 dpa, ceci dans le but d'étudier l'évolution de la microstructure aux premiers instants d'irradiation.

La majorité des irradiations a été faite à 450 °C. Cette température a été choisie de façon à pouvoir compenser l'effet du débit de dose sur la microstructure de défauts par un shift en température [KALCHENKO et collab., 2010]. La préparation des irradiations s'est faite en utilisant l'équation du décalage flux/température proposée par Mansur [MANSUR, 1978] avec les énergies données par Was [WAS et AVERBACK, 2012], avec pour les énergies de migration et de formation des lacunes respectivement 1,3 eV et 1,9 eV. Le choix des paramètres d'irradiation aux ions a été fait dans le but de pouvoir reproduire une microstructure d'irradiation produite à environ 370 °C avec un débit de dose d'environ $5 \cdot 10^{-8}$ dpa.s⁻¹. La température de 370 °C a été visée car les internes peuvent dans les zones chaudes atteindre cette température [BYRNE et collab., 2002] et le flux de $5 \cdot 10^{-8}$ dpa.s⁻¹ est représentatif d'un flux de REP où des données sur une large gamme de doses sont disponibles [FUJIMOTO et collab., 2005; FUKUYA et collab., 2006]. Au vu des flux d'ions réalisables sur la plateforme JANNuS-Saclay, il a été considéré qu'un débit de dose d'environ $5 \cdot 10^{-4}$ dpa.s⁻¹ était réalisable. La température d'irradiation a donc été fixée à 450 °C d'après les équations de Mansur [MANSUR, 1978].

L'effet de la température sur la microstructure et le gonflement a été étudié en réalisant une irradiation supplémentaire à une température plus importante (550 °C) pour une dose atteignant 40 dpa, les microstructures obtenues ont été comparées à celles de l'irradiation à 450 °C - 40 dpa.

Enfin, en conditions REP de l'hélium est formé par transmutation. Afin de comprendre son impact sur la microstructure d'irradiation, des premières irradiations avec implantation d'hélium ont été menées à faible dose.

Le tableau 2.1 récapitule les irradiations réalisées. Ces irradiations permettent ainsi de balayer un large spectre de doses ainsi que deux températures.

TABLEAU 2.1 – Récapitulatif des irradiations réalisées.

Doses	1 dpa	1,5 dpa	5 dpa	40 dpa	100 dpa
JANNuS-Saclay			450 °C (Fe)	450 °C (Fe)	450 °C (Fe)
ex-situ				550 °C (Fe)	
JANNuS-Orsay	450 °C (Fe)	450 °C (Fe)			
in-situ	& (Fe+He)	& (Fe+He)			

2.1.2 Plateformes d’irradiation

Les irradiations ont été réalisées sur deux plateformes d’irradiation par faisceau d’ions JANNuS (Joint Accelerator for Nano-Science and Nuclear Simulations) à Saclay et Orsay [TROCELLIER et collab., 2008]. Ces deux plateformes font partie du réseau d’accélérateurs français EMIR (Étude des Matériaux sous Irradiation). Elles permettent chacune d’irradier des échantillons avec de nombreux types d’ions et énergies différentes. Les irradiations aux fortes doses (5 - 40 - 100 dpa) ont été réalisées au CEA sur la plateforme JANNuS – Saclay en utilisant l’accélérateur Epiméthée, permettant d’atteindre des énergies et flux d’ions importants. Il a ainsi été possible d’obtenir des doses élevées pour des durées d’irradiation relativement courtes. Les irradiations aux faibles doses ont été réalisées au CSNSM sur la plateforme JANNuS – Orsay qui grâce au microscope électronique en transmission sur la ligne permet la réalisation d’observations in-situ lors d’irradiations en mono-faisceau.

Il a été choisi de réaliser les irradiations avec des ions fer car il est l’élément majoritaire dans les aciers. De plus d’un point de vue technique, la source fer de l’installation JANNuS-Saclay est relativement stable et permet d’obtenir des flux importants avec une énergie d’ions élevée. La préparation des irradiations a été faite en utilisant le logiciel de calcul de dommage, SRIM [ZIEGLER et collab., 2008]. Les calculs ont été réalisés en utilisant la méthode Kinchin-Pease comme une étude récente le conseille [STOLLER et collab., 2013]. De même, les énergies de seuil de déplacement ont été fixées à 40 eV.

2.1.2.1 JANNuS - Saclay

L’installation JANNuS-Saclay (fig. 2.1) réunit trois accélérateurs de particules Japet, Pandore et Epiméthée. Ces trois faisceaux peuvent converger vers une chambre d’irradiation dite triple faisceau (3F) permettant des irradiations utilisant simultanément les trois faisceaux (fig. 2.1). Les irradiations ont été réalisées dans cette chambre 3F en mono-faisceau avec l’accélérateur Epiméthée (Pelletron 3 MV) [BECK et collab., 2015]. Pour les expériences réalisées à JANNuS-Saclay, la chambre triple faisceau a été équipée d’un porte-échantillons, présenté en figure 2.1, permettant d’irradier dix-neuf lames MET (disques de 3 mm de diamètre) simultanément. Le faisceau d’ions arrive sur les échantillons avec

une incidence de 15° par rapport à la normale du porte-échantillons. Cette incidence est prise en compte lors des calculs de doses.

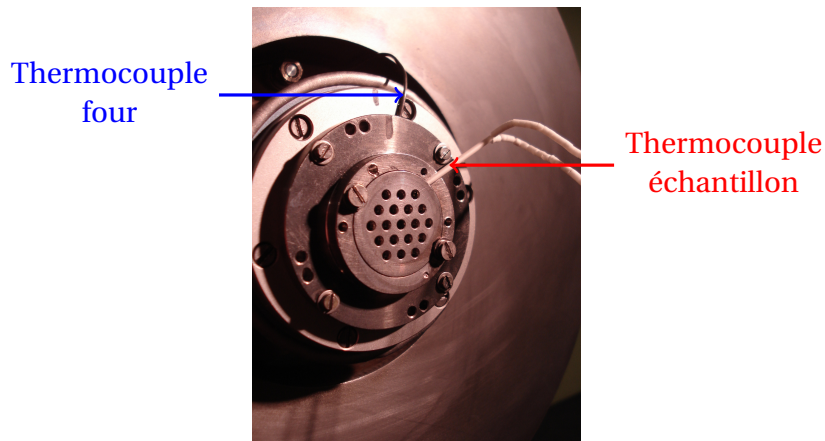
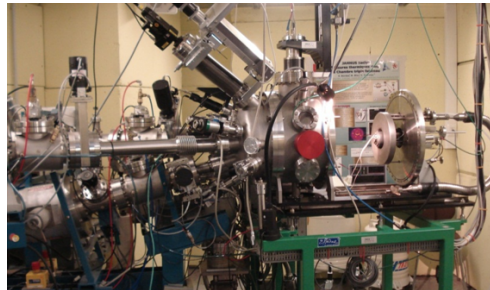
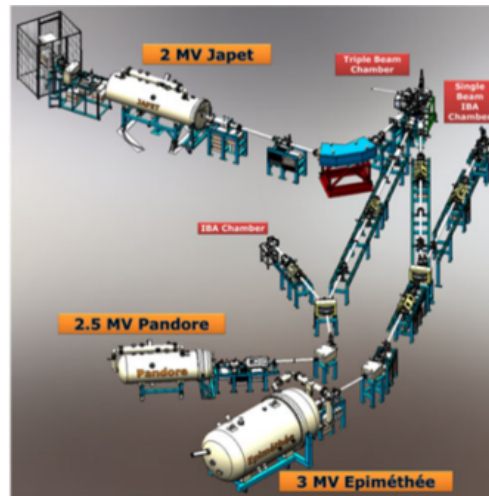


FIGURE 2.1 – Organisation de la plateforme JANNuS-Saclay, en haut un schéma des accélérateurs disponibles et des chambres d'analyses, au milieu la chambre triple faisceau 3F, en bas le porte-échantillon dix-neuf lames.

Les irradiations ex-situ ont été menées avec des ions Fe^{5+} de 10 MeV. Les ions de fortes énergie permettent d'irradier des épaisseurs plus importantes de matière que des ions de faible énergie (la profondeur de pénétration augmentant avec l'énergie des ions au détriment du taux de dommage). L'implantation des ions est profonde, ainsi une large zone irradiée avec un gradient de dommage limité et sans ion injecté (jusqu'à 1,5 μm sous la surface) est obtenue. Le choix d'une énergie de 10 MeV et donc d'un grand profil de dommage nous permet de choisir la position en profondeur de notre zone d'étude. En effet,

différentes techniques ou protocoles de préparation d'échantillons permettent de réaliser des échantillons pour des caractérisations en microscopie électronique en transmission à des profondeurs choisies. Dans cette étude, il a été retenu de réaliser les caractérisations MET sur des lames minces situées entre 650 et 850 nm. La figure 2.2 est un graphique représentant le taux de dommage en fonction de la profondeur ainsi que le taux d'implantation des ions calculés par SRIM pour des ions Fe^{5+} de 10 MeV. Le choix de la zone d'intérêt (650 - 850 nm) a été fait car il permet d'être suffisamment loin de la surface ainsi que des pic d'implantation et de dommage. Dans cette zone une très faible implantation existe d'après les calculs SRIM et le taux de dommage varie faiblement à travers la lame. Les caractéristiques des irradiations (dose objectif et taux de dommage) données dans la suite de cette étude sont pour cette zone d'intérêt.

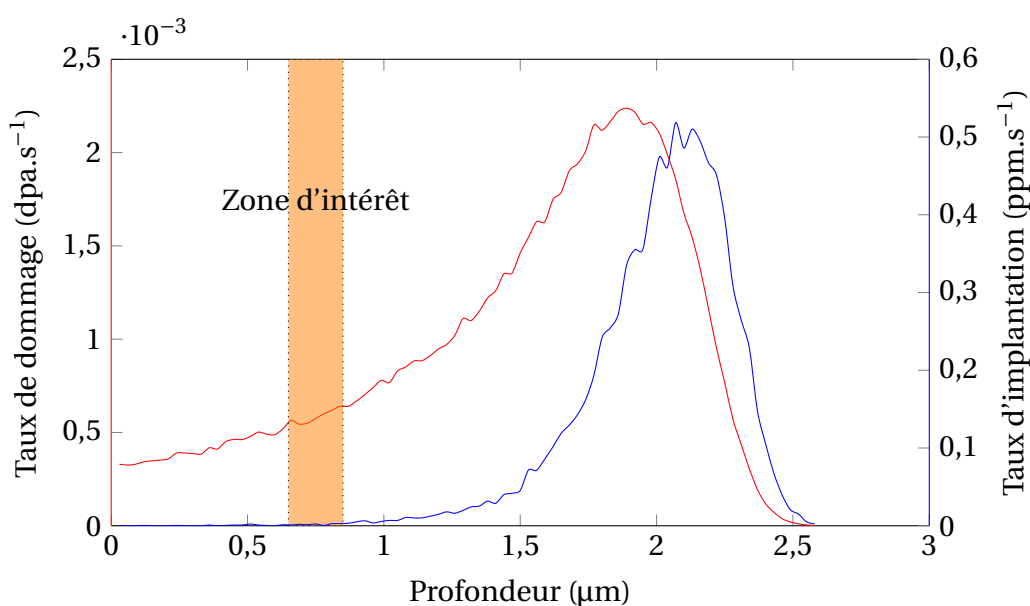


FIGURE 2.2 – Profils des taux de dommage et d'implantation obtenus avec le logiciel SRIM pour des ions Fe^{5+} 10 MeV.

Les irradiations ont été réalisées avec un flux de $2,3 \cdot 10^{10}$ ions. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ce qui est proche de la limite maximale pour de tels ions sur l'accélérateur Épiméthée. Ce flux d'ions correspond dans la zone d'observation à un taux de dommage de $5,6 \cdot 10^{-4}$ dpa. s^{-1} . Les irradiations à 5 et 40 dpa ont été réalisées en continu pour des temps d'irradiation respectivement de 2,4 h et 19,7 h. L'irradiation à 100 dpa a nécessité une interruption durant laquelle la température a été diminuée à l'ambiante afin d'éviter tout recuit de la microstructure. Le temps effectif d'irradiation a été de 47,5 h. Les conditions de chacune des irradiations sont présentées dans le tableau 2.2.

TABLEAU 2.2 – Conditions expérimentales des irradiations réalisées.

	Flux d'ions (ions. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	Températures		Doses (dpa)	
		Moyenne	Min-Max	Moyenne	Min-Max
5 dpa	$2,34 \cdot 10^{12}$	441	426-452	5	4,5-5,5
40 dpa	$2,31 \cdot 10^{12}$	446	427-473	41	32-48
	$2,27 \cdot 10^{12}$	547	523-579	40	35-45
100 dpa	$2,35 \cdot 10^{12}$	450	434-475	99	90-109

Une annonce tardive de l'installation JANNuS-Saclay, a été faite sur un défaut de fabrication d'une cage de la Faraday utilisée dans nos expériences dans la chambre triple faisceau. Ce défaut de conception impact donc la mesure de flux et donc la dose obtenue. Des premières discussions laisseraient penser que les flux seraient inférieurs à ceux désirés. Lors des irradiations un échantillon de carbone vitreux avait été inséré sur le porte-échantillons, afin de pouvoir remonter aux nombre d'ions implantés par des analyses par faisceau d'ions, post-irradiation en RBS (Spectrométrie de Rétrodiffusion de Rutherford). Malheureusement les résultats ne sont pas encore disponibles. En ce qui concerne les résultats, les doses données dans cette thèse correspondent donc aux doses théoriques visées, l'erreur devrait être la même pour toutes les irradiations. Or, comme il s'agit en grande partie d'analyses comparatives entre les différents états cela ne devrait pas modifier nos conclusions.

Deux thermocouples et une caméra thermique ont été utilisés pour obtenir une bonne régulation en température des irradiations (fig. 2.1). Les deux thermocouples sont protégés du faisceau d'ions. Un thermocouple est inséré par l'arrière du porte-échantillons et vient en contact du plot de maintien d'un échantillon dans le porte-objet. Ce thermocouple se situe donc à proximité d'une lame (thermocouple four). Le second thermocouple (thermocouple échantillon) vient par le coté du porte-échantillons et est en contact avec le bord de cette même lame. Lors de certaines irradiations le thermocouple échantillon a même été soudé à la lame. Le soudage du thermocouple sur une lame avait pour objectif de certifier la température mesurée sur cette lame et ainsi éviter toute suspicion d'un mauvais contact thermique entre le thermocouple échantillon et la lame. Une caméra thermique a été utilisée pour la régulation en température. Elle permet un contrôle de l'émissivité de la surface des lames et du porte-échantillons. L'émissivité étant reliée à la température, il est possible de calibrer la caméra thermique avant irradiation pour obtenir une mesure directe de la température en différents points du porte-échantillons au cours de l'irradiation.

Le contrôle en température est illustré en figure 2.3 sur les premières heures de l'irradiation à 450 °C jusqu'à 100 dpa. Dans le cas de cette irradiation 100 dpa le thermocouple échantillon était justement soudé à une lame afin de calibrer de façon certaine la caméra thermique sur la température avant irradiation.

La mise en route d'une irradiation ainsi que le contrôle en température peuvent être décomposés en quatre étapes. La première correspond à la montée en température du porte-échantillons hors irradiation (étape 1). Durant cette phase, on constate un écart en température entre le thermocouple du four et celui des échantillons de 40 °C. Pour que les échantillons soient à la température désirée, il faut donc une température plus élevée sur le thermocouple de consigne du four. La caméra est ensuite calibrée sur le thermocouple échantillon en calculant l'émissivité de l'échantillon à 450 °C, entre 0,22 et 0,24 (étape 2). Le pilotage en température se fait à partir de cet instant à l'aide de la caméra thermique en utilisant une mesure de température par échantillon. Les mesures de température par thermocouple ou caméra thermique sur le même échantillon sont proches. Afin d'éviter un dépassement de la température lors de la mise sous flux, la température est abaissée (étape 3). Enfin la mise sous flux (étape 4) induit pour ces conditions d'irradiation une augmentation de la température des échantillons de 60 °C. Il est à noter que les échantillons sont alors plus chauds que le four d'environ 30 °C.

Cette démarche a été adoptée pour chacune des irradiations afin de contrôler au mieux la température sur le porte-objet de façon globale et de détecter de potentiels échauffements anormaux et locaux d'échantillons. La régulation en température est ensuite faite à partir de la caméra thermique afin de maintenir la température du maximum d'échan-

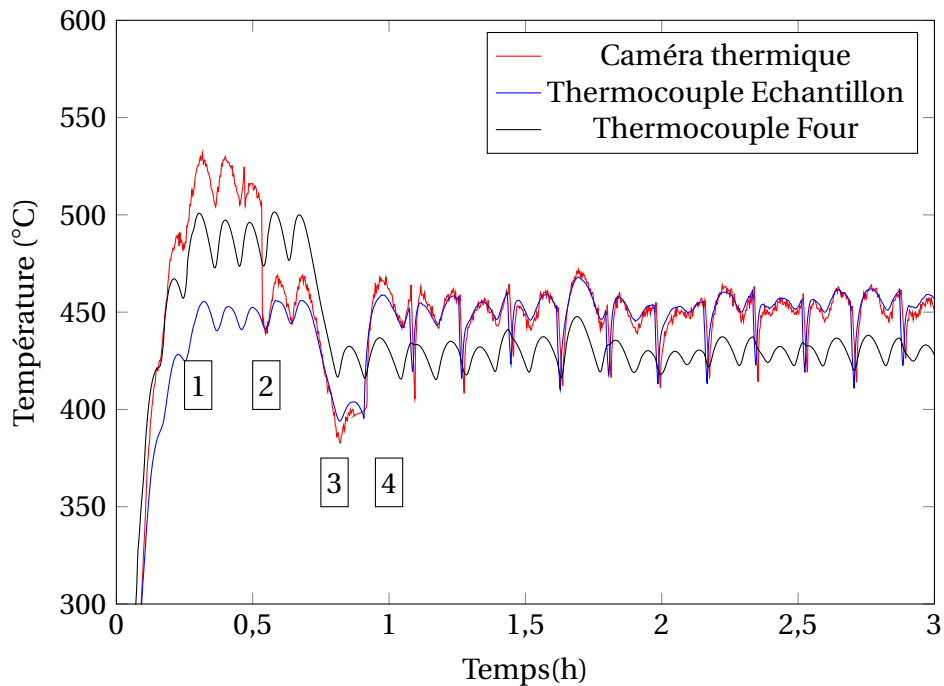


FIGURE 2.3 – Évolution de la température lors des premières heures d'irradiation à 450 °C jusqu'à 100 dpa.

tillons proche de la valeur de consigne.

Le faisceau d'ions provenant d'Epiméthée est focalisé sur le porte-objet et balaie les échantillons avec une fréquence verticale de 64 Hz et horizontale de 517 Hz. Le flux est mesuré toutes les dix minutes par la descente dans le faisceau de cages de Faraday. On observe sur le relevé de température des chutes de température qui correspondent à la descente des cages. En effet, lors des mesures de courant, le faisceau n'atteint plus le porte-objet le thermocouple mesure donc la diminution de température dû à la disparition du faisceau. De plus, les cages de Faraday en position basse se trouvent alors entre la caméra thermique et le porte-objet, la température mesurée par la caméra n'est donc pas celle correspondant aux échantillons et n'est donc pas valable.

2.1.2.2 JANNuS - Orsay

La plateforme JANNuS-Orsay est équipée d'un implanteur de 190 keV (IRMA) [CHAUMONT et collab., 1981] et d'un accélérateur Tandem/Van der Graaff 2 MV (ARAMIS) [BERNAS et collab., 1992; COTTEREAU et collab., 1990, 1989]. Les deux faisceaux d'ions convergent vers un microscope électronique en transmission (TEM FEI Tecnai G² 20 twin 200 kV) équipé d'un filament LaB₆ permettant une observation in-situ des microstructures sous irradiations [RUAULT et collab., 2005]. L'organisation de l'installation et le MET sur ligne sont présentés sur la figure 2.4. Les deux faisceaux arrivent avec un angle de 22° dans le microscope par rapport à l'horizontale et sont séparés d'un angle de 45°. Grâce à l'implanteur et l'accélérateur il est possible de réaliser des irradiations en bi-faisceau. Pour que l'échantillon soit irradié sur une surface la plus grande possible, il est nécessaire d'incliner fortement l'échantillon par rapport au faisceau d'électrons pour qu'il fasse face aux faisceaux d'ions. Pour cela des inclinaisons de 20° en α et de -10° en β du porte-objet sont nécessaires.

Dans cette étude, les expériences sur la plateforme de JANNuS-Orsay avait pour objectif la réalisation d'irradiations in-situ en mono-faisceau jusqu'à une dose d'environ

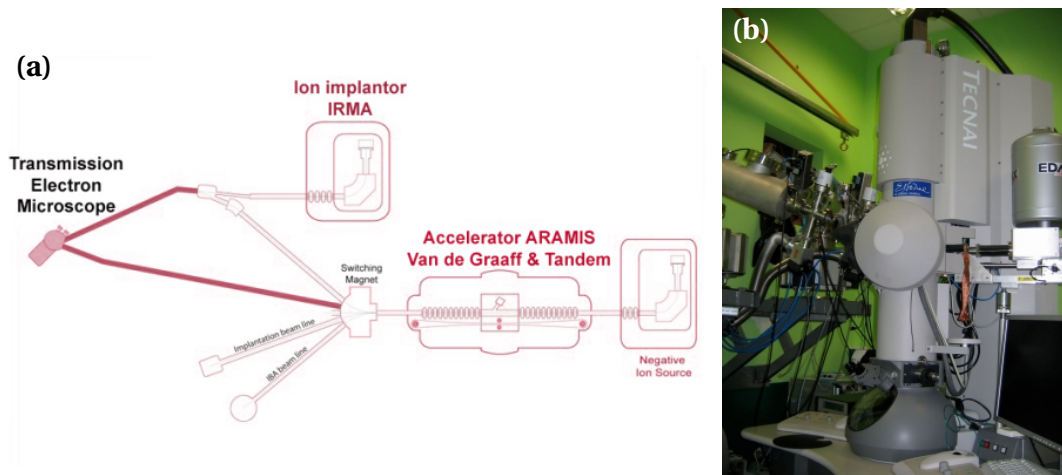


FIGURE 2.4 – (a) Schéma de la plateforme JANNuS-Orsay, (b) microscope électronique en transmission installé sur la ligne d'irradiation.

1,5 dpa. Ceci, afin d'observer l'apparition et l'évolution des défauts lors des premiers instants de l'irradiation. Des expériences d'irradiation avec une implantation simultanée d'hélium dans le but de comprendre son effet sur les cinétiques de formation ont aussi été menées. Cependant lors d'irradiation avec hélium l'observation in-situ n'est pas possible. Seules des observations pré et post-irradiation sont réalisables. Pour les irradiations bi-faisceau et mono-faisceau la même température a été utilisée 450 °C et les mêmes doses ont été réalisées 1 dpa et 1,5 dpa. Lors de l'implantation d'hélium une quantité d'hélium (15 ppm.dpa^{-1}) représentative de celle produite par transmutation en conditions REP [GARNER et collab., 1993] a été choisie. Dans le cadre des irradiations in-situ sur la plateforme JANNuS-Orsay les échantillons irradiés sont des lames minces, dont l'épaisseur des zones d'observation est proche de 100 nm. Le dommage a donc été calculé pour cette épaisseur et les caractéristiques du faisceau d'hélium déterminées pour que l'hélium soit implanté à la teneur voulu dans cette même zone.

Ainsi, les ions fer ont été utilisés afin de reproduire le dommage et l'hélium a été implanté pour simuler la transmutation.

Des ions fer d'énergie 1 MeV ont été utilisés afin d'éviter leur implantation dans la lame. Un flux d'ions d'environ $1,2 \cdot 10^{11} \text{ ions.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui correspond à un débit de dose de $1,3 \cdot 10^{-4} \text{ dpa.s}^{-1}$, a été choisi afin de conserver un taux de dommage convenable et proche des irradiations ex-situ.

Lors des irradiations en bi-faisceau, des ions hélium d'énergie 15 keV à un flux de $2,9 \cdot 10^{11} \text{ ions.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ont été implantés. La figure 2.5 illustre le profil d'irradiation et d'implantation pour une irradiation in-situ en bi-faisceau, la zone d'observation correspond aux premiers 100 nm. Les conditions expérimentales des irradiations in-situ sont résumées dans le tableau 2.3.

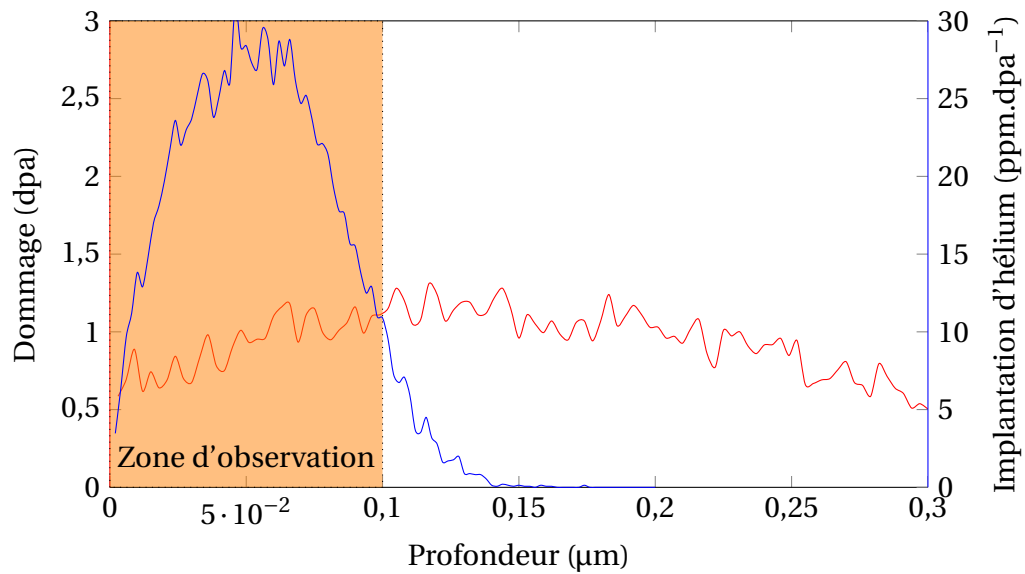


FIGURE 2.5 – Profils des taux de dommage et d’implantation d’hélium obtenus avec le logiciel SRIM en utilisant des ions Fe^+ 1 MeV et He^+ 15 keV.

TABLEAU 2.3 – Conditions expérimentales des irradiations in-situ menées à JANNuS-Orsay à 450 °C.

	Type d’ions	Flux (ions.cm ⁻² .s ⁻¹)	Dose (ions.cm ⁻²)	Hélium (ions.cm ⁻²)	Temps (min)	Matériau
1 dpa	Fe^+	$1,1 \cdot 10^{11}$	$6,5 \cdot 10^{14}$	0	103	304L
		$1,2 \cdot 10^{11}$	$6,8 \cdot 10^{14}$	0	96	304
	$Fe^+ + He^+$	$1,2 \cdot 10^{11}$	$6,8 \cdot 10^{14}$	$2,3 \cdot 10^{13}$	96	304L
				$2,3 \cdot 10^{13}$	91	304
1,5 dpa	Fe^+	$1,2 \cdot 10^{11}$	$9,8 \cdot 10^{14}$	0	136	304L
	$Fe^+ + He^+$	$1,2 \cdot 10^{11}$	$9,8 \cdot 10^{14}$	$3,4 \cdot 10^{13}$	137	304L
						304

2.2 Préparation des échantillons

La préparation d'échantillons a conditionné la suite des observations et expériences qui ont été faites sur ceux-ci. Différents protocoles pour la préparation des échantillons ont été mis en place selon que les échantillons étudiés étaient irradiés ou non.

Tous les échantillons ont été prélevés dans le matériau massif par une découpe à la tronçonneuse, puis ont été amincis par polissages successifs aux papiers SiC jusqu'à une épaisseur d'environ 100 μm , le dernier papier utilisé étant le papier SiC 1200. Une fois le feuillard d'une épaisseur de 100 μm obtenu, des disques de 3 mm de diamètre ont été poinçonnés dedans.

2.2.1 Lames minces non irradiées

Les échantillons destinés aux observations avant irradiation ont été ensuite percés par polissage électrolytique à l'aide d'un Tenupol 4 et d'une solution refroidie. Une température de 5 °C et une tension de 30 V ont été utilisées. Il est préférable pour un bon polissage que le courant soit inférieur à 200 mA. La solution utilisée contient 70% d'éthanol absolu, 20% d'éther mono butylique d'éthylène glycol et 10% d'acide perchlorique (solution 721).

2.2.2 Échantillons irradiés

Les échantillons utilisés pour les irradiations ex-situ et in-situ ne sont pas soumis aux mêmes protocoles. Les échantillons destinés aux irradiations in-situ étaient des lames minces, ils ont été préparés avec la même procédure que les lames minces non irradiées. La spécificité de la préparation des échantillons destinés aux irradiations ex-situ est présentée dans les parties ci-dessous.

2.2.2.1 Pré-irradiation

Les échantillons irradiés en ex-situ étaient des lames préparées en « pré-cuvette ». Ces échantillons sont massifs et ne présentent donc à l'irradiation qu'une seule surface pouvant entraîner des phénomènes de recombinaison des défauts ponctuels [GARNER et THOMAS, 1973] ou la disparition de dislocations [SATO et collab., 2012, 2015] liés aux effets de surface qui sont très prononcés pour des irradiations sur des lames percées [VOLGIN, 2012].

Pour obtenir des lames avec une cuvette sur une seule face, le polissage électrolytique a été fait avec deux lames dos à dos durant un temps équivalent à celui nécessaire au perçage d'une lame. On obtient alors deux lames avec une cuvette profonde d'une demi-épaisseur de lame.

Comme présenté précédemment, la zone d'observation choisie étant 650 nm sous la surface post-irradiation. Il a été nécessaire de retirer, après irradiation, cette épaisseur par polissage électrolytique (polissage en face avant) puis de percer la lame par l'arrière.

2.2.2.2 Polissage en face avant - Post-irradiation

Le polissage en face avant permet d'aller chercher en profondeur une zone à observer. Pour cela, le protocole a été adapté de la thèse de D. Brimbal pour les alliages Fer-Chrome [BRIMBAL, 2011]. Il est schématisé en figure 2.6. Après irradiation de la surface polie en pré-cuvette celle-ci est nettoyée par polissage ionique (PIPS). Puis, elle est électropolie à très basse température afin de retirer une épaisseur de 650 nm. La lame est enfin percée

par un polissage électrolytique sur la face arrière après avoir protégé la surface irradiée par un dépôt de lacomite. Afin de valider le protocole il a été nécessaire de tester chacune des étapes pour les matériaux d'étude ainsi que d'établir les conditions de chacune d'elles.

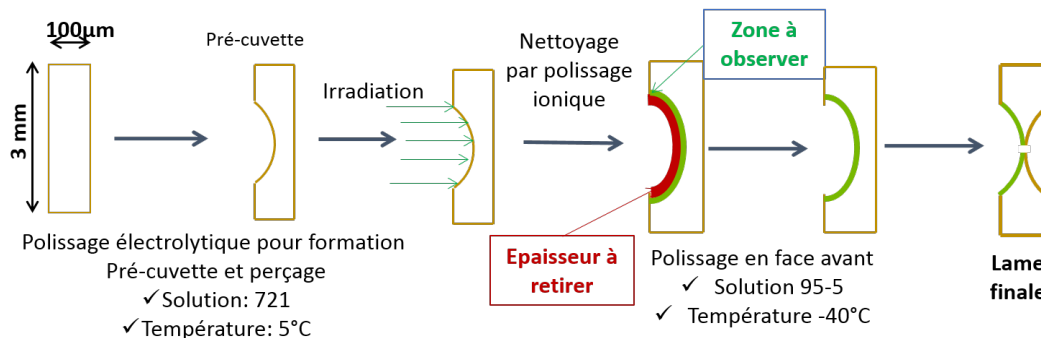


FIGURE 2.6 – Protocole de polissage en face avant.

La partie la plus délicate du protocole est la partie du polissage en face avant. Il est en effet nécessaire de pouvoir retirer précisément une épaisseur d'environ 650 nm. Un retrait de matière beaucoup plus important pourrait placer la zone observée dans le pic de dommage avec une dose finalement beaucoup plus importante ainsi qu'une implantation forte en ions fer, voire même une suppression totale de la zone irradiée. Un polissage insuffisant donnerait une dose plus faible.

Pour mettre au point le protocole, il a fallu choisir la solution de travail, la température, la tension et le temps de polissage. Il est nécessaire d'avoir un polissage doux, c'est-à-dire un polissage lent et ne favorisant pas la piquuration. Pour cela, abaisser la température de la solution de polissage électrolytique a permis de réduire la vitesse d'attaque. La solution électrolytique et la température retenues ont été le 95-5 à -40°C . La solution 95-5 est composée de 95% d'éthanol absolu et de 5% d'acide perchlorique et la tension optimale de travail est 40 V.

Afin de déterminer l'épaisseur retirée par polissage en face avant, des essais à différents temps et températures ont été réalisés. L'épaisseur retirée a été estimée par profilométrie. Une fois la pré-cuvette obtenue, la lame est à moitié recouverte par de la lacomite, puis polie par polissage électrolytique. Lors du polissage en face avant, seule la moitié non protégée de la cuvette est attaquée créant alors une marche. La lacomite est ensuite retirée et la marche est mesurée à l'aide d'un profilomètre. La figure 2.7 illustre une mesure de marche réalisée par profilométrie. Cette méthode a aussi été systématiquement réalisée lors du polissage en face avant des lames irradiées, une lame témoin étant adossée à la lame irradiée afin de pouvoir mesurer l'épaisseur retirée à postériori.

Expérimentalement, avec une augmentation de la température, une forte accélération de la vitesse de polissage (fig. 2.8) a été observée. A -40°C pour obtenir une réduction d'épaisseur de 650 nm un temps de polissage électrolytique assez court de 7 s est utilisé.

Bien que la méthode de polissage puisse présenter des variations de résultats entre chaque expérience, suivant la solution utilisée, le débit des buses, la température, ... l'erreur en dose résultant de la précision de la profondeur de polissage, est acceptable.

Ainsi les essais réalisés ont permis de valider l'étape de polissage en face avant. Elle permet de retirer de manière reproductible une épaisseur de 650 nm sur la face irradiée. De plus, l'utilisation du polisseur ionique n'est appliquée que pour retirer une éventuelle couche d'oxyde sur la surface de la lame. La faible énergie d'utilisation et le faible temps

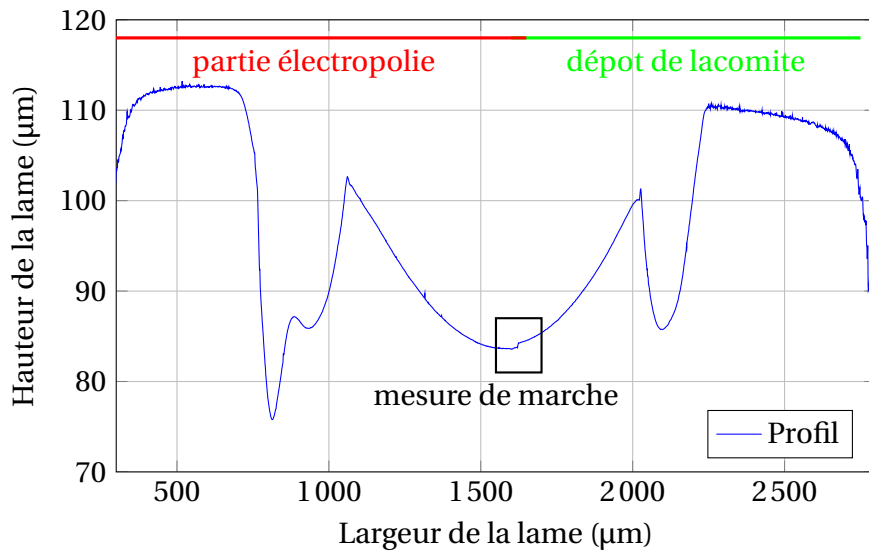


FIGURE 2.7 – Mesure de l'épaisseur retirée par polissage en face avant.

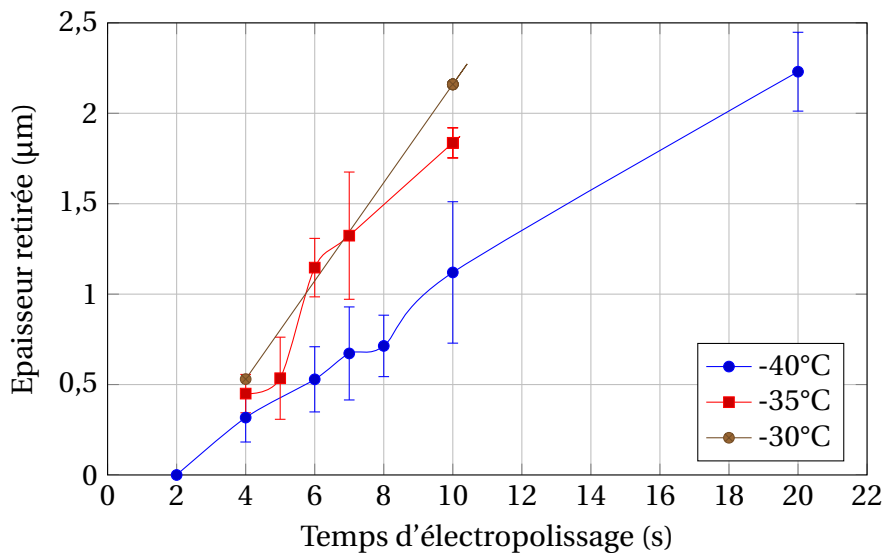


FIGURE 2.8 – Effet de la température et du temps sur l'épaisseur retirée par électropolissage en face avant.

de polissage ionique ne permettent pas de créer des défauts d'irradiation suffisamment profonds pour qu'il en reste après le polissage en face avant. Selon les calculs SRIM, la profondeur d'implantation des ions argon à 1 keV est en effet inférieure à 5 nm.

2.3 Caractérisations microstructurales

2.3.1 Microscopie Électronique en Transmission

Les observations au microscope électronique en transmission ont été faites sur des lames amincies par polissage électrolytique. Les microscopes utilisés sont un Jeol 2100 équipé d'un filtre en énergie d'électron (Gatan Tridiem) ainsi qu'un Jeol 2010 équipé de pièces polaires permettant des analyses haute résolution, ils sont localisés au Service de Recherches Métallurgiques Appliquées (SRMA) du CEA ainsi qu'un MET Tecnai localisé au Service de Recherches de Métallurgie Physique (SRMP). Il est ici rappelé quelques notions et techniques utilisées au cours de cette thèse, mais pour plus de détails sur la microscopie électronique en transmission, le lecteur pourra se référer notamment aux ouvrages suivant [JENKINS et KIRK, 2001; LORETTO et SMALLMAN, 1975; WILLIAMS et CARTER, 2009].

2.3.1.1 Imagerie conventionnelle des défauts microstructuraux

La microscopie électronique en transmission est un outil permettant entre autre d'observer directement les défauts microscopiques présents dans un matériau. Pour cela, l'échantillon observé doit être suffisamment mince pour qu'il soit transparent aux électrons (de l'ordre de la centaine de nanomètres). Au passage des électrons dans la matière, certains peuvent être diffractés par le réseau cristallin si les conditions de diffraction sont respectées. La diffraction ainsi que l'absorption des électrons vont alors induire des contrastes qui seront observables en image.

Il peut être réalisé un cliché de diffraction d'une zone d'étude, ce cliché donne une information directe sur l'organisation cristalline de la zone. En plus du faisceau transmis, correspondant aux électrons non diffractés, des taches d'intensité plus faible sont caractéristiques des plans diffractant. Il est par la suite possible d'imager la microstructure à partir des électrons transmis (champ clair) ou à partir des électrons diffractés par certains plans (champ sombre). La sélection du faisceau servant à l'image est faite à l'aide d'un diaphragme situé proche du plan focal des lentilles objectif. Sélectionner directement le faisceau diffracté avec le diaphragme induirait un astigmatisme important car le faisceau ne serait pas suivant l'axe optique du microscope. Pour minimiser cet astigmatisme le faisceau incident est donc incliné afin de positionner le faisceau diffracté dans l'axe optique.

Pour mettre en place un champ clair, l'échantillon est, dans un premier temps, placé de façon à ce qu'une seule famille de plans ne diffracte. On parle alors de condition deux ondes (faisceau d'électrons transmis et diffracté). L'écart aux conditions de Bragg (s_g) correspond à la distance entre la sphère d'Ewald et le point du réseau réciproque \mathbf{g} correspondant à la famille de plans diffractants. En condition de Bragg ($s_g = 0$), on parle alors de condition dynamique (fig. 2.9 .a). De fortes interactions ont lieu entre le faisceau transmis et le faisceau diffracté. Les contrastes résultants sont alors complexes à interpréter. Afin d'éviter les contrastes dynamiques, il est préférable de travailler en condition cinématique. Pour cela, l'échantillon est légèrement incliné de façon à s'écarter des conditions

de Bragg avec un s_g légèrement positif (fig. 2.9 .b). Les contrastes sont alors plus simples et correspondent mieux aux dimensions physiques des défauts.

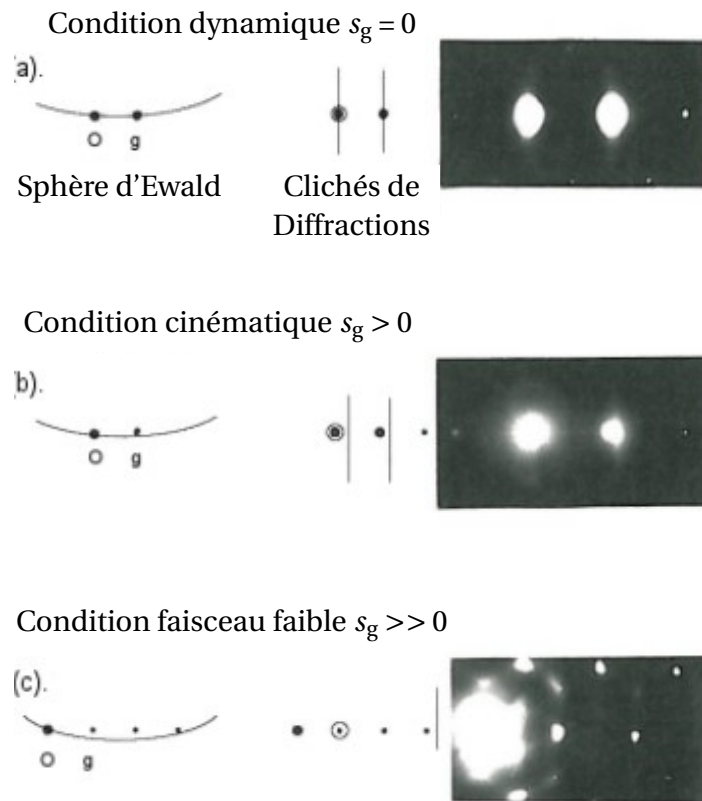


FIGURE 2.9 – Illustrations des différentes conditions d'observation en diffraction, avec pour chacune des conditions la position de la sphère d'Ewald par rapport au réseau réciproque à gauche, au centre la position des lignes de Kikuchi et à droite un cliché de diffraction correspondant. Adaptée de [JENKINS et KIRK, 2001].

La présence de certains défauts (les dislocations ou précipités) peuvent suivant les conditions d'orientation diffracter localement les électrons. En imageant le faisceau d'électrons transmis la matrice sera donc en claire et les défauts en sombre. On parle donc de champ clair en condition cinématique.

Si un faisceau diffracté est sélectionner (par exemple d'un précipité), en conservant un écart aux conditions de Bragg faible, il sera réalisé un champ sombre. Les contrastes en image étant le résultat de rapport d'intensités des défauts diffractant, alors lors la sélection d'une réflexion associée à un précipité, la matrice ne diffractant pas dans cette condition, le précipité apparaîtra en clair sur fond sombre. Si le faisceau transmis est sélectionné, il est réalisé un champ claire, la matrice sera claire.

Le champ clair et le champ sombre permettent d'observer une grande partie des défauts. Cependant les contrastes obtenus sont très forts et ne permettent pas toujours une observation fine des défauts. Pour une dislocation, de nombreux plans autour de la dislocation peuvent se trouver en condition de Bragg provoquant une forte diffraction des électrons localement induisant une résolution spatiale limitée. Les défauts de petite taille ne sont alors pas bien résolus. De plus, dans le cas d'un champ sombre sur une réflexion de la matrice les dislocations apparaîtront en noir sur fond gris, car l'intensité diffracté par la matrice est supérieure à celle de la dislocation. Comme nous allons le voir plus loin ces contrastes ne sont plus valables pour un écart aux conditions de Bragg grand.

Afin d'y remédier et d'obtenir une très bonne résolution des défauts il est préférable

d'utiliser les méthodes en faisceau faible . Cela consiste à incliner l'échantillon de façon à augmenter l'écart aux conditions de Bragg. Augmenter l'écart s_g des plans \mathbf{g} revient à rapprocher des conditions de Bragg les plans de type $3\mathbf{g}$ ou supérieurs . Quand s_g est grand le faisceau diffracté est faiblement excité, donc de faible intensité car loin des conditions de diffraction (fig. 2.9 .c). Cependant, la distorsion du réseau par la dislocation permettra à des plans proches de la dislocation de diffracter. Le rapport entre l'intensité diffractée par les plans proches de la dislocation et celle diffractée par la matrice sera grand mais l'excitation reste faible du à s_g très grand. En imageant le faisceau diffracté (champ sombre en faisceau faible) les dislocations apparaîtront en claires sur fond sombre, avec un pic d'intensité étroit sur le cœur de la dislocation donnant une meilleure résolution.

Cette méthode est privilégiée lors de l'observation de forte densité de dislocations ou de l'observation de franges de fautes d'empilement dans les boucles de Frank. Il est usuel de préciser les conditions de champ sombre en faisceau faible utilisées pour imager les défauts : $\mathbf{g}/n\mathbf{g}$ avec \mathbf{g} le faisceau utilisé pour l'imagerie et $n\mathbf{g}$ la famille de plan la plus excitée c'est-à-dire en conditions de Bragg. Plus n sera grand, plus l'image sera fine mais les intensités très faibles. Sur la figure 2.10 on peut remarquer que l'écart aux conditions de Bragg n'est pas constant sur la totalité de l'image, la variation de contraste entre le coin supérieur droit et inférieur gauche traduit une augmentation de s_g .

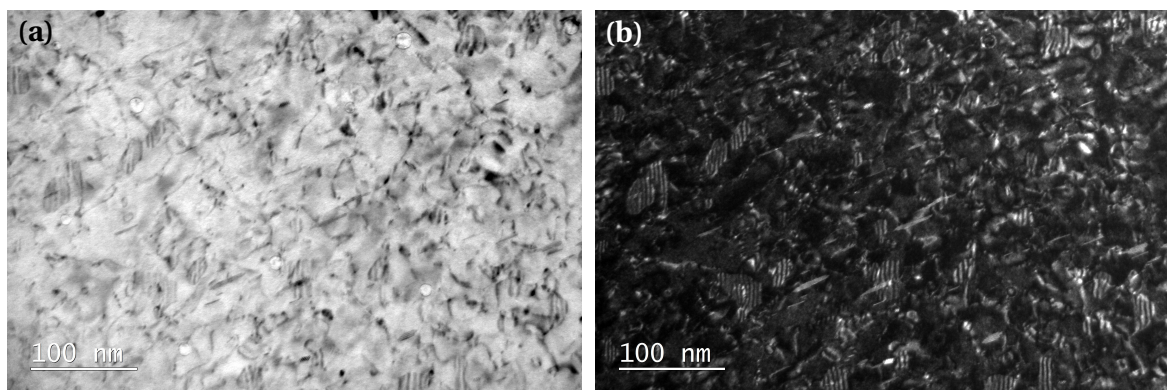


FIGURE 2.10 – (a) image en champ clair et (b) image associée en champ sombre en faisceau faible en condition $\mathbf{g}/5\mathbf{g}$ et \mathbf{g} de type $\langle 111 \rangle$.

2.3.1.2 Visualisation des défauts

Dislocations Les lignes de dislocations sont observées en utilisant les techniques décrites précédemment d'imagerie en condition de faisceau faible ce qui permet une bonne visualisation de ce type de défauts.

Les précipités Sous irradiation des précipités se forment [RENAULT et collab., 2010; RE-NAULT LABORNE et collab., 2015; RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. Ces précipités peuvent diffractés et être imagés en champ clair mais aussi en champ sombre. En champ sombre comme les précipités n'ont pas la même organisation cristalline (maille, paramètre de maille) que l'austénite, des réflexions de diffraction caractéristiques (fig. 2.11.a) et propre à chacune des familles de précipités sont visibles en diffraction. Comme indiqué précédemment; en réalisant un champ sombre sur l'une de ces réflexions les précipités seront alors visibles sur fond noir, la matrice ne diffractant pas dans ces conditions.

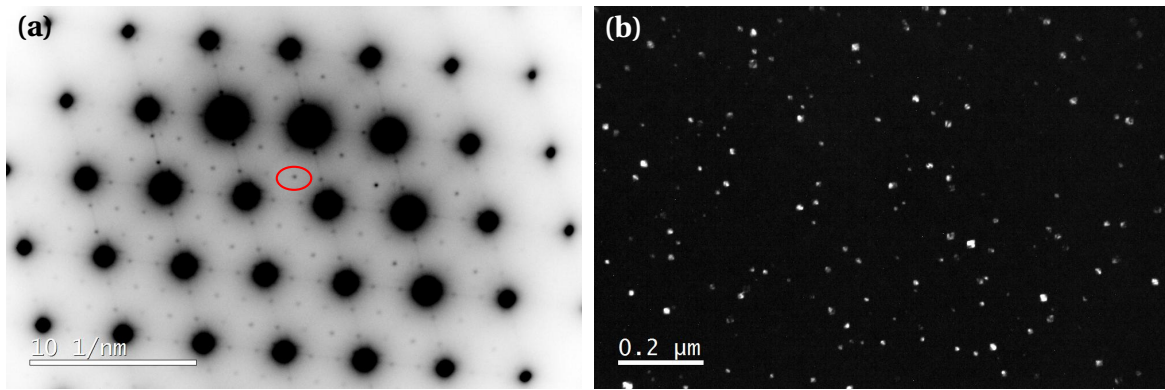


FIGURE 2.11 – (a) Diagramme de diffraction en axe de zone [110] de l'austénite dans lequel hormis les réflexions de l'austenite on observe des réflexions compatibles avec celles de carbures $M_{23}C_6$. (b) Image en champ sombre après sélection d'une réflexion associée à la précipitation entourée en rouge.

Des analyses MET en haute résolution peuvent permettre de remonter à l'organisation de la structure cristalline du précipité. Il est observé des contrastes résultant des empilements atomiques, et l'analyse de ces images peut permettre d'identifier la structure cristalline, en particulier à travers la réalisation de la transformée de Fourier de l'image. La réalisation d'une transformée de Fourier des images haute résolution donne un « équivalent » mathématique des clichés de diffraction.

Boucles de Frank - RelRod Dark Field L'imagerie des boucles de Frank en deux ondes en champ clair est possible mais au vu de la taille et de la densité des boucles, cette méthode n'est pas forcément adaptée pour leur quantification. La quantification est difficile même si les conditions d'extinction sont utilisées. Pour y remédier d'autres techniques en champ sombre sont préférées. Dans cette étude il sera utilisé la technique des « trainées de diffusion » en champ sombre (RelRod) [EDWARDS et collab., 2003b; ETIENNE, 2009; GARNIER, 2007; SENCER et collab., 2003], bien que d'autres méthodes existent, notamment celle des spots satellites [OKAMOTO et HARKNESS, 1973].

Les boucles de Frank sont situées dans un plan {111}, il existe donc quatre familles de boucles de Frank et leur vecteur de Burgers est de type $\mathbf{b}=a/3 \langle 111 \rangle$. La faute d'empilement va modifier le facteur de forme du réseau réciproque par l'insertion de cylindre de direction $\langle 111 \rangle$. Le signal de diffraction des boucles de Frank va alors être convolué avec le signal de la matrice. Le schéma de la figure 2.12 permet d'illustrer l'orientation des différents bâtonnets caractéristiques des boucles de Frank dans le réseau réciproque par rapport à ceux de la matrice. L'intersection de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque donnera des spots ou des trainées de diffusion caractéristiques des boucles de Frank suivant l'orientation du cristal.

L'imagerie des boucles de Frank par la technique des trainées diffuses se réalise en orientant le cristal proche de l'axe de zone [110]. Deux plans {111} sont alors parallèles au faisceau tandis que deux autres sont inclinés. Les deux premiers plans sont alors imagés sur la tranche. L'interaction de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque donne lieu à des trainées diffuses caractéristiques de cette famille de boucles (fig 2.13). Afin d'obtenir une bonne excitation des trainées, il est préférable de se mettre en condition deux ondes pour exciter les spots (113) (fig 2.13). Dans ces conditions d'observation, la trainée diffuse, située entre les spots (200) et (111), apparaît clairement. En réalisant un champ sombre

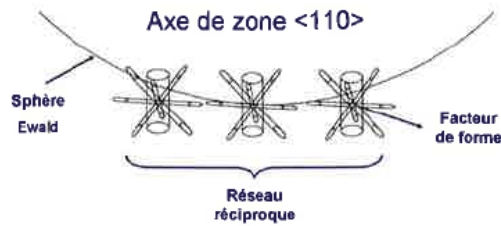


FIGURE 2.12 – Réseau réciproque de la matrice contenant les boucles de Frank, suivant l'orientation du faisceau d'électrons, $B \sim [110]$ [GARNIER, 2007].

sur la trainée diffuse, la famille de boucles contenue dans le plan $\{111\}$ correspondant apparaît en blanc sur fond noir. Cette technique est aussi nommée, visualisation en champs sombre sur la trainée à $1/2 \{113\}$.

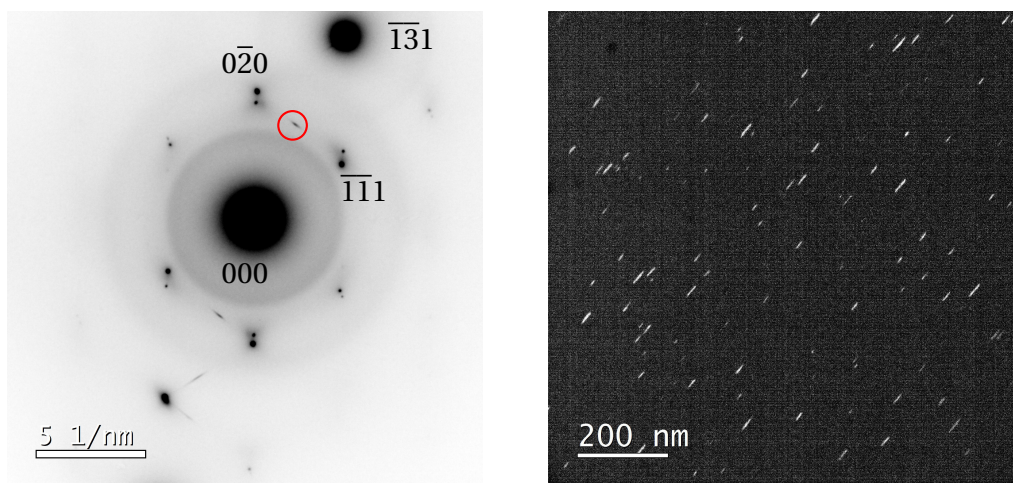


FIGURE 2.13 – (a) Diagramme de diffraction en condition deux ondes $B \sim (101)$, $g = \frac{1}{2}(\overline{131})$ et (b) image en champ sombre des boucles de Frank $[1\overline{11}]$ en utilisant la trainée de diffusion entourée en rouge.

Les cavités - sous-/sur-focalisation Les cavités sont des défauts lacunaires se formant sous irradiation. Leur taille peut varier de plusieurs nanomètres jusqu'à des tailles inférieures à la limite de résolution des MET (0,5-1 nm). L'observation des cavités se fait en zone hors contraste. Afin de pouvoir visualiser les petites cavités (< 10 nm) la technique de sur- et sous-focalisation (fig. 2.14) est utilisée [STEVENS et JOHNSON, 1997]. L'observation de l'image parfaitement au point ne permet en effet pas d'observer les très petites cavités. Cependant, si l'on sur-focalise ou sous-focalise l'image de l'ordre de 300 nm, l'apparition de franges de Fresnel noires ou blanches autour des cavités permet de les observer plus facilement. En sur-focalisant, les cavités apparaissent en sombre entourées d'une frange blanche, tandis qu'en sous-focalisant les cavités sont claires entourées d'une frange noire.

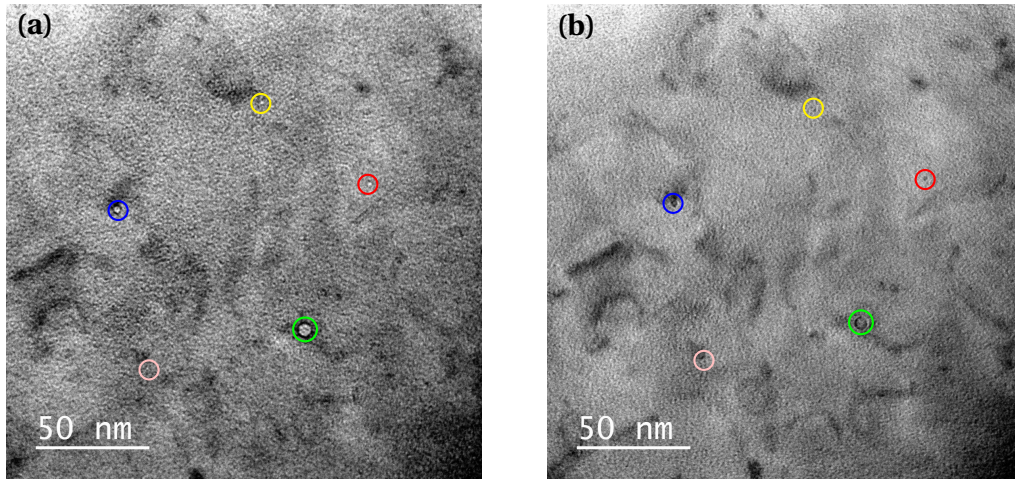


FIGURE 2.14 – Technique de sous-focalisation, $\delta - 300$ nm (a) et de sur-focalisation, $\delta + 300$ nm (b)

2.3.1.3 Analyses quantitatives des défauts

Quantification La quantification des défauts est faite uniquement à partir des images MET obtenues avec les techniques précédentes. Les images sont traitées avec un logiciel de traitement d'images (Visilog) permettant de simplifier le comptage des défauts. La quantification des boucles de Frank est faite à partir des images obtenues en Rel-Rod. La longueur mesurée correspond au diamètre de la boucle. Les quatre familles étant équivalentes [VOLGIN, 2012], la densité déterminée pour une famille est multipliée par quatre pour obtenir la densité totale de boucles de Frank. Pour tous les états au moins deux familles de boucles ont été mesurées et comparées afin de vérifier une éventuelle différence de distribution. Les cavités sont mesurées à l'aide du même logiciel de traitement d'image que les boucles de Frank (fig. 2.15). Les cavités sont entourées manuellement et le diamètre de la cavité correspond au diamètre équivalent de la surface mesurée, en considérant les cavités comme sphériques. Dans le cadre de notre étude, il est calculé et présenté la fraction volumique des cavités (équation 2.1) obtenue à partir des densités et diamètres déterminés avec le logiciel de traitement d'image et en tenant compte de la totalité de la distribution. Cependant, cette mesure ne correspond pas exactement au gonflement. En effet, si l'on considère que seules les cavités participent au gonflement, le gonflement G se mesure à partir du volume avant irradiation (équation 2.2).

$$\text{Frac}_{\text{vol}}\% = \frac{\Delta V}{V} = \frac{\Delta V}{e * S}, \quad (2.1)$$

et,

$$G = \frac{\Delta V}{V - \Delta V}, \quad (2.2)$$

avec, ΔV le volume de cavité, V le volume de la zone étudiée d'une surface S et d'une épaisseur e .

La différence entre ces deux notions est notable surtout pour des fractions volumiques importantes, par exemple une fraction volumique de cavités de 50% correspond à un gonflement de 100%.

Des échantillons prélevés par FIB ont été réalisés dans cette étude afin de caractériser l'évolution de la microstructure le long du profil de dommage. Lors du comptage des défauts sur ces échantillons, leur position par rapport à la surface est aussi mesurée. Les profils de taille et de densité en fonction de la profondeur ont été réalisés en discrétisant

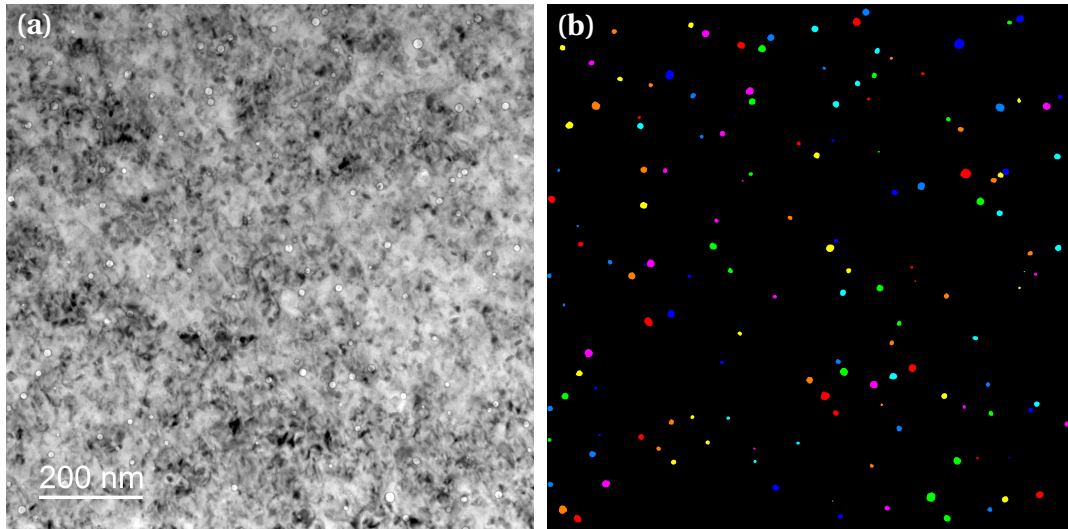


FIGURE 2.15 – Comptage des cavités dans le 304L -100 dpa avec le logiciel Visilog, (a) la micrographie devant être comptée, (b) les cavités comptées.

la lame FIB en tranches de 75-100 nm de largeur, la taille moyenne et la densité des défauts sont calculées pour chacune des tranches.

Que ce soit pour la taille des cavités ou des autres défauts, il a été estimé qu'une erreur de mesure de 1 nm sur le diamètre pouvait être faite. À cette erreur, est ajoutée une erreur statistique correspondant à la confiance donnée en la valeur moyenne. Plus le nombre de défauts comptés est important plus l'erreur statistique diminue. Il convient donc de calculer l'erreur sur le diamètre des défauts suivant l'équation 2.3.

$$\Delta d_{moy} = \Delta d_{stat} + \Delta d_{mesure} = \frac{\sigma_n}{\sqrt{n}} + \Delta d_{mesure} = \frac{\sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{(i=1)}^n (d_i - d_{moy})^2}}{\sqrt{n}} + \Delta d_{mesure} \quad (2.3)$$

Avec,

- n : le nombre de défauts,
- σ_n : l'écart type des diamètres mesurés,
- d_{moy} : le diamètre moyen de l'ensemble des mesures,
- d_i : le diamètre de l'objet.

À partir des images en faisceau faible, la quantification du réseau de dislocations a été fait par la méthode des intercepts [UNDERWOOD, 1970]. Il ne faut pas oublier que suivant les conditions d'observations certaines dislocations peuvent ne pas être visibles. En effet les dislocations parfaites ne sont visibles que lorsque $g \cdot b \neq 0$. Un facteur correctif K doit donc être appliqué conduisant à l'équation 2.4.

$$\rho = K * \frac{2 * N * G}{e * L} \quad (2.4)$$

Où,

- K : facteur correctif d'extinction des dislocations,
- N : nombre d'intercepts,

- G : grandissement,
- L : longueur des lignes utilisées,
- e : épaisseur de l'échantillon.

Mesure d'épaisseur par perte d'énergie EELS Les mesures d'épaisseur des zones d'études ont été faites par spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS). Quand cette mesure n'a pu être faite (le microscope FEI Tecnai du SRMP n'étant pas équipé pour de telles mesures) il a été arbitrairement considéré une épaisseur moyenne de 100 nm avec une erreur possible sur l'épaisseur estimée de 50%. Cette hypothèse sur l'épaisseur est en accord avec les épaisseurs mesurées par EELS durant d'autres analyses.

La spectroscopie de perte en énergie des électrons est basée sur les interactions inélastiques des électrons incidents avec ceux de la matière résultant en une perte d'énergie et une déviation de leur trajectoire. L'interaction des électrons incidents, qui ont tous la même énergie, avec la matière va produire un spectre en énergie fournissant de nombreuses informations notamment sur la chimie du matériau et l'épaisseur de l'échantillon.

Dans notre cas le spectre en énergie est acquis par un détecteur CCD EELS situé après un spectromètre sous la colonne du microscope (Gatan GIF EELS sur le Jeol 2100). La figure 2.16 illustre le type de spectre en perte d'énergie obtenu. On y trouve en $\Delta E = 0$ eV un pic correspondant aux électrons transmis sans perte d'énergie, il est appelé le pic élastique. Le pic à faible perte d'énergie $\Delta E \cong 20$ eV appelé plasmon correspond aux excitations électroniques des électrons peu liés aux atomes. Les pics à plus hautes énergies sont dus aux interactions avec les électrons de cœur, produisant de plus fortes pertes d'énergies.

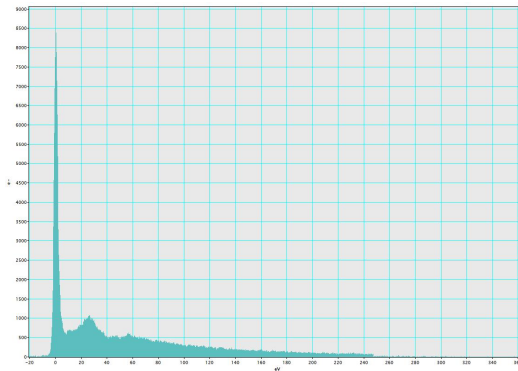


FIGURE 2.16 – Spectre de perte d'énergie des électrons

La mesure d'épaisseur est obtenue à partir du rapport des intensités des électrons transmis sans perte d'énergie (I_0) et l'intensité des électrons transmis avec perte d'énergie par excitation électronique ou ionisation (I_t). Plus l'épaisseur est grande plus l'intensité I_t augmente [WILLIAMS et CARTER, 2009]. La formule 2.5 donne la relation entre l'épaisseur et les intensités mesurées selon la méthode "log-ratio" [EGERTON, 2008] :

$$\frac{e}{\lambda} = \ln \left(\frac{I_t}{I_0} \right), \quad (2.5)$$

Avec, λ , le libre parcours moyen des électrons dans le matériau par diffusion élastique.

La forme du spectre est très dépendante des conditions de mesure, l'angle de convergence du faisceau sur l'échantillon, l'angle de collection du faisceau par l'ouverture du spectromètre, ainsi que la tension d'accélération des électrons dans le MET.

Un protocole d'utilisation pour la mesure d'épaisseur sur le MET Jeol 2100 permettant d'avoir un libre parcours moyen des électrons toujours de 110,47 nm dans le 304 a été établi au SRMA. Cela nécessite de toujours travailler avec les mêmes diaphragmes, longueur de caméra, spot size et angle de convergence.

Afin de déterminer l'intensité des électrons transmis sans perte d'énergie, deux méthodes sont disponibles dans le logiciel Digital Micrograph, la première consiste à acquérir un spectre dans le trou afin d'ajuster le spectre total, cette méthode est appelée "Fit pre-measured Zero Loss". La seconde "Reflected tail" consiste à utiliser la symétrie du pic élastique du spectre. Ces deux méthodes ont été appliquées et comparées et si un trop grand écart était constaté les réglages et mesures étaient alors refaits.

2.3.1.4 Analyse chimique

Basées sur la perte d'énergie, des cartographies (EFTEM-Energy Filtered Transmission Electron Microscopy) en utilisant seulement des électrons ayant subi une certaine perte d'énergie peuvent être réalisées. L'interaction des électrons incidents avec le cortège électronique des atomes de la matière va induire des pertes d'énergie caractéristiques de chaque type d'atome. Par exemple le pic localisé à 708 eV correspond aux interactions avec les ions Fer. En sélectionnant correctement l'énergie des électrons il est alors possible d'observer la répartition de certains éléments dans la zone d'étude. Ceci permet d'étudier la distribution d'éléments chimiques dans les zones très fines des échantillons, il est ainsi possible de détecter des ségrégations ainsi que des enrichissements ou appauvrissements en éléments d'alliages de précipités. Afin de réduire la contribution de la matrice sur les analyses chimiques des défauts il est nécessaire de travailler en zone fines, typiquement avec un ratio $t/\lambda \sim 0,1 - 0,3$. Cependant, ces analyses ne permettent pas d'analyses quantitatives, mais permettent dans un premier temps des analyses qualitatives sur les échantillons MET. Deux méthodes sont disponibles afin de calculer le bruit de fond, la méthode des deux fenêtres ou celles des trois fenêtres [WILLIAMS et CARTER, 2009].

Ces analyses ont été réalisées sur les échantillons de 304 et 304L irradiés à 100 dpa. Il a pu être imagé les éléments tels le fer, le nickel, le chrome.

2.3.2 Sonde Atomique Tomographique

La sonde atomique tomographique (SAT) a été utilisée pour faire des analyses chimiques de la précipitation et de la ségrégation. En effet cette méthode de caractérisation destructive permet l'analyse chimique locale de la microstructure (observation et quantification). Elle est bien adaptée à l'analyse des nano-défauts et des ségrégations notamment dans les aciers austénitiques irradiés [ETIENNE, 2009; VOLGIN, 2012]. De nombreuses publications traitent de façon approfondie la physique des sondes atomiques et leurs différents modes de fonctionnement [BLAVETTE et DECONIHOUT, 2013; BLAVETTE et MENAND, 1989; DECONIHOUT et collab., 1993; MILLER, 2000; SARRAU et collab., 1994]. Dans cette thèse les analyses ont été dépouillées par F. Dalle au CEA et B. Radiguet du GPM-Rouen, il est donc seulement présenté ici les notions nécessaires à la compréhension du fonctionnement des sondes atomiques tomographiques.

Les échantillons analysés sont usinés soit par électroplissage soit par FIB (Focused Ion Beam) en forme d'aiguilles de quelques dizaines de nanomètres de diamètre et une

longueur de quelques centaines de nanomètres. Concernant les échantillons irradiés les pointes ont été prélevées à une profondeur d'environ 500 nm sous la surface. Les échantillons sont installés dans une sonde à une température cryogénique d'environ 55 K sous ultravide (10^{-10} mbar).

Dans la sonde, les échantillons sont soumis à un potentiel électrique V_0 (entre l'échantillon et le détecteur). Ceci induit un champ électrique (Eq. 2.6) intense pouvant conduire à la polarisation et l'évaporation des atomes en pointe de l'échantillon sous forme d'ions chargés.

$$E = \frac{V}{\beta * R}. \quad (2.6)$$

Avec,

β une constante de l'instrument (entre 2 et 8), R : le rayon de courbure de la pointe, V : le potentiel appliqué.

Les ions évaporés volent ensuite suivant les lignes de champs jusqu'à un détecteur qui en fonction du temps de vol ainsi que la position sur le capteur (fig. 2.17), permet de déterminer la nature et la position de départ de l'ion incident. Ces deux paramètres sont primordiaux lors des analyses en SAT. Il est donc nécessaire d'optimiser la mesure du temps de vol ainsi que la détection des ions évaporés.

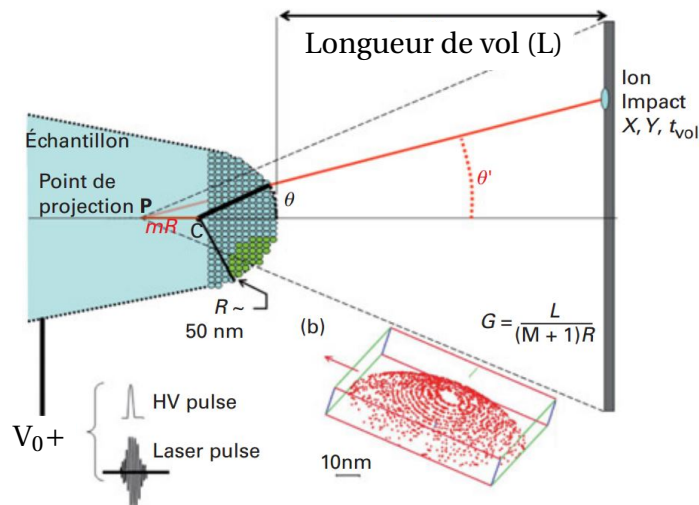


FIGURE 2.17 – Principe de l'analyse en sonde atomique [BLAVETTE et DECONIHOUT, 2013].

Afin que le temps de vol soit précisément défini le potentiel continu est situé sous le potentiel de seuil d'évaporation (E_s). Des impulsions de potentiel (en mode électrique) ou laser (en mode laser) sont alors appliquées à des temps définis sur l'échantillon permettant de passer la barrière d'énergie nécessaire à l'ionisation des atomes. Dans cette étude, des analyses uniquement en mode électrique (avec impulsions électriques) ont été réalisées. Le temps entre l'impulsion électrique et l'arrivée des ions sur le détecteur permet la mesure du temps de vol. Cette mesure permet de déterminer la nature de l'ion incident par son rapport masse sur charge (Eq. 2.7). En effet lors de l'ionisation d'un atome, l'énergie potentielle ($E_p = neV$) est presque intégralement transformée en énergie cinétique ($E_c = \frac{1}{2}MV^2$), on constate alors que les ions les plus légers seront détectés les

premiers car plus rapides. Le rapport masse sur charge qui s'exprime en Dalton ou unité de masse atomique (uma) s'écrit,

$$\frac{M}{n} = 2eV \left(\frac{t_{\text{vol}}}{L} \right)^2, \quad (2.7)$$

Où,

- e : est la charge élémentaire d'un électron,
- M : la masse de l'ion mesurée par temps de vol,
- n : la charge de l'ion,
- V : le potentiel en kV,
- L : la longueur de vol.

La technologie de sonde atomique LEAP (Local Electrode Atom Probe) permet une meilleure mesure du temps de vol, ainsi qu'une réduction du potentiel d'évaporation. Il est inséré une électrode annulaire locale (fig. 2.18.a) à quelques micromètres de la pointe analysée [KELLY et LARSON, 2000]. C'est à cette contre-électrode que sont appliquées les impulsions électriques (dans notre cas avec une fréquence de 200 kHz) et non à l'échantillon. À l'électrode, l'impulsion est avec un potentiel négatif (20% du potentiel continu). La proximité de la contre-électrode a pour effet de réduire le temps de vol des ions entre la pointe et l'électrode. De plus, le champ électrique est alors focalisé sur la pointe, le potentiel nécessaire à l'extraction des atomes est alors plus faible.

Afin d'optimiser la détection des ions, il est possible d'allonger la distance entre l'échantillon et le détecteur par l'insertion d'un réflectron (fig. 2.18.b), cela aura pour conséquence d'obtenir des écarts de temps de vol plus important entre les ions plus légers et plus lourds, et ainsi d'obtenir une meilleur résolution en masse. Le réflectron dévie la trajectoire des ions vers le détecteur en appliquant un champ électrostatique.

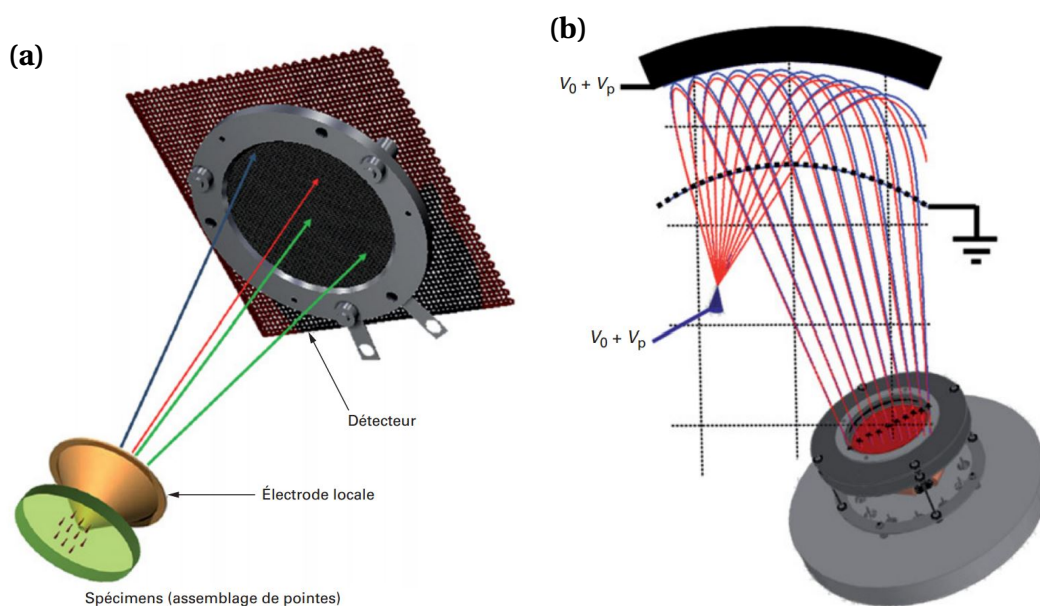


FIGURE 2.18 – Outils permettant une meilleur résolution de masse en sonde atomique, (a) principe de l'électrode locale, (b) Effet d'un réflectron sur la trajectoire des ions, [BLAVETTE et DECO-NIHOUT, 2013].

Le deux dimensions (x et y) sont déterminées par la position d'impact des ions sur le détecteur. La troisième dimension, la profondeur (z) est incrémentée à chaque détection d'atome et dans l'ordre d'arrivée, en supposant un champ d'évaporation constant sur toute la surface. Le grandissement dépend fortement de la forme de l'échantillon et s'écrit de la façon suivante,

$$G = \frac{L}{(m+1)R}, \quad (2.8)$$

et l'incrémentation en profondeur,

$$\Delta z = \frac{G^2 V_{at}}{QS}, \quad (2.9)$$

Avec,

- R le rayon de courbure de l'échantillon $R = \frac{V}{E\beta}$,
- β le facteur de forme de l'échantillon,
- E le champ électrique,
- L la longueur de vol,
- m le coefficient de compression,
- V_{atm} le volume atomique,
- S la surface du détecteur,
- Q l'efficacité de détection.

Le données sont enregistrées sous forme de spectre de masse, ou pour chaque rapport de masse sur charge le nombre d'ions est reporté. L'analyse de spectre de masse est primordiale, une bonne indexation des pics du spectre permet de déterminer correctement la nature de chacun des ions captés par le détecteur.

Dans notre étude, des analyses en sonde atomiques ont été réalisées au CEA sur une sonde LEAP 4000X HR du DMN/SEMI ainsi que sur une sonde LEAP 4000 HR au GPM Rouen. Les analyses sur le 304 haut carbone non irradié et irradié à 100 dpa à 450 °C ont été réalisées et dépouillées au CEA tandis que les analyses sur le 304L non irradié ainsi que 304 et 304L irradiés à 100 dpa à 450 °C ont été réalisées et dépouillées au GPM de Rouen.

2.4 Caractérisation de l'état de réception des matériaux

2.4.1 Matériaux d'étude

L'étude porte sur le gonflement potentiel des internes inférieurs de Réacteur à Eau Pressurisée, dont les cloisons, les renforts et l'enveloppe du cœur sont élaborés en acier austénitique inoxydable de type 304 (Fe-18Cr-10Ni) à l'état hypereffluant. C'est donc cette nuance d'acier (deux variantes) qui a été étudiée.

Dans un alliage binaire fer chrome (fig. 2.19), pour des teneurs en chrome supérieures à 11,5%, la phase existante est la ferrite (α), tandis que pour des teneurs en chrome inférieures à 10,5% seule la phase austénitique (γ) est stable à haute température. Le domaine d'existence de la phase austénitique est fortement impacté par la présence d'éléments d'alliage. Ils peuvent ainsi être classés en deux catégories suivant qu'ils favorisent la présence de ferrite (alphagènes) ou d'austénite (gammagènes).

- Les éléments alphagènes : chrome, molybdène, silicium, titane, niobium, ...

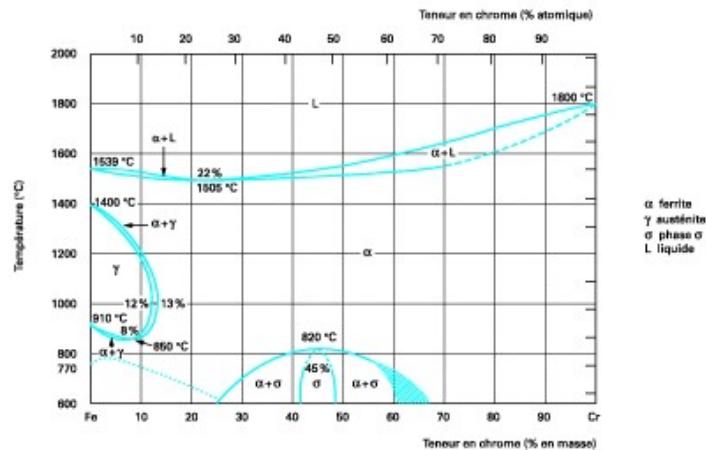


FIGURE 2.19 – Diagramme de phase binaire Fe-Cr [CUNAT, 2000].

– Les éléments gammagènes : nickel, carbone, azote, manganèse, cobalt.

L'ajout du carbone et du nickel a un effet important sur la stabilité de la phase γ . Avec un ajout suffisant de ces éléments d'alliages il est possible d'obtenir des aciers austénitiques contenant plus de 25% de chrome. L'ajout de carbone et d'azote en solution solide en faible quantité affecte grandement la taille de la boucle γ et durcit l'acier. Son effet est trente fois plus important que celui du nickel [CUNAT, 2000]. Cependant, il est nécessaire de limiter l'utilisation du carbone, celui-ci permettant la formation de carbures Cr_{23}C_6 aux joints de grains réduisant la résistance à la corrosion intergranulaire. L'effet de l'azote sur la microstructure est similaire à celui du carbone toutefois dans une moindre mesure, mais il a l'avantage de ne pas favoriser la précipitation de carbures aux joints de grains.

Afin d'obtenir une microstructure austénitique, un traitement d'hypertrempe est réalisé. Les matériaux d'étude ont été hypertrempés à 1050 °C pendant 30 minutes afin d'annihiler les défauts de mise en forme et de remettre en solution solide les éléments d'alliage interstitiels. La température de début de transformation martensitique étant très basse $M_s = -94$ °C [CISSE, 2012], la transformation martensitique n'est donc pas présente, la structure est théoriquement purement austénitique et sans défaut.

Les aciers étudiés se présentent sous la forme de tôle. Toutes les observations au microscope électronique à transmission ainsi que les irradiations aux ions ont été réalisées sur des lames prélevées dans le sens transverse au laminage. Concernant les études du matériaux à l'état de réception, différentes directions de prélèvement ont été toutefois caractérisées.

2.4.2 Caractérisations microstructurales

Afin de mettre en évidence l'effet de certains éléments d'alliage, notamment le carbone, sur l'évolution de la microstructure sous irradiation, deux nuances, haut et bas carbone ont été étudiées. Typiquement, les aciers bas carbone 304L (ajout de la lettre L pour « Low carbon ») contiennent moins de $0,03\%_m \sim 0,14\%_{atm}$ de carbone, tandis que les nuances « haut carbone » 304 ont des teneurs en carbone supérieures.

Les aciers étudiés sont des aciers austénitiques (série 300 ASTM). Les teneurs atomiques en éléments d'alliages mesurées des deux nuances sont présentées dans le tableau 2.4. Les compositions (en $\%_{atm}$) des deux nuances sont en accord avec la norme RCC-M220 et les teneurs en carbones sont suffisamment différentes pour distinguer les deux nuances.

TABLEAU 2.4 – Compositions chimiques en % atomique des aciers austénitiques 304L et 304

%	C	Cr	Ni	Mn	Mo	S	N	Co	Nb	P	Si
[304L] % _{atm}	0,13	19,99	9,09	1,74	0,26	-	0,24	0,07	0,01	0,053	0,9
[304L] % _m	0,029	18,91	9,71	1,74	0,45	<0,002	0,063	0,07	0,01	0,037	0,40
[304] % _{atm}	0,22	19,48	7,75	1,51	0,19	0,02	0,23	0,18	0,015	0,05	0,9
[304] % _m	0,049	18,45	8,28	1,51	0,34	0,01	0,059	0,19	0,026	0,03	0,46

Les observations par microscopie optique montrent que les nuances 304L et 304 présentent des microstructures à larges grains équiaxes respectivement de 50 et de 100 μm (fig. 2.20). De la ferrite (<1% dans le 304 et 2% dans le 304L) est présente principalement aux joints de grains sous forme de lamelles mais il est également possible d'en trouver dans les grains. Les lamelles de ferrite semblent être suivant le plan de laminage des mises en forme précédant l'hypertrempe, ce que confirme l'EBS. Dans les grains d'austénite, de larges macles sont observables, elles sont les témoins de la mise en forme avant hypertrempe ainsi que la conséquence de la faible énergie de faute empilement de ces aciers [CISSE, 2012].

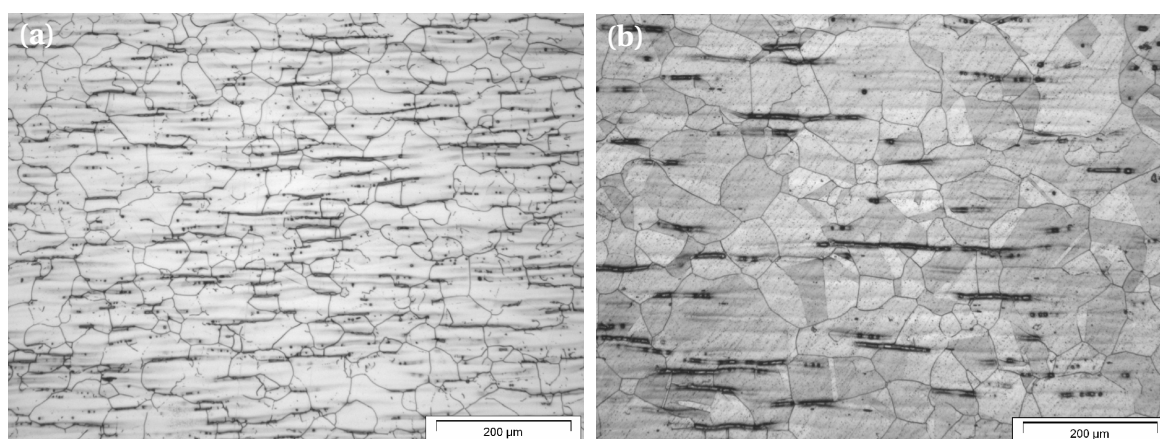


FIGURE 2.20 – Micrographies optiques du 304L (a) et du 304 (b).

D'un point de vue microscopique, des dislocations linéaires avec un vecteur de Burgers de type $\langle 110 \rangle$ sont observables, avec des densités de $2,3 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ et $5,7 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ respectivement pour le 304 et 304L (fig. 2.21). L'hypertrempe, la faible densité de défauts et les larges grains ont pour conséquence une faible dureté du matériau, de l'ordre de 170 Hv pour les deux nuances.

Pour les deux nuances aucune texture n'est mesurée par EBSD (fig. 2.22) concernant l'austénite. Les grains de ferrite présentent au contraire une texture marquée $\{100\} \langle 110 \rangle$, et identique sur les deux nuances hypertrempées 304 et 304L, avec une direction $\langle 001 \rangle$ de la structure cubique alignée parallèlement à la direction normale de la tôle ND et une direction $\langle 110 \rangle$ proche de la direction de laminage.

Les analyses par microsonde de Castaing montrent la présence de fluctuations de composition en chrome, manganèse, nickel et fer et en moindre mesure en molybdène, dans les deux nuances. La figure 2.23 illustre les analyses de microsonde pour le 304 mais sont représentatives de celles du 304L. Les fluctuations (de l'ordre de 1 à 2%) sont couplées, le chrome et le molybdène sont enrichis là où le nickel et le fer sont appauvris. Le

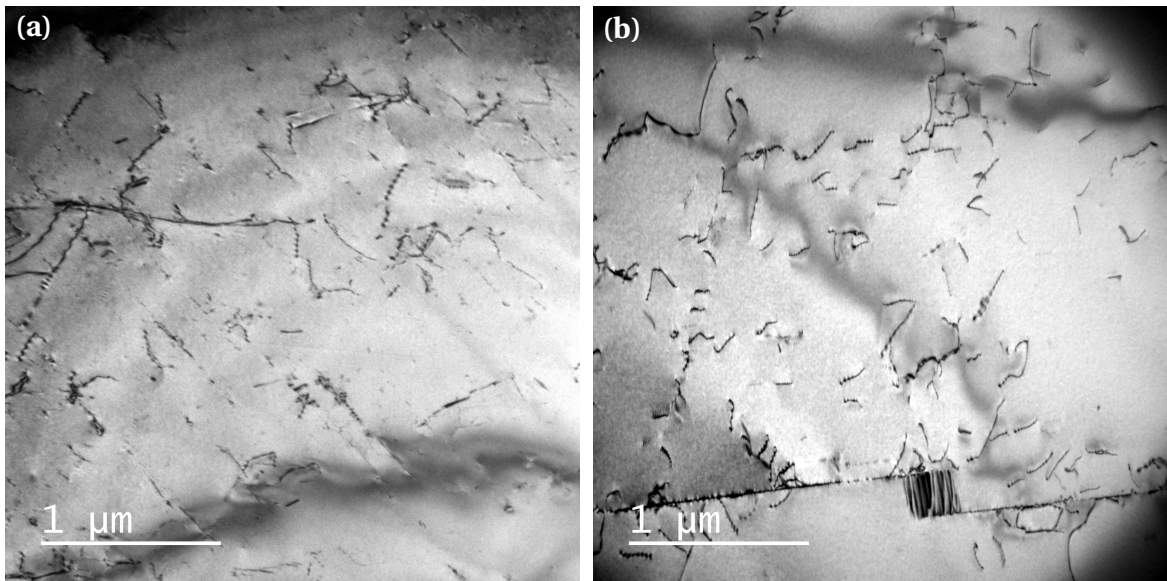


FIGURE 2.21 – Dislocations dans les aciers 304L (a) et 304 (b) à l'état de réception.

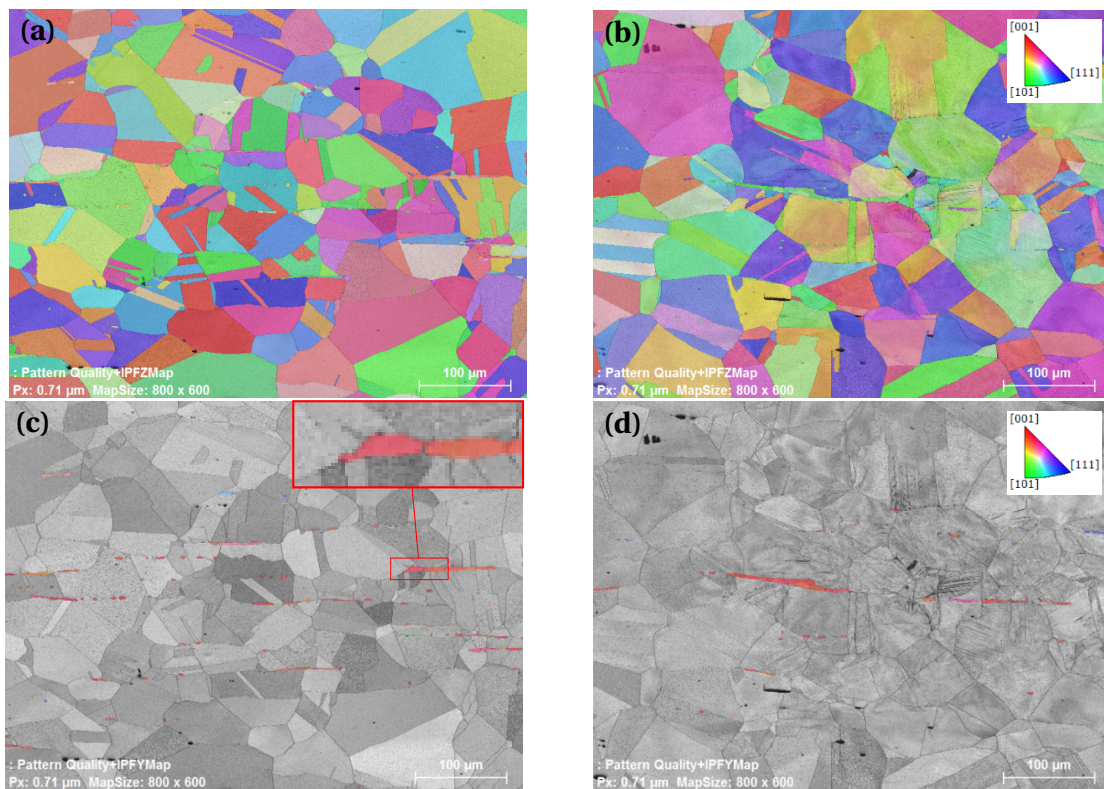


FIGURE 2.22 – Cartographies d'orientation des plans $\{hkl\}$ de l'austénite dans les aciers (a) 304L et (b) 304 et cartographies d'orientation des plans $\{hkl\}$ de la ferrite dans les aciers (c) 304L (d) 304.

chrome et le molybdène sont des éléments α -gènes tandis que le nickel et le fer sont des éléments γ -gènes. Les augmentations de concentrations en chrome et molybdène couplées à la diminution de celles en nickel et fer peut favoriser la formation de bandes de ferrite dans les zones les plus appauvries en nickel lors des traitements thermiques de mise en forme. Les fluctuations observées dans les matériaux sont alignées dans le sens de laminage. L'effet des joints de grains sur la répartition des éléments n'est pas direct. La présence de joints de grains ne favorise apparemment ni l'enrichissement ni l'appauvrissement d'un élément d'alliage ou d'un autre.

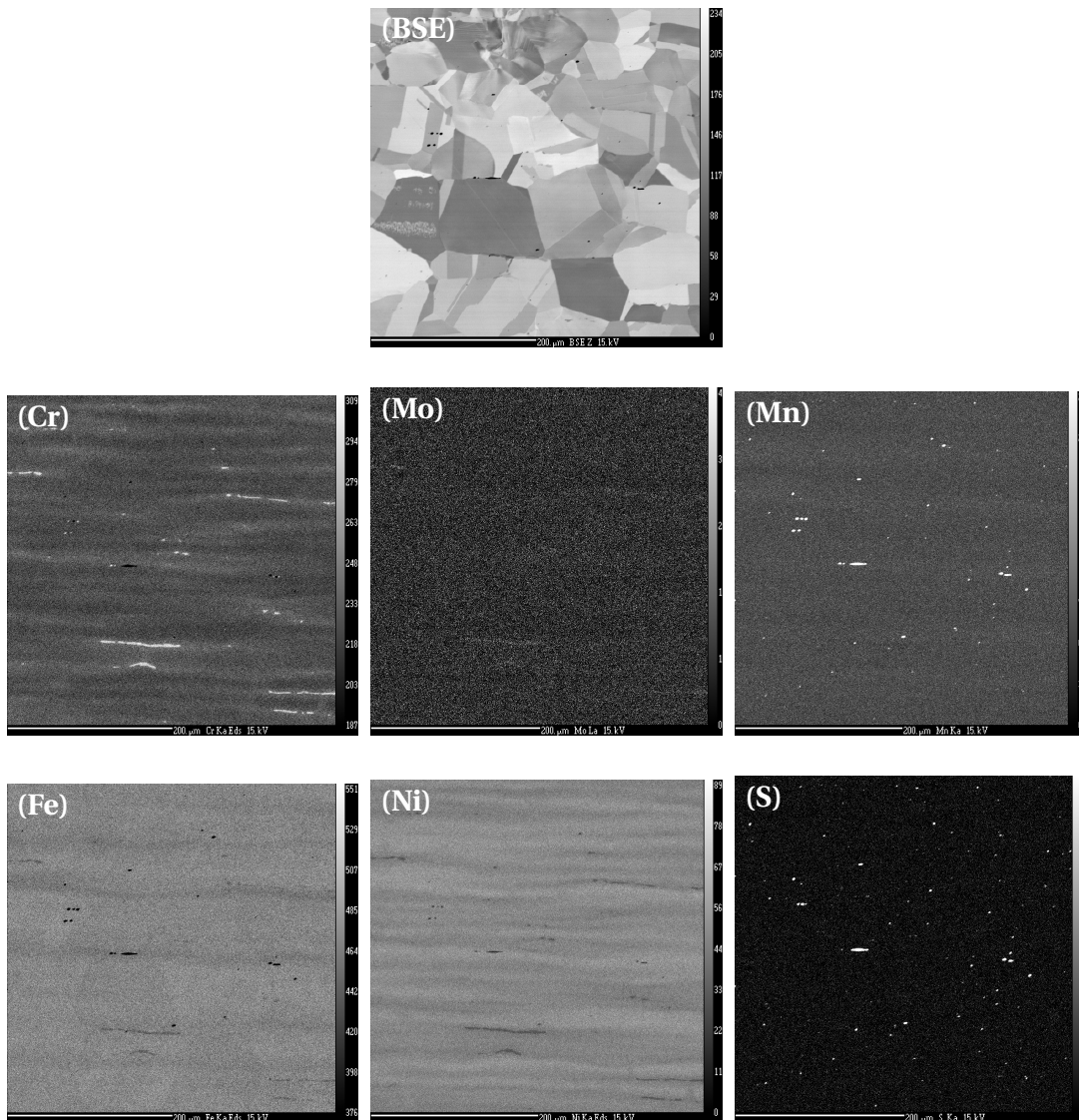


FIGURE 2.23 – Analyse de la répartition des éléments d'alliage dans l'acier 304 par microsonde de Castaing. Une image BSE de la zone étudiée est présentée ainsi que les les cartographies X des éléments d'alliage Cr-Mo-Mn-Fe-Ni-S.

La nuance haut carbone présente des traces de soufre, tandis que la nuance bas carbone est dépourvue de soufre. Cette différence se manifeste d'un point de vue microstructurale par la présence de précipités riches en manganèse (10 - 15% massique) et soufre (non mesuré), probablement des MnS, la balance étant faite sur le fer. Comme la ferrite ils sont alignés dans le plan de laminage mais ne sont pas systématiquement situés aux joints de grain de l'austénite. Ces précipités n'ont pu être observés en MET.

Des analyses plus locales de sonde atomique tomographique ont été menées sur les deux nuances, la figure 2.24 illustre les analyses sur le 304L. Elles ne mettent pas en évidence les fluctuations observées en microsonde. Ceci est compréhensible au vu des différences d'échelles d'analyses, la SAT étant extrêmement locale tandis que la microsonde est à l'échelle du grain.

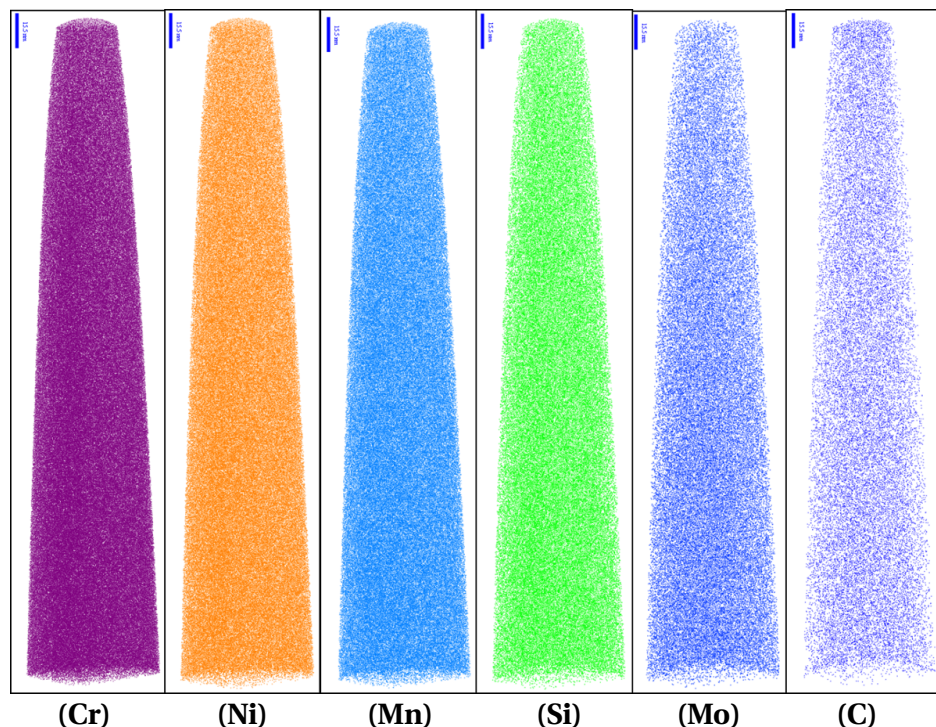


FIGURE 2.24 – Analyse de sonde atomique tomographique sur l'acier 304L dans un volume de $60 \times 60 \times 300 \text{ nm}^3$.

La SAT permet aussi de remonter à la composition chimique de la pointe, pour le 304 et le 304L. Le tableau 2.5 donne la composition atomique mesurée pour les deux nuances. On constate que les analyses SAT et les analyses chimiques globales donnent des compositions similaires.

TABLEAU 2.5 – Compositions chimiques atomiques du 304 et 304L mesurées par sonde atomique tomographique.

% atomique	C	Cr	Ni	Mn	Mo	S	N	Co	Nb	P	Si	Cu
[304L]	0,14	21,44	9,11	1,75	0,33	-	0,31	0,053	-	0,065	0,89	0,2
[304]	0,25	20,1	9,62	1,64	0,36	0,04	0,2	0,21	0,07	0,04	1,1	0,2

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre les méthodes de caractérisation ont été présentées. La préparation ainsi que la réalisation des irradiations sur les deux plateformes JANNuS ont été détaillées. Il doit être retenu que des irradiations in-situ à faibles doses (1-1,5 dpa) ont été réalisées ainsi que des irradiations ex-situ à fortes doses (5-40-100 dpa). Toutes les irradiations ont

été faites à 450 °C et une irradiation à 550 °C jusqu'à une dose de 40 dpa a été réalisée afin d'étudier l'effet de la température. Les calculs de doses ont été fait avec le logiciel SRIM en utilisant le mode Kinchin-Pease. Pour les irradiations à forte dose des échantillons massifs sont irradiés, et un protocole de polissage en face avant a été mis au point afin de réaliser les observations à une profondeur maîtrisée (650 nm). Les irradiations se sont correctement déroulées, lors des expériences d'irradiation il avait été atteint les doses et flux objectifs, cependant il a été découvert post irradiation un biais dans la mesure des doses. Le contrôle en température à l'aide des thermocouples et de la caméra thermique a permis de maintenir les échantillons au plus proche des températures souhaitées.

Enfin, une description des deux matériaux d'étude à l'état de réception a été faite, il s'agit d'aciers austénitiques inoxydables 304, qui se différencient principalement par leur teneur en carbone. Ils présentent des microstructures proches à larges grains équiaxes avec une faible densité de dislocations. Ils ne sont pas texturés, contiennent de la ferrite ainsi que quelques précipités MnS pour la nuance haut carbone.

Chapitre 3

Caractérisation et discussion de la microstructure des matériaux irradiés aux ions

Sommaire

3.1 Évolution de la microstructure après irradiation aux ions sur échantillons massifs	72
3.1.1 Cavités	73
3.1.2 Boucles de Frank	80
3.1.3 Réseau de dislocations	86
3.1.4 Précipités	87
3.1.5 Évolution de la microstructure le long du profil de dommage	100
3.2 Évolution de la microstructure lors d'irradiations aux ions sur lames minces	105
3.2.1 Irradiations mono-faisceau	105
3.2.2 Irradiations bi-faisceau	109
3.3 Synthèse des microstructures	111
3.4 Discussion des résultats expérimentaux	112
3.4.1 Évolution de la microstructure avec la dose	112
3.4.2 Effet de la température	118
3.4.3 Effet de la composition chimique	120
3.4.4 Effet de l'hélium	121
3.4.5 Limites des irradiations aux ions	121
3.4.6 Comparaison avec les irradiations aux neutrons	126
3.5 Conclusion	130

Ce chapitre s'attache à décrire les microstructures des échantillons irradiés de manière la plus complète possible, à l'aide des techniques expérimentales présentées dans le chapitre précédent. Dans ce chapitre, l'évolution, avec la dose et la température, de chacun des défauts est caractérisée dans les deux nuances (304 et 304L).

Dans un premier temps, les résultats concernant les irradiations ex-situ menées à JANNuS-Saclay sont exposés. Les microstructures observées à 5, 40 et 100 dpa à 450 °C dans le 304L et le 304 sont décrites, ainsi que celles obtenues sur les deux nuances à plus haute température (550 °C) à 40 dpa.

Dans une seconde partie, les évolutions des microstructures observées lors des premiers instants dans les deux nuances, durant des irradiations in-situ à 450 °C, sont présentées ainsi que les observations à 1 dpa et 1,5 dpa avec implantation simultanée d'hélium.

Enfin, les résultats sont discutés au regard de la littérature.

3.1 Évolution de la microstructure après irradiation aux ions sur échantillons massifs

Bien que les lames d'une expérience aient été irradiées simultanément, il est possible, à cause de la position de la lame sur le porte-échantillons que la température, de même que la dose diffèrent légèrement d'une lame à l'autre. En outre, le polissage en face avant post-irradiation peut aussi induire un écart supplémentaire. Toutefois, les mesures de la température par la caméra thermique, de la dose par les cages de Faraday, ainsi que le contrôle de l'épaisseur retirée lors du polissage en face avant permettent de connaître de façon précise les températures et doses d'irradiation de chacune des lames. Les doses et températures réelles de chacune des lames présentées dans la suite du document sont reportées dans le tableau 3.1. Par soucis de simplification, on fera référence à chacune des lames par nuance, température objectif, dose objectif (exemple : 304-450 °C-100 dpa). Dans la mesure du possible, des observations en microscopie électronique en transmission sur deux lames différentes pour chaque condition ont été réalisées afin de vérifier la reproductibilité des microstructures.

Ces caractérisations ont révélé suivant les conditions d'observation la présence de cavités, de boucles de Frank, d'un réseau de dislocations et de précipités.

TABLEAU 3.1 – Tableau de références de chacune des lames de 304L et 304 observées.

Nuance	Objectifs		Obtenues		Type
	Dose	Température	Dose	Température	
304L	5 dpa	450 °C	4,4	440	LM
			5,9	450	LM
			5	450	FIB
	40 dpa	450 °C	37	460	LM
			45	460	LM
			39	473	FIB
			51	545	LM
	100 dpa	450 °C	40	550	LM
			90	457	LM
			103	470	FIB+SAT
304	5 dpa	450 °C	5,6	450	LM
			34	450	LM
	40 dpa	450 °C	57	430	LM
			55	543	LM
	100 dpa	450 °C	98	444	LM
			114	454	LM
			97	454	FIB+SAT

3.1.1 Cavités

Comme décrit dans le chapitre 2, les cavités sont imagées par sous-/sur-focalisation, afin de faire apparaître les franges de Fresnel sur le contour de la cavité. En sous-focalisant, la cavité apparaît blanche avec une frange noire, en sur-focalisant elle sera sombre avec une frange blanche. Le diamètre mesuré correspond au diamètre équivalent de la surface entourée en considérant la cavité sphérique.

3.1.1.1 Irradiations à 450 °C

Les cavités ont été étudiées pour chacune des doses (5, 40 et 100 dpa) et pour les deux nuances. Les différentes microstructures de cavités sont illustrées à la figure 3.1. Une évolution avec la dose et suivant la nuance est constatée.

Les données concernant les cavités (diamètres moyens, densité, fraction volumique, ...) sont présentées dans le tableau 3.2.

À 5 dpa, des cavités de forme sphérique sont observables uniquement dans la nuance bas carbone, aucune cavité n'a été observée dans le 304 à cette dose. Les cavités semblent distribuées de façon relativement homogène dans les grains pour les deux lames de 304L caractérisées. Cependant, la faible densité des cavités ne permet pas de conclure de manière certaine sur ce point. En outre, entre ces deux lames, une dispersion en taille et densité des cavités a été notée. En effet, suivant la lame 304L-450 °C-5 dpa, les cavités ont un diamètre moyen de $5,1 \pm 1,3$ nm ou de $10,4 \pm 1,8$ nm pour des densités respectives de $3,0 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ et $5,4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$. Pour les deux échantillons, la fraction volumique de cavités est très faible, respectivement 0,004 % et 0,05 %.

À 40 dpa, des cavités sont présentes dans les deux lames caractérisées pour chacune des nuances. Contrairement à 5 dpa, des cavités ont donc été observées dans les deux

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

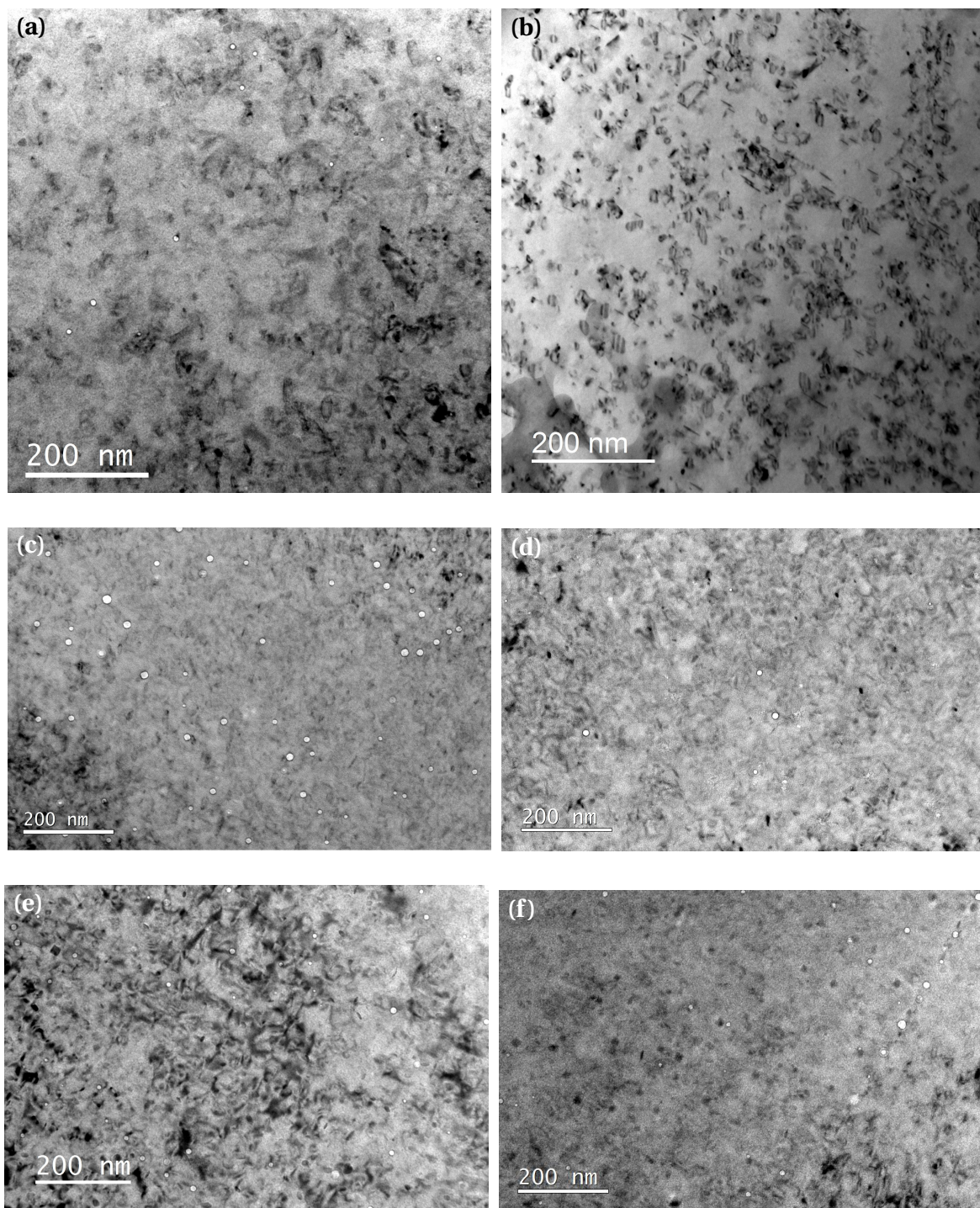


FIGURE 3.1 – Microstructures de cavités observées en sous-focalisation dans les échantillons irradiés aux ions à 450 °C ($\delta \sim 1 \mu\text{m}$). La colonne de gauche correspond au 304L et celle de droite au 304, (a) et (b) 5 dpa, (c) et (d) 40 dpa, (e) et (f) 100 dpa.

TABLEAU 3.2 – Caractéristiques des cavités dans le 304 et 304L pour les irradiations à 450 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de taille (nm)	Densité (m ⁻³)	Nombre	Frac. vol. (%)
304L	440	4,4	10,4	0,4-21	5,7 · 10 ²⁰	170	0,05
	450	5,9	5,1	0,2-11	3,0 · 10 ²⁰	73	0,004
	460	37	11	2-23	6,1 · 10 ²⁰	869	0,05
	460	45	11,7	0,3-24	6,9 · 10 ²⁰	397	0,07
	457	90	8,5	1-26	10,3 · 10 ²⁰	877	0,06
304	450	5,6			Non visibles		
	450	34	9,1	2,5-22,5	2,1 · 10 ²⁰	115	0,01
	430	57	7,5	0,5-16,3	4,8 · 10 ²⁰	232	0,02
	444	98	8,3	1,5-21,2	5,0 · 10 ²⁰	132	0,02
	454	114	10,7	3,6-21,8	3,4 · 10 ²⁰	156	0,03

lames de 304. Elles sont en faible densité $2,1 - 4,8 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ avec une taille moyenne comprises entre $7,5$ et $9,2 \pm 1,4 \text{ nm}$ soit des fractions volumiques inférieures à $0,02 \%$. Malgré la faible densité de cavités la répartition des cavités semble homogène dans le matériau. Dans le 304L, les cavités sont sphériques et distribuées de façon homogène dans l'échantillon. Les deux lames irradiées à 40 dpa ont des microstructures de cavités identiques, les tailles moyennes sont d'environ $11 - 11,7 \pm 1,2 \text{ nm}$ et les densités de $6,1 - 6,9 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$. Pour cette condition les cavités représentent une fraction volumique $0,05 - 0,07\%$.

Dans le 304 irradié à 100 dpa , au sein des grains la distribution des cavités semble homogène, par contre certains joints de grains sont décorés de cavités plus grandes que la moyenne. De plus, des cavités de toutes tailles sont en association avec des précipités cubiques. La taille moyenne varie suivant l'échantillon entre $8,7$ et $10,7 \text{ nm}$ et la densité est comprise entre $3,4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ et $5,0 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ ce qui représente une fraction volumique de cavités de $0,02 \%$ et $0,03 \%$. Pour le 304L irradié jusqu'à 100 dpa , de nombreuses cavités sont observables, leur forme est sphérique et leur distribution est homogène dans l'échantillon. Elles ont une taille moyenne de $8,5 \pm 1,1 \text{ nm}$ et une densité de $1,03 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Par rapport aux microstructures à 40 dpa , cette diminution de la taille moyenne des cavités n'est pas le résultat d'une réduction de leur diamètre mais celui de l'apparition d'une famille de petites cavités régulièrement en association avec des précipités. Cette association est illustrée sur la figure 3.2.a où les cavités semblant être en association avec un précipité sont entourées en rouge. Cette germination des cavités en association avec des précipités se traduit par une distribution bimodale, qui est représentée sur la figure 3.2.b. Cette distribution présente un pic sur les petites tailles $\sim 5 \text{ nm}$ et un pic de plus faible densité sur les cavités de taille d'environ $\sim 11 \text{ nm}$ qui correspond à la taille des cavités observées à 40 dpa .

La figure 3.3 représente les évolutions du diamètre moyen, de la densité et de la fraction volumique des cavités lors des irradiations à 450 °C dans le 304 et le 304L en fonction de la dose. Concernant le 304L, on observe une évolution rapide de la densité et taille des cavités aux faibles doses, puis la densité et le diamètre moyen augmente légèrement avec la dose. On observe un retard de germination des cavités (aucune cavité à 5 dpa) de la nuance haut carbone par rapport à la nuance bas carbone. À plus forte dose, la taille et la densité augmente. Quelle que soit la dose, le 304L présente une taille et une densité de cavités plus fortes que le 304. Il est cependant observé dans le 304L à 100 dpa une dis-

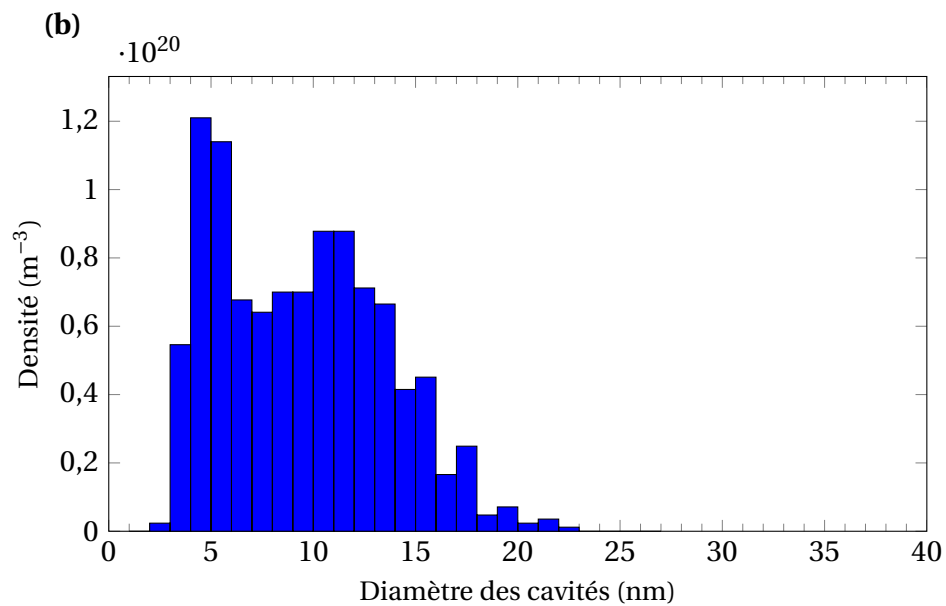
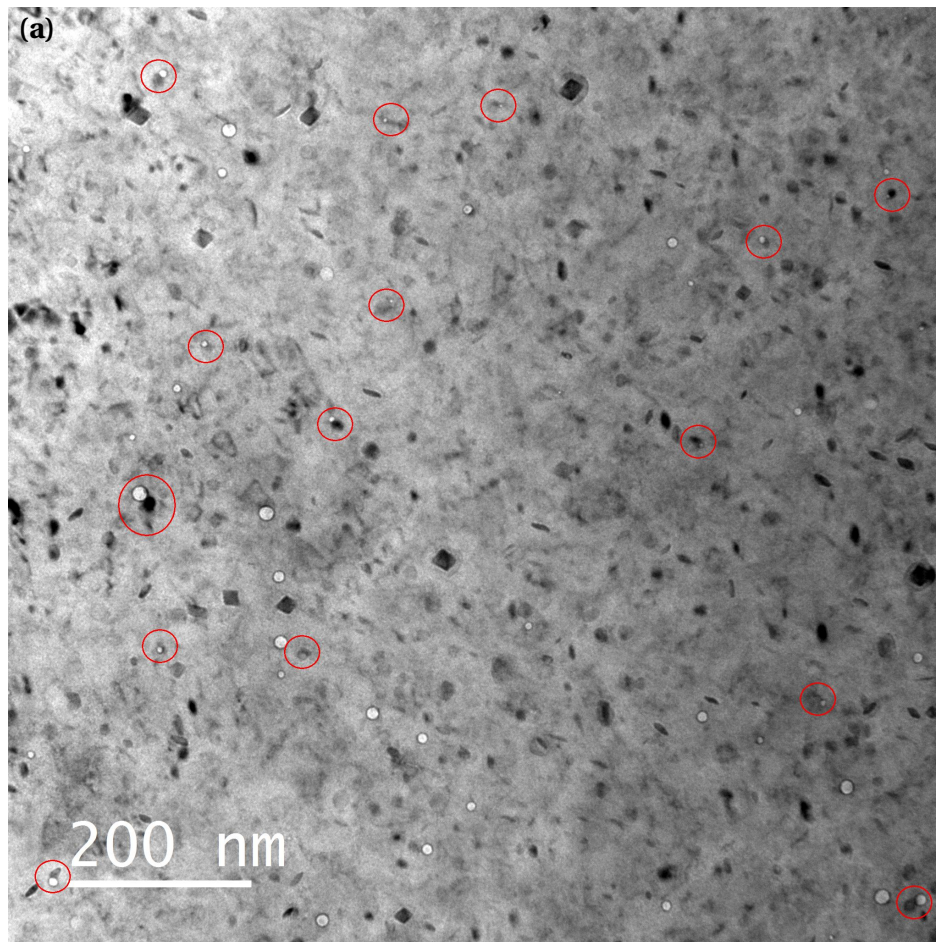


FIGURE 3.2 – (a) Cavités dans le 304L - 450 °C - 100 dpa (entourées en rouges lors d'association précipité/cavité), (b) distribution bimodale de la taille des cavités.

tribution bi-modale des cavités, cette distribution est le résultat d'une germination des cavités en association avec des précipités ce qui provoque une légère réduction du diamètre moyen. Enfin, à toutes les doses, la fraction volumique de cavités dans le 304L est supérieure (d'un facteur 2 à 3) à celle du 304. Il est à noter que la fraction volumique est très faible même pour des doses proches de 100 dpa.

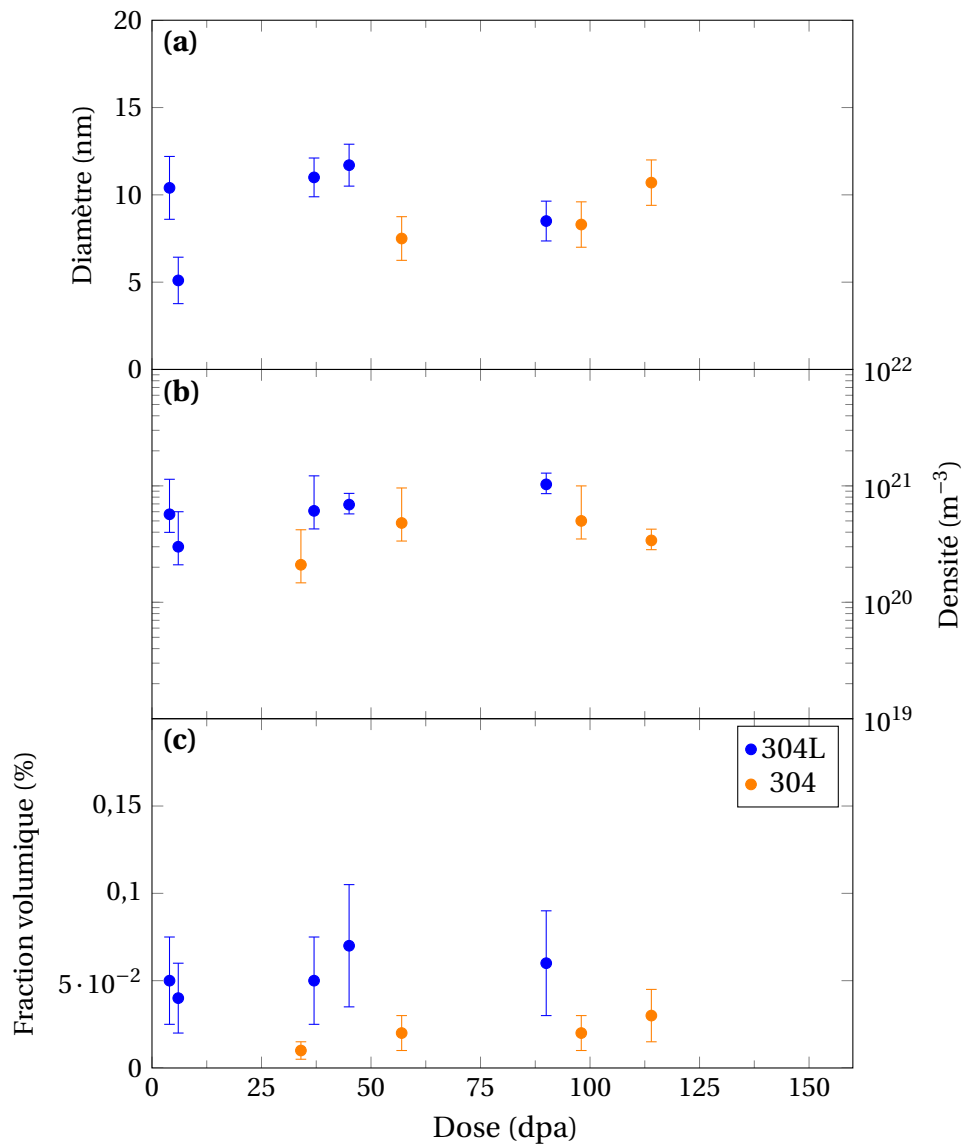


FIGURE 3.3 – Evolution du diamètre (a), de la densité (b), et de la fraction volumique des cavités (c) dans le 304 et 304L en fonction de la dose à 450 °C .

3.1.1.2 Irradiation à 550 °C

Deux lames de 304L et une lame de 304 irradiées à 550 °C à environ 40 dpa ont été caractérisées, les données concernant les cavités sont résumées dans le tableau 3.3.

Deux lames MET ont donc été préparées pour la caractérisation du 304L-550 °C-40 dpa. Le premier échantillon était trop épais, limitant la zone d'observation à une trop faible surface. Quelques cavités ont pu néanmoins être mesurées, leur taille et densité sont données à titre indicatif. Le deuxième échantillon présente une large zone d'observation. Les cavités sont facettées et semblent être distribuées de façon homogène dans le matériau.

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

TABLEAU 3.3 – Caractéristiques des cavités dans le 304 et le 304L irradiés à 550 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de taille (nm)	Densité (m ⁻³)	Nombre	Frac. vol. (%)
304L	545	51	68	19-151	3,6 · 10 ²⁰	340	6,15
	550	40	56	11-113	7,4 · 10 ²⁰	990	8,85
304	543	55	36,8	6,7-56,4	3,7 · 10 ²⁰	494	1,07

Des zones proches des joints de grains présentant des cavités cubiques en plus faible densité sont observées dans l'échantillon. Ces zones appauvries en cavités peuvent provenir du fait d'un retard induit par la disparition des défauts mobiles aux joints de grains, cependant au vu de la forte dose ceci semble peu probable. Une seconde possibilité est la présence de ferrite aux joints de grains car la ferrite résiste mieux au gonflement que l'austénite, on ne peut cependant pas dire si celle-ci était présente avant irradiation ou induite par l'irradiation. Enfin, des cavités ayant coalescé sont fréquemment observées (fig. 3.4). Dans le 304L-550 °C-40 dpa, la taille moyenne des cavités est de $56 \pm 1,5$ nm avec une densité de $7,4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$. La distribution est mono-modale centrée sur la taille moyenne. Cette microstructure de cavités représente une fraction volumique de 8,8 %. Contrairement aux valeurs pour les faibles fractions volumiques (telles qu'à 450 °C), si le gonflement est attribué seulement aux cavités l'écart entre la valeur de la fraction volumique et du gonflement n'est pas négligeable (cf. section 2.3.1.3). Dans le cas du 304L-550 °C-40 dpa le gonflement associé aux cavités serait de 9,7 %.

Dans le 304, des cavités facettées sont visibles dans les grains (fig. 3.4.b). Leur distribution spatiale ne semble pas homogène. En effet, des zones larges dépourvues de cavités existent, notamment à proximité des joints de grains où la densité est plus faible mais aussi dans le grain. Il est visible que les cavités sont systématiquement associées à des lignes de dislocation. La distribution des cavités est mono-modale, la taille moyenne est de $37 \pm 1,3$ nm et la densité de $3,7 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ ce qui donne une fraction volumique de cavités de 1,07 % et ce qui correspondrait à un gonflement dû aux cavités de 1,1 %.

À 550 °C, on constate donc que la nuance bas carbone présente une taille de cavité et une densité plus élevées que la nuance haut carbone, tout comme pour les irradiations à 450 °C. Comparativement aux irradiations à plus faible température, la taille est largement supérieure mais les densités sont quant à elles équivalentes. La répartition des cavités n'est pas totalement homogène dans les deux nuances.

Les données concernant les cavités pour les deux températures d'irradiation et pour des doses d'environ 40 dpa sont synthétisées sous forme de graphique dans la figure 3.5. Les différences de taille et de densité entre les deux nuances sont visibles, ainsi que l'influence de la température sur la microstructure de cavités. La fraction volumique est aussi représentée. L'effet de la nuance et de la température y est aussi visible.

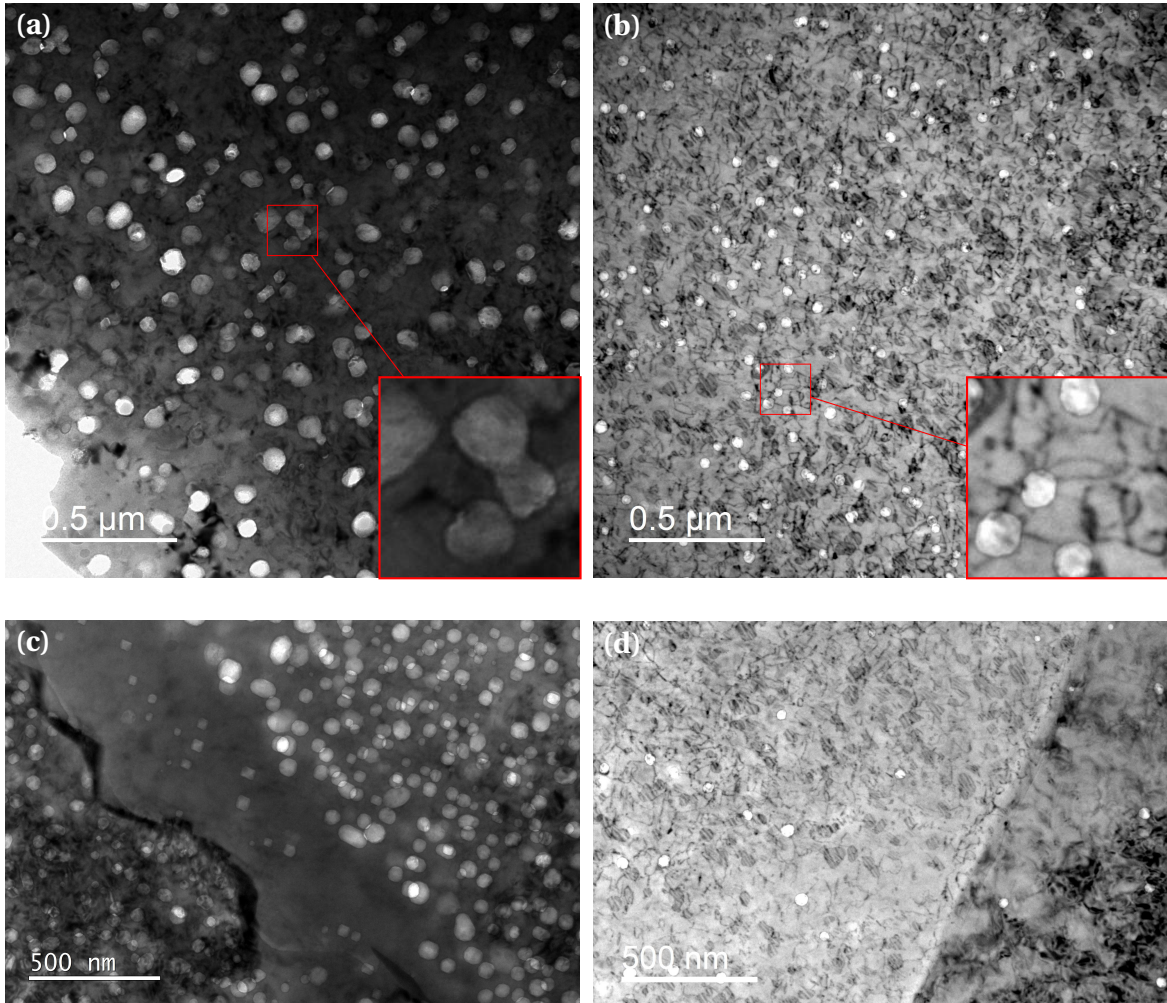


FIGURE 3.4 – Microstructures de cavités au sein du grain (a) et (b), et proche d'un joint de grain (c) et (d) à gauche le 304L et à droite le 304, pour des irradiations à 550 °C-40 dpa.

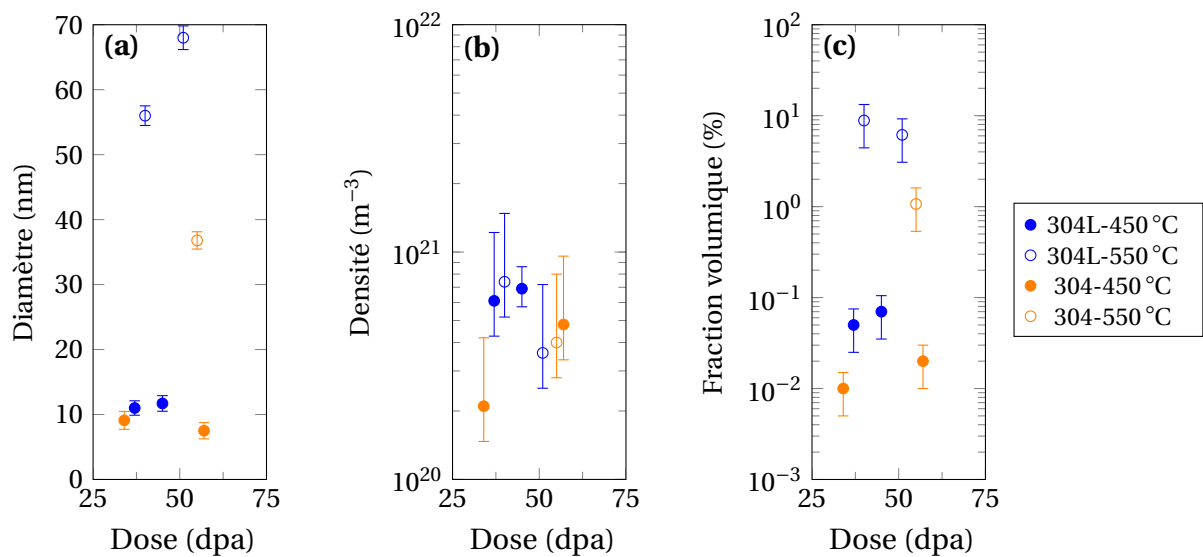


FIGURE 3.5 – Évolution du diamètre (a), de la densité (b), et de la fraction volumique (c) des cavités dans le 304 et 304L pour des doses proches de 40 dpa à 450 °C et 550 °C.

3.1.2 Boucles de Frank

Les boucles de Frank ont été caractérisées dans tous les échantillons. La visualisation en champ clair permet d'observer comment les boucles de Frank coexistent avec les autres défauts de la microstructure et la technique en champ sombre Rel-Rod a permis la quantification des boucles de Frank. Comme décrit dans le chapitre précédent, cette dernière méthode permet d'imager une famille de boucles sur la tranche.

Il a été considéré que les quatre familles de boucles sont isotropes, la densité totale de boucles de Frank dans le matériau correspond alors à quatre fois celle d'une famille. Cette hypothèse est confirmée par d'autres études [RENAULT et collab., 2012; VOLGIN, 2012] montrant que lors d'irradiations d'échantillons massifs sans contrainte, les quatre familles de boucles sont équivalentes en termes de taille et densité. Au contraire lors d'irradiations en lames minces, les familles de boucles peuvent ne pas être identiques [VOLGIN, 2012]. Dans notre étude, pour chaque échantillon, plusieurs familles de boucles ont été systématiquement caractérisées et il n'a jamais été observé de variations entre les familles. Une analyse menée dans un échantillon 304-450 °C-5 dpa tend à valider la répartition homogène des boucles dans les quatre familles. En effet, lors d'observations en microscopie dans le plan de type {101} deux familles de boucles sont observables sur la tranche et deux autres familles sont inclinées. La densité et la taille des deux familles de boucles sur la tranche sont identiques. Pour les boucles inclinées, la densité est deux fois celle mesurée pour une famille de boucles sur la tranche et la taille moyenne est similaire. Par contre, ceci n'a pas été vérifié à 550 °C.

3.1.2.1 Irradiations à 450 °C

Pour les irradiations à 5 dpa, il a été observé une microstructure de dislocation non homogène dans les deux nuances. Proche des lignes de dislocation (vraisemblablement présentes avant irradiation), une forte densité de boucles de Frank est observable, toutefois des zones avec peu de défauts d'irradiation sont aussi visibles. Sur les micrographies de la figure 3.6 ces zones plus denses en défauts le long de dislocations sont visibles en champ clair et en champ sombre en faisceau faible. Il peut aussi être observé quelques boucles de dislocation parfaites. En outre, la taille et la densité des boucles de Frank varient d'un échantillon à un autre. En effet, les deux lames de 304L irradiées à 5 dpa présentent des tailles de boucles de Frank de $13,8 \pm 1,2$ nm et $17,5 \pm 1,6$ nm pour des densités respectives de $1,8 \cdot 10^{22}$ et $4,0 \cdot 10^{21}$ m⁻³. Le 304 a, quant à lui, des boucles de $13 \pm 1,3$ nm de diamètre avec une densité de $1,1 \cdot 10^{22}$ m⁻³. Cette dispersion et la répartition non homogène des boucles dans le grain suggèrent une évolution rapide de la microstructure de boucles de Frank aux faibles doses.

On observe à 40 et 100 dpa une répartition des boucles homogène dans les grains, pour chaque famille de boucles de Frank. La figure 3.7 montre deux familles de boucles de Frank imagées au même endroit par la technique Rel-Rod dans le 304L-450 °C-100 dpa. Les distributions de la densité en fonction de la taille des boucles sont aussi présentées, les tailles moyennes et les densités pour les deux distributions sont identiques. Les distributions présentent une fin allongée vers les grandes tailles.

Aux fortes doses, les valeurs de taille moyenne et de densité, présentées dans le tableau 3.4, sont identiques pour les deux nuances. Les données à 450 °C concernant les boucles de Frank montrent une évolution rapide de la taille et de la densité aux faibles doses, puis une saturation de la taille et de la densité aux fortes doses, pour les deux nuances, à des valeurs communes. Cette évolution est représentée sur le graphique de la figure 3.8. Il peut être considéré un diamètre moyen des boucles de Frank à saturation

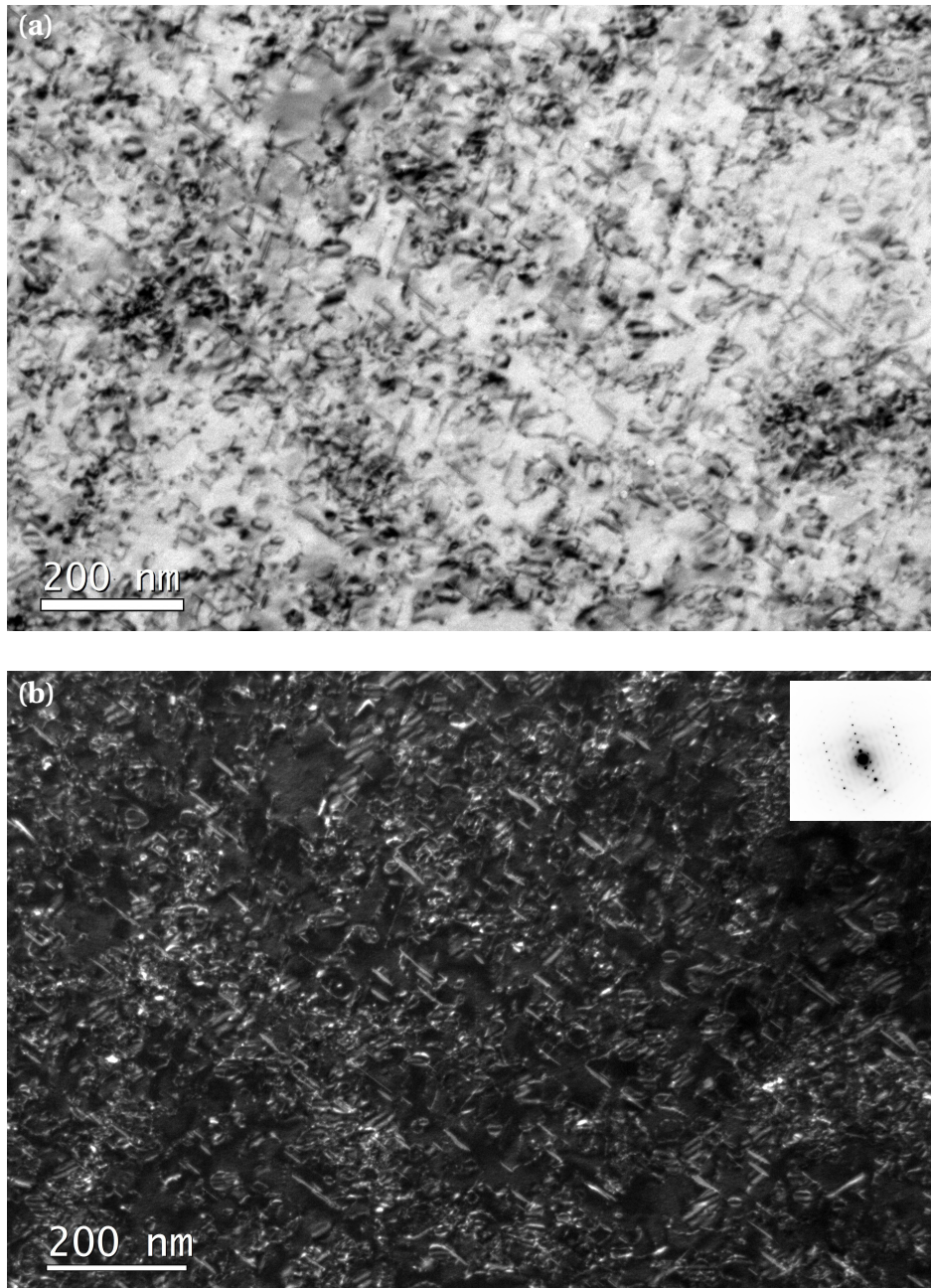


FIGURE 3.6 – Répartition des boucles de Frank dans un échantillon de 304L-5 dpa-450 °C en condition deux ondes (a) et en WBDF (b) proche du plan {101} avec un g de type $\langle 220 \rangle$. Des zones denses en boucles de Frank sont visibles proches des lignes de dislocations, tandis que des zones moins denses sont encore observables.

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

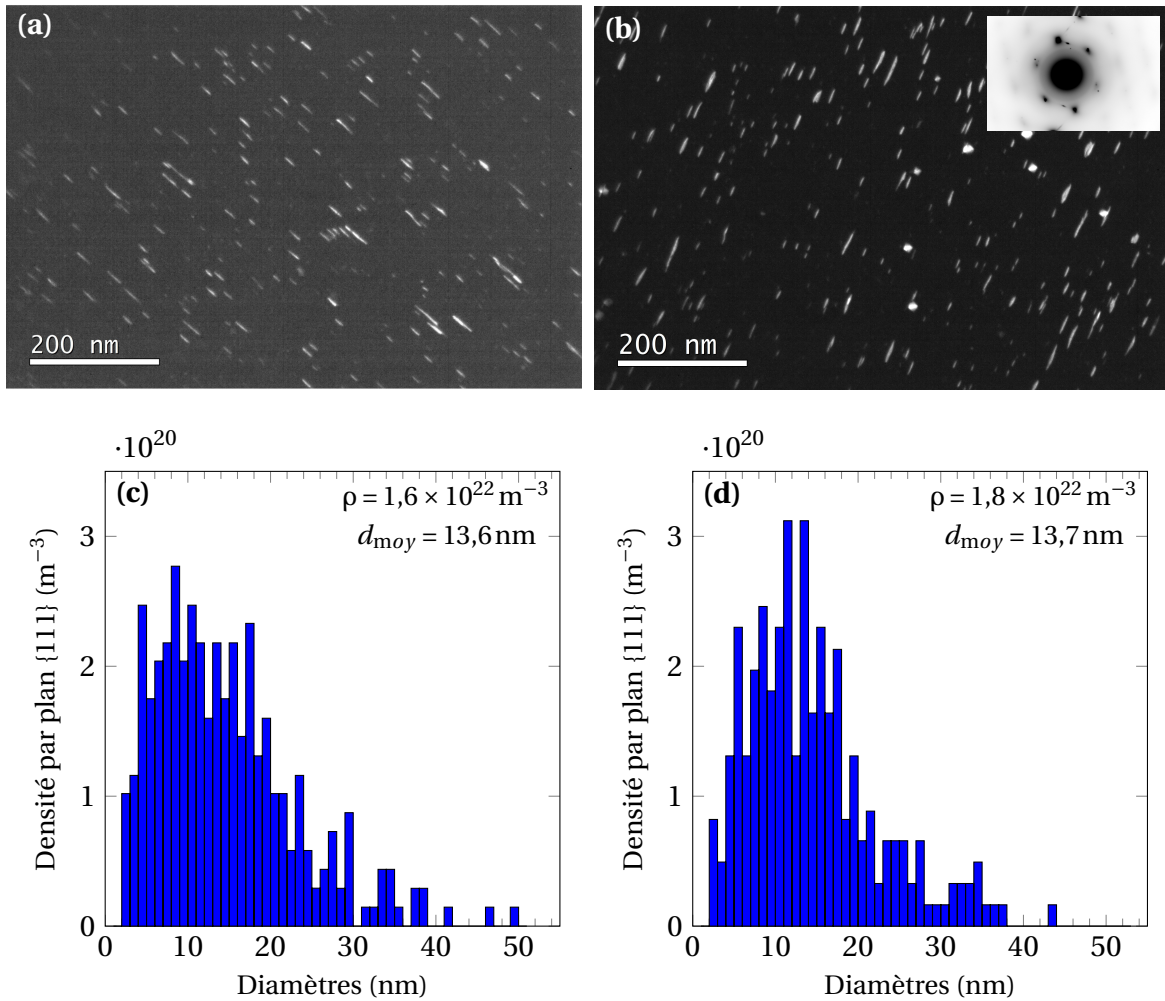


FIGURE 3.7 – Observations dans le même grain de deux familles de boucles de Frank sur la tranche (a) et (b) dans le 304L-450 °C-40 dpa et leurs distributions respectives (c) et (d).

de 14 nm et une densité de $1,3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

TABLEAU 3.4 – Caractéristiques des boucles de Frank dans les deux nuances 304 et 304L irradiées aux ions à 450 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de taille (nm)	Densité (m^{-3})	Nombre
304L	440	4,4	13,7	1,1-60	$1,8 \cdot 10^{22}$	1992
	450	5,9	17,5	0,7-43	$0,4 \cdot 10^{22}$	208
	460	37	14,7	1-53	$1,2 \cdot 10^{22}$	841
	460	45	13,7	1,1-53	$1,7 \cdot 10^{22}$	546
	457	90	14,2	1,4-63	$1,3 \cdot 10^{22}$	1091
304	450	5,6	13,1	1,1-45	$1,1 \cdot 10^{22}$	553
	450	34	15,2	1-61	$1,2 \cdot 10^{22}$	715
	40	57	13,8	0,9-60	$1,4 \cdot 10^{22}$	1316
	444	98	14,2	0,5-53	$1,1 \cdot 10^{22}$	628
	454	114	13,8	0,5-60	$1,4 \cdot 10^{22}$	530

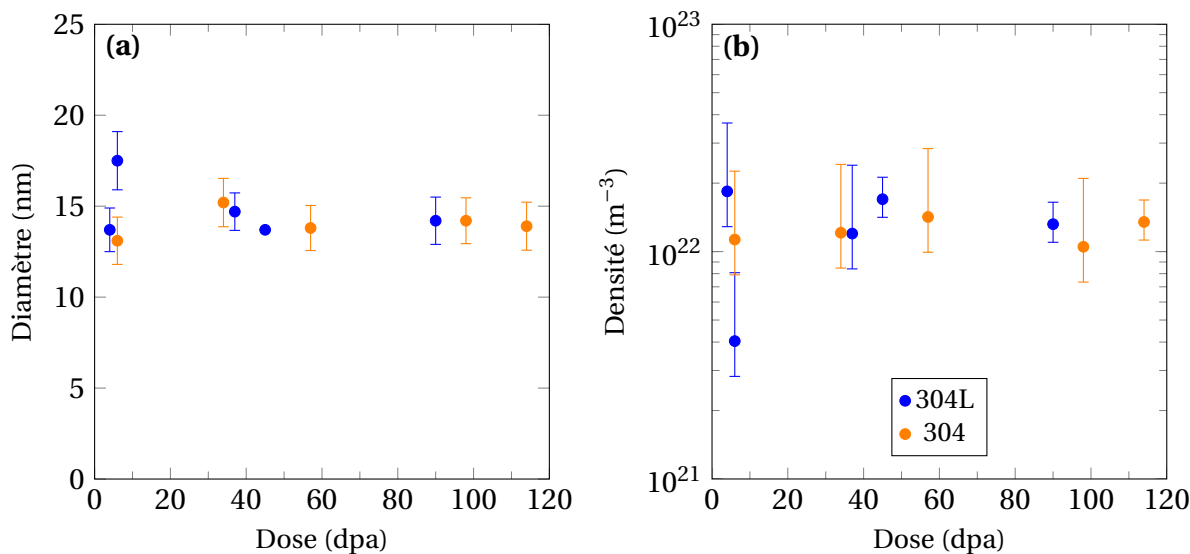


FIGURE 3.8 – Évolution du diamètre (a) et de la densité (b) des boucles de Frank en fonction de la dose dans les deux nuances 304 et 304L à 450 °C.

3.1.2.2 Irradiation à 550 °C

Les boucles de Frank ont été caractérisées dans les deux nuances 304 et 304L irradiés jusqu'à environ 40 dpa à une température de 550 °C. Dans les deux matériaux la distribution des boucles de Frank au sein des grains semble homogène. La figure 3.9, est une illustration des observations de boucles de Frank dans les deux nuances, la distribution des boucles de chacune des observations Rel-Rod est aussi représentée. Les diamètres moyens mesurés dans le 304 et le 304L sont identiques, mais une différence est à noter sur les densités des boucles entre les deux nuances. En effet, la densité de boucles me-

surée dans le 304L est environ deux fois plus faible que celle dans le 304. Le tableau 3.5 résume les données concernant les boucles de Frank à 550 °C.

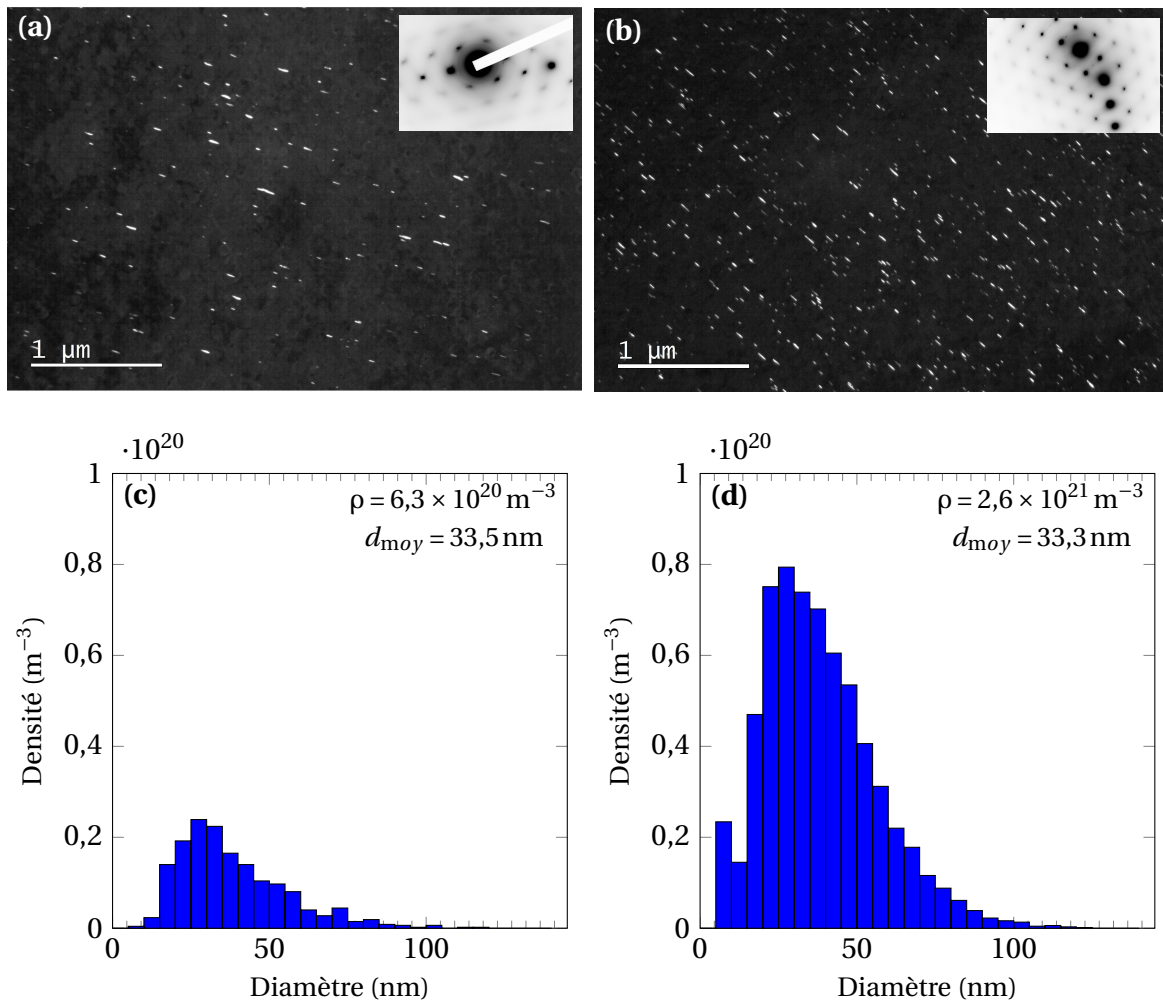


FIGURE 3.9 – Observations des boucles de Frank sur la tranche dans le 304L (a) et dans le 304 (b) irradiés à 550 °C-40 dpa et leurs distributions respectives (c) et (d).

En comparaison avec les microstructures de boucles de Frank obtenues à 450 °C, au alentours de 40 dpa, des différences en terme de taille et de densité sont clairement identifiables. L'augmentation de la température a pour effet d'augmenter considérablement la taille moyenne des boucles de Frank, tout en réduisant leur densité. À haute température, une différence de densité est observée entre les deux nuances, alors qu'à 450 °C les densités sont équivalentes. La figure 3.10 représente graphiquement l'effet de la température sur la taille et la densité des boucles de Frank.

TABLEAU 3.5 – Tailles et densités des boucles de Frank dans le 304 et 304L irradiés aux ions à 550 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de Taille (nm)	Densité (m ⁻³)	Nombre
304L	545	51		non mesurés		
	550	40	33,2	2,4-136	6,4 · 10 ²⁰	756
304	543	55	33,3	0,6-139	2,6 · 10 ²¹	4329

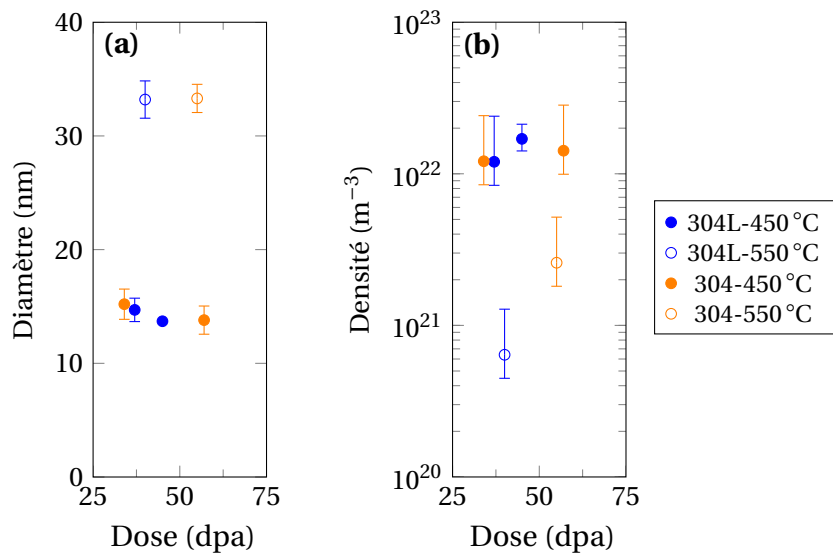


FIGURE 3.10 – Evolution du diamètre (a), de la densité (b) des boucles de Frank dans le 304 et 304L pour des doses proches de 40 dpa à 450 °C et 550 °C.

3.1.3 Réseau de dislocations

L'évolution du réseau de dislocations parfaites est caractérisé dans cette étude pour chaque condition d'irradiation à 450 °C pour les deux nuances. Pour cela, le réseau de dislocations a été observé en faisceau faible en champ sombre et la densité de dislocations a été déterminée par la méthode des intercepts.

À l'état non irradié, les deux nuances étant hypereutectées, les densités de dislocations sont faibles, entre $2 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ et $6 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$. Il est observé une évolution du réseau de dislocation avec la dose. La densité évolue rapidement, à 5 dpa la densité est déjà de $4 - 6 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$.

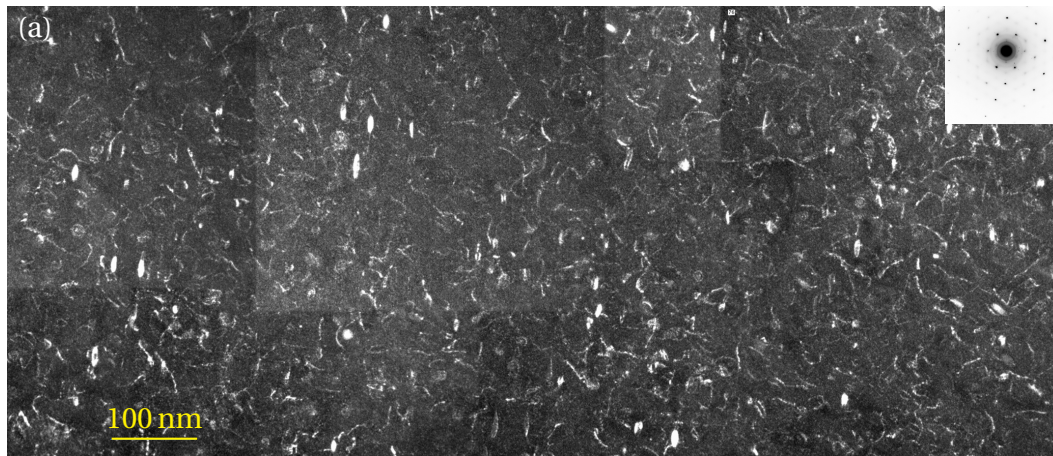


FIGURE 3.11 – Réseau de dislocations imagé champ sombre en faisceau faible dans le 304L-450 °C-100 dpa, proche du plan {110}, g de type $\langle 220 \rangle$ et en $g/3g$.

À 40 dpa et 100 dpa, le réseau est dense, de nombreuses dislocations linéaires sont visibles (fig. 3.11). Les observations en champ sombre en faisceau faible, avec un $g \langle 220 \rangle$ fortement incliné, ne permettent cependant pas d'imager systématiquement la faute d'empilement des boucles de Frank, la densité de dislocations est donc peut-être légèrement surestimée si certaines boucles ont été considérées comme des lignes de dislocations. Il apparaît toutefois que la densification du réseau est très forte, de l'ordre d'un facteur 100 entre l'état non irradié et irradié à 100 dpa. En effet, pour les deux nuances à 100 dpa, la densité est de l'ordre de 10^{15} m^{-2} . Il semble que le réseau de dislocations tend vers une valeur de saturation proche de celle à 100 dpa. L'évolution (fig. 3.12) est assez rapide et l'inflexion semble apparaitre entre 5 et 30 dpa.

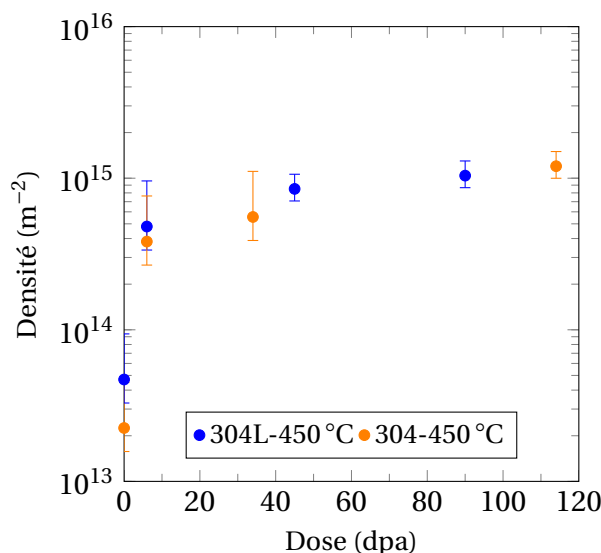


FIGURE 3.12 – Évolution du réseau de dislocations avec la dose dans le 304 et 304L à 450 °C.

3.1.4 Précipités

La caractérisation de la précipitation a été réalisée sur chaque échantillon à 450 °C, des caractérisations en microscopie conventionnelle mais aussi en haute résolution ont été effectuées, dans le but d'une identification des structures cristallines. Des observations EFTEM ont permis de mettre en évidence des enrichissements ou appauvrissements en certains éléments d'alliage des précipités. Enfin, des analyses par sonde atomique tomographique ont permis de quantifier les compositions des amas présents.

Pour les deux nuances, aucun précipité n'est observé lors des irradiations 450 °C-5 dpa par MET. À plus fortes doses 40 et 100 dpa, deux types de précipités différents ont pu être identifiés et caractérisés par MET conventionnelle, MET en énergie filtrée (EFTEM) et MET en haute résolution (MET-HR). Enfin, des amas supplémentaires ont été mis en évidence par SAT dans les états fortement irradiés.

Les études, par EFTEM, SAT, MET-HR, de nature de précipités ont été réalisées sur les échantillons fortement irradiés (100 dpa) car ils présentent une très forte précipitation en comparaison aux échantillons irradiés à 40 dpa.

3.1.4.1 Par Microscopie Électronique en Transmission

En microscopie, les précipités sont généralement mis en évidence sur les clichés de diffraction en axe de zone et visualisés en champ sombre, cependant il peut être préférable de se placer en condition deux ondes proche de l'axe de zone afin de profiter d'un écart de Bragg nul et de ce fait de mieux visualiser certaines réflexions. Ceci permet d'augmenter l'intensité des taches de diffraction associées aux précipités et de diminuer l'intensité de celles provenant de la matrice.

Dans cette étude, les observations ont principalement été réalisées en axe de zone $\{110\}$ ou en condition deux ondes proche de cet axe. En condition deux ondes, la direction de type $\langle 220 \rangle$ est préférée aux autres, car elle permet d'obtenir de meilleurs fonds noirs et de s'affranchir de contrastes parasites provenant de taches de diffraction voisines. Les clichés de diffraction en figure 3.13 pris dans l'échantillon 304L-450 °C-100 dpa mettent en évidence entre les taches de diffraction correspondant à la matrice (fortement excités),

des taches, de faible intensité témoignant de la présence d'une précipitation. En condition deux ondes, il est observé des taches (entourées en couleur sur la figure 3.13.b.) qui ne sont pas visibles en axe de zone.

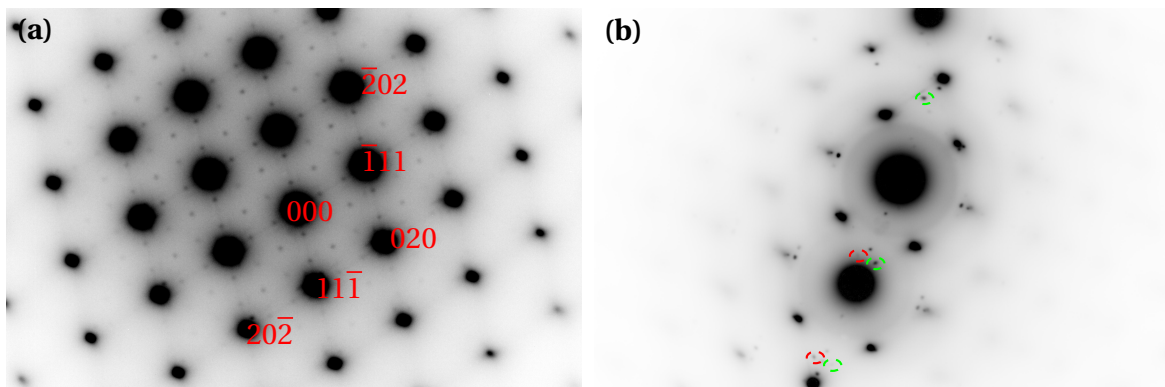


FIGURE 3.13 – Clichés de diffraction dans le 304L-450 °C-100 dpa, en axe de zone de type {110} de l'austénite (a) et en condition deux ondes de type $\langle 220 \rangle$ proche du plan {101} (b). Entre les taches de diffraction de la matrice, des taches moins excitées induites par la précipitation sont visibles.

Précipités de type $M_{23}X_6$ Le cliché de diffraction (fig. 3.13.a.) a été pris en axe de zone {101} dans le 304L mais le même type de cliché est observé dans le 304, pour les irradiations à 450 °C jusqu'à 100 dpa. Dans chaque direction, deux réflexions, situées à $\sim 1/3$ et $\sim 2/3$ entre les réflexions de la matrices, sont visibles. Ces réflexions sont de faible intensité par rapport à celles de la matrice et sont caractéristiques de la présence de précipités. La figure 3.14 illustre ce propos, le profil d'intensité du cliché de diffraction suivant la direction $\langle 202 \rangle$ est représentée.

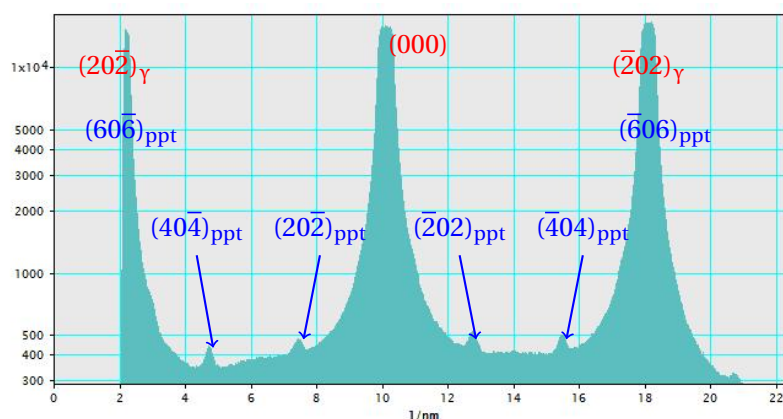


FIGURE 3.14 – Profil d'intensité entre les réflexions correspondant aux plans $\langle 202 \rangle_{\gamma}$ et $\langle 202 \rangle_{\gamma}$ en axe de zone de type {101}. Les réflexions de la précipitation sont situées à $\sim 1/3$ et $\sim 2/3$ de celles de la matrice.

À partir des réflexions observées en axe de zone, il peut être imagé en champ sombre les précipités associés (fig. 3.15). Il a été constaté que quelle que soit la tâche de diffraction choisie, les mêmes précipités sont imagés. Les précipités sont de forme cubique. Avant de décrire leur évolution avec la dose et suivant la nuance, il est dans un premier temps présenté la démarche ayant permis de déterminer leur nature.

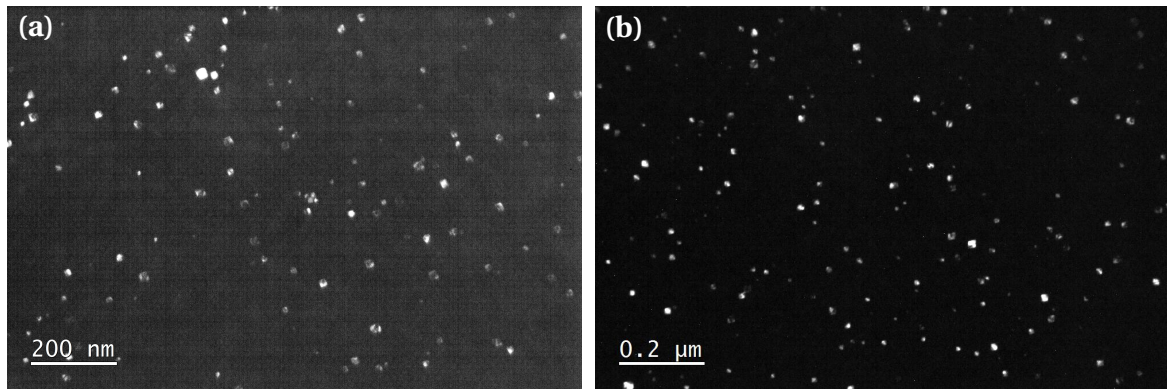


FIGURE 3.15 – Champs sombres des précipités cubiques, à partir d’une réflexion située à $\sim 2/3$ du plan de type $(202)_\gamma$, dans le 304L (a) et dans le 304 (b) irradiés à 450 °C-100 dpa.

Ces réflexions en relation cube à cube avec la matrice et situées à $\sim 1/3$ et $\sim 2/3$ par rapport aux réflexions de la matrice, peuvent correspondre à des carbures de type $M_{23}X_6$ (τ) ou de type M_6X (η). En effet, ces précipités ont une structure cristalline cubique face centrée (CFC) et leur paramètre de maille est environ le triple de l’austénite respectivement 10,56-10,65 Å et 10,8-10,95 Å [RENAULT-LABORNE et collab., 2014] contre 3,61 Å mesurée dans l’austénite. Cependant, pour la phase η les réflexions de type $(200)_\eta$ et $(420)_\eta$ sont normalement invisibles, ce qui est en contradiction avec le cliché de diffraction présenté. La phase η n’est pour autant pas à exclure car les réflexions pour ces positions de la phase τ peuvent cacher l’absence des réflexions invisibles de η . La phase $M_7Ni_{16}Si_7$ appelée phase G n’est pas non plus à exclure car cette phase est observée à plus haute température et a une structure cristalline CFC avec un paramètre de maille voisin même s’il est légèrement plus important 11,20 Å [BRISTOL GROUP, 1984]. D’un point de vue chimique, les carbures de types τ sont notamment enrichis en chrome, la phase η présente un enrichissement en nickel et en chrome par rapport à la matrice et la phase G contient une quantité importante de nickel et silicium.

Les familles de précipités considérées étant des CFC, les réflexions visibles sur le cliché de diffraction sont celles avec des indices de Miller hkl de même parité. Le paramètre de maille mesuré à partir des clichés de diffraction est alors de 10,6 Å. La figure 3.16 est une simulation du cliché de diffraction à l’aide du logiciel CaRIne Crystallography. Il a été simulé la diffraction pour l’austénite, avec un paramètre de maille de 3,61 Å, pour un axe de zone de type $\{101\}$, le cliché obtenu correspond aux taches noires de la simulation, figure 3.16. Le cliché de diffraction simulé, pour les précipités avec une structure CFC, un paramètre de maille de 10,6 Å et en considérant la relation cube à cube avec la matrice, est en orange sur la simulation. On peut noter la bonne reproduction du cliché de diffraction obtenue en axe de zone de la figure 3.13.a.

Le paramètre de maille mesuré orienté vers des précipités de type $M_{23}X_6$, cependant des analyses complémentaires portant sur les enrichissements ou appauvrissements en chrome, nickel ou silicium des précipités ont été nécessaires pour statuer.

Afin de déterminer dans un premier temps d’éventuels enrichissements en éléments dans les précipités, des analyses par perte d’énergie aux électrons (EFTEM) ont été menées. Ces analyses ont été faites sur les deux nuances pour les états les plus irradiés. Les conclusions sont les mêmes pour les deux échantillons. Une analyse sur le 304-450 °C-100 dpa est présentée en figure 3.17 et sur la figure 3.18 pour la nuance bas carbone.

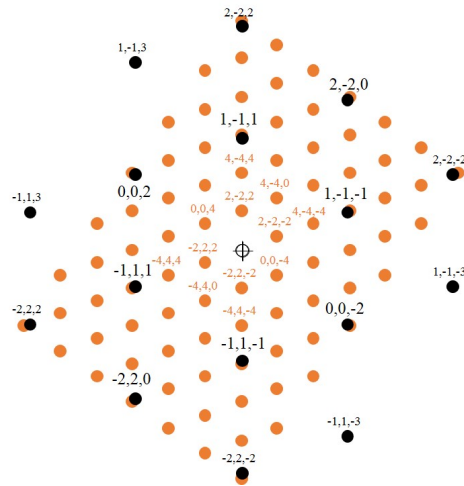


FIGURE 3.16 – Cliché de diffraction simulé par le logiciel CaRIne Crystallography pour des structures cristallines de type CFC suivant un axe de zone de type $\{101\}$, avec un paramètre de maille de 3,61 Å pour l'austénite (en noir) et avec un paramètre de maille de 10,6 Å pour les précipités (en orange).

Des précipités cubiques sont visibles dans les deux nuances, ainsi que des précipités allongés (voir paragraphe suivant). Les précipités cubiques présentent un enrichissement en chrome et un appauvrissement en fer. Les cartographies de nickel ne révèlent pas de fluctuations significatives du nickel, une légère diminution pourrait être suspectée (notamment dans le 304). L'enrichissement en chrome et l'appauvrissement en fer, ainsi que le non enrichissement en nickel des précipités cubiques constitue un argument supplémentaire en faveur des $M_{23}X_6$. En effet, les deux autres phases ont des teneurs en nickel supérieures à la matrice.

Pour résumer, les $M_{23}X_6$ sont observables dans les deux nuances à 100 dpa et répartis de façon homogène. À cette dose, la nuance haut carbone contient une quantité plus importante de $M_{23}X_6$ entre $1,4$ et $2,5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ contre $6,5 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ dans le 304L. Pour les deux nuances la taille moyenne est d'environ 12 nm à 100 dpa. Les fractions volumiques de $M_{23}X_6$ dans le 304L et le 304 à 100 dpa sont de 0,14 et 0,34-0,54 soit une augmentation d'un facteur deux à trois dans la zone d'intérêt.

Dans les deux nuances irradiées à 40 dpa-450 °C les densités sont très faibles et trop peu de précipités ont pu être comptés. Leur distribution n'est pas homogène dans le matériau et la taille est similaire entre les deux nuances. Dans le 304L seulement une trentaine de $M_{23}X_6$ a pu être comptabilisée et uniquement sur une lame. Leur densité dans leur zone d'observation est très faible $2,6 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ pour une taille de 10 nm. Dans le 304 la densité de $M_{23}X_6$ est de $2,1 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$. À 5 dpa, aucun $M_{23}X_6$ n'est observé par MET, la précipitation apparaît donc entre 5 et 40 dpa. Les données sont récapitulées dans le tableau 3.6.

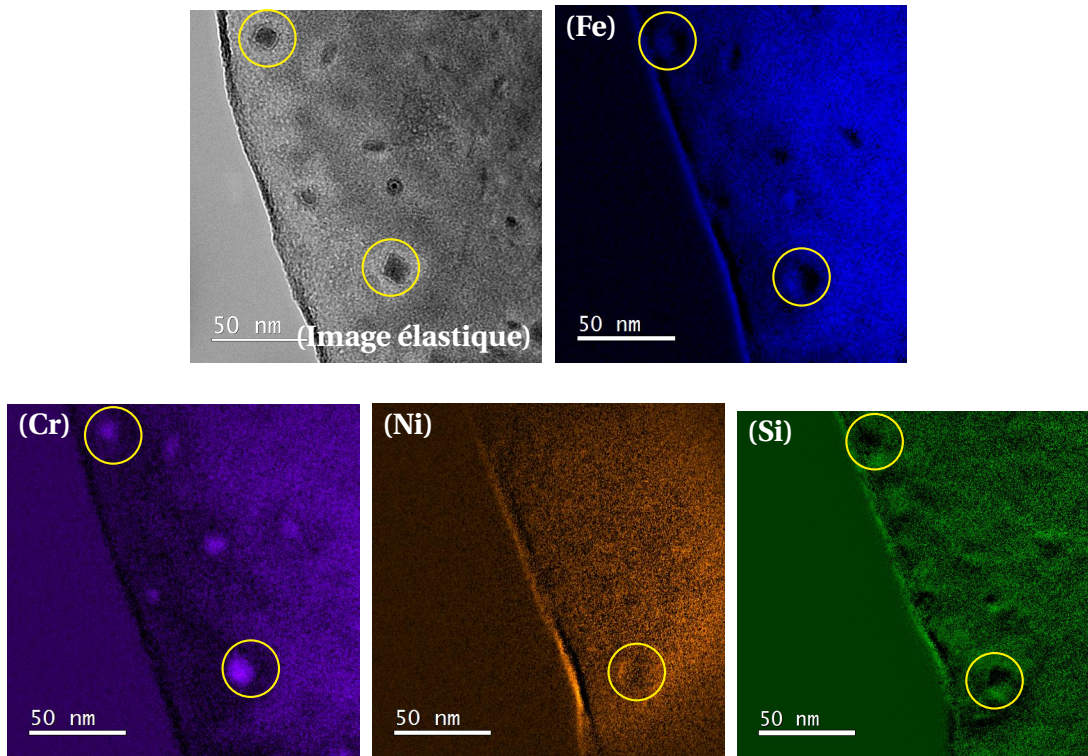


FIGURE 3.17 – Analyse en EFTEM de précipités dans le 304-450 °C-100 dpa.

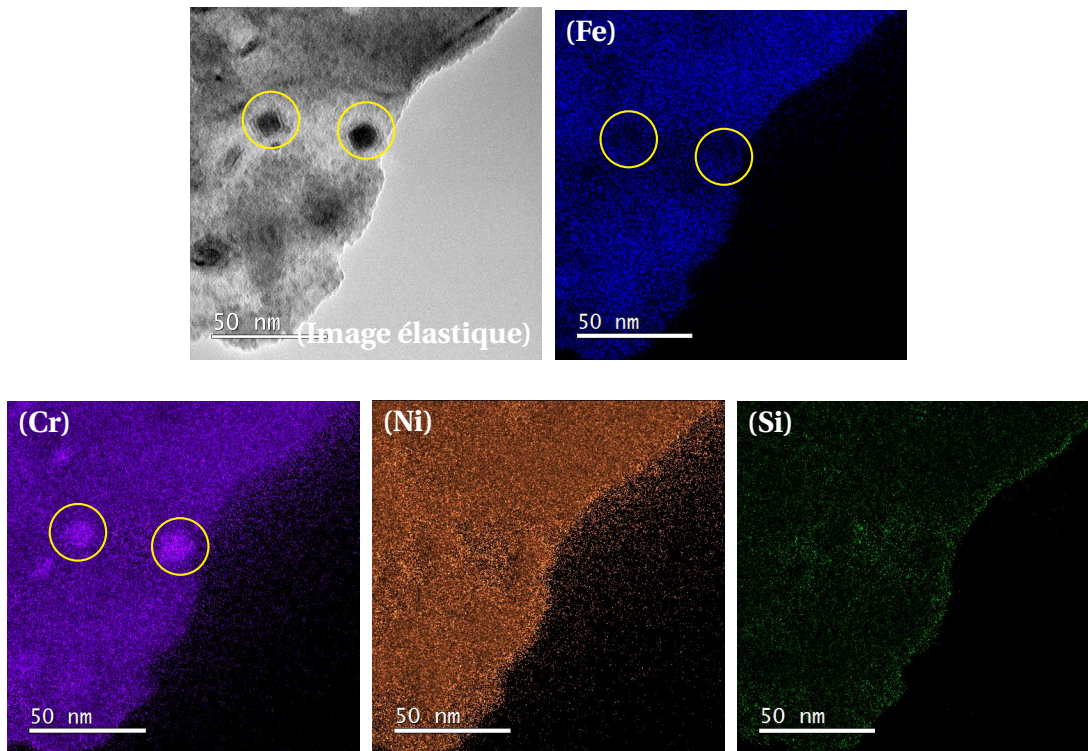


FIGURE 3.18 – Analyse en EFTEM de précipités dans le 304L-450 °C-100 dpa.

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

TABLEAU 3.6 – Tailles et densités des $M_{23}X_6$ dans le 304 et 304L irradiés aux ions à 450 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de taille (nm)	Densité (m^{-3})	Nombre	Frac. Vol. %
304L	440	4,4					
	450	5,9			Non visibles		
	460	37			Non visibles		
	460	45	10,2	4-20,3	$2,6 \cdot 10^{20}$	26	0,04
	457	90	11,8	3,7-21,4	$6,5 \cdot 10^{20}$	324	0,14
304	450	5,6			Non visibles		
	450	34	10,7	6-15	$2,1 \cdot 10^{20}$	13	0,03
	430	57			Trop peu pour être mesurés		
	444	98	12,6	6-25,8	$1,4 \cdot 10^{21}$	507	0,34
	454	114	11,7	3,5-27	$1,5 \cdot 10^{21}$	320	0,53

Précipités de type M_yX_z Le cliché de diffraction en condition deux ondes (fig. 3.13.b.) montre la présence de taches de diffraction qui n'étaient pas visibles en axe de zone (entourées en rouge et vert). Individuellement, il n'est pas possible de remonter à une quelconque structure cristalline. Cependant, il est possible de les imager. Les réflexions entourées d'une même couleur imagent des précipités identiques.

Les deux familles (rouge et verte) de précipités imagées en fig. 3.19 ont une forme allongée. Pour chacune des deux familles, les précipités sont tous alignés dans la même direction. Il peut être souligné que les réflexions de diffraction ne sont pas à proprement parler des points mais plutôt des trainées. Si l'on compare la direction des trainées avec l'orientation des précipités, comme pour les trainées de diffusion des boucles de Frank, la tache de diffraction est presque perpendiculaire à la direction du précipité. Les différentes mesures sur ces deux variants donnent des densités et tailles équivalentes entre les deux variants à chacune des doses où ils sont observables.

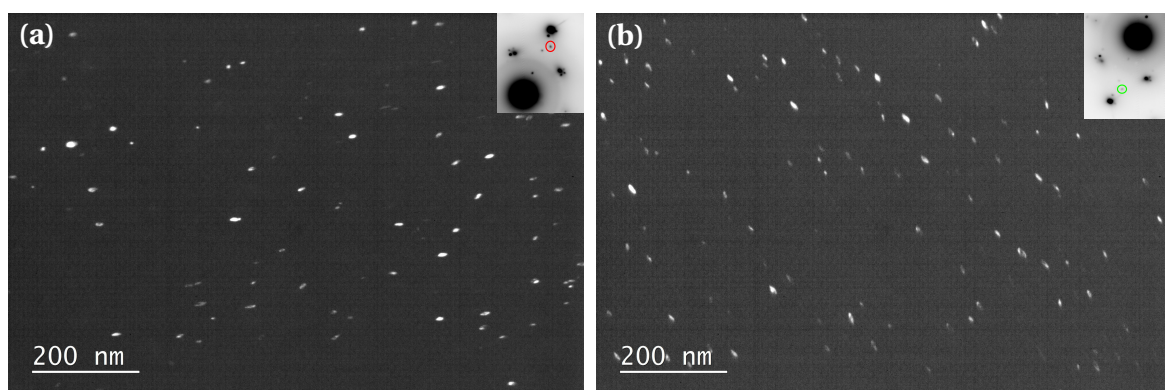


FIGURE 3.19 – Observation en champ sombre de deux variants de précipités allongés imagés avec la tache de diffraction entourée en rouge (a), en vert (b).

Ils sont présents en grande quantité dans les deux nuances à 100 dpa-450 °C et répartis de façon homogène. Ils sont observés sous la forme de deux variants identiques en taille et densité (fig. 3.19). Pour un unique variant, la densité est de $1,3 \cdot 10^{21} m^{-3}$ dans le 304L et de $1,4 \cdot 10^{21} m^{-3}$ dans le 304. Cependant, leurs tailles ne sont pas identiques, le 304L contient

des carbures allongés de plus petites tailles que le 304, respectivement 10,4 et 12,5 nm. À plus faible dose (40 dpa), la nuance haut carbone, uniquement, contient ce type de précipités allongés, ils ont une taille moyenne de 9,7 nm et une densité de $7,6 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ pour chacun des variants. Enfin, la précipitation de carbures n'est pas observée à 5 dpa par MET. Les données concernant ces précipités sont reportées dans le tableau 3.7.

TABLEAU 3.7 – Tailles et densités des précipités allongés dans le 304 et 304L irradiés aux ions à 450 °C.

Nuance	Température (°C)	Dose (dpa)	Taille (nm)	Gamme de taille (nm)	Densité (m^{-3})	Nombre	Frac. Vol. %
304L	440	4,4			Non visibles		
	450	5,9					
	460	37			Non visibles		
	460	45					
	457	90	10,6	2,4-28,4	$2,6 \cdot 10^{21}$	937	0,03
304	450	5,6			Non visibles		
	450	34	9,7	2,9-22,3	$1,5 \cdot 10^{21}$	192	0,01
	430	57	9,4	2,0-23,5	$1,6 \cdot 10^{21}$	881	0,02
	444	98			Visibles mais non mesurés		
	454	114	12,5	5,2-23,3	$2,8 \cdot 10^{21}$	129	0,05

Les analyses EFTEM faites sur ces précipités allongés (fig. 3.17) montrent un enrichissement en chrome et aucun enrichissement en nickel, suggérant qu'il s'agit aussi de carbures de chrome.

Une des deux familles a été observée en haute résolution (fig. 3.20). Les précipités ont été observés dans le plan $\{110\}$ de la matrice. À partir de l'image en haute résolution il est possible de réaliser une transformée de Fourier (FFT) de cette image donnant un équivalent au cliché de diffraction (fig. 3.20).

Sur les deux précipités de la figure 3.20.a, des franges de Moiré sont visibles, ces franges sont caractérisées dans la FFT par les quatre taches proches de la tache centrale (pointées par des flèches de couleur), équivalente au faisceau transmis en diffraction, elles ne sont donc pas à prendre en compte lors de l'indexation du précipité. Plus finement, des fautes d'empilements sont observables dans les précipités. Le précipité de la figure 3.20.c présente aussi des franges de Moiré mais pas sur la totalité du précipité. La transformée de Fourier est à cela près la même que pour la figure précédente. Dans ce précipité, la structure semble fortement complexe et la description par une maille cubique n'est pas réaliste, une structure orthorhombique ou hexagonale semble plus pertinente. L'objectif étant ici de trouver une première approximation de la structure cristalline de ce type de précipité, il a été choisi d'indexer la FFT sur la base d'une structure hexagonale primitive (fig. 3.20). D'après ce cliché une indexation de la structure cristalline du précipité serait une structure hexagonale avec $a = 4,97 \text{ \AA}$ et $c = 9,7 \text{ \AA}$ dans le plan $(1\bar{2}16)$. L'indexation depuis cet axe de zone est très peu dépendant de la longueur du paramètre de maille dans la direction c, l'observation étant faite presque le long de cet axe. Cette première indexation tend à montrer un précipité avec une forte densité atomique, l'observation montre qu'il ne peut s'agir d'une structure cubique.

Les $M_7C_3(\omega)$ ont une maille orthorhombique primitive, avec les paramètres de maille

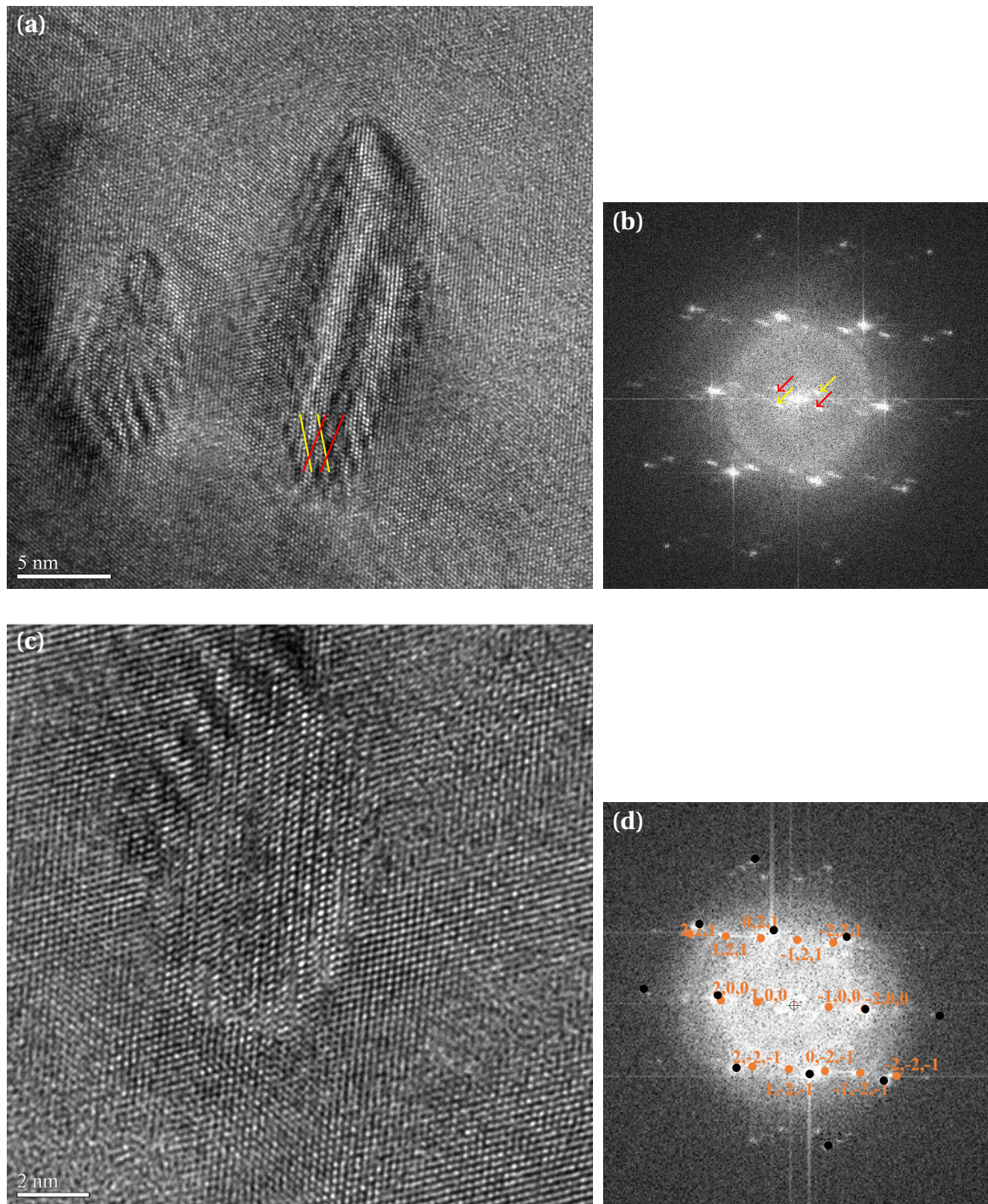


FIGURE 3.20 – Images haute résolution de précipités allongés, en axe de zone de type $\{110\}$ de la matrice (a) et (c) ainsi que de la transformée de Fourier associée à l'image respectivement (b) et (d).

suivants : $a_{\omega} = 4,540 \text{ \AA}$, $b_{\omega} = 6,879 \text{ \AA}$, $c_{\omega} = 11,942 \text{ \AA}$ mais il a longtemps été pensé que la structure était hexagonale [ERNST et collab., 2011]. Cette première indexation bien que sur un seul axe de zone se rapprocherait d'une précipitation de ce type.

Pour conclure, deux types de précipités ont été identifiés et caractérisés dans le 304 et 304L sous irradiation à $450 \text{ }^{\circ}\text{C}$ par MET. Les précipités sont des carbures de natures et morphologies différentes.

Des $M_{23}C_6$ enrichis en chrome ayant une structure CFC avec un paramètre de maille de $10,6 \text{ nm}$ sont reconnaissables par leur forme cubique. Des précipités présentant une structure proche des M_7C_3 sont aussi présents. Ils sont de forme allongée et deux variants présentant des orientations différentes ont été observés. Les clichés en haute résolution permettent de remonter à une structure cristalline hexagonale. Les évolutions avec la dose des précipités sont données dans la figure 3.21 .

Les $M_{23}C_6$ se forment dès 40 dpa dans les deux nuances, à cette dose très peu de précipités ont été observés et leur distribution n'est pas homogène, les fractions volumiques sont faibles. Cependant à 100 dpa ils sont présents en plus forte densité, la fraction volumique a été multipliée d'un facteur 10 à 20 dans le 304. La nuance avec une teneur en carbone plus élevée contient plus de précipités, mais la taille des précipités est similaire dans les deux nuances. La fraction volumique dans le 304 est proche du triple de celle du 304L pour les $M_{23}C_6$. Les carbures allongés sont observés à partir de 40 dpa dans le 304 et 100 dpa dans le 304L. Comme deux variants ont été mesurés les densités reportées dans le graphique 3.21 correspondent à celles des deux familles cumulées. On constate qu'à 40 dpa il sont dix fois plus nombreux que les $M_{23}C_6$ dans le 304. À 100 dpa , bien que les carbures aient des tailles et densités similaires au $M_{23}C_6$, comme ils sont fins et allongés, la densité volumique reste faible.

Quel que soit le type de carbure et la dose étudiée la fraction volumique de précipité est plus importante dans le 304 que dans le 304L.

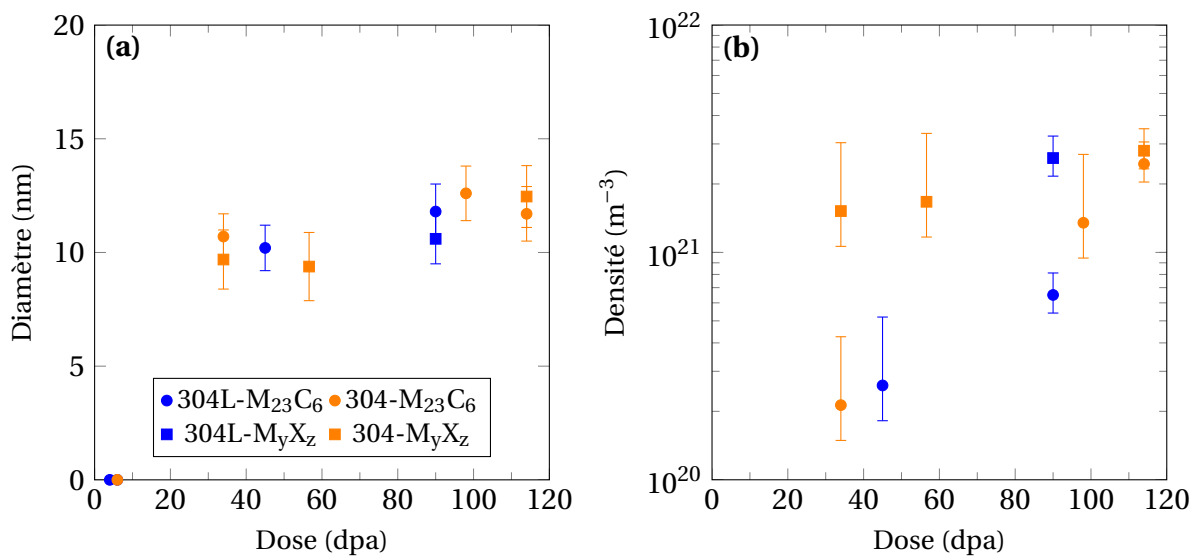


FIGURE 3.21 – Évolution de la taille (a) et de la densité (b) des précipités de type $M_{23}C_6$ et des précipités allongés dans le 304 et 304L irradiés à $450 \text{ }^{\circ}\text{C}$.

3.1.4.2 Par Sonde Atomique Tomographique

Des analyses en Sonde Atomique Tomographique ont été menées sur les deux nuances irradiées à 450 °C-100 dpa. Trois pointes de grandes tailles pour chaque nuance ont pu être analysées. Les reconstructions utilisant les éléments d'alliages, nickel, silicium, phosphore et carbone sont présentées en figure 3.22. Il est à noter que la pointe 304L-p1 est environ deux fois plus grande que les autres pointes.

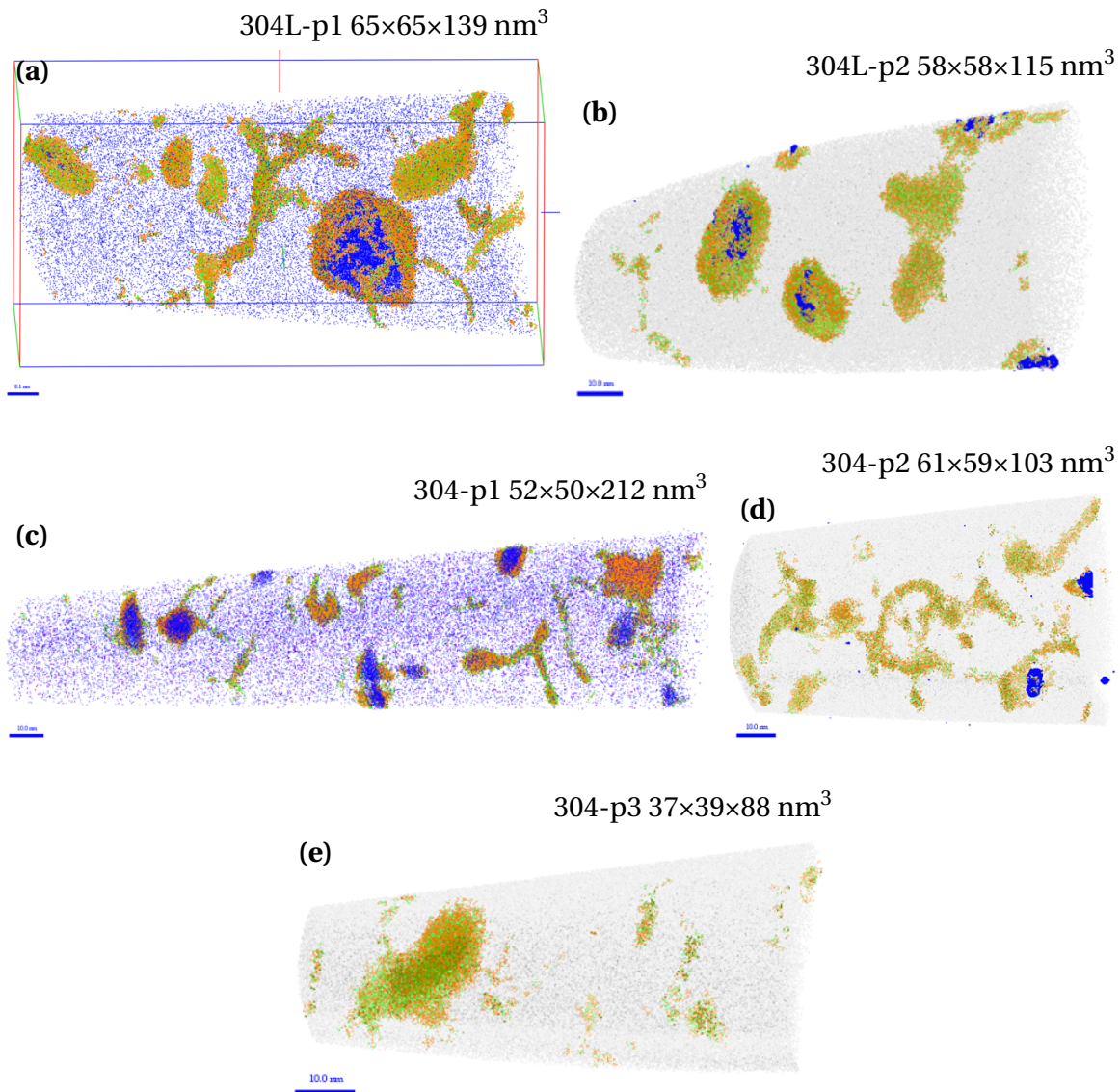


FIGURE 3.22 – Reconstruction de deux pointes analysées en sonde atomique tomographiques pour des irradiations à 450 °C-100 dpa dans les nuances 304L (a et b) et 304 (c, d, e). Les reconstructions sont réalisées en faisant apparaître le nickel en orange, le silicium en vert, le phosphore en gris et le carbone en bleu.

Il est observé de nombreux défauts par SAT dans les volumes. Ainsi, des précipités de type carbures ou des amas enrichis en nickel sont visibles, des ségrégations linéaires ainsi que des ségrégations autour de carbures sont observées.

Amas de types carbures Les deux nuances présentent à 100 dpa des amas enrichis en chrome et carbone observés par sonde atomique tomographique. Cependant, suivant les

pointes étudiées les compositions mesurées pour ces précipités ne sont pas les mêmes et leur stœchiométrie peut varier fortement d'un volume à l'autre.

Dans le 304L, les trois volumes contiennent des carbures et leurs compositions sont similaires quels que soient la pointe et le carbure étudié. La composition moyenne pour ce type d'amas est reportée dans le tableau 3.8, la balance est faite sur le fer. On constate que ces précipités sont très enrichis en chrome (52,5 %_{atm}) et en carbone (25,5 %_{atm}). Leur stœchiométrie est de type M₃C avec M principalement du fer et du chrome. Cette stœchiométrie est à rapprocher de celle des M₂₃C₆ qui n'est pas très éloignée. Les précipités ont une forme de disque d'environ 10-15 nm de diamètre pour une épaisseur d'environ 3 - 5 nm. La densité de carbures calculée est d'environ 8,3 · 10²¹ m⁻³. On constate que les précipités présentent systématiquement une coquille de ségrégation enrichie en nickel, silicium et phosphore. La figure 3.23 est un profil de concentration traversant le gros carbure de la pointe 304L-p1. Sur ce profil on observe la ségrégation en nickel et silicium et l'appauvrissement en chrome à l'interface matrice/précipité.

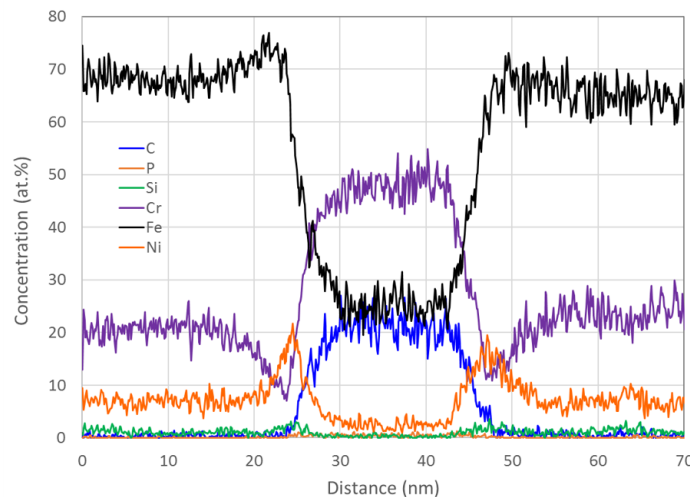


FIGURE 3.23 – Profil de concentration, traversant un carbure dans le 304L mettant en évidence la coquille de ségrégation.

Dans le 304, seulement deux volumes sur les trois présentent des amas enrichis en carbone, les pointes 304-p1 et 304-p2 sur la figure 3.22. Comme pour les 304L, les carbures dans ces deux pointes présentent une coquille de ségrégation en nickel, silicium et phosphore. Les compositions des carbures et des coquilles de ségrégation sont données dans le tableau 3.8. Il peut être noté que les coquilles de ségrégation ont les mêmes compositions dans les deux nuances. Par contre, deux types de carbures de composition différentes existent, mais il n'est pas observé de différence de morphologie. Dans le 304 la densité de carbures est de l'ordre de 1,8 · 10²² m⁻³. Ils sont sous la forme de disque d'environ 7 - 10 nm de diamètre et de 3 - 5 nm. Ils représentent une fraction volumique de 0,3 %.

Concernant la pointe 304-p1, les carbures ont une concentration en carbone de 20 %_{atm} et en chrome de 39,3 %_{atm} et contrairement aux carbures dans le 304L une teneur en nickel relativement importante est mesurée, à hauteur de 10,5 %_{atm}. La stœchiométrie de ces précipités serait de type M₄C correspondant donc à des précipités de type M₂₃C₆.

Dans la pointe 304-p2, les carbures observés contiennent du carbone (42,4 %_{atm}), du chrome (21,4 %_{atm}), du fer, du nickel et du silicium, aucun autre élément d'alliage n'est

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

TABLEAU 3.8 – Compositions chimiques moyennes des carbures dans le 304 et 304L-450 °C-100 dpa ainsi que des coquilles de ségrégation.

Éléments	304L		304		
	« M ₃ C »	Coquille	« M ₄ C ~ M ₂₃ C ₆ »	« M ₄ C ₃ »	Coquille
	% _{atm}	% _{atm}	% _{atm}	% _{atm}	% _{atm}
C	25,54	2,85	20	42,4	2,76
Cr	52,54	14,3	39,3	21,4	16,15
Ni	3,84	24,0	10,5	5,2	25,95
Si/N	0,25	6,42	2,8	0,3	5,63
P	0,18	0,37	0,53	-	0,53
Mn	0,74	0,46	0,39	-	0,39
Mo	2,0	0,39	0,04	-	0,04
Cu	0,16	0,3	0,05	-	0,05
V	0,84	0,1	0,03	-	0,03
Co	0,06	0,55	0,09	-	0,09
Al	0,08	0,07	0,08	-	0,08

mis en évidence. Leur stœchiométrie correspondrait à des précipité de type M₄C₃.

Pour conclure, il est observé dans la nuance haut carbone une quantité de carbures plus importante que dans le 304L. Pour des diamètres légèrement plus faibles, les densités de carbures dans ces deux nuances sont fortes en comparaison de celles mesurées en MET. Les faibles volumes étudiés en SAT peuvent expliquer ces différences en densité. On constate aussi que suivant la nuance, voir même la pointe étudiée par SAT, la composition chimique des carbures n'est pas la même. Cependant, il est à préciser que les carbures sont entourés d'une ségrégation importante en nickel, la frontière entre les deux n'est donc pas forcément clairement définie et un écart sur les teneurs en nickel ou silicium notamment, pourrait avoir lieu si une partie de la ségrégation est incluse dans le précipité.

Amas enrichis en nickel En plus des carbures, la sonde atomique tomographique a révélé la présence d'amas enrichis en nickel et silicium.

Dans les deux nuances, des petits amas diffus de type Ni/Si/P sont observés par SAT, cependant il est très difficile de savoir s'il s'agit d'objets isolés ou bien de parties de ségrégations sur des dislocations. Il est aussi observé des amas enrichis en nickel, silicium et parfois phosphore dans les deux nuances et de tailles suffisamment importantes permettant de dire que ce ne sont pas des dislocations. Aucun amas de ce type n'a pu être mis en évidence par MET.

Sur les trois volumes étudiés dans le 304-450 °C-100 dpa un amas très enrichi en nickel, silicium et phosphore a été intercepté. Il semble cylindrique avec un diamètre de l'ordre de 7 nm et une longueur de 17 nm. La stœchiométrie correspondrait à un précipité de type Ni₃SiP. Il est aussi observé un autre précipité enrichi en nickel, silicium, mais avec des teneur moins importantes. Ce précipité présente un grand axe de 12 nm et un petit axe de 8 nm. La présence d'un précipité dans ces trois volumes donne une densité approximative de $2 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$.

Dans le 304L, les précipités de type Ni/Si et Ni/Si/P sont observés, en SAT, dans une densité de l'ordre de $3,0 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Ils ont une morphologie en forme de cylindre avec un diamètre de 3 à 8 nm et une longueur d'environ 15 nm. Les deux types de précipités se distinguent par leur teneur en phosphore (10% dans un cas et ~1% dans l'autre) et

par leur teneur en carbone et éléments carburigènes, significativement plus élevées dans Ni/Si/P. On peut noter que le ration Ni/Si est bien supérieur à 3.

Les compositions chimiques des précipités riches en nickel sont données dans le tableau 3.9 pour les deux nuances irradiées à 450 °C-100 dpa.

TABLEAU 3.9 – Compositions chimiques moyennes des amas enrichis en Ni/Si/P et Ni dans le 304 et 304L-450 °C-100 dpa.

Éléments	304		304L	
	NiSiP	NiSi	NiSiP	NiSi
	%atm	%atm	%atm	%atm
Cr	10,7	7,3	16,28	7,46
Ni	43,9	27,9	29,67	33,24
Si/N	15,3	3,8	6,94	6,27
P	8,3	-	10,64	1,25
Mo			1,26	0,37
Mn			1,15	0,51
C			0,98	0,16
Ratio Ni/Si	2,9	7,3	4,3	5,3

Ségrégations linéaires En sonde atomique tomographique, il est observé dans les deux nuances irradiées à 450 °C jusqu'à 100 dpa, de longues ségrégations linéaires que l'on estime être sur des dislocations (fig. 3.22). En effet, la densité linéaire de ces défauts est évaluée à $4,7 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$ dans le 304L et à environ 10^{15} m^{-2} dans le 304, dans les pointes SAT. Ceci correspond à la densité de dislocations linéaires mesurée par microscopie. Pour les deux nuances, les ségrégations contiennent des teneurs fortes en éléments tels le nickel, le silicium et le phosphore. Les ségrégations dans le 304L sont aussi fortement enrichies en carbone alors qu'une légère diminution a été observée dans le 304 entre la matrice et les ségrégations. Pour les deux nuances, une composition plus importante en carbone dans la matrice après irradiation est à noter. Des déplétions principalement en chrome et manganèse sont mesurées aux dislocations pour les deux états irradiés.

La composition des ségrégations sur les lignes de dislocations est donnée dans le tableau 3.10 pour les deux nuances dans la totalité des volumes étudiés. La composition moyenne des matrices, mesurée pour chacune des nuances est aussi reportée dans le tableau. Cette composition ne prend pas en compte la composition des amas. Il est indiqué dans la colonne variation si la composition des ségrégations correspondent à un enrichissement (+), un appauvrissement (-) ou n'est pas modifiée (~), en l'élément chimique considéré. Il est aussi donné la composition globale des pointes, ces compositions prennent en compte la composition de la matrice et des amas. On constate que la teneur en carbone est plus élevée que celle avant irradiation.

TABLEAU 3.10 – Compositions globales des pointes étudiées ainsi que les compositions moyennes en éléments d’alliage de la matrice et des ségrégations le long des dislocations dans le 304L et le 304 irradiés à 450 °C-100 dpa. La variation de la composition des ségrégations par rapport à celle de la matrice est indiquée.

Éléments	304L				304			
	Globale % _{atm}	Matrice % _{atm}	Ségrégation % _{atm}	Variation	Globale % _{atm}	Matrice % _{atm}	Ségrégation % _{atm}	Variation
C	0,37	0,27	1,92	+	0,37	0,3	0,25	~
Ni	7,98	7,42	25,38	+	9,98	9,48	24,18	+
Si/N	1,04	0,89	6,99	+	0,91	0,72	8,46	+
P	0,043	0,02	0,524	+	0,06	0,03	1,13	+
Cr	20,24	20,42	13,56	-	19,84	20,00	11,71	-
Mn	1,48	1,52	0,49	-	1,71	1,75	0,41	-
Al	0,006	0,005	0,052	+	0,12	0,12	0,03	-
Mo	0,25	0,25	0,35	+	0,29	0,29	0,02	-
Cu	0,22	0,22	0,26	~		0,20	0,03	-
Co	0,20	0,18	0,52	+	0,06	0,06	0,08	~
V	0,069	0,069	0,077	~	0,05	n.m.	n.m.	

3.1.5 Évolution de la microstructure le long du profil de dommage

L'évolution de la microstructure de défauts, pour différentes conditions d'irradiation (tab. 3.1), a été étudiée par MET sur des échantillons FIB. L'objectif était de pouvoir dans un premier temps valider le protocole de polissage en face avant. Dans un second temps, ces caractérisations ont permis d'étudier l'effet de la surface et des interstitiels injectés sur les populations de défauts.

Il est rappelé que lorsque l'on parle par exemple d'une lame FIB - 40 dpa, la dose 40 dpa correspond à la dose moyenne entre 650 et 850 nm. En effet, la dose le long du profil varie dans ce cas de 20 dpa en surface jusqu'à 150 dpa au pic de dommage.

Les deux nuances ont été observées pour les irradiations 100 dpa tandis que seul le 304L a été caractérisé pour les doses 5 et 40 dpa.

Pour tous les états, la longueur du profil de dommage calculé par SRIM correspond exactement à celle mesurée expérimentalement. Au delà de cette zone (>2,5 µm) aucun défaut pouvant être attribué à l'irradiation n'a été observé. Dans la zone irradiée, suivant les états, des cavités, boucles de Frank, dislocations et précipités sont observables. Cependant, leur distribution n'est pas homogène en fonction de la profondeur.

Que ce soit pour la lame FIB du 304L-5 dpa ou celle du 304L 40 dpa, l'évolution de la microstructure le long du profil de dommage de l'échantillon peut être discrétisée en trois zones. Elles correspondent à une zone proche de la surface (<300 nm) où la microstructure évolue rapidement avec la profondeur; une zone intermédiaire (300 nm-1,5 µm) où la microstructure évolue peu avec la profondeur; et une troisième zone incluant les pics d'implantation et de dommage (1,5 µm-2,5 µm). La figure 3.24 illustre l'évolution de la microstructure de cavités le long du profil de dommage pour le 304L irradié à 450 °C-40 dpa.

On mesure dans la première zone (0 à 300 nm) une augmentation de la densité des boucles de Frank. Cette évolution est plus explicite sur la lame irradiée à 40 dpa où l'augmentation en densité est d'un ordre de grandeur, de 10^{21} m^{-3} à 10^{22} m^{-3} . Parallèlement le

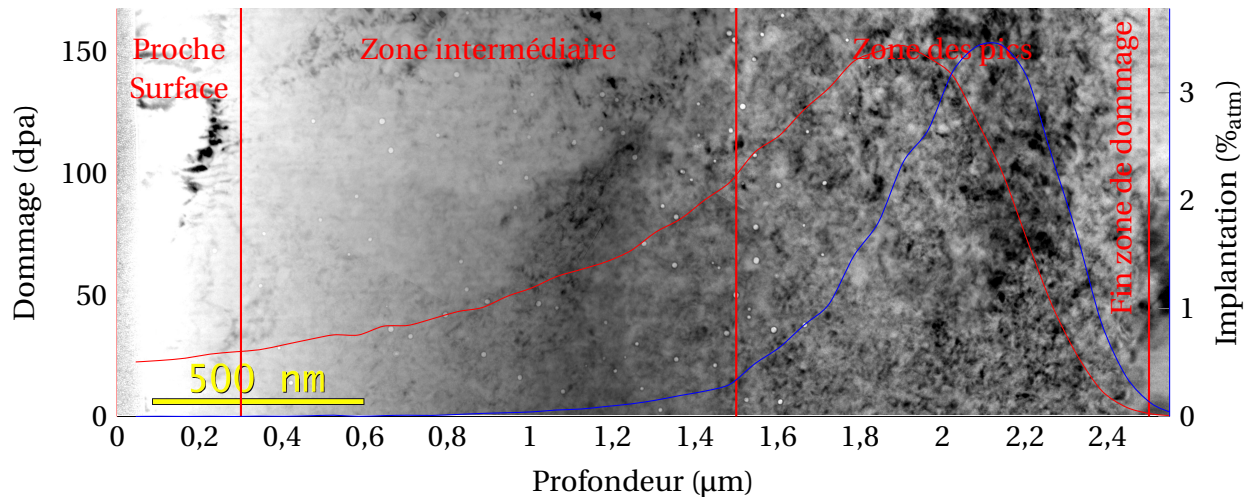


FIGURE 3.24 – Microstructure de cavités le long du profil de dommage sur la lame FIB du 304L - 40 dpa.

diamètre moyen diminue, avec un diamètre moyen d'environ 20 nm, proche de la surface pour atteindre une valeur d'environ 14 nm, à 300 nm.

Comme pour les boucles de Frank, l'évolution des cavités est plus franche à 40 dpa, où le diamètre moyen et la densité des cavités augmentent de 4 nm à 8 nm et 10^{20} m^{-3} à $6 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ respectivement. Le réseau de dislocation n'a pas été quantifié mais la figure 3.25 montre à 5 dpa, une zone dans le voisinage de la surface dépourvue de dislocations, une augmentation de la densité avec la profondeur peut être observée.



FIGURE 3.25 – Réseau de dislocations proche de la surface irradiée dans le 304L-5 dpa.

Dans la zone intermédiaire (de 300 nm à 1,5 μm) aucune précipitation n'est observée pour les échantillons irradiés à 5 et 40 dpa. À 5 dpa la taille des cavités augmente légèrement avec la profondeur tandis que la densité semble être relativement constante. À 40 dpa, la taille et la densité des cavités évoluent très peu. Cependant, une augmentation de la taille et de la densité est mesurée entre les deux doses. Les densités des cavités maximales atteintes dans ces zones sont de $6,2 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ et $1,8 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ à 1,5 μm de profondeur respectivement dans les lames à 5 et 40 dpa. Les boucles de Frank ont dans cette zone une taille et une densité constantes proches de 15 nm et $1,3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. On peut noter que les données obtenues sur lames minces, et qui sont reportées sur la figure 3.26 sont en bon accord avec les mesures sur les lames FIB pour les deux types de défauts.

La troisième zone (de 1,5 à 2,5 μm) commence quand l'implantation des interstitiels

injectés est significative ainsi que l'augmentation du taux de dommage et se termine à la fin du profil de dommage. Le maximum du pic de dommage est situé à $1,9\mu\text{m}$ et le pic d'implantation à $2,1\mu\text{m}$. Dans les deux nuances, les cavités diminuent fortement en taille et densité à partir de $1,5\mu\text{m}$ et aucune cavité n'est observable au-delà de $2\mu\text{m}$. Parallèlement, dans la lame FIB 5 dpa, la taille des boucles de Frank augmente tandis que la densité diminue (14 nm à 18 nm et $2 \cdot 10^{22}\text{ m}^{-3}$ à $2 \cdot 10^{21}\text{ m}^{-3}$). Dans cet échantillon, l'observation des boucles de Frank n'était pas évidente du fait d'un prélèvement de la lame FIB suivant une direction non favorable à l'imagerie des boucles par la technique RelRod, expliquant en partie la diminution brutale. Pour la lame FIB 40 dpa, la taille et la densité des boucles de Frank ne semblent pas affectées, jusqu'à $2,0\mu\text{m}$, puis la densité chute et la taille moyenne augmente fortement jusqu'à $26,5\text{ nm}$ à $2,5\mu\text{m}$. Enfin, quelques précipités cubiques de type M_{23}X_6 ont pu être observés dans cette zone pour la lame FIB-40 dpa mais la densité n'a pu être calculée de manière fiable du fait de leur trop faible présence. Il est cependant étonnant de ne pas observer une forte densité de précipités car par comparaison, cette zone d'après les calculs de doses atteint une dose d'environ 150 dpa et il a été observé de fortes densités de carbures dans les échantillons 100 dpa étudiés précédemment.

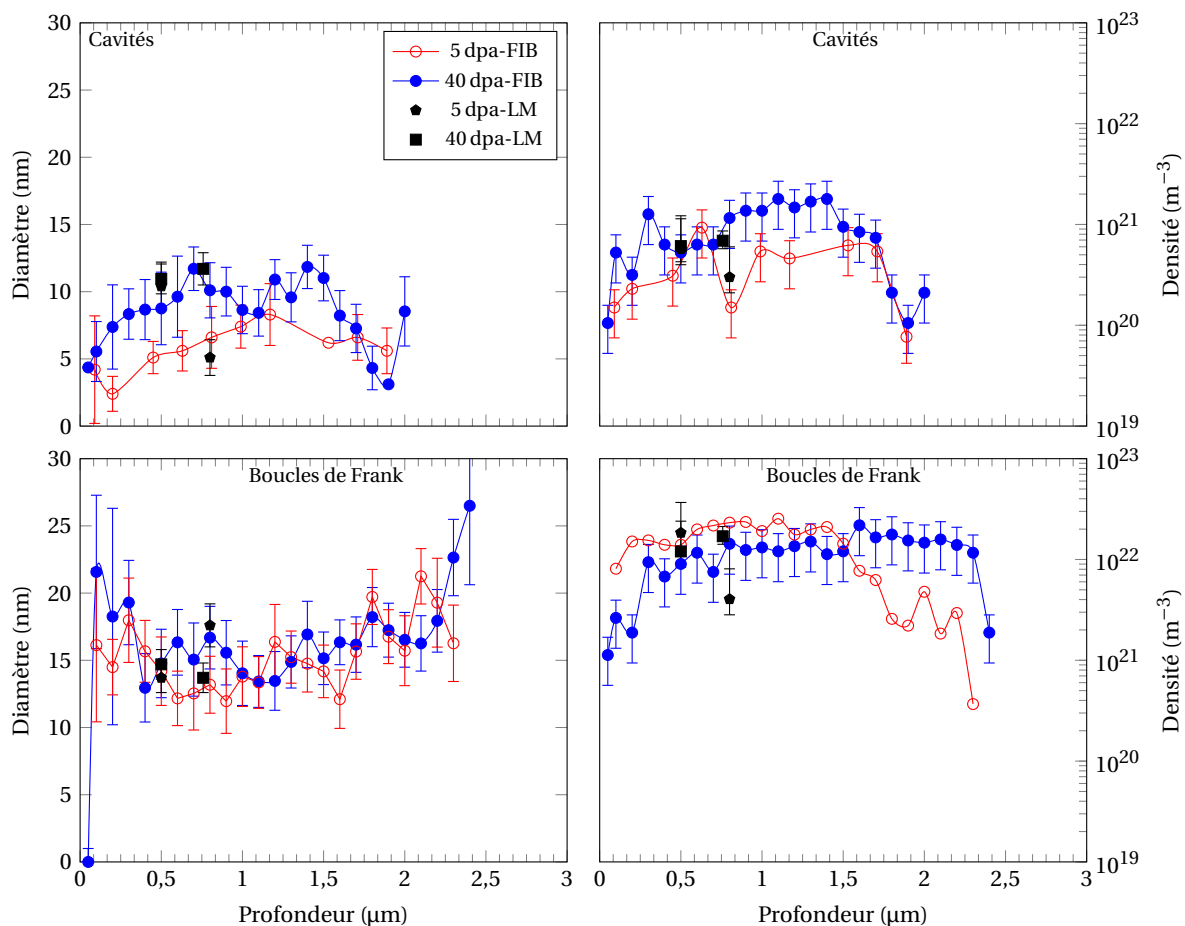


FIGURE 3.26 – Évolution de la taille et de la densité des cavités et boucles de Frank dans le 304L - 450°C - 5 dpa en rouge et 40 dpa en bleu le long du profil de dommage.

Dans les lames FIB prélevées dans le 304 et 304L irradiés aux fortes doses (100 dpa à 650 nm), en plus d'évolution de la distribution des cavités et boucles de Frank le long du profil de dommage, il est observé une forte précipitation pour les deux états. La

figure 3.27 illustre ces évolutions le long du profil de dommage dans le 304L-100 dpa. La figure 3.28 quantifie pour chacun des défauts l'évolution de la taille et de la densité avec la profondeur. Si à 5 et 40 dpa, une zone d'évolution particulière des défauts proche de la surface était visible, à 100 dpa cette zone semble moins évidente. Hormis pour les précipités qui évoluent rapidement dans les premiers nanomètres et la densité des cavités dans le 304, la taille et la densité des boucles et des cavités n'admettent plus, entre la surface et 300 nm, une évolution franchement différente de celle de la zone intermédiaire.

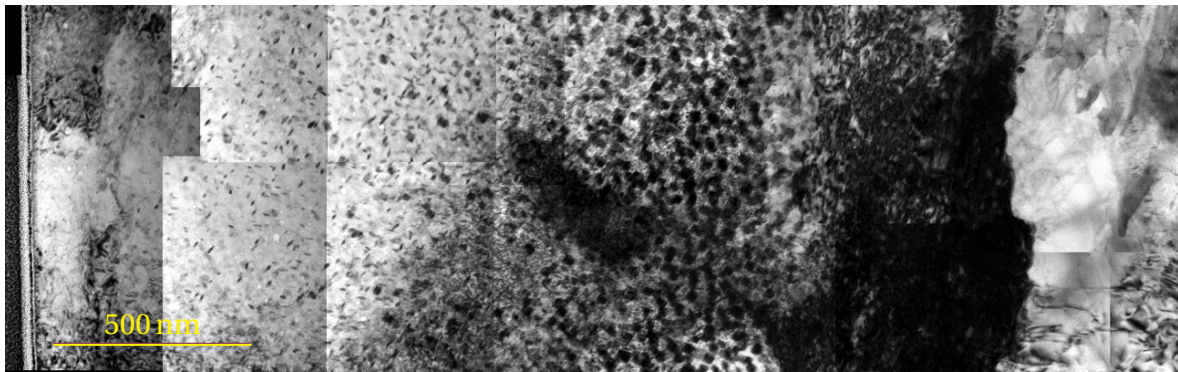


FIGURE 3.27 – Microstructure le long du profil d'irradiation dans le 304L-100 dpa.

Dans le 304L-100 dpa les boucles de Frank n'ont pu être comptées, cependant les évolutions des cavités, $M_{23}C_6$, et des précipités allongés ont été caractérisées.

Dans le 304L la densité de cavités diminue depuis la surface jusqu'à $1,75 \mu\text{m}$ passant de $6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ à $4 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, au-delà de cette profondeur plus aucune cavité n'est visible. Dans le 304, il est retrouvé une rapide évolution proche de la surface, cependant il n'est pas observé une augmentation de la densité, mais une diminution rapide sur les premiers nanomètres. Avec la profondeur la densité de cavités va augmenter jusqu'à $1,5 \mu\text{m}$ puis diminuer par la suite. Concernant la taille des cavités les évolutions sont similaires pour les deux nuances. Sur la totalité du profil la taille augmente avec la profondeur. Il est noté que la taille et la densité des cavités dans le 304L sont plus élevées que dans le 304.

L'évolution des boucles de Frank dans le 304 est similaire à celle observée à 40 dpa. Cependant la zone affectée proche de la surface n'est plus visible à 100 dpa. La taille et la densité des boucles sont constantes avec la profondeur jusqu'à $2,0 \mu\text{m}$. La taille augmente ensuite brutalement pour atteindre 28 nm à $2,3 \mu\text{m}$ tandis que la densité chute fortement.

Les évolutions de la précipitation sont similaires dans le 304 et le 304L. Les précipités sont généralement visibles à partir de 250 nm sous la surface jusqu'à $2 \mu\text{m}$.

Pour les $M_{23}C_6$, la densité augmente de deux ordres de grandeur entre 250 nm et $1,75 \mu\text{m}$ puis diminue. On remarque que le 304 présente plus de carbures cubiques jusqu'à $1,5 \mu\text{m}$ que le 304L.

La taille moyenne augmente peu avec la profondeur pour les deux nuances, le 304L semble avoir des précipités cubiques plus grand, l'inverse était observé sur lame mince.

Un variant des précipités allongés a été mesuré dans chaque nuance. Ces précipités sont observables entre 250 nm et $1,5 \mu\text{m}$. Ce qui est une différence notable avec les $M_{23}C_6$, qui sont présent en forte densité jusqu'à $2 \mu\text{m}$. Les précipités présentent une évolution en taille et densité en forme de cloche avec un maximum proche de $1 \mu\text{m}$. Le 304L présente une densité et une taille moyenne plus élevées que le 304 sur la totalité du profil.

3.1. ÉVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE APRÈS IRRADIATION AUX IONS SUR ÉCHANTILLONS MASSIFS

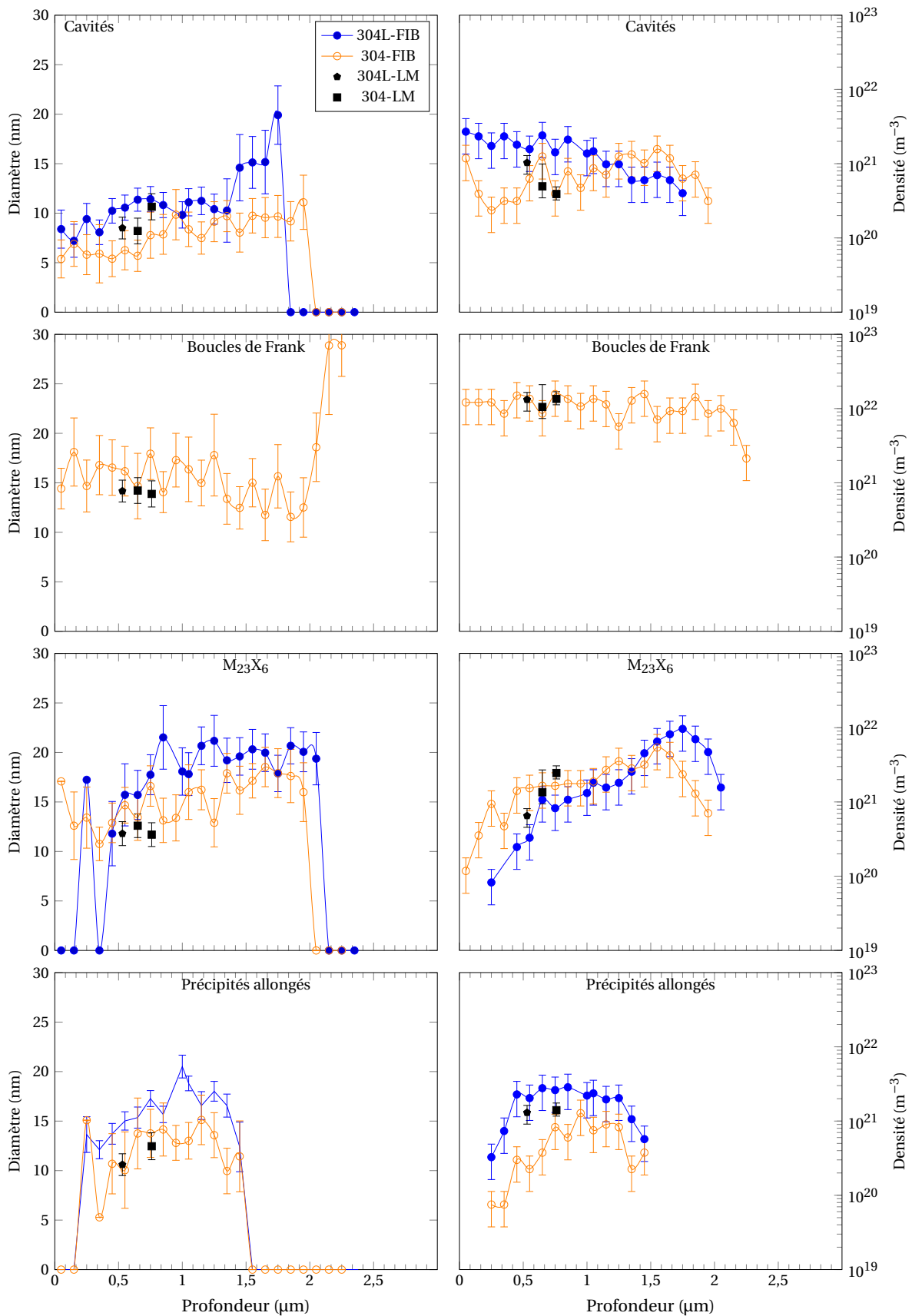


FIGURE 3.28 – Évolution de la taille et de la densité des défauts avec la profondeur d’irradiation dans le 304 et 304L irradiés à 100 dpa.

3.2 Évolution de la microstructure lors d'irradiations aux ions sur lames minces

Les irradiations in-situ ont été menées directement sur des lames minces. Comme nous venons de le voir à 5 dpa, les microstructures d'irradiation ont déjà fortement évolué. L'objectif de ces irradiations était de comprendre comment les défauts se forment, ainsi que d'observer d'éventuelles interactions.

Dans un premiers temps, des irradiations en mono-faisceau ont été réalisées afin d'observer l'évolution de la microstructure avec la dose, dans des conditions les plus proches possibles (température, taux de dommage) des irradiations précédentes. Puis, des irradiations en bi-faisceau, avec implantation d'hélium ont aussi été réalisées afin de comprendre l'effet de l'hélium sur la microstructure de défauts lors des premiers dpa. Dans le premier cas, l'évolution de la microstructure a pu être observée en direct, tandis que lors des irradiations avec hélium, seule une caractérisation post-irradiation a été possible.

3.2.1 Irradiations mono-faisceau

Des irradiations en mono-faisceau ont été faites jusqu'à 1 dpa et 1,5 dpa à 450 °C sur les deux nuances 304 et 304L.

Durant les irradiations mono-faisceau, lors de la mise sous faisceau des vibrations importantes de l'échantillon ont eu lieu donnant un film de mauvaise résolution et flou. Afin d'y remédier au mieux, de brèves interruptions d'irradiation permettant la réalisation de champs clairs et de champs sombres en faisceau faible ont été réalisées. Les interruptions doivent être de très courte durée afin d'éviter un recuit. En effet, il a été observé lors d'une interruption du faisceau et d'un maintien en température de plusieurs minutes l'apparition d'oxyde ou de précipités dans les zones fines de la lame. Lors de nos irradiations, les interruptions ont été de l'ordre de la minute.

Les observations ont été réalisées dans des zones d'environ 100 nm d'épaisseur, afin d'éviter d'être trop fortement impacté par les effets de surface comme le montre Le Millier dans sa thèse [LE MILLIER, 2014], ou comme le montre les résultats de la partie précédente. Cependant cela ne permet pas pour autant de s'affranchir complètement de l'effet des surfaces.

Les évolutions des dislocations et black spots ont été suivies. L'évolution in-situ d'une éventuelle microstructure de cavités n'a pu être observée car cela aurait nécessité de réaliser des temps d'interruption de faisceau plus long pour correctement les mettre en évidence.

L'évolution observée de la microstructure est rapide. La figure 3.29 obtenue à partir d'une séquence in-situ montre ainsi l'apparition, dès 0,1 dpa, de black spots non définis à cette échelle dans toute la matrice, mais de façon non homogène. Il est observé que des grappes de défauts non définis se forment sur des défauts pré-existant. De plus, comme il est visible sur la figure 3.29, certaines dislocations (pointée par une flèche) disparaissent progressivement sous irradiation. À 1,5 dpa la microstructure est déjà fortement perturbée, de nombreux black spots sont visibles, les dislocations présentes avant irradiation sont recouvertes d'amas, et sont beaucoup moins bien définies.

Dans les grains, des modifications de contraste le long des dislocations sont observables. Des défauts se forment et interagissent avec ces dernières. Des grappes de black spots se forment le long de lignes de dislocations. Les observations post-irradiation sur les

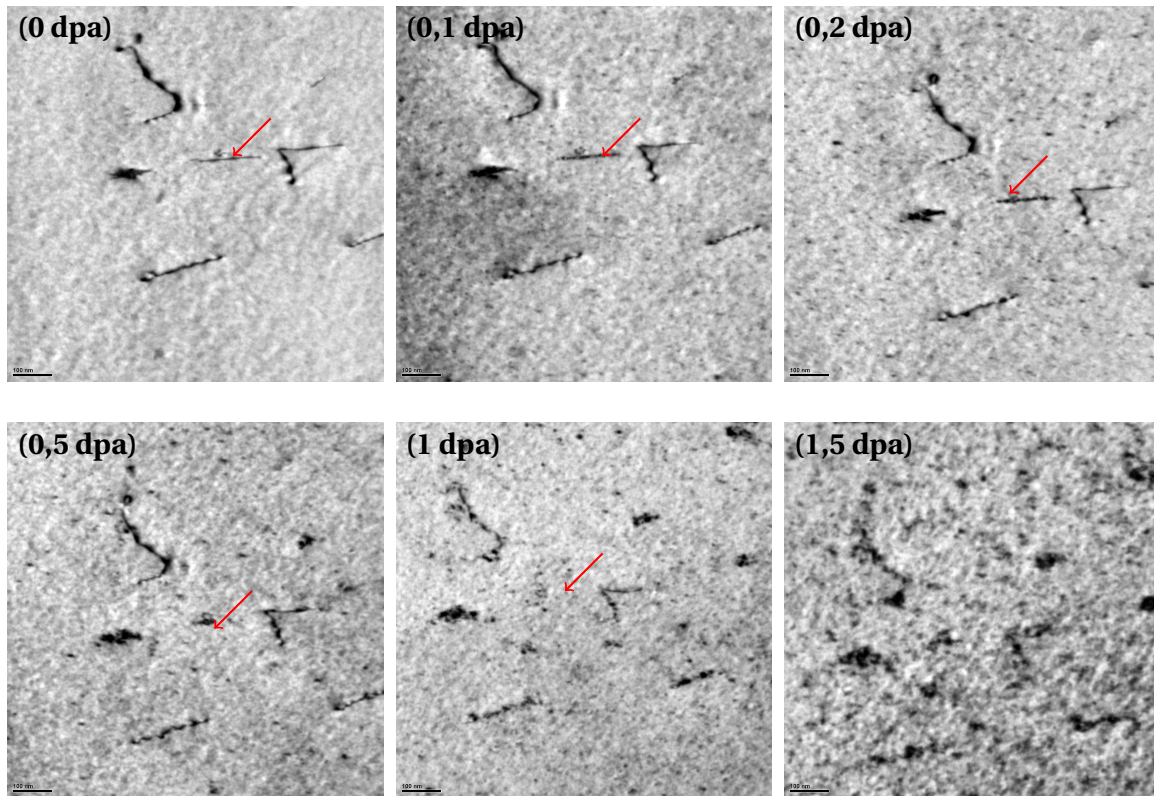


FIGURE 3.29 – Évolution de la microstructure dans le 304L (irradiation in-situ à 450 °C jusqu'à 1,5 dpa).

deux nuances à 1,5 dpa permettent une meilleure analyse des black spots (fig. 3.30). On constate, que de nombreux black spots observés en champ clair le long de dislocations, lorsqu'ils sont imagés en champ sombre à faisceau faible se révèlent être des boucles de dislocations. Cependant, la taille des petites boucles observées sur ces micrographies ne permet pas d'observer une éventuelle faute d'empilement. Il a été observé que les lignes de dislocations ne sont plus parfaitement rectilignes mais se courbent avec l'interaction des défauts d'irradiation.

On peut noter qu'à proximité des joints de grains (fig. 3.30), les défauts visibles sont de boucles de Frank en comparaison des défauts observés dans le grain. Ainsi près des joints de grains, les black spots semblent avoir évolués en boucles de Frank.

Des nano-cavités ont été observées en forte densité dans les deux nuances (fig. 3.31). Il a été mesuré, dans le 304L, une densité de l'ordre de $5,8 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et un diamètre moyen de 1 nm. La très forte contamination des échantillons ne permet pas de déterminer de façon précise la densité et la taille moyenne. En effet, elle induit des variations de contraste qui pourraient être prises pour des nano-cavités, ces variations de contraste sont cependant opposées à ce qui doit être observé pour les nano-cavités. Les défauts répondant correctement aux variations de contraste sont comptés comme des cavités.

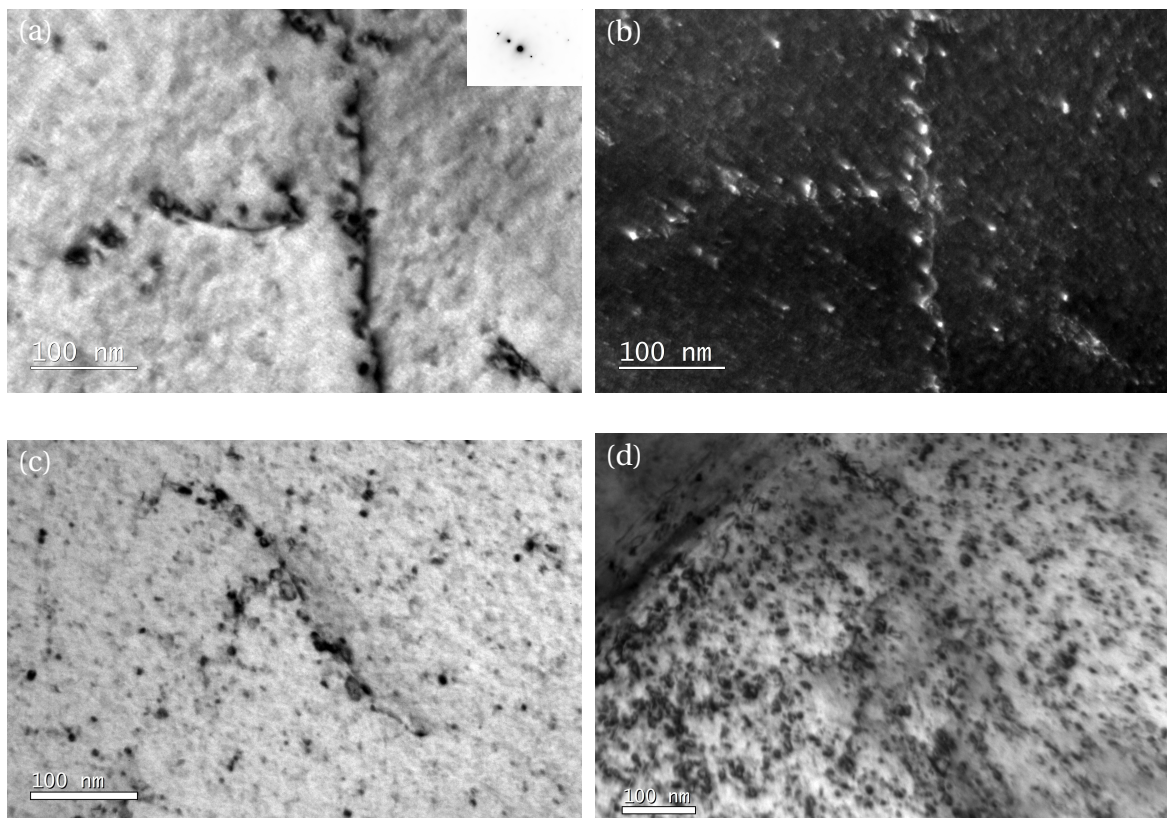


FIGURE 3.30 – Observations post-irradiation, de l'interaction des boucles de dislocations avec le réseau de dislocations initial dans le 304L, en champ clair (a) et en WBDF (b) imagé avec un g de type $\langle 111 \rangle$ et dans le 304 en champ clair (c). Boucles de Frank au joint de grain dans le 304L (d).

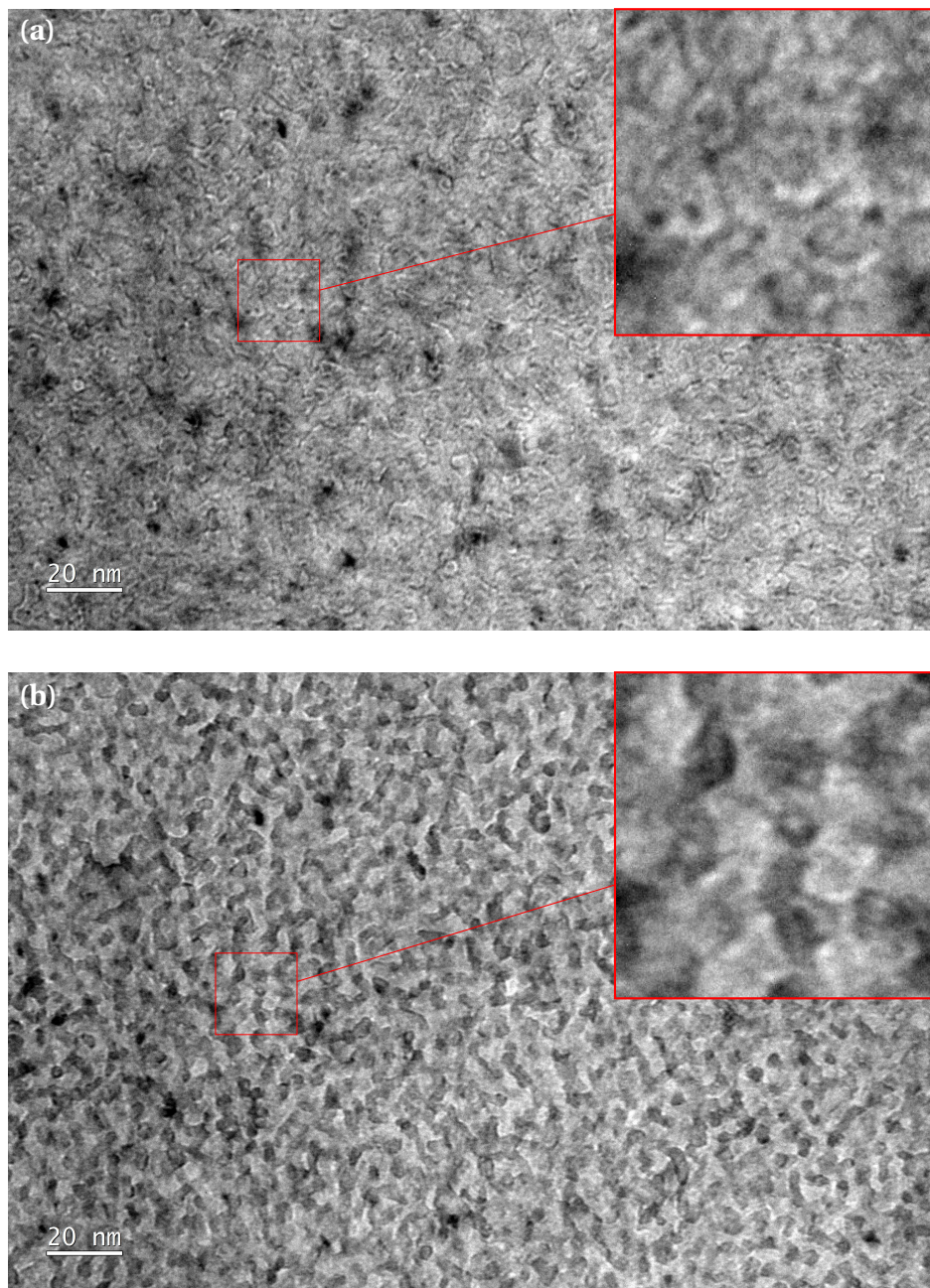


FIGURE 3.31 – Nano-cavités mises en évidence par sur-(a) et sous-(b) focalisation ($\delta = \pm 400nm$) dans le 304L-450 °C-1,5 dpa.

3.2.2 Irradiations bi-faisceau

Les irradiations bi-faisceau ont été faites à 450 °C jusqu'à une dose de 1,5 dpa. Dans la lame mince, 15 appm.dpa⁻¹ d'hélium a été implanté simultanément au dommage. Une observation in-situ ne peut être faite lorsque de l'hélium est implanté. Seules des caractérisations post-irradiation ont donc pu être menées.

Comme pour les irradiations en mono-faisceau, les observations ont été faites loin du trou afin de minimiser les effets de bord. Il a aussi été constaté que la contamination ou l'oxydation était plus tardive en s'éloignant du trou. Les lames ont été fortement contaminées lors de l'irradiation compliquant la caractérisation. Cependant, des black spots ont été observés sur toute la lame mais de manière non homogène. Comme lors des irradiations simple faisceau il est constaté que des boucles de Frank se sont développées en association avec les dislocations présentes avant irradiation. En effet, sur la figure 3.32 les fautes d'empilements caractéristiques de boucles de Frank sont clairement identifiables.

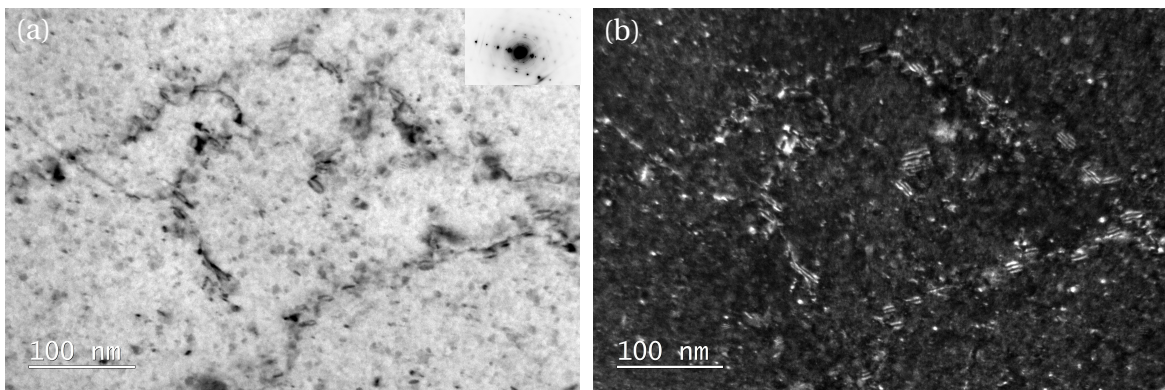


FIGURE 3.32 – Observations en champ clair (a) et WBDF (b), en condition deux ondes proche d'un axe de zone {110} avec un g de type <220>, de l'interaction des boucles de dislocation avec le réseau de dislocations initial dans le 304L-1,5 dpa irradié en bi-faisceau.

Des nanocavités ou bulles d'hélium ont pu être mises en évidence malgré la contamination importante (fig. 3.33). Leur distribution spatiale semble homogène, elles sont visibles sur toute la lame. Elles n'ont cependant pu être observées près du trou où la contamination est beaucoup trop importante pour leur éventuelle imagerie. Dans le 304L-1,5 dpa une taille moyenne d'environ 1,5 nm pour une densité de l'ordre de $5,6 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ est mesurée. Des cavités ou bulles en forte densité sont aussi observables dans le 304 à 1 dpa.

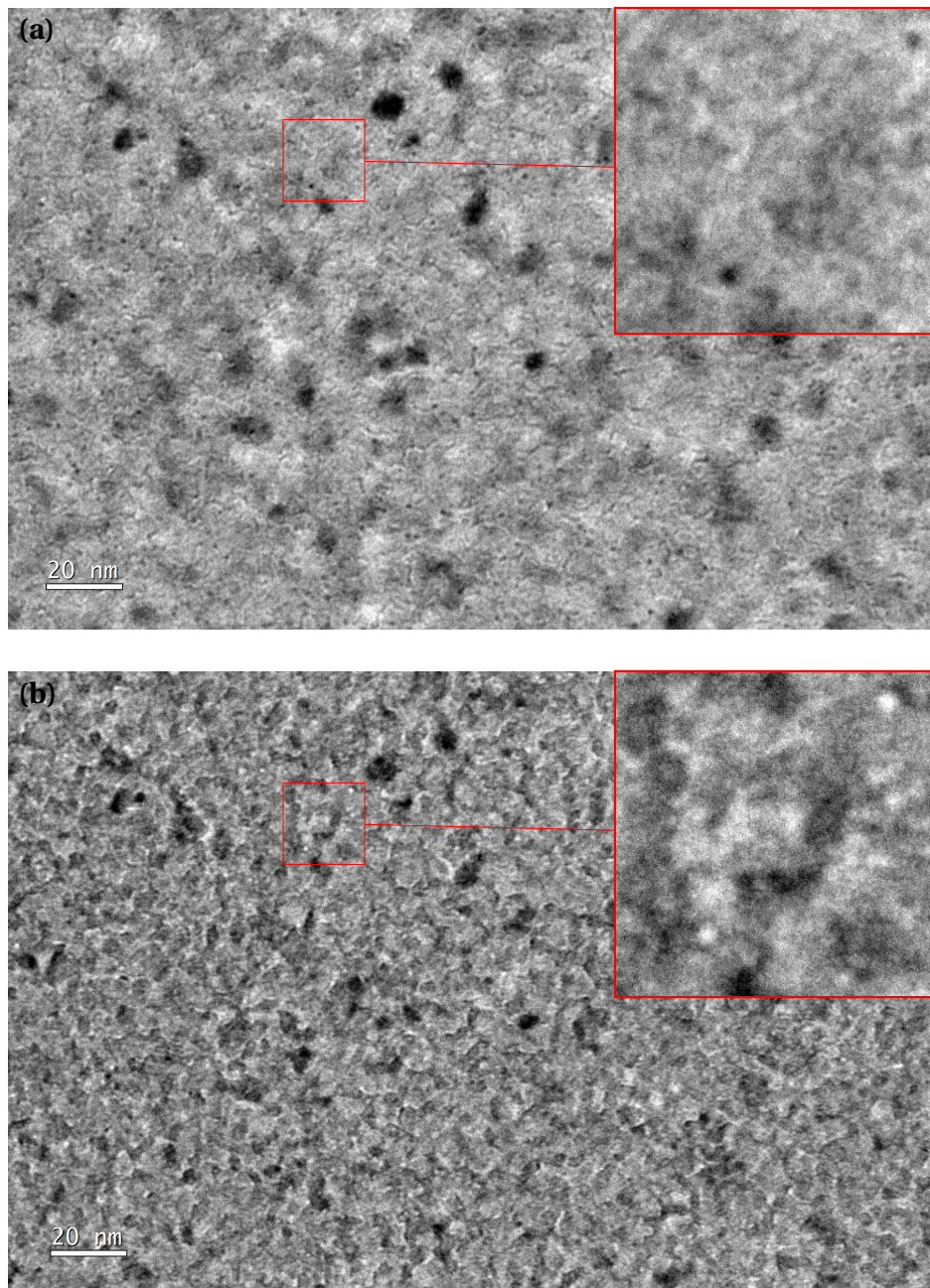


FIGURE 3.33 – Imagerie de nano-cavités ou bulles par sur- (a) et sous- (b) focalisation ($\delta = \pm 500\text{nm}$) dans le 304L-450 °C-1,5 dpa avec implantation d'hélium.

3.3 Synthèse des microstructures

Deux nuances (304 et 304L) dans quatre conditions d'irradiations sur échantillons massifs ont été caractérisées par MET et SAT. Les boucles de Frank, réseau de dislocation, cavités et précipités ont été étudiés dans toutes ou partie des conditions.

Pour les caractérisations en microscopie, deux types d'échantillons ont été préparés afin d'observer la microstructure. Dans un premier temps, des lames minces ont été réalisées par polissage en face avant, à 650 nm sous la surface, dans une zone où l'implantation des ions et le gradient de dpa dans la lame peuvent être négligés. L'observation sur des lames minces a permis d'établir l'évolution de la microstructure avec la dose et la température. Dans un second temps, des échantillons ont été prélevés par FIB afin de réaliser des observations de la microstructure le long du profil d'irradiation. Ces échantillons ont été réalisés pour trois doses différentes à 450 °C.

Des pointes analysées en sonde atomique tomographique ont permis la caractérisation des amas dans le 304 et le 304L irradiés à 100 dpa.

À 450 °C, il a été observé une évolution rapide de la microstructure lors des premiers 5 dpa. Cette évolution se traduit par l'apparition de boucles de Frank et la densification du réseau de dislocations linéaires. La microstructure de boucles de Frank sature rapidement en taille et densité et le réseau de dislocations tend aussi vers une saturation avec une densité élevée. Les cavités sont présentes dès 5 dpa dans 304L tandis qu'elles ne sont pas visibles à cette dose dans la nuance haut carbone. Le diamètre moyen et la densité augmentent légèrement avec la dose, il est constaté un écart entre les deux nuances, le 304 ayant deux fois moins de cavités que le 304L. Il a été noté une distribution bimodale de la taille des cavités dans le 304L-100 dpa suite à la germination de cavités en association avec des carbures allongés dont la nature n'est pas encore complètement définie. En effet, une précipitation importante apparaît pour des doses proches de 40 dpa. Les carbures allongés sont observés par MET dans le 304 ainsi que quelques $M_{23}C_6$ dans les deux nuances à 40 dpa. À 100 dpa, la précipitation de $M_{23}C_6$ est plus importante dans le 304 que le 304L. Les caractérisations des irradiations faites à 550 °C-40 dpa mettent en évidence des boucles de Frank et des cavités de tailles plus importantes par rapport aux irradiations à 450 °C, la densité des cavités ne semble pas être réduite contrairement à celle des boucles de Frank. De la précipitation est visible mais n'a pas été caractérisée.

L'analyse des lames FIB montre des profils de défauts non homogènes avec la profondeur. Une zone d'environ 300 nm semble être impactée par la présence de la surface d'irradiation, notamment à 5 et 40 dpa. Les coupes FIB sur les échantillons irradiés à 100 dpa ne montrent pas d'évolution rapide des cavités ou boucles de Frank dans les premiers nanomètres pouvant laisser présager un éventuel effet de surface.

Pour les trois doses, la zone intermédiaire (300 nm-1,5 μ m) montre des évolutions monotones des défauts avec la profondeur. Les boucles de Frank augmentent en taille et densité avec la dose et la profondeur jusqu'à atteindre leur valeur de saturation. Les cavités ont une taille moyenne et une densité qui augmente avec la dose mais peu avec la profondeur, sauf dans le 304L-100 dpa où la densité diminue sur tout le profil alors que la taille augmente. C'est dans cette zone que la quantité de carbures allongés est la plus importante.

Dans la zone du pic de dommage et d'implantation, les défauts évoluent différemment suivant leur nature, les cavités disparaissent rapidement tandis que les boucles de Frank augmentent en taille et leur densité diminue jusqu'à disparition à la fin du profil de

dommage. La précipitation notamment des carbures $M_{23}C_6$ est aussi beaucoup plus importante dans cette zone aux fortes doses, alors que les précipités allongés disparaissent dans la zone des pics.

Les analyses en sonde atomique tomographique ont confirmé la présence de carbures, des $M_{23}C_6$ ainsi que d'autres carbures non complètement identifiés et ont révélés la présence d'amas enrichis en nickel, silicium et phosphore. Des enrichissements linéaires en nickel, silicium probablement le long de lignes de dislocation sont observés en forte quantité, des ségrégations formant une coquille autour des carbures ont aussi été observées.

Des observations in-situ à 450 °C jusqu'à 1-1,5 dpa ont aussi été menées. Du fait de la forte contamination des échantillons lors de ces irradiations, les analyses possibles sont limitées. Les irradiations in-situ en simple et double faisceau ne montrent pas de différence importante. Une évolution rapide de la microstructure a lieu. Des défauts (black spots) sont déjà visibles avant 0,1 dpa. Les analyses post-irradiation tendent à montrer que les black spots sont des boucles de Frank. La répartition des boucles dans l'espace n'est pas homogène. Il est observé des densités et tailles plus importantes de boucles près des puits tels que les dislocations présentes avant irradiation et les joints de grains. Enfin des nano-cavités sont observables lors des irradiations en simple et double faisceau. Pour les cas avec implantation d'hélium, il n'est pas possible de déterminer si elles sont constituées d'hélium ou de vide. Dans tous les cas, elles sont présentes en densité importante ($> 5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$) et leur taille est de l'ordre du nanomètre.

3.4 Discussion des résultats expérimentaux

3.4.1 Évolution de la microstructure avec la dose

Les microstructures des deux nuances de 304 et 304L ont été caractérisées finement par microscopie électronique en transmission et par sonde atomique tomographique. À 450 °C, une large gamme de doses a été étudiée allant de l'état non irradié à des doses supérieures à 100 dpa. Pour chaque état les cavités, boucles de Frank, précipités et réseau de dislocations ont été étudiés et sont discutés dans la suite de cette partie. Dans la littérature l'évolution des défauts d'irradiations a principalement été faite pour des doses inférieures à 50 dpaKP, quelques études portent sur des doses plus élevées mais souvent focalisées sur l'évolution des cavités. À notre connaissance dans la littérature à l'exception de Gan et Jiao [GAN et collab., 2004; JIAO et WAS, 2014] aucune donnée complète (taille et densité) concernant les boucles de Frank n'est disponible au delà de 20 dpaKP lors d'irradiations aux ions dans le 304 et 316, dans la gamme de température de cette étude. Pour les cavités quelques études récentes commencent à s'intéresser aux fortes doses [SUN et collab., 2015; WAS et collab., 2012]. Les données trouvées dans la littérature sont présentées et comparées à celles de cette étude, dans la figure 3.34.

Boucles de Frank Une évolution très rapide de la microstructure dès les premiers instants de l'irradiation a été observé lors de cette étude. Ainsi lors des irradiations in-situ des défauts sont déjà présents à 0,1 dpa. Les premiers défauts visibles sont des black dots qui évoluent en boucles de Frank avec la dose. Leur distribution est hétérogène dans la matrice à faible dose et il est observé que les puits comme les dislocations sont des sites de germination et de croissance préférentiels pour les boucles. Le Millier lors d'irradiations

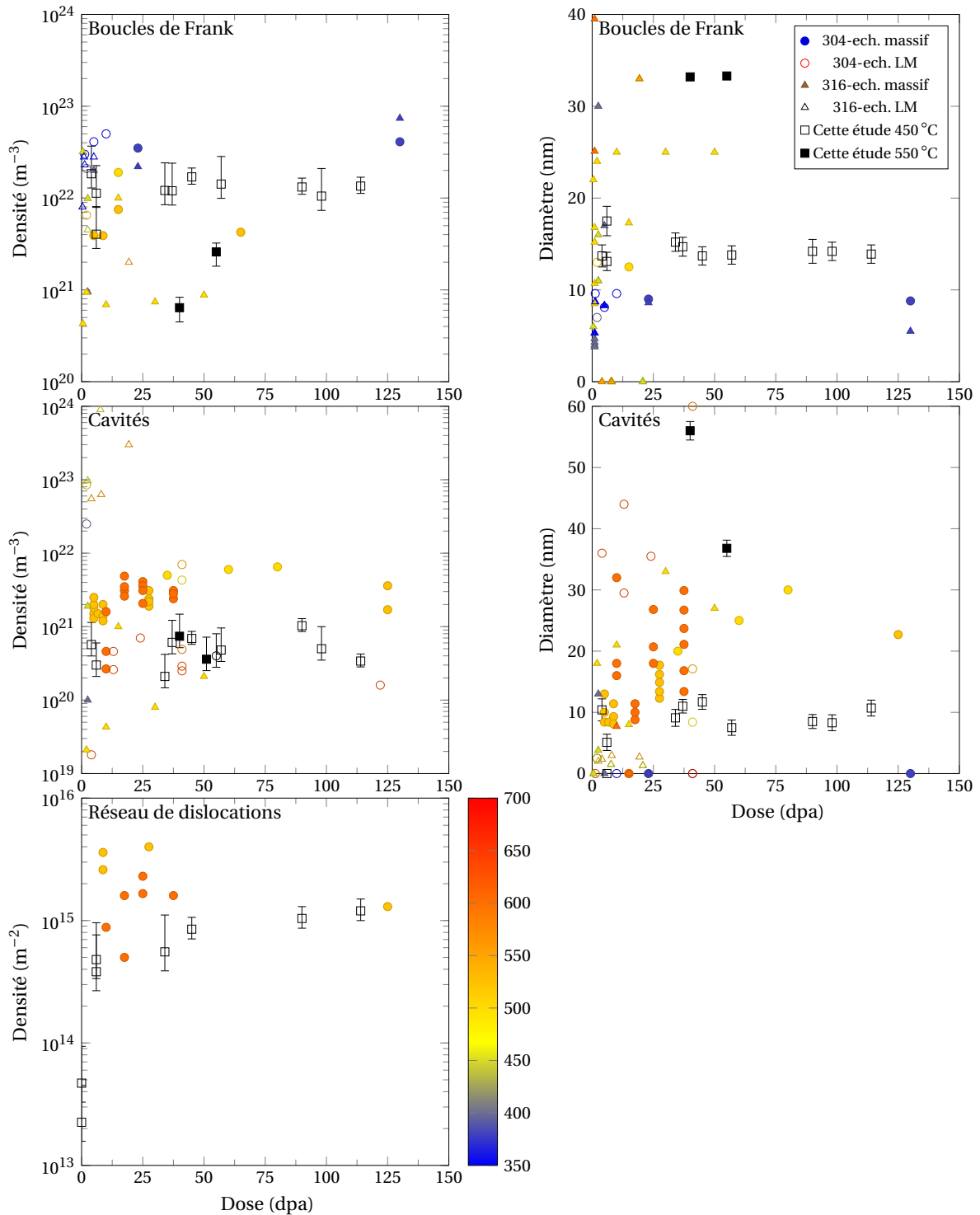


FIGURE 3.34 – Comparaison des données expérimentales de cette étude avec celles de la littérature pour des irradiations aux ions lourds, le dommage est divisé par deux lorsque les calculs ont été réalisés en full cascades. Il est discerné les irradiations sur lame mince de celles sur échantillon massif. À partir des données provenant de [ETIENNE et collab., 2010a; GAN et collab., 2004; JIN et collab., 2015; JUBLLOT-LECLERC et collab., 2016; KATOH et collab., 1994; LE MILLIER, 2014; MCDONALD et TAYLOR, 1973; POKOR, 2002; SHIMADA et collab., 1976; SUN et collab., 2015; VOLGIN, 2012; WAS et collab., 2012; WILLIAMS, 1980].

in-situ avait observé un comportement similaire à plus forte et plus faible température [LE MILLIER, 2014]. Dans cette étude, la microstructure de boucles de Frank atteint un régime de saturation en taille et densité pour des doses supérieures à 5 dpa. Cette évolution rapide, jusqu'à une saturation dynamique a été observée dans d'autres études mais pour un acier austénitique 316 à plus haute température (500 °C) aux ions [GAN et collab., 2004]. Gan observe notamment une saturation stable à partir de 10 dpa. En compilant les données de plusieurs auteurs, des saturations à plus faible température (350-380 °C) pour des doses plus faibles sont observées dans le 304 [ETIENNE et collab., 2010a; POKOR, 2002; WAS et collab., 2012]. Étienne propose une dose de saturation des boucles de Frank en taille et en densité de 1,25 dpa. Il semble donc avec ces études qu'aux ions la température va augmenter la dose de saturation.

Cette évolution vers une saturation dynamique des boucles de Frank est aussi observée lors d'irradiation aux neutrons pour du 304 et 316L pour des températures inférieures à 400 °C [RENAULT et collab., 2009; RENAULT LABORNE et collab., 2015]. Dans ces études le régime de saturation est atteint pour des dose inférieures à 10 dpa.

Enfin, les tailles et les densités des boucles de Frank aux deux températures sont cohérentes avec les données de la littérature pour les plus faibles doses. En effet, à 450 °C les microstructures de Volgin sont similaires avec nos irradiations à 5 dpa dans le 304 [VOLGIN, 2012]. On peut penser qu'il est possible de comparer 304 et 316 aux faibles températures car Renault et al. n'observent pas de différence à 330 °C de microstructure de boucles de Frank entre un 304 et un 316, lors d'irradiations aux neutrons [RENAULT et collab., 2009]. Nous avons pu ainsi caractériser la microstructures de boucles pour des fortes doses en cohérence avec les études aux faibles doses.

Réseau de dislocations linéaires Le réseau de dislocations linéaires se densifie avec le défautement des boucles de Frank sous irradiation comme le propose [GELLES, 1981]. Dans notre étude, des germinations préférentielles des boucles sur les lignes de dislocations ont été observés lors des irradiations in-situ. Nous observons, que le réseau tend vers une saturation, à une valeur proche de 10^{15} m^{-2} à plus forte dose pour des températures d'irradiation de 450 °C. Cette étude est la première à proposer une évolution du réseau de dislocations jusqu'aux fortes doses lors d'irradiation aux ions pour une température inférieure à 500 °C. Aux ions, à notre connaissance seul McDonald mesure la densité du réseau de dislocations pour des températures plus élevées, et à des doses allant jusqu'à 40 dpaKP, une seule mesure existe cependant pour une dose supérieure à 100 dpa [MCDONALD et TAYLOR, 1973]. Basé sur ce point une saturation du réseau de dislocations peut être considérée à une densité poche de 10^{15} m^{-2} . Aux neutrons, Brager propose une saturation du réseau de dislocations dans du 316 à 500 °C [BRAGER et collab., 1977]. Dans son étude la saturation dans la nuance hypereutectique se situerait autour de 25-30 dpa. Dans notre étude, le réseau de dislocations, a déjà fortement évolué lors des cinq premiers dpa, l'inflexion semblant se produire au-delà de 5 dpa mais avant 40 dpa cependant à 100 dpa le réseau de dislocations évolue encore légèrement. Il semblerait donc que nos résultats soient en accord avec ce qu'observait Brager à 500 °C aux neutrons.

Les observations de sonde atomique tomographique mettent en évidence des lignes de ségrégations. La densité de ces lignes dans les volumes étudiés est estimée à $9 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$ dans le 304 irradié à 100 dpa. La densité linéaire de ségrégations obtenue en SAT et la densité de dislocations mesurée en MET étant identiques, il ne fait pas de doute que les ségrégations soient sur les dislocations.

Les ségrégations montrent un fort enrichissement en nickel, silicium et phosphore,

dans notre étude sur le 304 et 304L irradiés à 450 °C-100 dpa avec des moyennes respectivement de 24-25 %_{atm}, 7-8,5 %_{atm} et 0,5-1,1 %_{atm}. Une ségrégation du carbone sur les dislocations est seulement présente dans le 304L avec une teneur de 1,9 %_{atm}. Le ratio nickel silicium n'est pas le même dans les deux nuances, il est dans le 304 de 2,85 et de 3,63 dans le 304L. Le fait que l'on n'observe pas de nombreux précipités enrichis en nickel, montre qu'un ratio Ni/Si de 3 n'est pas suffisant à la germination de précipités de type γ' .

La ségrégation du nickel, silicium aux dislocations sous irradiation est établie dans la littérature pour les irradiations aux ions mais dans des proportions plus faibles [ETIENNE et collab., 2010a; VOLGIN, 2012]. Etienne avait observé des ségrégations dans un 316 écrouis et irradié à 350 °C mais pas dans un acier 304 sûrement du fait de la faible densité de dislocations pour ces faibles doses et températures d'irradiation. Dans ce 316 irradié 10 dpaFC ~5 dpaKP la ségrégation atteint 5 %_{atm} en silicium et 17 %_{atm} en nickel [ETIENNE, 2009]. À plus forte dose 10 dpaKP, les ségrégations dans ce 316 (9,8 %_{atm} en silicium, 26,1 %_{atm} en nickel, et 0,22 %_{atm} en phosphore) [ETIENNE et collab., 2010b] sont proches de celles de notre étude. À plus haute température 450 °C, Volgin observe dans un acier 316 irradié à 1 dpa et 5 dpa des lignes de dislocations présentant des ségrégations en nickel, silicium et phosphore avec des compositions comprises respectivement entre de 10,6-14,8 %_{atm}, 6,3-8,4 %_{atm} et 0,1-0,7 %_{atm}. Au vu de ces résultats, il semblerait que les ségrégations atteignent des teneurs en éléments d'alliage limites à environs 10 dpa, et des analyses SAT complémentaires à 5 et 40 dpa afin de caractériser l'évolution seraient intéressantes.

Le déplacement du nickel et du silicium est directement relié au flux de lacunes et d'interstitiels vers les puits par mécanisme lacunaire ou interstitiel. Le silicium et le phosphore sont des atomes de petites tailles et donc ségrègent aux puits par le mécanisme interstitiel [REHN et collab., 1978], tandis que le nickel élément majoritaire et de taille plus importante ségrège par le mécanisme lacunaire [ALLEN et collab., 1997; SIMONEN et BRUEMMER, 1996]. Les fortes ségrégations mesurées tendent à montrer un fort flux d'interstitiels et de lacunes vers les puits tels que les dislocations. Ces observations sur la chimie du matériau vont dans le sens d'un régime d'annihilation aux puits sous irradiation (voir chapitre suivant) expliquant la faible densité et taille de cavités.

Cavités Concernant l'évolution des cavités, dans cette étude, il est observé une augmentation de la taille et de la densité avec la dose. Ces évolutions sont faibles au-delà de 5 dpa. À haute température (>500 °C), il est usuellement observé aux ions et aux électrons une saturation de la densité, par contre la taille moyenne des cavités augmente avec la dose. Ainsi, les irradiations sur des échantillons massifs réalisées dans du 304L à 500 °C et 304 à 525 °C [MCDONALD et TAYLOR, 1973; SUN et collab., 2015] montrent une faible évolution de la densité de cavités avec la dose, tendant vers une saturation, tandis que la taille moyenne des cavités augmente. Cette évolution est aussi observée lors d'irradiations aux électrons dans du 316 [DUBUISSON, 1986].

À plus faible température (<400 °C), deux types de microstructures sont observées. Soit les cavités sont de taille nanométrique et en forte densité, soit aucune cavité n'est observée. La différence entre ces deux microstructures provient du type d'échantillon irradié, lame mince ou échantillon massif. Cet effet d'échantillon sera discuté par la suite. Dans les cas se rapprochant de nos conditions d'irradiations aucune cavité n'est observée à basse température dans du 304 et 304L pour des doses allant jusqu'à 130 dpaKP et des températures inférieures à 400 °C [JIN et collab., 2015; SHIMADA et collab., 1976; WAS et collab., 2012]. De même aux neutrons rapides, des évolutions similaires, de celles aux ions, avec une faible augmentation de la densité et de la taille est observé avec la dose dans du 304 à température intermédiaire [RENAULT et collab., 2012; RENAULT-LABORNE

et collab., 2014].

Dans le 304L irradié aux ions à 100 dpa, de notre étude, la taille moyenne des cavités diminue. Cet effet est attribué à l'apparition de petites cavités en association avec des précipités. Lors d'irradiations à haute température, il est admis que les carbures intragranulaires favorisent la croissance de cavités et par conséquent le gonflement. Des cavités de grandes tailles sont alors observées en association avec des précipités. Cependant, dans cette étude ce sont des cavités de petites tailles qui sont observées en association avec des carbures. Dans notre étude, il n'est pas impossible qu'à plus forte dose ces cavités deviennent plus large que la moyenne. En tout cas, à 100 dpa, la microstructure n'est donc pas encore en régime de croissance des cavités.

Enfin, il est régulièrement évoqué la nécessité d'obtenir une microstructure de dislocations établie afin d'entrer en régime de gonflement avec un taux de $1\%.\text{dpa}^{-1}$ [GARNER et KUMAR, 1987]. Notre étude montre qu'à $450\text{ }^{\circ}\text{C}$ aucun régime de gonflement avec un taux de $1\%.\text{dpa}^{-1}$ n'a lieu alors que la saturation des dislocations est effective à 40 dpa. Donc soit la condition d'une microstructure de dislocations établie n'est pas suffisante pour entrer en régime de gonflement, soit en régime de gonflement le taux peut être bien inférieur à $1\%.\text{dpa}^{-1}$ comme Zouari le propose [ZOUARI, 2012]. Dans ce dernier cas, le taux de gonflement serait de $0,0028\%.\text{dpa}^{-1}$ entre 40 et 100 dpa.

Précipitation La précipitation est visible dans le 304L et 304 à forte dose. Dans le 304L la précipitation est forte à 100 dpa avec des précipités de type M_{23}C_6 ainsi que des carbures allongés qui sont présents de façon conséquente. À 40 dpa, de rares M_{23}C_6 sont visibles et de manière non homogène dans le matériau.

Dans le 304 les carbures allongés sont observés dès 40 dpa à $450\text{ }^{\circ}\text{C}$. Au moins deux variants sont visibles. De plus quelques précipités de type M_{23}C_6 sont mis en évidence. À 100 dpa la taille et la densité des carbures allongés ont augmentés et des M_{23}C_6 sont présents en forte densité.

Ces deux types de précipités ont été mis en évidence par microscopie et des taches de diffraction associées à ces précipités sont identifiables sur les clichés de diffraction. Par haute résolution les carbures allongés pourraient correspondre à des M_7C_3 , cependant les résultats de SAT donnent une stoechiométrie de type M_4C_3 . D'autres amas ont été observés par sonde atomique tomographique, chimiquement ces amas sont de type Ni_xSi_y ou $\text{Ni}_x\text{Si}_y\text{P}_z$.

À notre connaissance il n'a jamais été observé, ou du moins mis en évidence de M_7C_3 apparaissant sous irradiation. Hors irradiation, la formation des M_{23}C_6 passe par la formation de M_3C puis de M_7C_3 [INOUE et MASUMOTO, 1980]. Dans les aciers austénitiques 316 des M_7C_3 peuvent être observés après un long maintien en température dans une atmosphère chargée en carbone [ERNST et collab., 2011]. D'après Ernst la température optimale pour la formation des M_7C_3 dans une atmosphère carbonée est $450\text{ }^{\circ}\text{C}$. L'origine de l'apparition de ces précipités n'est pas établie mais il peut être suspecté une contamination au carbone lors des irradiations. En effet, les analyses de SAT, montrent qu'à 100 dpa les matrices ont des teneurs en carbone ($\sim 0,3\%_{\text{atm}}$) supérieures à la matrice non irradiée (section 2.4.2) et contiennent en plus des carbures, les teneurs totales en carbone sont de l'ordre de $\sim 0,37\%_{\text{atm}}$.

Dans le 304L 100 dpa, la distribution des cavités est bimodale du fait de l'apparition d'une population de cavités en association avec les précipités allongés de type M_yC_z . L'apparition de nouveaux puits de défauts va alors modifier les flux de défauts mobiles

établis vers les défauts déjà présents dans la microstructure et deviennent des sites de germination pour les cavités.

La présence de $M_{23}C_6$ en condition d'irradiation réacteur à neutrons rapides est établie à des températures inférieures à 440 °C [HUANG et collab., 2015; RENAULT-LABORNE et collab., 2014; WAS et AVERBACK, 2012]. Cependant, la présence de ces carbures après irradiation aux ions à basse température n'est pas observée. Pour des températures inférieures à 400 °C Etienne n'observe pas de carbures ni dans du 304 ni dans du 316 [ETIENNE, 2009]. Dans un 304L Jiao n'observe aucun carbure pour des irradiations jusqu'à 260 dpaFC à 380 °C [JIAO et WAS, 2014]. De même, dans un acier 316L aucun carbure n'est décelé lors d'irradiations aux ions à 450 °C et 500 °C pour des doses allant jusqu'à 20 dpa [JUBLOT-LECLERC et collab., 2016; VOLGIN, 2012].

Dans notre étude, les $M_{23}C_6$ apparaissent au-delà de 40 dpa tandis que les données de la littérature pour des températures proches sont à des doses inférieures. Seul Sun [SUN et collab., 2015] rapporte la présence de précipités de type $M_{23}C_6$ lors d'irradiations aux ions lourds à 500 °C pour des doses variant de 35 à 80 dpa dans du 304L. Pour des températures supérieures à 500 °C des $M_{23}C_6$ sont régulièrement observés.

Les études menées par Renault sur un 316 irradié dans le réacteur Phénix à 394 °C-39 dpa mettent en évidence la présence de carbures de type $M_{23}C_6$ [RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. Ces carbures sont aussi observés dans du 304L irradié dans des conditions similaires (390 °C-36 dpa) [RENAULT et collab., 2012] et par Huang dans du 304 irradié dans EBR-II pour des doses de 0,4 à 28 dpa et pour des températures comprises entre 426 et 448 °C à faible flux [HUANG et collab., 2015]. La densité et taille des précipités dans cette étude sont proches de celles obtenues par Huang et al. dans du 304 irradié dans EBR-II, respectivement $0,63-1,2 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ et 10-16 nm. Ils avancent, que la précipitation de carbures tend vers une saturation qui ne dépend pas de la dose mais du temps en température [HUANG et collab., 2015]. Par comparaison pour les mêmes températures d'irradiation, les irradiations aux ions ne présentent pas de carbures alors que celles aux neutrons en montrent. Les $M_{23}C_6$ étant une phase accélérée par irradiation, il n'est donc pas à exclure que la différence sur la précipitation à ces températures soit le résultat d'un vieillissement thermique accéléré par l'irradiation.

Dans notre étude il est observé des ségrégations en coquille autour des carbures à 100 dpa, ce type de ségrégations en nickel et silicium a aussi été observé en réacteur à 28 dpa [DONG et collab., 2015].

Dans notre étude la phase γ' n'est pas observée par microscopie électronique en transmission. Cependant des amas enrichis en nickel silicium et phosphore avec un rapport nickel sur silicium de 3 et supérieur sont observés par SAT. En réacteur, des précipités enrichis de types Ni_3SiP correspondant à la phase γ' sont observés ainsi que quelques précipités pouvant correspondre à la phase G [DONG et collab., 2015]. Les amas Ni_3SiP ont été observés aussi lors d'irradiations aux ions à plus faible dose par Etienne [ETIENNE, 2009], ils se formeraient proches des dislocations, où des ségrégations en nickel et silicium sont présentes, une fois la composition du précipité atteinte, l'amas admet la structure cristalline adéquat. Cependant dans notre étude malgré les fortes ségrégations sur les dislocations, et avec des ratio Ni/Si pas très éloignés de 3 ce qui aurait du favoriser leur germination, très peu d'amas $NiSiP$ ont été observés.

3.4.2 Effet de la température

L'effet de la température a été étudié par la réalisation et la caractérisation d'irradiations aux ions à 40 dpa à 450 °C et 550 °C sur les aciers 304 et 304L.

Il a été observé pour les deux nuances de 304 une augmentation significative de la taille des boucles de Frank et des cavités avec la température, ainsi qu'une diminution de la densité des boucles de Frank, tandis que la densité des cavités est équivalente aux deux températures. L'effet de la température sur la précipitation ne pourra malheureusement pas être discutée car cette dernière bien que présente à 550 °C n'a pas été finement caractérisée.

Dans la littérature, les données sur les boucles de Frank lors d'irradiations aux ions aux fortes doses ne sont pas nombreuses. De plus ces études sont pour des conditions d'irradiations différentes et uniquement pour des aciers 316. L'évolution qui est observée dans cette étude, c'est-à-dire l'augmentation de la taille de 14 nm à 33 nm à 40 dpa accompagnée de la diminution d'un ordre de grandeur de la densité des boucles de Frank $1,3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ à $0,6-2,6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, est aussi constatée pour les irradiations de Was à 380 °C dans du 304 et 316 (9 nm et $4 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$) [WAS et collab., 2012] et de Gan à 500 °C (25 nm et $0,7-1,0 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$) dans du 316 [GAN et collab., 2004].

Ces quatre irradiations montrent une évolution monotone avec la température des régimes de saturation de boucles de Frank où la densité diminue et la taille augmente avec la température. Ce comportement en température est aussi celui observé aux neutrons dans du 304 irradiée à 320 °C dans Osiris, 390 °C dans Phénix et entre 410 °C et 450 °C dans EBR-II [HUANG et collab., 2015; POKOR et collab., 2004b; RENAULT et collab., 2012, 2009; RENAULT-LABORNE et collab., 2014]. On peut aussi remarquer que pour une augmentation de température de 100 °C, cela se traduit dans cette étude par l'augmentation du diamètre des boucles d'un facteur d'environ 2,5 et d'une diminution de la densité de presque un ordre de grandeur, cette évolution se retrouve en proportion équivalente pour une diminution de la même gamme de température en RNR si l'on compare les données de Renault et Huang.

Concernant les cavités, les données de la littérature (fig. 3.34) montrent de fortes dispersions d'une irradiation à l'autre ainsi qu'entre acier 304 et acier 316. Pour les irradiations à faible température (inférieure à 400 °C) aucune cavité n'est observée dans du 304 lors d'irradiations aux ions sur lames minces ou échantillons massifs [ETIENNE et collab., 2010a; JIN et collab., 2015; POKOR, 2002; WAS et collab., 2012]. Pour des températures supérieures à 500 °C l'augmentation de la température semble faire diminuer la densité et augmenter le diamètre moyen des cavités [SHIMADA et collab., 1976] comme observée lors de nos irradiations. Aux électrons, il est aussi observé la même tendance [DUBUIS-SON, 1986].

Il semble que la microstructure de cavités évolue très fortement entre 400 °C et 500 °C dans les aciers 304 et 316. Shimada après irradiation aux ions C^+ 200 keV a caractérisé la microstructure d'un acier austénitique 304 proche de la surface irradiée. Aucune cavité n'est observée à 425 °C-41 dpa contrairement à des températures supérieures (475 °C-625 °C), où la densité des cavités (maximale entre 475 °C et 525 °C) diminue avec la température tandis que le diamètre moyen augmente [SHIMADA et collab., 1976]. À 475 °C-41 dpa, les cavités ont une taille d'environ 8-9 nm avec une densité $4-5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Comparativement aux irradiations réalisées dans cette étude, les tailles moyennes sont similaires pour une même dose, cependant la densité est un ordre de grandeur inférieure à celle de Shimada. L'évolution de la densité entre 425 °C et 475 °C est très brutale. Même en prenant en compte un effet de la surface dû à la faible distance de pénétration des ions,

une forte évolution de la densité de cavités entre 425 °C et 475 °C est cependant possible. Borodin observe à plus haute température une évolution de la densité en cloche avec la température dans un acier austénitique stabilisé au titane 18Cr10NiTi, lors de l'apparition des cavités l'évolution de la densité est brutale [BORODIN et collab., 2013], aucun effet de surface n'est à suspecter dans ces résultats car les caractérisations ont été réalisées en profondeur.

De plus, nos résultats montrent qu'entre 450 °C et 550 °C la densité des cavités pour les deux nuances n'est pas fortement impactée à 40 dpa par le changement de température tandis que la taille moyenne augmente. Cette observation va dans le sens d'une évolution de la densité de cavité en cloche avec la température et centrée sur une température comprise entre 475 °C et 525 °C où la densité serait maximale. En effet, pour les basses températures la faible mobilité des lacunes permet la germination de cavités, pour les hautes températures les cavités peuvent émettre des lacunes favorisant la croissance de certaines au détriment de la densité. Cette évolution tend à confirmer les observations de Was et Jiao qui dans du 304 n'observent aucune cavité jusqu'à forte dose à 380 °C et 600 °C tandis que des cavités sont observées dans du 316 à 500 °C [WAS et AVERBACK, 2012]. Concernant l'augmentation de la taille des cavités avec la température observée dans cette étude, ce résultat est unanimement observé aux particules chargées et aux neutrons.

À basse température (inférieure à 380 °C), les amas lacunaires formés dans les cascades de déplacement ne sont pas mobiles, cependant les interstitiels ayant une énergie de migration plus faible peuvent diffuser dans le matériau et former des amas. C'est pour cela que les microstructures obtenues lors d'irradiations à basses températures ne présentent aucune cavité mais seulement des boucles de Frank interstitielles [CHEN et collab., 2015b]. Avec l'augmentation de la température au-delà de 400 °C, les lacunes vont alors diffuser et des amas lacunaires peuvent se former et croître. Cependant la faible mobilité des lacunes empêche la diffusion sur de grandes distances et favorise la germination des cavités. Parallèlement les interstitiels peuvent se recombinaison aux lacunes réduisant la sursaturation lacunaire ou s'annihiler aux puits. Il semble exister une plage réduite de température aux ions (425 °C-475 °C) où la faible mobilité des lacunes permet la germination de quelques cavités mais ne permet pas une germination homogène importante des cavités de petites tailles. La dispersion des résultats pour ces températures notamment aux faibles doses en témoigne, aux erreurs de régulation de température près entre deux irradiations la germination va être très différente d'un échantillon à l'autre. Enfin au delà de 475 °C-500 °C les lacunes et interstitiels sont très mobiles permettant des diffusions sur de plus longues distances ainsi que la recombinaison de défauts ponctuels. Les sursaturations de lacunes et interstitiels sont alors plus faibles, favorisant la croissance des défauts à la germination.

Si l'on compare le gonflement mesuré dans cette étude aux données de la littérature, notamment de la figure de l'évolution en cloche du gonflement du chapitre bibliographique. Le gonflement est maximum dans du 304 pour une température comprise entre 450 °C et 500 °C. Il est faible pour des températures inférieures à 400 °C et supérieur à 525 °C. Pour un gonflement de 9% mesuré dans cette étude par MET après irradiation à 550 °C ceci correspondrait à un shift en température de l'ordre de 75-100 °C. La comparaison entre les irradiations aux ions et en réacteur sera abordée plus loin.

3.4.3 Effet de la composition chimique

Dans cette étude, l'effet de la composition chimique sur l'évolution des défauts est étudiée par la comparaison des microstructures des deux nuances irradiées. La différence en éléments d'alliage entre le 304L et 304 est principalement attribuée au carbone. En effet, les teneurs sont respectivement de 0,14 %_{atm} et 0,25 %_{atm}. Cependant la teneur d'autres éléments d'alliage peut légèrement différer notamment pour le silicium 1,1 %_{atm} dans le 304 et 0,89 %_{atm} dans le 304L. Comme indiqué dans la biblio pour des éléments majoritaires, nickel et chrom, les faibles variations ne devraient pas avoir d'impact

La première différence entre les deux nuances lors des irradiations à 450 °C est l'absence de cavités à 5 dpa dans la nuance avec la teneur en carbone la plus forte. Aux plus fortes doses les cavités sont présentes dans les deux nuances mais la densité est environ deux fois plus forte dans le 304L et les cavités légèrement plus grandes.

À 550 °C-40 dpa les cavités sont aussi plus larges dans le 304L comparées aux cavités dans le 304, 56 nm contre 37 nm, et les densités sont par contre similaires environ $4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$. Le carbone en solution solide est connu pour réduire le gonflement à haute température [GARNER, 2012; MAKIN et collab., 1980; WILLIAMS, 1980], mais il semble qu'il peut aussi impacté le gonflement à 400 °C [HASHIMOTO et collab., 2000]. Cependant d'autres études montrent un effet du carbone inverse [BATES et POWELL, 1981]. Le carbone favorise la précipitation de carbures qui peuvent eux-mêmes favoriser la croissance des cavités. Il est donc parfois difficile de séparer l'effet du carbone en solution solide vis-à-vis du gonflement et l'effet du carbone sur la précipitation impactant elle-même le gonflement.

Dans cette étude, à l'état non irradié et 5 dpa aucune précipitation n'est observée par microscopie électronique en transmission. Il peut donc être considéré que le carbone est totalement en solution solide. Le carbone en solution solide présente une énergie de liaison faible avec les lacunes (environ 0,4 eV) [HEPBURN et collab., 2013], cette énergie de liaison est proche de celle d'une bi-lacune. Le carbone va donc facilement former des complexes avec les lacunes réduisant ainsi le nombre de lacunes disponibles dans la matrice pour la germination ou croissance des cavités. Dans le fer le carbone peut former des complexes stables contenant plusieurs lacunes et atomes de carbone [DOMAIN et collab., 2004; FU et collab., 2008; LAU et collab., 2007]. En considérant les complexes carbone lacune immobiles, le carbone va ainsi réduire la diffusion des lacunes en les piégeant temporairement de part la faible énergie de liaison.

Une première approche simple serait de considérer que l'effet du carbone se traduit par une réduction du pré-facteur de diffusion des lacunes ou d'une augmentation de l'énergie de migration. Par la formation de plus nombreux complexes carbone-lacune, dans la nuance 304, la densité volumique de lacunes disponibles sera alors plus faible que dans le 304L. La plus faible sursaturation de lacunes dans le 304 va se traduire par une plus faible germination de cavités. De plus, à haute température la mobilité des lacunes étant plus importante, l'effet combiné du carbone et de la température se manifesterait sur la taille des cavités, la croissance des cavités serait alors favorisée dans le 304L.

À 450 °C la taille et la densité des boucles de Frank sont identiques pour les deux nuances aucun effet de composition ne semble visible à cette température. À 550 °C la taille moyenne est pour les deux nuances de 33 nm et la densité est de $6 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ dans le 304L contre $2,5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ dans le 304. Il a été observé dans le passé des effets de carbone sur les boucles de Frank dans du 316 irradié aux ions à faible dose 1 dpa [WILLIAMS, 1980]. Une diminution de la taille des boucles de Frank avec une augmentation de la teneur en carbone avait été constaté aux fortes température, cependant la faible dose suggère que

le régime de saturation n'est pas encore établi. Une étude plus récente a montré des différences entre les microstructures de boucles de Frank entre du 304 et du 316 en conditions RNR jusqu'à de fortes doses à 390 °C [RENAULT LABORNE et collab., 2015]. Le 304L présentait une taille et une densité de boucles de Frank plus importante que le 316. Cet effet est attribué à la composition chimique par les auteurs, il n'a pourtant pas été observé à plus basse température [RENAULT et collab., 2009]. Une autre étude avance un effet du silicium sur la distribution de boucles de Frank dans du 316 irradié à 400 °C-3 dpa : une augmentation en silicium réduirait la densité et la taille des boucles de Frank [CHEN et collab., 2015b]. L'effet est observé pour des températures plus faibles que notre étude et pour une variation inverse à nos teneurs en silicium. Il ne semble donc pas que la variation de densité, soit le résultat de teneurs différentes en silicium.

Notre étude et celles de la littérature avançant un effet de la composition chimique sur les boucles de Frank, semblent aussi montrer qu'une diminution de la température réduit ou supprime l'effet de composition. Cependant, dans notre étude, en plus d'un éventuel effet du carbone, on peut penser qu'au vu de la fraction volumique de cavités dans le 304L (9%) il n'est pas possible de conserver une densité et taille de boucles de Frank aussi importante que dans le 304. Il semble que dans ce cas la limite géométrique soit le facteur limitant. En effet si une forte fraction volumique de cavités est observée le volume disponible pour les autres défauts se réduit. Ce qui réduira la distance entre les dislocations et les boucles, forçant le défautement de ces dernières.

Enfin l'évolution des carbures avec la teneur en carbone des deux nuances est cohérente. Le carbone étant un des éléments majoritaires des carbures une augmentation de la concentration de carbone en solution solide va permettre une précipitation plus importante de carbures. Ceci est observé dans cette étude où la précipitation de carbures est importante à 40 dpa dans le 304 tandis qu'elle n'est presque pas observée dans le 304L. À 100 dpa dans la zone étudiée la précipitation est plus importante dans le 304. Cependant, les résultats sur les profils de dommage à 100 dpa sont contradictoires, les carbures apparaissent en plus grande quantité dans la nuance bas carbone, notamment dans la zone des pics de dommage et d'implantation. De plus les résultats de SAT suggèrent une légère contamination au carbone, des nuances par l'irradiation dans la zone d'étude. Comme la précipitation de carbures est presque dix fois plus importante au pic que dans la zone d'intérêt, on peut donc penser que la contamination serait beaucoup plus importante au niveau des pics de dommage et d'implantation.

3.4.4 Effet de l'hélium

L'effet de l'hélium lors des irradiations aux faibles doses n'est pas flagrant. Dans les deux cas les cavités ou bulles sont de petites tailles et en forte densité. Les densités sont équivalentes et les tailles similaires, celles de l'état irradié en bi-faisceau étant légèrement plus grandes. L'évolution du réseau de dislocations est hétérogène pour les deux états et à 1,5 dpa la microstructure n'est pas établie en lame mince.

Au vu de la faible différence entre le deux états, l'effet de l'hélium dans ces conditions ne semble pas notable.

3.4.5 Limites des irradiations aux ions

3.4.5.1 Surface irradiée

Dans cette étude, deux types d'échantillons (lames minces et échantillons massifs) ont été irradiés et des résultats très différents ont pu être constatés. Lors des irradiations

in-situ bien des cavités en forte densité sont observées tandis que les échantillons irradiés en massif présentent peu ou pas de cavités dans la zone d'observation. De plus, la dose lors des irradiations in-situ est inférieure à celle des expériences ex-situ.

Ces observations montrent que les surfaces libres lors des irradiations modifient de façon forte la microstructure de défauts. La figure 3.25 illustre l'effet de la surface sur le réseau de dislocation dans le 304L irradié à 5 dpa.

L'effet de la surface est régulièrement évoqué dans la littérature et surtout dans le cadre de l'utilisation des particules chargées pour les irradiations. De nombreux auteurs justifient certaines évolutions du gonflement ou des dislocations, lors d'observations à proximité des surfaces, par un effet important de ces dernières sur les défauts ponctuels.

Ici il est fait un point sur les différentes microstructures obtenues aux ions dans la littérature afin de tenter de comprendre les évolutions de défauts obtenues dans cette étude.

À 350 °C Pour les irradiations, aux ions, à faible température (350 °C) réalisées sur des lames minces aucune cavité n'est observée dans du 304 [ETIENNE et collab., 2010a; POKOR, 2002]. De même lors d'irradiations d'échantillons massifs de 304L aux ions suivies d'observations en profondeur Was et al. n'observe aucune cavité jusqu'à des doses de 260 dpaFC à 380 °C [WAS et collab., 2012]. Les microstructures de boucles de Frank obtenues dans ces trois études sont identiques les tailles moyennes sont proches de 9-10 nm et la densité d'environ $4-5 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$. À cette température aucun échantillon prélevé le long du profil de dommage n'a été caractérisé. À faible température, il semblerait que les effets de surfaces s'ils sont présents ne sont pas notables. La faible température d'irradiation semble être le facteur prépondérant dans l'évolution de la microstructure.

Les résultats de la littérature à des températures supérieures à 400 °C montrent ensuite des disparités avec la température suivant le type d'échantillon irradié sur la taille et la densité des cavités et boucles de Frank.

À 400 °C Lors d'irradiation aux ions fer 8 MeV à 400 °C-5 dpa d'un acier 316 hypere trempé Jin observe à 1 µm sous la surface une densité de boucles de Frank de $2 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ avec une taille moyenne de 17 nm, parallèlement aucune cavité n'est observée [JIN et collab., 2015]. Dans un acier 316, irradié à environ 3 dpa, le long du profil de dommage Chen n'observe aucune cavité et les boucles de Frank ont une taille d'une dizaine de nanomètres avec une densité de 10^{22} m^{-3} [CHEN et collab., 2015b]. Malheureusement la caractérisation très proche de la surface n'est pas donnée dans la publication.

Pour des irradiations sur lame mince dans un acier 304L à 400 °C, Le Millier observe des cavités d'environ 2-3 nm avec une densité de $2,5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ à 2 dpa ainsi que des boucles de Frank avec une densité de boucles $2,2 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et une taille moyenne de 7 nm [LE MILLIER, 2014].

A cette température les microstructures de boucles sont similaires en densité, la taille moyenne des boucles semble cependant légèrement plus faible pour une irradiation en lame mince. Toutefois les doses d'irradiation sont inférieures à 5 dpa ce qui laisse penser que le régime de saturation des boucles de Frank n'est pas atteint une dispersion dans les données est donc fort probable. Néanmoins les échantillons massifs ne présentent pas de cavités contrairement aux irradiations sur lame mince. Cette modification majeure ne peut pas être attribuée à la dose ou à la température. Afin d'expliquer l'écart entre les différentes expériences il peut donc être avancé soit un effet de composition soit un effet

des surfaces libres. Les observations à 450 °C orientent plutôt vers un effet important de la surface [VOLGIN, 2012].

À 450 °C Notre étude montre que pour des irradiations sur lame mince à faible dose une forte densité de nano-cavités est constatée ($5,8 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$), tandis qu'à plus forte dose sur échantillons massifs peu de cavités sont visibles ($3 - 6 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ à 5 dpa) et le diamètre moyen est plus important, 1 nm contre 5,1 - 10,4 nm. Cependant les observations le long du profil de dommage semblent montrer un effet différent sur les cavités, proche de la surface à 5 dpa et 40 dpa la densité et la taille des cavités sont plus faibles ainsi que la densité des boucles de Frank.

Dans du 316 hypertrempé différentes microstructures de cavités et boucles de Frank ont été observées par Volgin lors d'irradiations à 450 °C. Pour des irradiations à 450 °C-5 dpaFC presque cinquante fois plus de cavités sont visibles lors d'irradiations sur lame mince ($9,7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ -2 nm) par rapport à des irradiations sur échantillon massif ($1,9 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$) [VOLGIN, 2012]. Concernant les boucles de Frank, il met en avant des différences de densité entre les quatre familles de boucles ainsi qu'en taille. Sur lame mince, la taille et la densité des boucles sont plus faibles (11 nm et $4,5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$) en comparaison des résultats sur les échantillons massifs observés en profondeur (16 nm et $9,9 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$).

Enfin, des irradiations aux ions or 4 MeV à 450 °C menées au CSNSM-Orsay [JUBLOT-LECLERC et collab., 2016] sur des lames minces de 316L hypertrempé conduisent à des densités de cavités encore plus élevées et supérieures à $9 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$ avec une taille moyenne de 1,5 nm, pour une dose de 7,7 dpa. Il est considéré que chaque surface libre impacte la microstructure de cavités sur 15 nm, le calcul de densité est réalisée en retranchant 30 nm à l'épaisseur mesurée augmentant ainsi fortement la densité. Étonnamment, aucune boucle de Frank n'est observée dans cette étude jusqu'à 23 dpa mais des black spots sont visibles.

De notre étude et de la littérature à 450 °C, il ressort que l'irradiation en lame mince favorise la germination de petites cavités et conduit à la formation de petites boucles de Frank. L'observation proche d'une seule surface sur des échantillons prélevés par FIB montre au contraire une diminution de la densité des cavités proches de la surface et de plus larges boucles de Frank.

Une justification des différents effets de la présence d'une ou de deux surfaces peut être la suivante. La surface est un puits préférentiel pour les défauts mobiles. La présence d'une surface de par la mobilité plus importante des interstitiels va permettre aux interstitiels de disparaître à la surface plus rapidement que les lacunes, et/ou de se recombinaison avec les lacunes disponibles proche de la surface. Ceci aura pour effet de réduire la quantité d'interstitiels pouvant participer à la germination et la croissance des boucles de Frank. La densité des boucles sera réduite et des grandes boucles pourront être observées. Avec l'augmentation de la dose, le régime de saturation finira par être atteint près de la surface. C'est ce qui est observé sur les lames FIB à 100 dpa. La compétition entre la disparition des interstitiels en surface et leur recombinaison avec des lacunes à la proximité de la surface peut ne pas donner la même microstructure. Dans le cas de la présence d'une unique surface, il semble que la recombinaison des interstitiels avec les lacunes est favorisée, réduisant ainsi la concentration en lacune, ce qui aura pour effet de réduire la densité et la taille des cavités à proximité de la surface. Si les interstitiels ont une plus forte tendance à disparaître à la surface, ce qui est probablement le cas des irradiations sur des lames minces, où deux surfaces sont très proches l'une de l'autre, alors les lacunes seront en sursaturation provoquant une germination plus importante de cavités. Lors d'irradia-

tion en lame mince, une forte densité de cavités sera alors observée. L'appauvrissement total en interstitiels ne permettra pas aux boucles de Frank de croître ni de germer.

À 500 °C Lors d'irradiations aux ions fer 3,5 MeV à 500 °C d'un acier austénitique 304L, Sun observe une évolution de la taille et la densité des cavités avec la profondeur [SUN et collab., 2015]. Proche de la surface, les cavités sont plus petites et en plus grande quantité en comparaison à des cavités observées plus en profondeur hors pic de dommage. À cette température dans la partie intermédiaire du profil la dose varie entre 35 et 80 dpa, les tailles et densités des cavités sont comprises entre 20-30 nm et $5-7 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ respectivement. À cette même température mais à 2 dpa Le Millier observe dans un 304L irradié en lame mince des cavités nanométriques de 2-3 nm en forte densité $8,5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

Finalement, les résultats obtenus et disponibles dans la littérature montrent que les surfaces libres lors des irradiations ont un impact fort et croissant avec la température sur les boucles de Frank et les cavités. Cependant l'effet ne semble pas être le même suivant le type d'échantillon observé.

Les caractérisations des coupes transverses le long du profil d'irradiation réalisées dans cette étude témoignent de l'effet de la surface sur la microstructure de boucles. Il a été clairement identifié sur les premiers 300 nm sous la surface des boucles en plus faible densité et avec un diamètre moyen plus grand. La surface d'irradiation influe comme un puits sur les défauts créés sous irradiation. Elle favorise l'annihilation des défauts mobiles à sa surface. De plus la surface permet d'éliminer les boucles de dislocations parfaites produites par le défautement des boucles de Frank. Il a en effet été montré que les boucles parfaites peuvent migrer même dans des aciers complexes [SATO et collab., 2012, 2015], ce qui va artificiellement réduire la densité de dislocations permettant aux boucles de Frank de croître.

En lame mince, deux surfaces libres sont présentes à une centaine de nanomètres d'écart. Leurs effets sur la disparition des interstitiels vont se cumuler.

A faible température il peut être considéré que la faible mobilité des interstitiels et des lacunes ne permet pas d'observer l'effet des surfaces. Les défauts ponctuels ne sont alors pas assez mobiles afin de diffuser jusqu'aux surfaces et s'y annihiler. Les recombinaisons lacunes interstitiels et la germination de défauts interstitiels est plus rapide. Il ne sera donc pas observé de différence de microstructure pour les deux types d'échantillons pour les températures proches de 350 °C.

Avec l'augmentation de la température la mobilité des défauts va progressivement augmenter permettant aux lacunes de former des amas (cavités). L'augmentation de la température va aussi favoriser la disparition des interstitiels et des boucles à la surface. La présence des deux surfaces va favoriser leur disparition diminuant ainsi la taille et la densité des boucles de Frank lors d'irradiation en lame mince. Les lacunes présenteront alors des sursaturations importantes leur permettant de former des cavités. Il est observé une augmentation de la densité des cavités proches des surfaces car il est considéré que l'énergie de migration des lacunes est très faible [BARBU et collab., 2005; KIRITANI et collab., 1975].

Notre étude montre un effet de surface sur 300 nm il est donc évident qu'il n'est pas possible d'obtenir à la même température une microstructure identique avec deux surfaces distantes de 100 nm.

Le choix avait été fait de réaliser les observations des échantillons irradiés à une pro-

fondeur de 650 nm, l'effet de la surface sur une profondeur de 300 nm tend à valider notre choix d'observation en profondeur.

3.4.5.2 Interstitiels injectés

Les irradiations aux ions lourds ont pour inconvénient la faible distance de pénétration des ions dans le matériau irradié. La profondeur d'implantation des ions est très dépendante de l'énergie utilisée. Dans cette étude l'énergie des ions fer est de 10 MeV. Les simulations SRIM donnent un pic d'implantation situé proche de 2,1 μm sous la surface avec un taux d'implantation des ions de 872 appm.dpa⁻¹, l'implantation est significative à partir de 1 μm -1,5 μm .

Un des objectifs des prélèvements FIB était d'étudier l'évolution de la microstructure avec la profondeur et notamment de comprendre un éventuel effet des interstitiels injectés sur la microstructure.

Il est observé dans tous les échantillons pour les cavités et les boucles de Frank mais aussi la précipitation, un changement d'évolution pour des profondeurs supérieures à 1,5 μm .

Pour évaluer l'effet des interstitiels injectés il est nécessaire de comparer la microstructure dans deux zones où la quantité d'interstitiels injectés diffèrent mais où la quantité de dommage est la même. Dans ce sens nous comparons les microstructures à 1,5 μm avant les pics de dommage et d'implantation, avec les microstructures à 2,2 μm au delà des pic de dommages et au pic d'implantation (fig. 3.28). Les deux profondeurs présentent un débit de dose similaire 1,4 · 10⁻³ dpa.s⁻¹ tandis que les taux d'implantation diffèrent d'un ordre de grandeur. Les différences qui sont observées peuvent donc être principalement attribuées à un effet des interstitiels injectés.

Pour tous les échantillons FIB, à 2,2 μm il n'est jamais observé de cavités et les boucles de Frank sont plus grandes et en plus faible densité comparé à 1,5 μm sous la surface. De la même façon, dans les échantillons irradiés à 100 dpa, les précipités ne sont pas observés au pic d'implantation contrairement à la zone située à 1,5 μm sous la surface. De plus, un réseau de dislocations linéaires dense est constaté mais n'a pas été mesuré.

Les interstitiels injectés vont ainsi réduire la densité et la taille des cavités tout en augmentant la taille des boucles de Frank. Il semble aussi que des carbures ne puissent apparaître au pic, tandis que d'autres y sont favorisés. Cet effet des interstitiels a déjà été observé dans les aciers austénitiques mais une fois encore il n'est souvent étudié que l'effet des interstitiels injectés vis-à-vis du gonflement. Dans notre cas, comme il le sera vu dans le chapitre suivant, les interstitiels injectés réduisent les gonflement.

3.4.5.3 Contamination

Lors des irradiations aux ions une contamination au carbone du matériau peut avoir lieu notamment à cause d'un vide éventuellement trop faible dans la chambre d'irradiation. Le carbone va alors pénétrer dans le matériau sous l'effet du bombardement ionique. Des contaminations fortes au carbone induites par irradiation, ont déjà été observées dans des alliages Fer-Chrome pouvant atteindre 1 %_{atm} [TISSOT, 2016]

Dans notre étude, la présence de carbures en forte quantité laisse penser à une possible contamination au carbone. Les analyses en SAT sur le 304 et 304L irradiés à 100 dpa donnent des compositions en carbone de 0,37 %_{atm} dans les deux nuances, tandis que la teneur initiale est de 0,25 %_{atm} dans le 304 et 0,14 %_{atm} dans le 304L.

La contamination existe mais semble raisonnable au vu de la dose et du temps d'irradiation pour obtenir ce dommage. De plus, lors du dépouillement des résultats de sonde

atomique tomographique une part importante de l'incertitude de la teneur en carbone provient de l'indexation du pic situé au ratio masse sur charge 18. Celui-ci peut être indexé comme étant une pollution de type eau (H_2O) ou correspondant à du C_3^+ . Il semble peu probable que des complexes C_3^+ s'évaporent depuis la matrice, donc il a été considéré lors des calculs de composition de la matrice que le pic 18 était de l'eau. Cependant lorsque des carbures sont présents les ions provenant du pic 18 sont associés à la position des carbures, dans ce cas pour la composition des carbures le pic 18 est indexé comme du C_3^+ . Finalement, la composition des matrices pour les deux nuances étudiées est de 0,3 %_{atm} dans le 304 et 0,27 %_{atm} dans le 304L, à ces teneurs en carbone de la matrice il doit être ajouté le carbone contenu dans les carbures et les ségrégations ce qui montre une contamination dans la zone d'analyse. Les échantillons de SAT ont été réalisés à 500 nm sous la surface, la contamination au carbone n'est donc pas étudiée sur tout le profil. Au vu de la quantité et de la taille des carbures proches du pic de dommage il ne serait pas étonnant que la contamination y soit plus importante.

La présence des précipités allongés considérés comme des M_7C_3 pourrait alors provenir de la contamination en carbone, ces précipités se forment en effet lors de maintiens en température dans des atmosphères très carbonées [ERNST et collab., 2011].

3.4.6 Comparaison avec les irradiations aux neutrons

Un des objectifs des irradiations aux ions était d'éventuellement pouvoir reproduire des irradiations aux neutrons. Les points de discussions précédents ont mis en avant des effets propres aux ions (effet de surface, interstitiels injectés, contamination, ...) mais la majorité des observations ont été faites dans une zone telle que ces effets sont minimisés.

Dans un premier temps, les irradiations aux ions seront comparées à des données provenant d'irradiations à neutrons rapides (EBR-II, Phénix, Bor60, ...) puis provenant de Réacteurs à Eau Pressurisée (Tihange, ...).

3.4.6.1 En conditions Réacteur à Neutrons Rapides

Concernant les irradiations en conditions réacteurs à neutrons rapides, la figure 3.35 représente l'évolution de la densité et de la taille des défauts avec la dose. Les évolutions attendues de la densité et de la taille des boucles de Frank, à savoir l'augmentation de la taille et une diminution de la densité avec la température sont retrouvées. Précédemment, au vu des gonflements mesurés par MET dans notre étude comparé à la compilation de données sur le gonflement dans EBR-II pour le 304 il avait été proposé pour les conditions d'irradiations de cette étude qu'une température de 550 °C correspondrait à un décalage en température de 75-100 °C. Nous allons donc discuter ce décalage.

En comparant les données de la littérature avec nos résultats (figure 3.35), on constate que les résultats aux ions à 450 °C correspondraient à des irradiations pour une température entre 370 °C et 400 °C. La dispersion des données notamment sur la taille des boucles de Frank est principalement due aux variations des flux de dommage d'une expérience à l'autre.

Renault et al. obtiennent pour des irradiations dans BOR-60 sur du 304L et du 316 de 10 à 120 dpa à 320 °C de plus petites boucles 7-9 nm en plus forte densité $4,4-7,4 \cdot 10^{22} m^{-3}$ [RENAULT et collab., 2009]. Dans l'acier 304L, une dense précipitation (à 120 dpa, $2,32 \cdot 10^{21} m^{-3}$ et 9,2 nm) est observée, la phase (τ ou G) n'est cependant pas totalement identifiée, la phase γ' n'est pas présente dans ces conditions [RENAULT et collab., 2009]. Pour des irradiations à plus haute température 390 °C dans Phénix la taille des boucles

de Frank dans du 304L à 40 dpa est de 13 nm avec une densité de $2,8 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ [RENAULT et collab., 2012]. Les irradiations aux ions se rapprochent donc très fortement de cette irradiation Phénix pour les boucles de Frank.

Toutefois en terme de cavités bien que les tailles moyennes soient similaires 12-13 nm à 36-39 dpa, les densités de cavités sont sensiblement supérieures $2,6-6,1 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ contre $\sim 6,9 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ [RENAULT et collab., 2012]. Cependant, à des températures un peu plus faibles, 320 °C aucune cavité n'est observée [RENAULT et collab., 2009], ce qui montre une très rapide évolution des cavités aux faibles températures en RNR.

On considère la relation de Mansur [MANSUR, 1978, 1994] pour un shift en température entre les irradiations aux ions et en réacteur à neutrons rapides, et l'on utilise les énergies de formation et de migration des lacunes utilisées en dynamique d'amas (Chapitre 4) respectivement 2 eV et 1,2 eV. Pour le flux de dommage considéré dans Phénix environ de $1 \cdot 10^{-6} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$, les irradiations aux ions réalisées se rapprocheraient d'une température de 395 °C en RNR. Les résultats de Renault [RENAULT LABORNE et collab., 2015] confirment que pour les boucles de Frank le shift est valable. Le shift serait alors de 22 °C par décade de flux. Si l'on considère que nos irradiation reproduise l'évolution chimique du matériaux la température aux neutrons serait de 320 °C soit celle lors des expériences BOR-60 de Renault et al.. On constate alors que la précipitation observée n'est pas en réelle bon accord avec celle observée en réacteur.

Les irradiations à 550 °C du 304, en terme de boucles de Frank se rapprochent des analyses de Huang à des températures proches de 450 °C dans EBR-II avec un flux d'environ $3 \cdot 10^{-7} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$ [HUANG et collab., 2015]. Il observe à 28 dpa des boucles de Frank de 28-37 nm et avec une densité $4-8 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, les cavités ont un diamètre moyen de 22 - 38 nm et la densité de $1,7 - 2,7 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Les densités sont légèrement plus fortes aux neutrons, notamment celles des cavités comme il avait déjà été observé à plus basse température. Avec les relations de Mansur, on estime que les irradiations aux ions de cette étude à 550 °C, permette de reproduire une microstructure d'irradiation à 460 °C pour le flux de dommage utilisé par Huang, soit une température légèrement supérieure à celle utilisée. Cette légère différence en température peut en partie expliquer les différences de densité observées. Ceci donnerait un décalage en température de l'ordre de 25 - 30 °C par décade de flux.

La relation de Mansur, a pour but de reproduire la microstructure de défauts tels que les boucles de Frank et les cavités par un maintien d'une concentration en défauts ponctuels identique dans le grain entre les deux irradiations pour des états où les flux de défauts vers les puits sont établis. Les évolutions chimiques, ségrégations ou précipitations sont dépendantes du flux de défauts ponctuels vers les puits tels que les joints de grains et dislocations. Mansur propose une seconde relation afin d'obtenir des flux de défauts ponctuels identiques vers les défauts à deux flux et températures différentes. Il est évident qu'il est difficile de reproduire et la microstructure et l'évolution chimique sous irradiation des matériaux. La précipitation influant sur la microstructure de cavités il est nécessaire de trouver un compromis permettant de reproduire les deux au mieux.

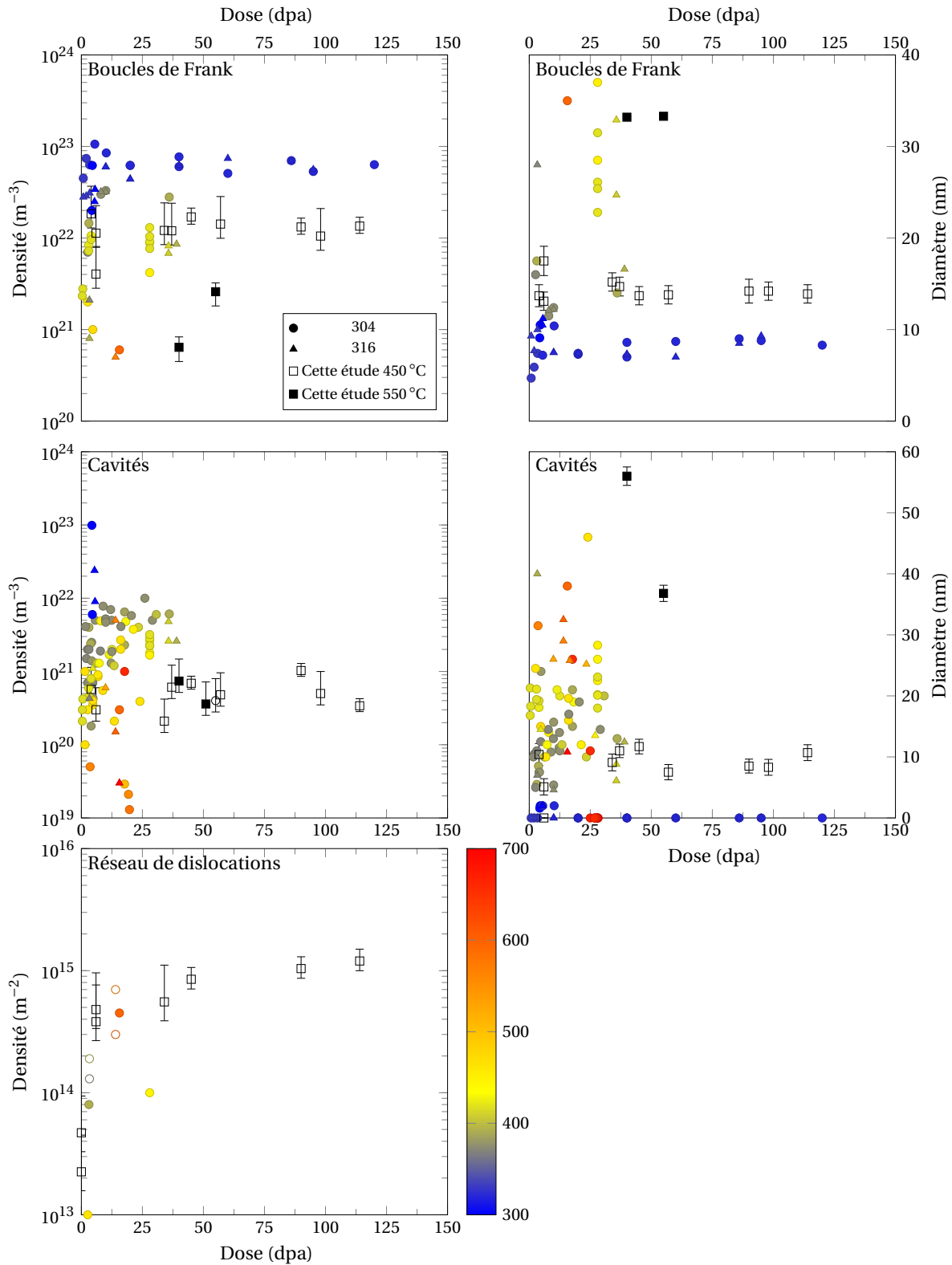


FIGURE 3.35 – Comparaison des données expérimentales de cette étude avec celles de la littérature lors d’irradiations en RNR, les symboles ronds sont pour du 304 et les triangles pour du 316. À partir des données de [ALLEN et collab., 2006; BLOOM et STIEGLER, 1970a,b; BRAGER et collab., 1984, 1971; CARLANDER et collab., 1969; CAWTHORNE et FULTON, 1967; DONG et collab., 2015; HUANG et collab., 2015; ISOBE et collab., 2009; POKOR et collab., 2004b, 2006; RENAULT et collab., 2009; RENAULT-LABORNE et collab., 2014; SANDUSKY et collab., 1972; STIEGLER et BLOOM, 1969; TAN et BUSBY, 2013].

3.4.6.2 En conditions Réacteur à Eau Pressurisée

Peu de données sont disponibles dans la littérature sur des irradiations en condition REP pour les aciers austénitiques 304 hypere trempés. Les résultats de la littérature (304 et 316 confondus) peuvent être scindés en deux catégories. D'une part les données obtenues à des températures inférieures à 330 °C [EDWARDS et collab., 2003a; FUJIMOTO et collab., 2005; FUKUYA et collab., 2006; MONNET et collab., 2002]. D'autre part les résultats obtenus sur des vis extraites de Tihange ou des réacteurs français irradiées à plus hautes températures, environ 330 °C- 350 °C [BYRNE et collab., 2002; EDWARDS et collab., 2003a; PANAIT et collab., 2014; PIRONET et collab., 1998; POKOR et collab., 2006].

Si l'on compare aux données REP sur les aciers écrouis 304 et 316 pour une gamme de température 300-370 °C, il apparaît que les résultats suggèrent une bonne reproduction des boucles de Frank par irradiation aux ions à 450 °C comparée aux conditions REP (fig. 3.36).

Au vu du faible écart sur la densité et la taille (respectivement un peu faible et élevée), la température choisie pour les irradiations aux ions fer est convenable, mais est peut-être légèrement trop forte. Des irradiations aux ions nickel à 350 °C dans du 304 hypere trempé, irradié à 10 dpa avec un flux similaire montrent la formation de boucles de Frank de 9,6 nm avec une densité de $5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ [POKOR, 2002], mais aucune cavité n'est observé ce qui représente la limite basse des résultats REP.

Le calcul de shift en température à l'aide de la relation donnée par Mansur [MANSUR, 1978, 1994] pour une température de 450 °C aux ions et un flux de $5,4 \cdot 10^{-4} \text{ dpa.s}^{-1}$, devrait représenter une irradiation aux neutrons à une température proche de 370 °C avec un flux proche de $10^{-8} \text{ dpa.s}^{-1}$, soit un décalage en température d'environ 25 °C par décade. Une température un peu élevée, pour des conditions REP avait été choisie car les internes peuvent dans les zones chaudes atteindre des températures mêmes relativement supérieures [BYRNE et collab., 2002]. Les résultats REP donnés en figure 3.36 sont principalement pour des températures comprises entre 310 °C et 330 °C. Il est donc cohérent d'obtenir, par irradiation aux ions, des boucles plus grandes et en plus faible densité. Certaines microstructures des vis irradiées à plus haute température sont cependant comparables aux microstructures obtenues par irradiations au ions.

En Réacteur à Eau Pressurisée, la présence d'hélium formé par transmutation devrait influencer sur la microstructure de cavités. À faible température les cavités/bulles sont observées en très grande quantité [FUJIMOTO et collab., 2005; FUKUYA et collab., 2006].

Pour les températures les plus élevées proches de 350 °C les tailles et densités des cavités/bulles sont similaires à celles obtenues aux ions [BYRNE et collab., 2002; ETIENNE et collab., 2008; POKOR et collab., 2006]. On peut particulièrement noter le bon accord entre les observations de Pokor pour les cavités et pour les boucles de Frank [POKOR et collab., 2006]. En effet il est observé sur une vis écrouis en 316 à 13 dpa entre 345 °C et 365 °C des cavités avec une taille moyenne et une densité respectivement de 10,4 nm et $7 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ et des boucles de Frank avec une taille moyenne et une densité respectivement de 12,4 nm et 10^{22} m^{-3} , ce qui correspond aux tailles et densités observées aux ions. L'aspect facetté des cavités [POKOR et collab., 2006] tend à montrer que ces dernières sont constituées de vide et ne sont pas des bulles d'hélium car elles seraient alors sphériques du fait de la forte pression d'hélium. Zouari dans sa thèse conclu par dynamique d'amas que l'hélium n'influe pas sur le gonflement pour des teneurs inférieures à 100 appm.dpa⁻¹ [ZOUARI, 2012]. Dans cette étude les irradiations réalisées aux faibles doses avec et sans implantation d'hélium ne montrent pas non plus d'effet majeur de l'hélium sur la microstructure de cavités. Des mesures d'hélium faites sur une vis extraite de Tihange [EDWARDS et collab., 2003a] montrent des concentrations d'hélium variant de 50 à 70 appm

pour des doses allant de 7,5 à 19,5 dpa soit des ratios inférieurs à 10 appm.dpa^{-1} .

Enfin trop peu d'information sur la précipitation n'est disponible dans la littérature en conditions REP permettant d'être comparé avec nos irradiations d'après la relation de Mansur. On peut cependant noter qu'Edwards observe des précipités de phase γ' ainsi qu'une seconde phase de précipités allongés non identifiés qui sont imagés à partir d'une réflexion pouvant correspondre aux précipités allongés dans notre étude.

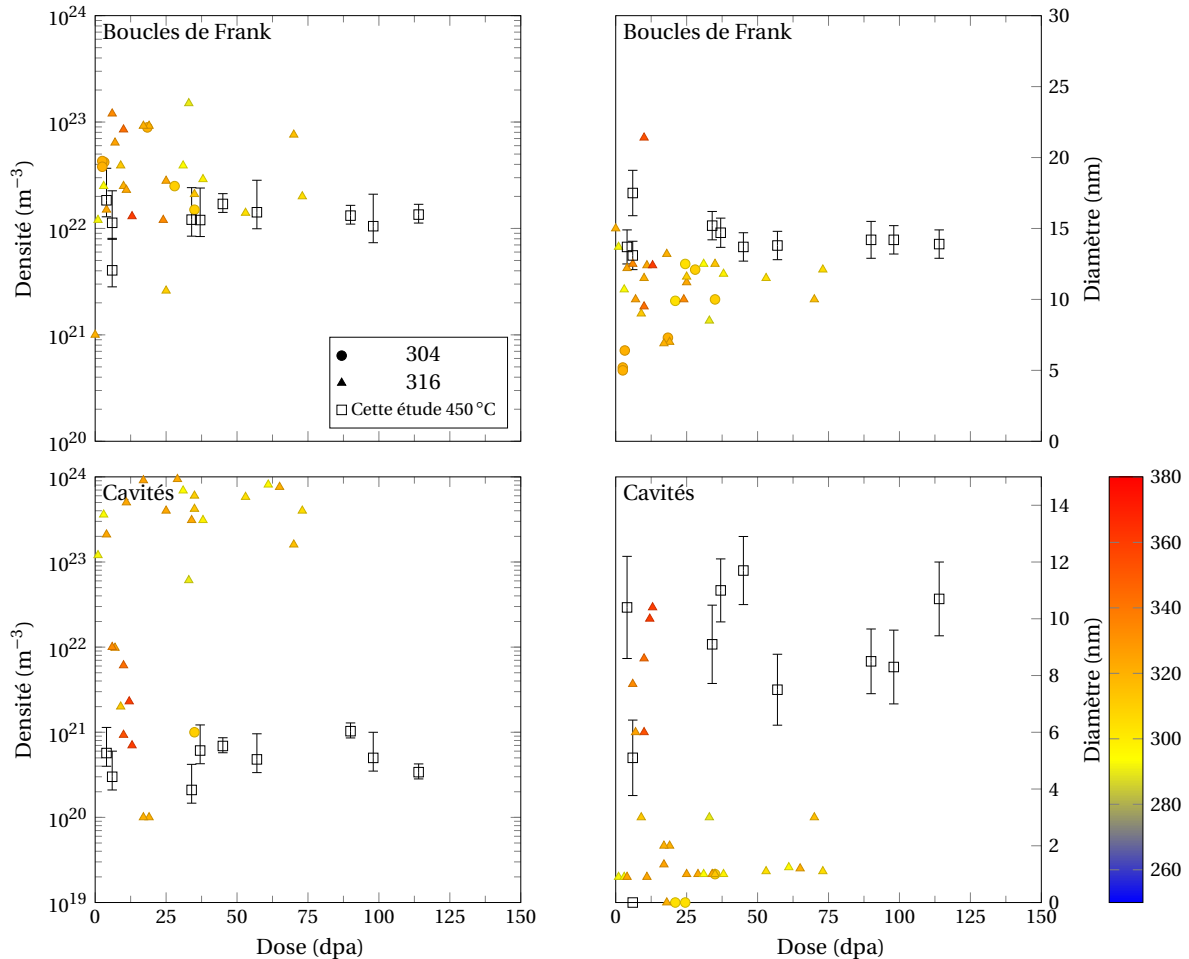


FIGURE 3.36 – Comparaison de l'évolution des boucles de Frank et des cavités de cette étude avec celles de la littérature en conditions de Réacteur à Eau Pressurisée. Les données sont tirées des références [BYRNE et collab., 2002; CAUVIN et collab., 1994; EDWARDS et collab., 2009, 2003a; ETIENNE et collab., 2008; FOSTER et collab., 1995; FUJIMOTO et collab., 2005; FUKUYA et collab., 2006; GOLTRANT et collab., 1998; MONNET et collab., 2002; PANAIT et collab., 2014; PIRONET et collab., 1998; POKOR et collab., 2006].

3.5 Conclusion

Ce chapitre s'est attaché à présenter les caractérisations réalisées sur deux nuances d'aciers austénitiques 304 hypereutectées contenant différents teneurs en carbone. Ces nuances ont été irradiées, dans un premier temps, aux ions lourds fer 10 MeV. Les évolutions avec la dose (5-40-100 dpa) à 450 °C, des défauts d'irradiations tels que les cavités, boucles de Frank, dislocations linéaires et précipités ont été étudiés par microscopie électronique en transmission et par sonde atomique tomographique. Comme il a été constaté une très forte évolution de la microstructure lors des cinq premiers dpa, des irradiations

complémentaires in-situ ont été menées afin d'observer l'évolution de la microstructure aux doses inférieures.

Lors des premiers instants des black dots apparaissent de manière non homogène dans les grains irradiés, la croissance des boucles semble plus rapide proche des dislocations et des joints de grains. Il n'a pu être observé d'effet notable de l'hélium sur la microstructure. Les échantillons irradiés en lame mince (in-situ) présentent tous une forte densité de nano-cavités.

À plus forte dose, sur les échantillons irradiés ex-situ, des cavités sont observées mais en plus faible densité qu'en in-situ. Cette différence est la résultante des effets de surface lors des irradiations sur lame mince. Une faible évolution de la taille et de la densité des cavités est observée aux fortes doses et une saturation du réseau de dislocations a lieu rapidement. Une précipitation de carbures apparaît à des doses proches de 40 dpa, et deux types de carbures ont été identifiés, la SAT souligne en outre la présence de précipitation d'amas enrichis en nickel et silicium ainsi que des ségrégation le long de lignes de dislocations.

L'effet de la température a été étudié pour les deux nuances à 40 dpa, par la réalisation d'une irradiation à plus haute température (550 °C). Une augmentation de la taille des cavités et des boucles de Frank est constatée, la densité de cavités n'évolue pas entre 450 et 550 °C à 40 dpa et la densité des boucles de Frank diminue. Il est discuté de la présence d'un maximum de densité de cavités entre 475 et 525 °C.

La teneur en carbone semble modifier la microstructure de cavités ainsi que la précipitation. Il est suggéré que le carbone en réduisant la mobilité des lacunes diminue la taille et la densité des cavités. Il favorise par ailleurs la précipitation de carbures. Un effet de la composition sur les boucles de Frank peut être suspecté à 550 °C mais n'est pas visible à 450 °C.

De plus, des effets propres aux irradiations aux ions ont pu être mis en évidence. Lors d'irradiations à 450 °C la surface d'irradiation a un effet sur la microstructure jusqu'à 300 nm, lors d'irradiations sur lame mince l'effet des deux surfaces est majeur. Les interstitiels injectés par l'irradiation aux ions vont aussi modifier la microstructure dans leur zone d'arrêt. Le gonflement est fortement réduit et la taille des boucles de Frank augmente.

Enfin, des points communs ont été observés entre les irradiations aux ions et aux neutrons. Les évolutions des défauts, avec la température, observées aux neutrons sont correctement reproduites lors d'irradiations aux ions. Dans cette étude, la microstructure de boucles de Frank observée aux ions est similaire à celle aux neutrons dans certaines conditions. Un décalage température/flux d'environ 25 °C par décade de flux est nécessaire. Pour les cavités, même si la microstructure de boucles de Frank est correctement reproduite, la densité de cavités est plus faible aux ions comparée aux conditions RNR, la taille étant correctement reproduite. La précipitation aux ions est principalement composée de carbures et quelques amas de type Ni/Si/P ont été observés, tandis que les irradiations aux neutrons à 390 °C montrent la présence de la phase γ' en grande quantité mais ils ne sont pas observés à 320 °C. Enfin en conditions REP il semble que la microstructure de cavités et de boucle d'une étude sur une vis de Tihange est reproduite par les irradiations aux ions, cependant aucun hélium n'est injecté lors des irradiation aux ions.

Chapitre 4

Simulation par dynamique d'amas

Sommaire

4.1 Présentation du modèle	134
4.1.1 Équations générales	134
4.1.2 Évolution du réseau de dislocations	137
4.1.3 Dépendance spatiale	139
4.1.4 Paramètres régissant le modèle	139
4.2 Évolution de la microstructure avec la dose à 450°C dans le 304L	144
4.2.1 Paramétrisation	144
4.2.2 Résultats et discussion	146
4.2.3 Étude de sensibilité	149
4.3 Effets propres des irradiations aux ions	152
4.3.1 Insertion du profil de dommage	152
4.3.2 Effet de la surface	156
4.3.3 Effet des interstitiels injectés	158
4.3.4 Effet de la cascade	160
4.4 Conclusions	164

CRESCENDO (Chemical Rate Equations for the Simulation of Clustering and the Evolution of the Number or Density of Objects) est un code de dynamique d'amas co-développé par le CEA et EDF R&D. Il permet d'étudier l'évolution sous irradiation de la concentration des amas lacunaires, interstitiels et pouvant contenir des solutés ou du gaz. Ce code est développé pour l'irradiation dans des matériaux purs tel que le fer, mais son utilisation pour des alliages commerciaux dit « gris » comme les aciers austénitiques est possible. Pour cela une modification de certains paramètres des amas d'auto-défauts (ex. les énergies de migration, formation, liaison, ...) est nécessaire afin de prendre en compte la variation de composition chimique.

Sous irradiation, les cascades de déplacements vont produire des amas de défauts pouvant être mobiles ou immobiles. Suivant qu'ils sont mobiles ou non, l'évolution de leur concentration ne sera pas régie suivant les mêmes équations. CRESCENDO permet de considérer plusieurs tailles d'amas comme mobiles.

Expérimentalement il est observé une évolution du réseau de dislocations, qui serait alimenté par les boucles de Frank. Afin de pouvoir simuler correctement l'évolution du réseau de dislocations, et le fait que les boucles de Frank saturent en taille et densité, un modèle de d'incorporation des boucles de Frank dans le réseau de dislocations a été développé.

De plus, comme dans cette étude les irradiations ont été réalisées aux ions, il a été introduit la possibilité d'une évolution du dommage, et par conséquent de la microstructure, avec la profondeur.

Nous allons dans la suite du chapitre commencer par présenter le modèle, puis nous présenterons le jeu de paramètres utilisés pour la réalisation des simulations qui a été établi sur la base des résultats expérimentaux du chapitre précédent, ainsi que les différents résultats qu'il nous a permis d'obtenir.

4.1 Présentation du modèle

4.1.1 Équations générales

Le code CRESCENDO a déjà fait l'objet de publications ou notes techniques décrivant le modèle en détail [JOURDAN et ADJANOR, 2015; JOURDAN et collab., 2014]. Il est ici donné les éléments nécessaires à la compréhension des modélisations. Sous irradiation des amas de lacunes (V) et d'interstitiels (I) sont créés et évoluent. L'approche en champ moyen de la dynamique d'amas considère que le matériau est localement homogène, de sorte qu'il est possible de représenter la microstructure par la seule concentration des différents amas qu'elle contient. En dynamique d'amas un système d'équations différentielles ordinaires sur les concentrations C_v est résolu, où $v = (n, p)$ est un indice représentant un type d'amas. Par convention n désigne le nombre de lacunes contenues dans l'amas si $n < 0$ ou le nombre d'interstitiels si $n > 0$, et p le nombre d'atomes de solutés ou de gaz. Dans le cadre de cette étude les irradiations ex-situ sont faites aux ions sans implantation d'hélium, $p = 0$. On peut alors représenter la distribution des amas sur un axe unique et décrire les amas uniquement par leur taille n (fig. 4.1).

La région $M = [-m_v; m_i]$ correspond à tous les amas mobiles. Dans cette étude, seuls les mono-lacunes et mono-interstitiels sont considérés comme mobiles. La région $[-N_{ov}; N_{oi}]$ est une région discrète comprenant la région précédente, dans laquelle $|n|$ est le nombre de lacunes ou interstitiels dans l'amas de type n . Dans cette région, une classe

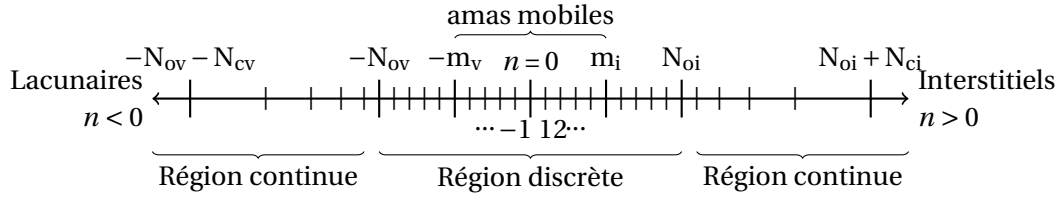


FIGURE 4.1 – Représentation de l'espace des amas.

correspond donc à une unique taille d'amas et pour obtenir l'évolution de la concentration en amas on résout une équation appelée équation maitresse. Les régions $[-N_{ov} - N_{cv}; -N_{ov} - 1]$ et $[N_{oi} + 1; N_{oi} + N_{ci}]$ sont des régions continues où une classe d'amas peut représenter plusieurs tailles d'amas. Pour les régions continues, il est utilisé une équation de Fokker-Planck, qui est discrétisée sur un maillage à pas variable, afin de réduire le nombre d'équations et par conséquent le temps de calcul. On montre que cette équation est équivalente à l'équation maitresse pour les grandes tailles d'amas. Pour plus d'information le lecteur peut se référer à la note technique ou la publication suivantes [JOURDAN et ADJANOR, 2015; JOURDAN et collab., 2016]. Les équations présentées par la suite sont pour la région discrète.

Les lacunes et les interstitiels formés par l'irradiation et mobiles peuvent par la suite soit se recombinaison, soit former des amas, soit être absorbés par des puits (joints de grains, dislocations, cavités, précipités, ...). L'évolution des amas est pilotée par l'absorption et l'émission de défauts.

4.1.1.1 Amas immobiles

L'évolution de la concentration des amas de type n immobiles est régie par un terme source dû à l'irradiation, ainsi que quatre termes relatifs l'émission et l'absorption de défauts mobiles m . L'évolution des défauts immobiles est régie par l'équation maitresse suivante;

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in M} J_{n-m, n} - \sum_{m \in M} J_{n, n+m} + G_n, \quad (4.1)$$

avec :

- M : l'ensemble des amas mobiles,
- G_n : le terme source de production sous irradiation d'amas n ,
- $J_{n, n+m}$: le flux net d'amas de taille n passant à la classe $n + m$, par l'absorption d'un amas mobile m .

Ce flux correspond à la différence entre la production des amas $n + m$ par l'absorption d'un amas m par l'amas n et la disparition des amas de type $n + m$ par l'émission d'amas de taille m ,

$$J_{n, n+m} = \underbrace{\beta_{n, m} C_n C_m}_{\text{absorption}} - \underbrace{\alpha_{n+m, m} C_{n+m}}_{\text{émission}}. \quad (4.2)$$

Le coefficient d'absorption $\beta_{n, m}$ s'écrit sous la forme :

$$\beta_{n, m} = 4\pi D_m Z_{n, m} r_{n, m}, \quad (4.3)$$

et le coefficient d'émission $\alpha_{n+m,m}$,

$$\alpha_{n+m,m} = \frac{\beta_{n,m}}{V_{\text{at}}} \exp\left(-\frac{F_{n+m,m}^{\text{B}}}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (4.4)$$

Dans ces expressions les termes sont définis tels que :

- D_n : le coefficient de diffusion de l'amas n ,
- $Z_{n,m}$: le facteur d'efficacité d'absorption de l'amas mobile m par l'amas n , permettant la prise en compte des interactions élastiques sur la diffusion,
- $F_{n+m,m}^{\text{B}}$: l'énergie de liaison des amas n aux amas $n+m$,
- V_{at} : le volume atomique,
- k_{B} : la constante de Boltzmann,
- T : la température,
- $r_{n,m}$: la distance d'interaction entre les amas n et m .

La distance d'interaction $r_{n,m}$ prend différentes formes selon les types d'amas n et m (voir section 4.1.4.3). En particulier dans le cas d'une mono-lacune et d'un mono-interstitiel la distance d'interaction $r_{-1,1}$ prend la valeur r_{iv} qui est le rayon de recombinaison donné en entrée du code.

4.1.1.2 Amas mobiles

Si les amas sont mobiles, alors ils peuvent disparaître par diffusion aux puits (joints de grains, dislocations, surfaces, précipités) et interagir avec d'autres amas mobiles ou immobiles. Pour décrire l'évolution de la concentration des amas mobiles, deux termes sont alors ajoutés à l'équation maîtresse 4.1 qui devient,

$$\frac{dC_n}{dt} = \sum_{m \in \text{M}} J_{n-m,n} - \sum_{m \in \text{M}} J_{n,n+m} + G_n - \underbrace{\sum_{m \in \Omega} J_{m,n+m}}_{\text{Absorption du défaut mobile } n \text{ par tous les amas}} - \underbrace{\sum_j k_{j,n}^2 D_n (C_n - \bar{C}_{n,j})}_{\text{Disparition aux puits}}. \quad (4.5)$$

Termes induits par la mobilité des amas

Où,

- j : le type de puits (dislocations, joints de grains, ...),
- Ω : la région contenant tous les amas,
- $k_{j,n}^2$: est la force du puits de type j pour l'amas n ,
- $\bar{C}_{n,j}$: concentration d'équilibre thermique locale au niveau du puits j . Pour une dislocation droite ou une surface plane il s'agit de la concentration d'équilibre thermique notée :

$$C_n^{\text{eq}} = \exp\left(\frac{-E_n^f}{k_{\text{B}}T}\right) \frac{1}{V_{\text{at}}}$$

Où, E_n^f est l'énergie de formation de l'amas n .

La mobilité des amas induit l'ajout de deux termes dans l'équation maîtresse. Le premier correspond au flux net d'amas mobiles dû à l'absorption ou l'émission d'un amas mobile m par un amas n . Le second décrit la possibilité pour un amas n de disparaître

aux différents puits de type j présents dans la microstructure. Les puits sont décrits par leur force pour absorber des interstitiels ou des lacunes (les forces de puits sont détaillées dans la section 4.1.4.3). Pour rappel, dans cette étude, seuls les mono-défauts sont considérés comme mobiles. Les équations présentées jusque ici ne permettent pas de reproduire les saturations observées pour les boucles de Frank ainsi que l'évolution du réseau de dislocations, des modifications sont alors nécessaires.

4.1.2 Évolution du réseau de dislocations

Il est connu que les boucles suffisamment grandes peuvent interagir avec le réseau de dislocations ou d'autres boucles [GELLES, 1981]. Les boucles s'incorporent dans le réseau de dislocations provoquant une augmentation de la densité ainsi que des saturations en taille et densité des boucles de Frank. L'annihilation des dislocations compense l'évolution de taille et permet d'atteindre un régime stationnaire de la densité du réseau [BRAGER et collab., 1977].

4.1.2.1 Incorporation des boucles de Frank dans le réseau de dislocations

Afin de prendre en compte des interactions entre boucles de Frank et le réseau de dislocations parfaites, il est inséré au code de dynamique d'amas un modèle d'incorporation des boucles de Frank au réseau de dislocations. L'incorporation des boucles au réseau de dislocations permet de rendre plus physique l'évolution des boucles de Frank en les empêchant de grossir indéfiniment. Pour cela, il est considéré qu'une fraction du flux de la classe $n - m$ à la classe n , lors de la croissance des boucles, est incorporée au réseau de dislocations [JOURDAN, 2015; JOURDAN et ADJANOR, 2015].

Il est possible de réécrire l'équation maîtresse afin de mettre en avant les flux nets permettant la croissance des amas interstitiels, avec l'absorption d'un amas mobile :

$$\begin{aligned} \frac{dC_n}{dt} &= \sum_{m \in M} J_{n-m,n} - \sum_{m \in M} J_{n,n+m} \\ &= \underbrace{\sum_{\substack{m \in M \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in M \\ m \leq -1}} J_{n,n+m}}_{\text{Flux net de croissance vers les amas de taille } n} + \sum_{\substack{m \in M \\ m \leq 0}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in M \\ m \geq 0}} J_{n,n+m}. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Comme une partie du flux vers les grandes tailles peut s'incorporer au réseau de dislocations l'équation précédente s'écrit alors :

$$\frac{dC_n}{dt} = (1 - f_n(\rho_t)) \left[\sum_{\substack{m \in M \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in M \\ m \leq -1}} J_{n,n+m} \right] - \sum_{m \in M} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in M \\ m \geq 0}} J_{n,n+m}. \quad (4.7)$$

Dans cette équation, $f_n(\rho_t)$ est la fraction du flux qui s'incorpore et ρ_t est la densité totale de dislocations (boucles et réseau). Le réseau de dislocation va alors se densifier. En considérant qu'une boucle de rayon r_n lors de son incorporation fournit une ligne de dislocation d'une longueur de $2\pi r_n$, il est possible d'écrire la variation de la densité du réseau de dislocations, vis-à-vis de l'incorporation des boucles dans le domaine discret, sous la forme :

$$\left. \frac{d\rho}{dt} \right|_i = \sum_{\substack{n \\ n > 0}} f_n(\rho_t) \left[\sum_{\substack{m \in M_v \\ m \geq 1}} J_{n-m,n} - \sum_{\substack{m \in M \\ m \leq -1}} J_{n,n+m} \right] 2\pi r_n \quad (4.8)$$

La fraction de boucles s'incorporant dans le réseau ($f_n(\rho_t)$) va dépendre de la distance moyenne inter-dislocations $h_m = 2/\sqrt{\pi\rho_t}$, ainsi que d'un paramètre (σ_d) représentant la non homogénéité de la distribution de dislocations dans l'espace, et d'un paramètre h_{\min} correspondant à la distance minimale possible entre deux dislocations. Dans l'étude, il est considéré que h_{\min} est égale à la norme du vecteur de Burgers. La fraction de boucles de taille n s'incorporant au réseau s'écrit alors :

$$f_n(\rho_t, \sigma_d) = 1 - \frac{\operatorname{erfc}\left(\frac{2r_n - h_m}{\sqrt{2}\sigma_d}\right)}{\operatorname{erfc}\left(\frac{h_{\min} - h_m}{\sqrt{2}\sigma_d}\right)}. \quad (4.9)$$

Pour les grandes boucles (n grand) la fraction tend vers 1 alors que pour les petites boucles celle-ci tend vers 0. Ceci représente bien le fait que les grandes boucles s'incorporent plus facilement au réseau de dislocations.

4.1.2.2 Annihilation des dipôles de dislocations

Les dislocations peuvent monter et s'annihiler par l'absorption et l'émission de défauts ponctuels. La vitesse de montée, v_c , des dislocations peut s'écrire avec une équation prenant en compte une composante d'irradiation et une composante thermique, respectivement V_r et V_t :

$$v_c(h_m) = \left| V_r + V_t \left[\exp\left(\frac{Hb}{h_m}\right) - 1 \right] \right|, \quad (4.10)$$

avec,

$$\begin{aligned} V_r &= \frac{V_{\text{at}}}{b} \sum_{n \in \mathcal{M}} n Z_n D_n (C_n - C_n^{\text{eq}}), \\ V_t &= \frac{V_{\text{at}}}{b} \sum_{\substack{n \in \mathcal{M} \\ n < 0}} |n| Z_n D_n C_n^{\text{eq}}. \end{aligned} \quad (4.11)$$

Dans cette expression, C_n^{eq} est la concentration à l'équilibre thermique d'auto-défauts proche d'une dislocation et H un paramètre dépendant du champ de contraintes induit par la dislocation de vecteur de Burgers b (module de cisaillement μ et coefficient de Poisson ν) :

$$H = \frac{\mu V_{\text{at}}}{2\pi(1-\nu)k_B T}. \quad (4.12)$$

La variation de la densité de dislocations par annihilation peut s'écrire

$$\left. \frac{d\rho}{dt} \right|_a = -c_{cl} \frac{\rho}{\tau_a(\rho)}, \quad (4.13)$$

avec

$$\tau_a(h_m) = \frac{h_m - b}{2V_r} - \frac{V_t}{2V_r^2} H b \ln \left(\frac{\frac{V_r h_m}{V_t H b} + 1}{\frac{V_r b}{V_t H b} + 1} \right). \quad (4.14)$$

La constante c_{cl} peut être ajustée, par exemple sur des expériences de restauration de dislocations ou sur des expérience sous irradiation. L'évolution de la densité de dislocations du réseau est donc donnée par la contribution de l'incorporation des boucles de Frank ainsi que par la contribution de l'annihilation des dislocations suite à leur montée.

$$\frac{d\rho}{dt} = \left. \frac{d\rho}{dt} \right|_i + \left. \frac{d\rho}{dt} \right|_a \quad (4.15)$$

4.1.3 Dépendance spatiale

Lors d'irradiations aux ions, le profil de dommage (et donc l'évolution de la microstructure) n'est en général pas homogène. La possibilité d'évolution spatiale est donc nécessaire. On suppose encore que la microstructure est localement homogène ce qui justifie l'utilisation d'une approche en dynamique d'amas, mais il est ajouté un terme de Fick en profondeur afin de permettre la diffusion des espèces mobiles dans la direction z de la profondeur.

L'évolution avec le temps et la profondeur des défauts est alors gouvernée par l'équation :

$$\frac{\partial C_m(z, t)}{\partial t} = \underbrace{R_{\text{modèle},m}(z, C(z, t))}_{\text{Evolution des défauts à une profondeur } z} - \underbrace{\frac{\partial J_d(z, t)}{\partial z}}_{\text{Diffusion des défauts suivant } z}. \quad (4.16)$$

Pour résoudre l'équation aux dérivées partielles, l'échantillon est discrétisé en tranches successives (figure 4.2) dans lesquelles l'irradiation et le matériau sont supposés homogènes. L'épaisseur (h_k) des tranches situées entre les abscisses z_k et z_{k+1} est décidée par l'utilisateur ainsi que l'épaisseur w_{foil} de l'échantillon. Il est résolu le modèle d'équations différentielles ($R_{\text{modèle},m}$) présentées précédemment dans chacune des tranches. Afin d'assurer la mobilité des défauts, entre chacune des tranches, un couplage par une loi de Fick est ajouté.

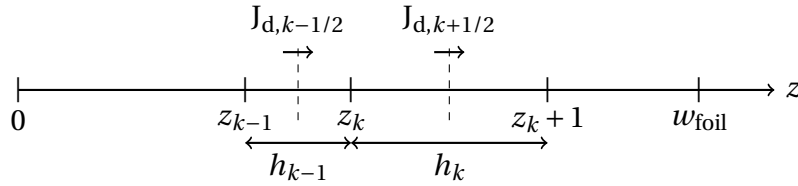


FIGURE 4.2 – Schéma du découpage spatiale.

L'évolution de la concentration des défauts mobiles dans la tranche k s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \frac{dC_{m,k}}{dt} &= R_{\text{modèle},m,k}(C_k) - 2 \frac{J_{d,k+1/2} - J_{d,k-1/2}}{h_{k-1} + h_k} \\ &= R_{\text{modèle},m,k}(C_k) - \frac{2}{h_{k-1} + h_k} \left(D_{m,k+1/2} \frac{C_{m,k+1} - C_{m,k}}{h_k} - D_{m,k-1/2} \frac{C_{m,k} - C_{m,k-1}}{h_{k-1}} \right). \end{aligned} \quad (4.17)$$

Enfin, aux extrémités de l'échantillon, il est appliqué des conditions aux limites de Neumann ou de Dirichlet. Si on considère un système fermé les conditions de Neumann sont utilisées, le flux de défauts est nul à la surface. Pour un système ouvert, un flux de défauts à la surface est alors possible, on utilise les conditions de Dirichlet. Pour cette dernière, il est alors considéré que la concentration d'amas de défauts à la surface est égale à la concentration d'équilibre thermique.

4.1.4 Paramètres régissant le modèle

La formation des cavités et boucles de Frank est régie par un certain nombre de paramètres relatifs aux amas et aux défauts mobiles.

4.1.4.1 Les énergies de formation

Les énergies de formation des lacunes et des interstitiels sont des paramètres d'entrée du code CRESCENDO. Leur effet se retrouve dans l'expression des énergies de liaison qui sont des paramètres influençant les coefficients d'émission $\alpha_{n+m,m}$ dans l'équation 4.4. Les énergies de formation influent aussi sur les concentrations à l'équilibre $\bar{C}_{n,j}$ intervenant dans l'équation maîtresse pour les amas mobiles (Eq. 4.5).

Amas lacunaires Les cavités sont des amas lacunaires supposés sphériques, leur énergie de formation dépend du nombre de lacunes. On utilise une loi « capillaire » [FU et collab., 2005] qui donne une énergie de formation de la forme,

$$E_n^f = E_{-1}^f + \frac{E_{-1}^f - E_{-2,-1}^b}{2^{\frac{2}{3}} - 1} (|n|^{\frac{2}{3}} - 1) \quad (4.18)$$

Avec, comme paramètres d'entrée du code,

- E_{-1}^f : l'énergie de formation d'une lacune,
- $E_{-2,-1}^b$: l'énergie de liaison d'une lacune à une bi-lacune.

Amas interstitiels Pour les amas interstitiels (boucles de Frank), leur forme est supposée être un disque. L'énergie de formation est la suivante :

$$E_n^f = 2\pi r_n \frac{\mu b_{\perp}^2}{4\pi(1-\nu)} \left[\ln\left(\frac{r_n}{r_c}\right) - 1 \right] + 2\pi r_n \frac{2-\nu}{2(1-\nu)} \frac{\mu b_{//}^2}{4\pi} \left[\ln\left(\frac{r_n}{r_c}\right) - 2 \right] + \gamma \pi r_n^2. \quad (4.19)$$

- b_{\perp} : la composante du vecteur de Burgers orthogonale au plan de la boucle de dislocation,
- $b_{//}$: la composante du vecteur de Burgers dans le plan de la boucle de dislocation,
- r_n : le rayon de l'amas,
- r_c : un paramètre qui peut être ajusté pour tenir compte du fait que les contributions de cœur ne sont pas prises en compte dans cette expression,
- γ : l'énergie de faute d'empilement dans le cadre d'une boucle fautée,
- ν : le coefficient de Poisson,
- μ : le module de cisaillement.

Dans le cas des boucles de Frank la composante $b_{//}$ est nulle, l'équation de l'énergie de formation peut être simplifiée :

$$E_n^f = 2\pi r_n \frac{\mu b_{\perp}^2}{4\pi(1-\nu)} \left[\ln\left(\frac{r_n}{r_c}\right) - 1 \right] + \gamma \pi r_n^2 \quad (4.20)$$

Une modification de l'énergie de formation d'une lacune ou d'un interstitiel va induire une modification des énergies de liaisons des amas mono-défauts.

4.1.4.2 La diffusion et migration des défauts ponctuels

La diffusion des amas, qu'ils soient lacunaires ou interstitiels, est régie par la loi suivante :

$$D_n = D_n^0 \exp\left(-\frac{E_n^m}{k - BT}\right) \quad (4.21)$$

Avec :

- D_n^0 : le préfacteur de diffusion de l'amas de type n ,
- E_n^m : l'énergie de migration de l'espèce n .

Afin de considérer un amas comme immobile le coefficient de diffusion est fixé à zéro.

4.1.4.3 Les puits

Les puits sont des éléments de la microstructure (dislocations, joints de grain, surfaces) qui permettent d'éliminer ou de produire les défauts mobiles. Il n'est pour l'instant pas traité le cas des précipités comme puits. Les puits, de types " j ", sont caractérisés par leur force de puits $k_{j,m}^2$, qui donne leur capacité à absorber des amas lacunaires ou interstitiels. Dans cette étude, les puits considérés sont les dislocations et les surfaces lorsqu'elles sont présentes. Les joints de grains ne sont pas pris en compte, car la taille des grains (50-100 μm) est très grande devant la taille de la zone irradiée (2,5 μm).

Les dislocations La force de puits des dislocations linéaires s'écrit sous la forme :

$$k_{d,m}^2 = \rho_d Z_{d,m} \quad (4.22)$$

Avec :

- ρ_d la densité de dislocations,
- $Z_{d,m}$ l'efficacité d'absorption du défaut m par les dislocations.

Concernant les boucles de Frank, qui correspondent aux amas interstitiels non mobiles ($n > 1$), l'efficacité d'absorption ($Z_{n,m}$), qui permet de prendre en compte les interactions élastiques d'amas mobiles $m = \{-1, 1\}$, apparaît dans l'expression du coefficient d'absorption (Eq. 4.3) où elle est multipliée par le rayon d'interaction $r_{n,m}$. Il est utilisé le rayon d'interaction proposé par Seeger et Gösele [SEEGER et GÖSELE, 1977], défini par :

$$r_{n,m} = \max\left(\frac{\pi r_n}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}, \frac{1}{2} r_n\right), \quad (4.23)$$

Avec r_p un rayon autour du cœur de la dislocation dans lequel les défauts s'annihilent directement sur la boucle de Frank, $r_p = 2b$ [JOURDAN, 2015], et r_n le rayon de la boucle de Frank. Il est considéré deux termes dans l'équation 4.23, la partie $\frac{\pi r_n}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_p}\right)}$ tient compte de la géométrie toroïdale de la boucle. Mais l'expression ne tend pas vers la bonne valeur quand r_n tend vers les très grandes tailles, il est donc inséré une condition sur le maximum pour que $r_{n,m}$ d'une grande boucle tende vers une ligne de dislocation pour les grandes tailles.

Autant deux amas de même nature (interstitiels ou lacunaires) peuvent être plus proches que la distance r_{iv} , autant deux amas de nature différente ne le peuvent pas. Il est donc considéré que si $Z_{n,m} r_{n,m} < r_{iv}$ et $n \cdot m < 0$ alors $Z_{n,m} \cdot r_{n,m} = r_{iv}$.

Afin de prendre en compte l'interaction élastique produite par les dislocations, une efficacité d'absorption différente pour les interstitiels et les lacunes est utilisée. On considère alors $Z_{n,m} = Z_i$ pour les amas mobiles interstitiels et $Z_{n,m} = Z_v$ pour les amas mobiles lacunaires. Les dislocations ont un effet différent sur les interstitiels et les lacunes. En effet, il existe un biais d'origine élastique qui induit que les interstitiels sont plus attirés que les lacunes. De manière générale, pour un puits « j », le biais B_j indique la différence d'absorption des interstitiels et des lacunes par le puits.

$$B_j = \frac{Z_i^j - Z_v^j}{Z_i^j} \quad (4.24)$$

Dans cette étude, les efficacités d'absorption utilisées pour les dislocations linéaires et pour les boucles de Frank sont considérées comme identiques, et impliquent des biais identiques pour les deux puits.

Les surfaces Les surfaces peuvent être considérées comme des puits lors des irradiations. Dans cette étude, l'effet de la surface a été expérimentalement observé sur des prélèvements par FIB d'échantillons le long du profil de dommage, d'autres études montrent aussi des effets de surfaces lors d'irradiations de lames minces [LE MILLIER, 2014; VOLGIN, 2012].

Afin de prendre en compte un éventuel effet de la surface il est simplement considéré une condition aux limites de type Dirichlet où la concentration en amas à la surface est celle à l'équilibre thermique.

4.1.4.4 Les cascades

Lors d'irradiations aux électrons, seules des paires de Frenkel sont créées. Les seuls défauts créés sont donc des mono-interstitiels et des mono-lacunes. Lors d'irradiations aux ions, au contraire des cascades plus ou moins importantes sont produites. Ces cascades entraînent la formation d'amas interstitiels et lacunaires contenant plusieurs interstitiels ou lacunes.

Du fait de l'approche en champ moyen, il n'est pas possible de prendre en compte explicitement d'éventuelles corrélations spatiales entre espèces mobiles. En toute rigueur, il n'est possible de traiter que des défauts répartis de manière homogène. En première approximation, c'est le cas quand les défauts issus de cascades ont eu le temps de migrer à suffisamment longue distance, on parle de défauts « libres de migrer » (FMD- Free Migrating Defects). Cela ne concerne qu'une portion du nombre de défauts créés dans les cascades (donnés par les codes de dommage comme SRIM), l'autre partie se recombinaison. Ceci est d'autant plus vrai pour les cascades produites par des PKA de forte énergie [AVERBACK et collab., 1978b], comme lors d'irradiations aux ions lourds. Pour prendre en compte les recombinaisons, le taux de dommage calculé par SRIM (dans notre cas) doit être multiplié par un facteur d'efficacité de cascades (η) inférieur à un.

$$g(z) = \eta * g_{SRIM}(z) \quad (4.25)$$

Puisque les cascades produites par les ions lourds (en plus de former de mono-défauts) forment aussi des amas lacunaires ou interstitiels de tailles n , il est donc nécessaire de préciser en quelle proportion ces amas sont produits. Chaque amas de taille n est caractérisé par la fraction des lacunes/interstitiels totale contenue dans cette famille d'amas f_n

tel que :

$$G_n(z) = f_n \frac{g(z)}{|n|} \text{ avec } \sum nG_n = 0 \quad (4.26)$$

Enfin, lors des irradiations aux ions, les particules incidentes vont s'implanter dans le matériau. Cette implantation peut modifier l'équilibre de création des lacunes et interstitiels. Afin de la prendre en compte, l'équation 4.25 est modifiée. Elle reste la même pour les lacunes mais il est ajouté un terme δg correspondant aux taux d'implantation dans la zone d'étude. La condition $\sum nG_n = 0$ n'est alors plus vérifiée car les interstitiels injectés n'ont pas d'équivalents lacunaires.

$$\begin{aligned} g_{n<0}(z) &= \eta * g_{\text{SRIM}}(z) \\ g_{n>0}(z) &= \eta * g_{\text{SRIM}}(z) + \delta g(z) \end{aligned} \quad (4.27)$$

Si la quantité δg est bien connue (elle est liée au flux d'implantation), il n'en est pas de même pour les quantités η et f_n . Si une banque de cascades et un paramétrage cinétique existent, il est possible d'obtenir ces paramètres à partir de procédures d'homogénéisation [JOURDAN et CROCOMBETTE, 2012]. Malheureusement ce n'est pas le cas pour le matériau envisagé.

4.1.4.5 Les paramètres d'irradiation

Les paramètres d'irradiation modifiables afin de reproduire les expériences sont récapitulés dans le tableau 4.1. Une plage de valeur observée dans la littérature pour les aciers austénitiques, 304 et 316, est donnée pour chacun d'eux.

TABLEAU 4.1 – Paramètres d’entrée ainsi que les plages de valeurs utilisées dans la littérature d’après les synthèses de Jourdan, Pokor, Zouari [JOURDAN, 2015; JOURDAN et collab., 2014; POKOR et collab., 2004a; ZOUARI, 2012].

Paramètres	Description	Plages de Valeurs	Unités
a_0	Paramètre de maille	3,639	Å
ρ_0	Densité initiale de dislocations	Hyp : 10^8 Ecr : 10^{11}	cm^{-2}
η	Coefficient correctif de recombinaison	0,1-0,4	-
m_i	Plus grand amas interstitiel mobile	1	-
m_v	Plus grand amas lacunaire mobile	1	-
$D_{1,0}^0$	Pré-facteur de diffusion d’un mono-interstitiel	$8 \cdot 10^{-2}$	$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
D_{-1}^0	Pré-facteur de diffusion d’une mono-lacune	$8 \cdot 10^{-1}$	$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
E_1^m	Énergie de migration des mono-interstitiels	0,4-0,85	eV
E_{-1}^m	Énergie de migration des mono-lacunes	1,1-1,4	eV
E_1^f	Énergie de formation des mono-interstitiels	4-5	eV
E_{-1}^f	Énergie de formation des mono-lacunes	1,6-2	eV
$E_{2,1}^b$	Énergie de liaison de deux interstitiels	0,5-1,35	eV
$E_{-2,-1}^b$	Énergie de liaison de deux lacunes	0,2-0,5	eV
c_{cl}	Constante du taux d’annihilation des dipôles	0,1-100	-
σ_d	Écart type de la distribution de dislocations	0,1-0,6	-
Z_i	Efficacité d’absorption des interstitiels aux dislocations	1,1-1,2	-
Z_v	Efficacité d’absorption des lacunes aux dislocations	1	-
r_{iv}	Rayon de recombinaison des interstitiels et lacunes	4-6,5	Å
$f_i(n)$	Fraction des interstitiels totaux dans les amas n		
$f_v(n)$	Fraction des lacunes totales dans les amas n		

4.2 Évolution de la microstructure avec la dose à 450°C dans le 304L

Il a été observé dans la partie expérimentale que les irradiations aux ions n’étaient pas homogènes dans l’espace. En plus d’une variation du débit de dose avec la profondeur, des effets de surface ou d’interstitiels injectés ont été notés. Il a aussi été observé des différences microstructurales induites par les différences de composition chimique entre les matériaux.

Dans cette partie, il est obtenu un jeu de paramètres permettant de reproduire, à 450 °C, l’évolution avec la dose de la microstructure dans le 304L, pour la zone d’étude (650-850 nm sous la surface), où les effets de surface et d’interstitiels injectés peuvent être négligés.

4.2.1 Paramétrisation

Dans un premier temps, afin d’établir un jeu de paramètres permettant de reproduire l’évolution de la microstructure sous irradiation avec la dose, il a été considéré un cas simple. On considère un système homogène sans surface (débit de dose unique et conditions de Neumann aux bords).

Dans ce système, les paramètres de taux de dommage sont identiques à ceux pour une zone d’irradiation située entre 650 et 850 nm sous la surface calculés par SRIM.

Pour que le choix du jeu de paramètres soit considéré comme bon, il doit permettre

de reproduire les évolutions de défauts (saturation des boucles de Frank et évolution des cavités) mais doit aussi reproduire au mieux la distribution des défauts.

Le choix de certains paramètres a été fait tels qu'ils correspondent à des valeurs mesurées expérimentalement et disponibles dans la littérature, les autres ont été ajustés proches de valeurs obtenues par simulation.

Il est rappelé que pour les simulations, il est considéré que seuls les mono-défauts sont mobiles. Les coefficients de diffusion et énergies de migration ainsi que l'énergie de formation des lacunes ont été choisis en accord avec des données expérimentales [DIMITROV et collab., 1987].

Dans la zone d'intérêt le débit de dose est d'environ $5,6 \cdot 10^{-4}$ dpa.s⁻¹. Les irradiations aux ions permettent la création d'amas directement dans la cascade. Afin de simplifier la paramétrisation, il est considéré qu'une seule taille d'amas lacunaires ou interstitiels est créée dans la cascade, en plus des mono-défauts. Il est connu que l'efficacité des cascades, c'est-à-dire la proportion de défauts restant à la fin d'une cascade et pouvant participer à l'évolution de la microstructure, dépend de l'énergie du premier atome déplacé [AVERBACK et collab., 1978b; KINNEY et collab., 1984]. Les mêmes auteurs, à très basse température, typiquement 4 K, proposent une efficacité décroissante avec l'énergie du PKA et qui tend vers 25-30 % aux fortes énergies. À plus haute température, la diffusion sur de plus longue distance est activée. Un plus grand nombre de recombinaisons peuvent alors avoir lieu ainsi que des recombinaisons avec les amas formés dans des cascades voisines. Rehn propose des efficacités de cascades pour des températures supérieures à 350 °C de l'ordre du pourcent pour des PKA d'énergies supérieures à 10 keV dans des alliages binaires Cu-Au et Ni-Si [REHN, 1990]. Plus récemment, une autre étude propose une efficacité de cascades de 1 % dans le cuivre irradié à 350 °C aux ions krypton (1 MeV) [MAO et collab., 2015]. Dans notre étude il sera donc utilisé une efficacité de cascades, η , de 1 %.

Un jeu de paramètres, présenté dans le tableau 4.2, a été obtenu à partir de données de la littérature ainsi qu'en modifiant certains paramètres dans le but de reproduire les évolutions de cavités et de boucles de Frank. Ce jeu de paramètres a été obtenu manuellement par modifications successives des paramètres d'entrée du code. Il était nécessaire que les saturations observées expérimentalement des boucles de Frank soient correctement reproduites par dynamique d'amas tant sur l'évolution que sur les diamètres moyens atteints. Les évolutions et valeurs des diamètres et densités des cavités jusqu'à environ 40 dpa devaient aussi être en accord avec les données expérimentales. Il est toléré un écart pour la taille et la densité des cavités à 100 dpa, car il a été observé expérimentalement une forte précipitation de carbures pouvant modifier la germination et la croissance des cavités. Parallèlement, les distributions des cavités et des boucles de Frank à 5 et 40 dpa étaient vérifiées et comparées à celles mesurées expérimentalement.

TABEAU 4.2 – Jeu de paramètres utilisé pour les modélisations par dynamique d’amas avec le code CRESCENDO.

Paramètres	Valeurs	Unités	Références
a_0	3,639	Å	Cette étude
ρ_0	$4 \cdot 10^9$	cm^{-2}	Cette étude (moyenne 304-304L)
η	0,01	-	[MAO et collab., 2015; REHN, 1990]
D_1^0	$4 \cdot 10^{-6}$	$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	[DIMITROV et collab., 1987]
D_{-1}^0	10^{-4}	$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	[DIMITROV et collab., 1987]
E_1^m	0,87	eV	[DIMITROV et collab., 1987]
E_{-1}^m	1,2	eV	[DIMITROV et collab., 1987]
E_1^f	4	eV	
E_{-1}^f	2	eV	[DIMITROV et collab., 1987]
$E_{2,1}^b$	1,3	eV	Ajusté
$E_{-2,-1}^b$	0,45	eV	Ajusté
c_{cl}	100		Ajusté
σ_d	0,3		Ajusté
Z_i	1,07		Ajusté
Z_v	1		
r_{iv}	6,35	Å	
$f_1(5)$	$4,5 \cdot 10^{-5}$		Ajusté
$f_{-1}(-9)$	$3 \cdot 10^{-4}$		Ajusté

4.2.2 Résultats et discussion

Les évolutions des défauts (boucles de Frank, cavités, dislocations et gonflement) obtenues en dynamique d’amas avec le jeu de paramètres optimaux (tab. 4.2) sont données en figure 4.3.

L’évolution de ces défauts, avec la dose, obtenue en dynamique d’amas avec le jeu de paramètres déterminé est de manière générale en très bon accord avec l’évolution expérimentale.

La dynamique d’amas reproduit bien l’évolution rapide de la microstructure de boucles de Frank lors des premiers dpa, puis le régime de saturation observé pour la taille et la densité des boucles. Il est à noter le très bon accord avec les valeurs, la taille moyenne et la densité à saturation étant presque identiques entre l’expérience et la simulation.

Concernant la microstructure de cavités, il est reproduit l’évolution de la densité avec la dose. L’évolution du diamètre moyen est correctement reproduite jusqu’à une dose d’environ 40 dpa. Au-delà de cette dose, le diamètre moyen obtenu par simulation s’éloigne de l’expérience. À 100 dpa l’écart est important, cet écart entre l’expérience et la simulation était prévisible. En effet, dans le 304L, pour des doses supérieures à 40 dpa une précipitation de carbures est présente en particulier à 100 dpa où une présence en très forte quantité a été constatée. Il a été montré dans la partie expérimentale que la précipitation induit l’apparition de petites cavités en association avec des carbures. La précipitation n’étant pas modélisée dans ces calculs de dynamique d’amas, son effet sur la microstructure en tant que puits ou site de germination n’est donc pas pris en compte. On peut penser que la simulation décrit l’évolution de la microstructure, qui aurait été observée en l’absence de précipitation aux fortes doses.

De même que pour la taille des cavités, le gonflement jusqu’à 40 dpa admet des valeurs similaires entre l’expérience et la simulation. Au-delà, étant donné que la taille moyenne calculée est beaucoup plus forte que celle obtenue expérimentalement et que le gonfle-

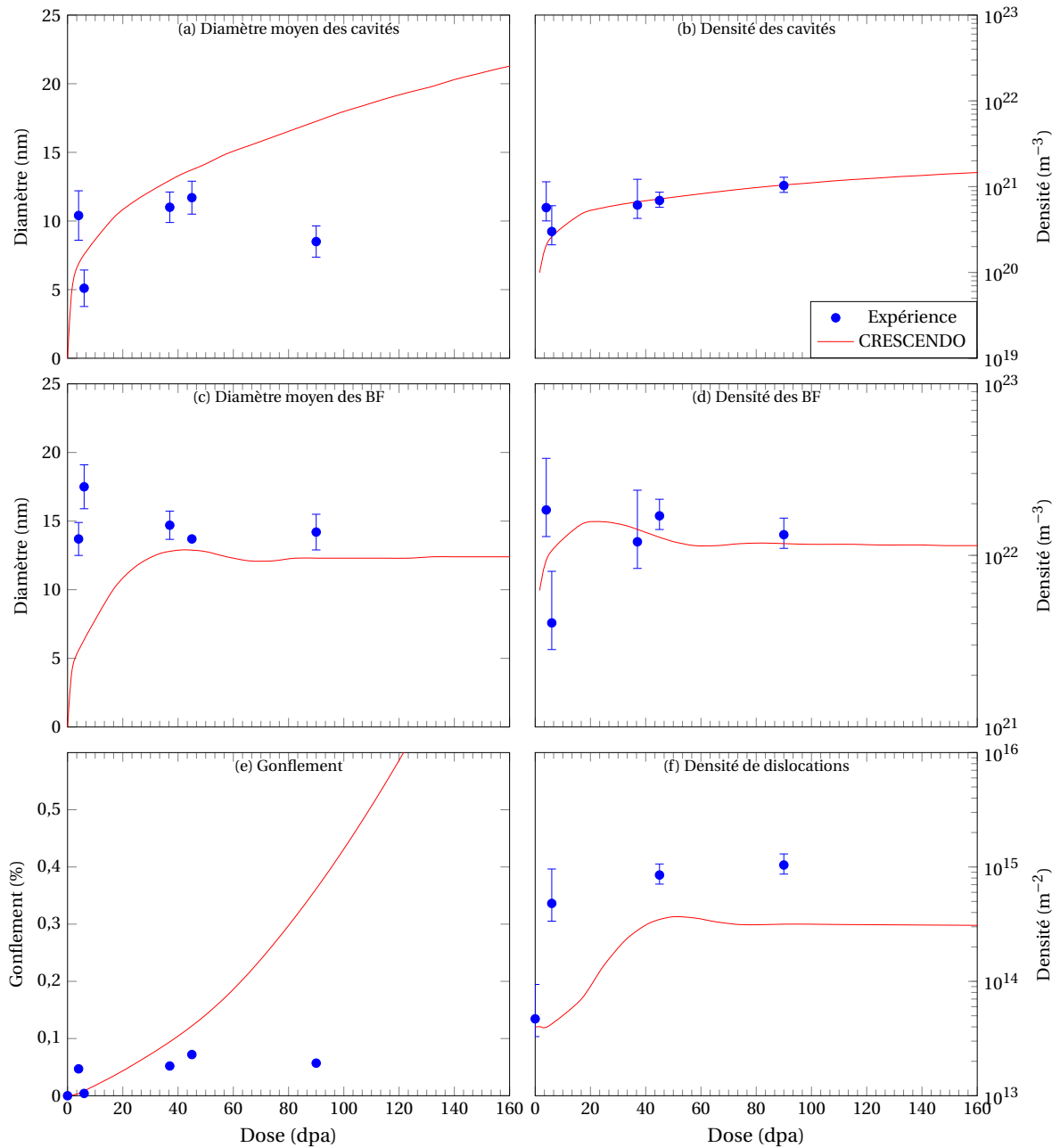


FIGURE 4.3 – Évolution avec la dose de la microstructure simulée par CRESCENDO dans le 304L-450 °C comparée aux données expérimentales.

ment est proportionnel au cube du diamètre, le gonflement s'écarte rapidement des données expérimentales.

L'évolution du réseau de dislocations est correctement reproduite, la saturation du réseau semble cependant être établie pour des doses plus fortes dans les résultats de modélisation qu'expérimentalement. Un écart en densité entre la simulation et l'expérience est visible. La simulation sous-estime la densité d'un facteur d'environ trois.

La figure 4.4 compare la distribution de cavités et de boucles de Frank obtenues expérimentalement et par simulation à 40 dpa. Les distributions obtenues par dynamique d'amas sont en accord avec l'expérience. Pour les deux types de défauts les densités simulées sont légèrement sur estimées.

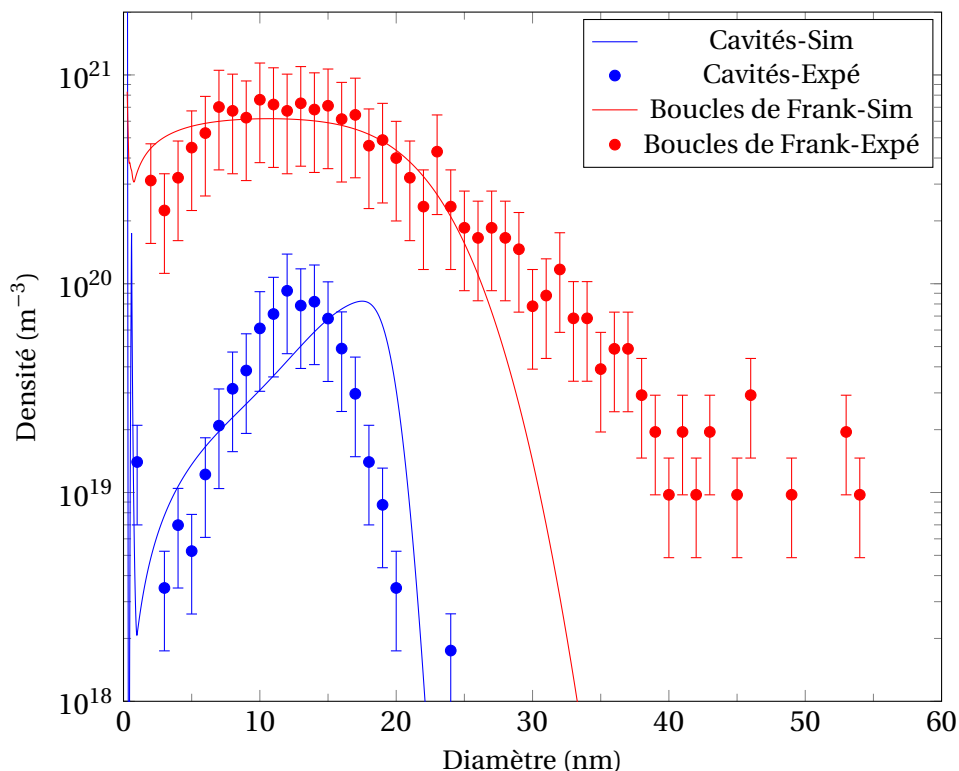


FIGURE 4.4 – Distributions obtenues expérimentalement et par simulation pour les cavités et les boucles de Frank dans le 304L irradié à 450 °C-40 dpa.

On observe pour les boucles de Frank expérimentalement que la distribution est allongée vers les grandes tailles (sup. à 30 nm) tandis que par simulation la distribution est plus concentrée sur les boucles de tailles inférieures à 30 nm. Ceci s'explique par le modèle d'incorporation des boucles inséré dans CRESCENDO. En effet, expérimentalement il peut exister des zones légèrement moins denses en dislocations où certaines boucles vont pouvoir croître plus que la moyenne. En dynamique d'amas l'approche étant en champ moyen il ne peut a priori pas exister de zone plus ou moins dense en dislocations. Bien qu'un paramètre, σ_d , permette de prendre en compte une dispersion dans la distribution spatiale des dislocations, il n'est pas possible de parfaitement reproduire la distribution des boucles en taille et densité. Pour les cavités, un faible décalage de la distribution des cavités vers des tailles légèrement supérieures peut être relevé. Ceci résulte du fait que lors de la paramétrisation la taille moyenne des cavités obtenue à 40 dpa est déjà un peu supérieure à celle de l'expérience (fig .4.3).

4.2.3 Étude de sensibilité

À partir du jeu de paramètres établi précédemment, une étude de sensibilité a été menée afin de déterminer quels sont les paramètres influant fortement sur la microstructure pour la paramétrisation choisie.

La sensibilité S d'une grandeur Q vis-à-vis d'un paramètre p est définie par l'équation suivante :

$$S = \frac{\partial Q}{\partial p} * \frac{p}{Q}. \quad (4.28)$$

Le premier terme de la sensibilité est la dérivée de la grandeur en fonction du paramètre, le second permet d'adimensionner la sensibilité et de la rendre comparable aux autres sensibilités. La sensibilité calculée est alors locale pour une valeur de p donnée. Les sensibilités de plusieurs grandeurs (densité et taille des boucles de Frank et des cavités ainsi que le gonflement) ont été calculées pour de nombreux paramètres (énergies de formation, énergies de migration, énergies de liaison, efficacité de cascade, fraction d'amas créés dans les cascades, ...). Les sensibilités sont calculées à l'aide de la fonction de sensibilité du solveur CVODES utilisé par CRESCENDO pour intégrer les équations en temps.

La sensibilité des grandeurs aux paramètres est donnée en fonction de la dose, figure 4.5. On constate que la microstructure est très sensible à certains paramètres, tels que l'efficacité d'absorption des interstitiels aux dislocations (Z_i), le rayon de recombinaison (r_{iv}), les énergies de formation et de migration des lacunes (E_v^f et E_v^m). La microstructure est aussi sensible à d'autres paramètres dans une moindre mesure, l'énergie de migration des interstitiels (E_i^m), les énergies de liaisons (E_{-2}^b et E_2^b) et l'efficacité de cascades (η). Enfin une variation de certains paramètres impacte très peu la microstructure étudiée (E_i^f , σ_d , $f_j(n)$ et $c_{(cl,1)}$).

Il peut aussi être noté que la sensibilité n'est pas constante avec la dose jusqu'à 60 dpa, au-delà toutes les sensibilités se stabilisent. Les fortes variations lors des premiers dpa s'expliquent par le fait que le régime de saturation n'est pas atteint pour les boucles de Frank, expérimentalement et par simulation. Par dynamique d'amas, les saturations en taille et densité des boucles de Frank et du réseau de dislocations ne sont pas complètement atteintes pour une dose proche de 50 dpa. À fortes doses, la microstructure de dislocations est établie. Une variation de certains paramètres va seulement modifier la taille ou la densité des défauts. Lors des premiers dpa, au contraire les paramètres vont aussi influencer la cinétique, modifiant plus ou moins les taux de germination ou de croissance des défauts qui, par répercussion, aura aussi un impact sur la taille et densité des défauts. C'est pour cette raison que la sensibilité des paramètres n'est pas monotone avant 50 dpa.

Le paramètre d'efficacité d'absorption des interstitiels aux dislocations Z_i agit principalement sur la densité des cavités et augmente légèrement leur taille, ce qui résulte en une très forte augmentation du gonflement. Les effets sur la taille et la densité des boucles de Frank sont opposés mais limités. L'augmentation du nombre d'interstitiels absorbés aux dislocations va augmenter la sursaturation en lacune permettant aux cavités de nucléer. L'effet du Z_i sur la croissance des cavités est généralement constaté, plus rares sont, par contre, les études montrant l'effet de l'efficacité d'absorption des interstitiels aux dislocations sur la germination des cavités [JOURDAN, 2015].

L'effet d'une augmentation du rayon de recombinaison agit sur toutes les grandeurs. On observe une parfaite symétrie d'évolution entre la sensibilité des tailles et des densités. Une augmentation du rayon de recombinaison va favoriser la croissance des défauts

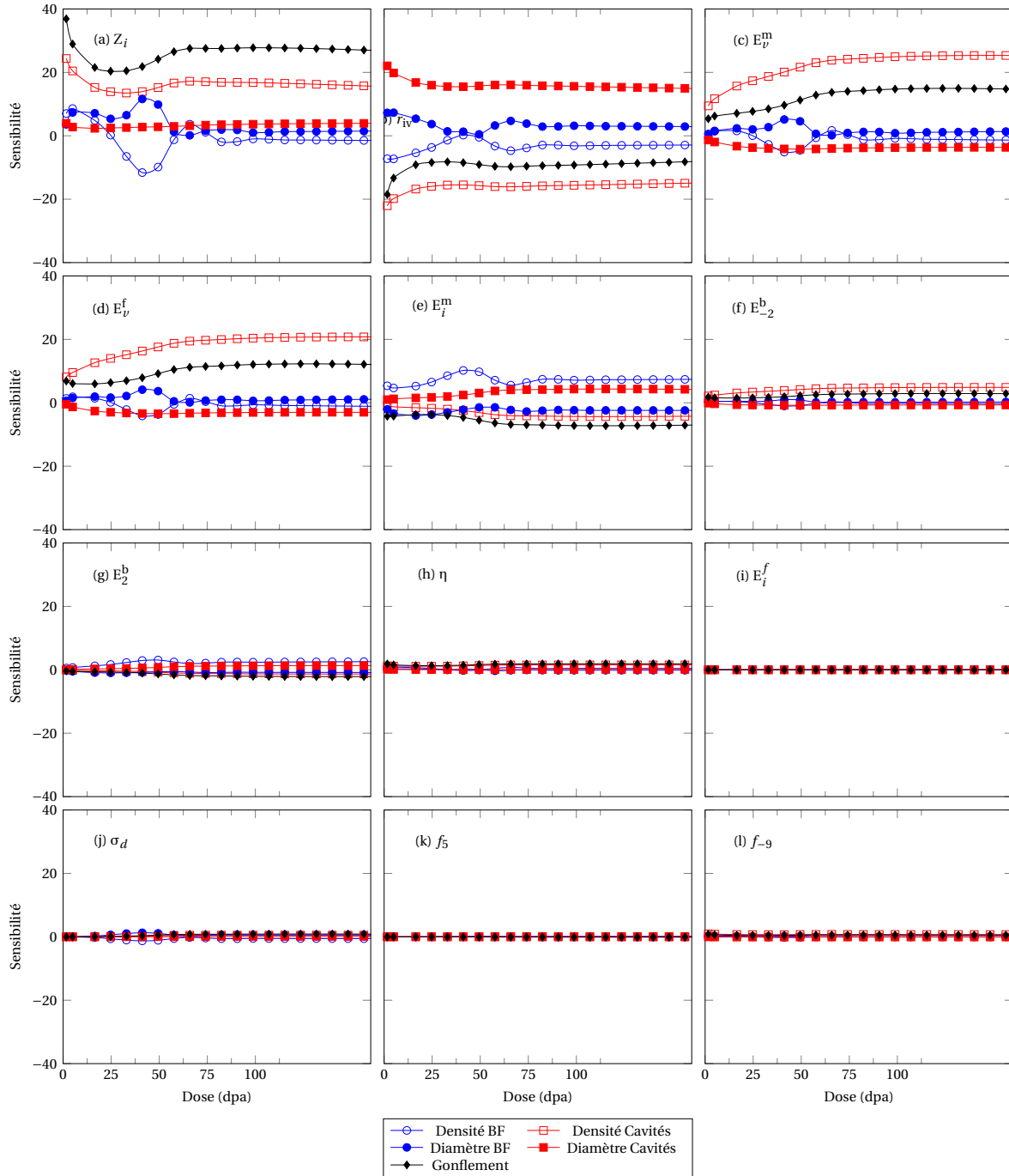


FIGURE 4.5 – Étude de sensibilité des densités et tailles des boucles de dislocations et des cavités par rapport aux paramètres du modèle de dynamique d'amas.

et diminuer leur densité. En effet, cela va favoriser la recombinaison des mono défauts réduisant ainsi leur concentration et par conséquent réduisant aussi le taux de germination des boucles ou des cavités au profit de leur croissance. Dans ce cas, l'augmentation de la taille des cavités ne permet pas de compenser la diminution de la densité, le gonflement va alors diminuer avec une augmentation de r_{iv} .

Des modifications des énergies de formation et de migration des lacunes vont avoir des effets similaires sur les différentes grandeurs de la microstructure. Une augmentation de l'énergie de formation (E_v^f) ou de migration (E_v^m) des lacunes va fortement favoriser la création de cavités et réduire leur taille. En effet, si l'énergie de formation des lacunes augmente, la stabilité de ces amas va augmenter et donc la taille critique de nucléation des cavités sera plus petite. Une augmentation de E_v^f va donc favoriser la germination de nombreuses petites cavités. Quant à l'énergie de migration des lacunes, une augmentation de celle-ci va réduire la mobilité des lacunes, provoquant une sursaturation plus importante en lacune. Cette augmentation de la concentration de lacunes se traduira par une forte germination de cavités. L'effet sur les boucles de Frank est moins marqué mais il en résultera une augmentation de la taille et une diminution de la densité des boucles.

Dans la partie expérimentale il avait été proposé que le carbone par la formation de complexes avec les lacunes réduisait la mobilité des lacunes et donc que cela pouvait être pris en compte par une augmentation de l'énergie de migration des lacunes. Cependant, l'étude de sensibilité montre bien que l'effet du carbone ne peut être réduit à une diminution de la mobilité des lacunes. En effet, réduire la mobilité des lacunes correspond à une augmentation de l'énergie de migration des lacunes et comme le montre l'étude de sensibilité ceci irait en faveur d'une augmentation du gonflement. Il semble donc que le mécanisme soit plus complexe.

Les atomes de carbone peuvent former des complexes V_nC_p avec des lacunes. Ces complexes immobiles deviennent alors des puits pour les défauts ponctuels. Si ces puits sont biaisés en faveur des lacunes, alors le flux de lacunes vers les complexes sera important et ils auront tendance à former des germes pour les cavités. Cette hypothèse ne paraît pas probable au vu des résultats expérimentaux. Si un flux suffisant d'interstitiels arrive aux complexes V_nC_p , les interstitiels vont se recombinaison avec les lacunes libérant alors le carbone qui pourra de nouveau former un complexe avec d'autres lacunes. Cette succession d'étapes (formation d'un complexe puis recombinaison des lacunes du complexe avec des interstitiels, puis formation d'un nouveau complexe, ...) permettrait en effet artificiellement de réduire la germination des cavités par une diminution de la densité de lacunes libres de diffuser, en résultant une diminution de la germination des cavités.

Pour prendre en compte l'effet du carbone en solution solide un modèle supplémentaire est nécessaire. Dans ce modèle une population de défauts (n, p) supplémentaires pourrait être insérée, décrite par n le nombre de lacunes dans le complexe et p le nombre d'atomes de carbone. Ces complexes considérés comme immobiles seraient alors des puits pour les défauts mobiles. L'interaction des lacunes avec un atome de carbone serait régie par l'énergie de liaison de la lacune à l'atome de carbone. Des résultats préliminaires prometteurs avaient déjà été obtenus lors d'un stage [CHARPAGNE, 2013].

L'énergie de migration des interstitiels E_i^m agit sur toutes les grandeurs de la microstructure avec des amplitudes similaires. Le diamètre des cavités et la densité des boucles de Frank augmentent tandis que le diamètre des boucles et la densité des cavités diminuent avec une augmentation du paramètre.

En conclusion, cette partie a permis d'établir un jeu de paramètres en accord avec les grandeurs physiques de la littérature. Ces paramètres permettent de reproduire cor-

rectement l'évolution de la microstructure avec la dose en considérant un modèle simple d'irradiation. Une étude de sensibilité a permis d'identifier les paramètres auxquels la microstructure est la plus sensible.

4.3 Effets propres des irradiations aux ions

Dans cette partie, le même jeu de paramètres que précédemment est utilisé. L'évolution du taux de dommage avec la profondeur obtenue dans le cas de nos irradiations est prise en compte. L'évolution de la microstructure avec la profondeur est décrite, l'effet de la surface et des interstitiels injectés lors d'irradiations aux ions est abordé.

4.3.1 Insertion du profil de dommage

Le fichier *cascades.cnf* définit le profil de dommage. Il permet d'implémenter le dommage et l'implantation des interstitiels injectés pour différentes profondeurs, obtenus par calculs SRIM. C'est aussi dans ce fichier que sont définis les types et la taille des amas créés directement dans la cascade en fonction de la profondeur. La grille de calcul du dommage de SRIM ne correspond pas forcément à celle de calcul de CRESCENDO. Le dommage est alors interpolé sur la grille de calcul donnée dans le fichier *grid.cnf*. Le pas de grille de calcul peut varier avec la profondeur. Il est considéré une grille de calcul de 50 μm de profondeur, cette valeur correspond environ à la taille d'un grain et est grande vis-à-vis de la profondeur irradiée (2,5 μm). Dans cette étude, la grille de calcul est composée de 25 pas constants puis 15 tranches en progression géométrique avec un pas de 1,4. Il a été choisi une évolution géométrique de l'épaisseur des tranches après la 25^{ème} car elles se situent alors en dehors du profil de dommage et la résolution spatiale peut être diminuée d'autant plus que l'on s'éloigne de la fin du profil. De plus les défauts mobiles ne migrent pas jusqu'à des profondeurs de 50 μm , leur concentration loin de la zone de dommage est négligeable et une baisse de résolution spatiale n'aura pas d'impact sur la qualité des calculs.

La figure 4.6 donne l'évolution du dommage avec la profondeur telle que le logiciel SRIM le calcule au facteur η près, il est aussi donné l'échantillonnage et le taux de dommage, interpolé par des splines (Akima), considéré pour chacune des tranches dans les dix premiers micromètres.

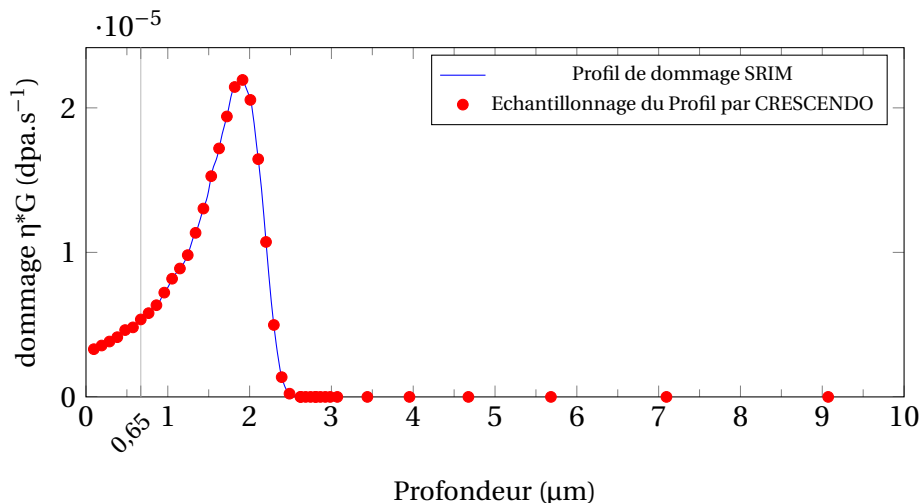


FIGURE 4.6 – Échantillonnage du profil SRIM.

Il est choisi une condition aux limites de Dirichlet pour les deux bords de l'échantillon, avec des concentrations de lacunes et d'interstitiels égales à leurs concentrations d'équilibre thermique.

Une première simulation est réalisée en ne considérant que le dommage (Simu. Profil sans II.). Il n'est pas pris en compte les interstitiels injectés, le terme δg de l'équation 4.27 est alors nul. Une seconde simulation prenant en compte le profil de dommage et les interstitiels injectés est aussi réalisée (Simu. Profil avec II.).

La figure 4.7 compare les trois calculs à 650 nm de profondeur, le calcul homogène et les deux calculs prenant en compte le profil de dommage. On constate que les évolutions des défauts d'irradiation avec la dose sont identiques pour les calculs prenant en compte le profil de dommage sans interstitiels injectés ou considérant un échantillon homogène. Ceci indique que dans cette zone le couplage avec la profondeur est faible et que la surface n'a pas d'effet à 650 nm. En comparant ces simulations à celle incluant les interstitiels injectés, aucune variation notable de densité ou de taille des défauts n'est visible à cette profondeur, les interstitiels injectés n'ont donc pas d'effet dans la zone d'intérêt, ce qui est cohérent avec le profil d'implantation.

Ceci montre clairement que le jeu de paramètres retenu pour simuler les irradiations à partir du modèle simple d'un échantillon homogène permet de reproduire correctement la microstructure à 650 nm en utilisant le profil de dommage. Ce jeu de paramètres sera donc utilisé dans la suite de ce travail. Ces résultats montrent aussi que le choix de travailler expérimentalement avec des échantillons prélevés à 650 nm sous la surface est pertinent. Ce choix avait été motivé par le fait de vouloir s'affranchir d'effets de surface et des interstitiels injectés. La comparaison montre que travailler à cette profondeur permet effectivement de s'affranchir de ces effets.

Expérimentalement l'évolution de la microstructure le long du profil de dommage pour des irradiations à trois doses différentes dans le 304L à 450 °C ont été caractérisées. Ces microstructures expérimentales sont maintenant comparées avec celles obtenues par dynamique d'amas. La figure 4.8 compare l'évolution des microstructures avec la profondeur pour les irradiations ayant pour dose objectif 5 ou 40 dpa dans la zone d'intérêt située entre 650 nm et 850 nm. À 100 dpa, la précipitation est très importante sur tout le profil d'irradiation, simulation et données expérimentales ne peuvent donc pas être comparées à cette dose. Les évolutions expérimentales ont été décrites dans le chapitre précédent.

Concernant les boucles de Frank aux deux doses, les simulations sont en bon accord avec l'expérience. Il est obtenu par dynamique d'amas des évolutions de la taille et de la densité des boucles de Frank similaires aux expériences.

À 5 dpa, l'écart avec la densité au niveau du pic de dommage est fort, ceci est plus le résultat de difficultés d'observation dans l'échantillon que de simulations. De plus, comme le montre la figure 4.3 à 5 dpa l'évolution de la microstructure de boucles de Frank est très rapide, un léger décalage en dose produit des microstructures de boucles très différentes. Le léger écart sur la taille et la densité des boucles à 5 dpa est donc tolérable d'autant plus qu'à 40 dpa les valeurs obtenues par simulation sont très poches sur tout le profil.

En effet, il est obtenu par dynamique d'amas l'augmentation de la taille et la diminution de la densité de boucles au-delà de 1,5-2 μm . L'augmentation du diamètre moyen des boucles de Frank au delà du pic de dommage est particulièrement bien reproduite à 40 dpa. Cette augmentation s'explique par le modèle d'incorporation des boucles dans le réseau de dislocations. Ce phénomène est principalement actif pour les boucles ayant un rayon supérieur à $r_{max} = 1/\sqrt{\pi\rho_t}$, avec ρ_t la densité totale de dislocations linéaires et de

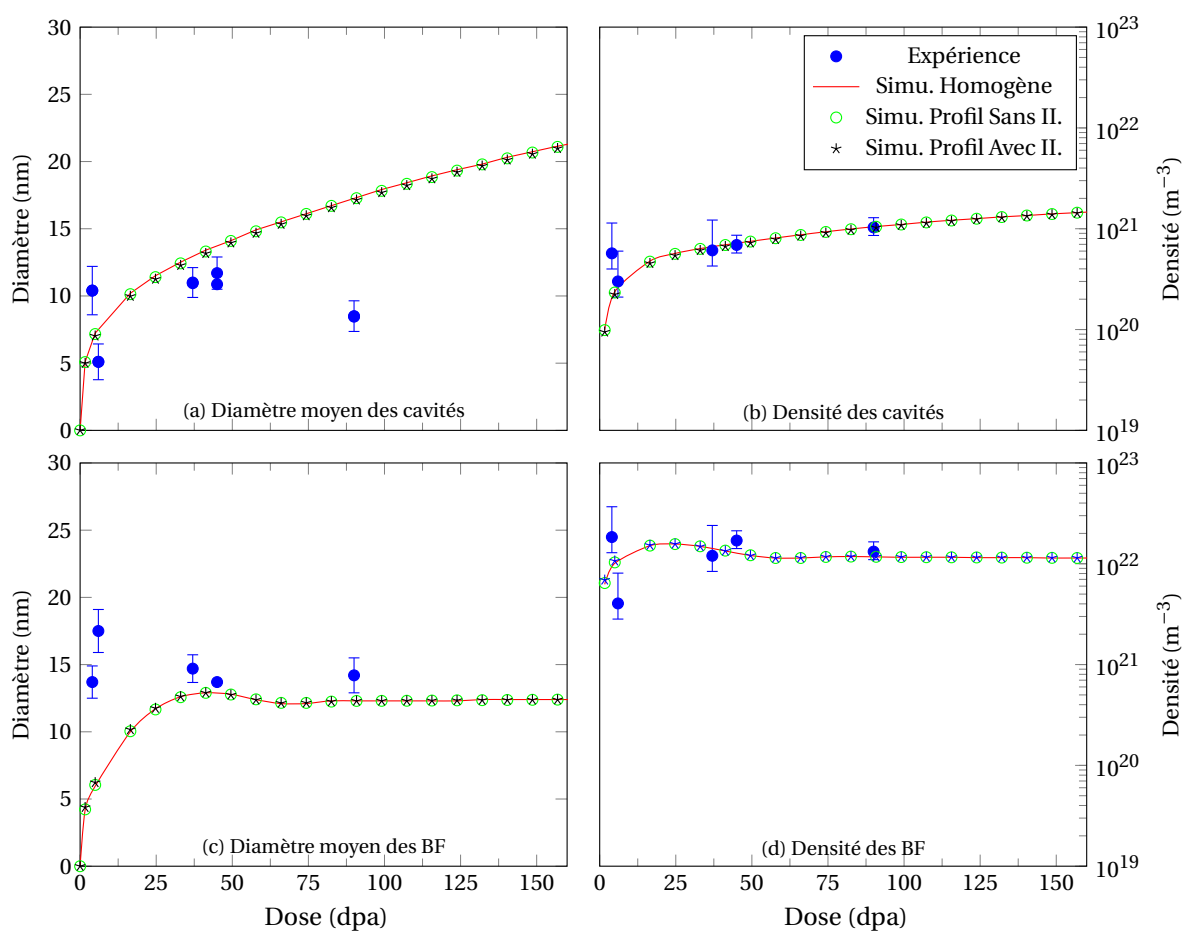


FIGURE 4.7 – Comparaison des microstructures obtenues par les différentes méthodes de calcul à 650 nm de profondeur en utilisant le jeu de paramètres du tableau 4.2.

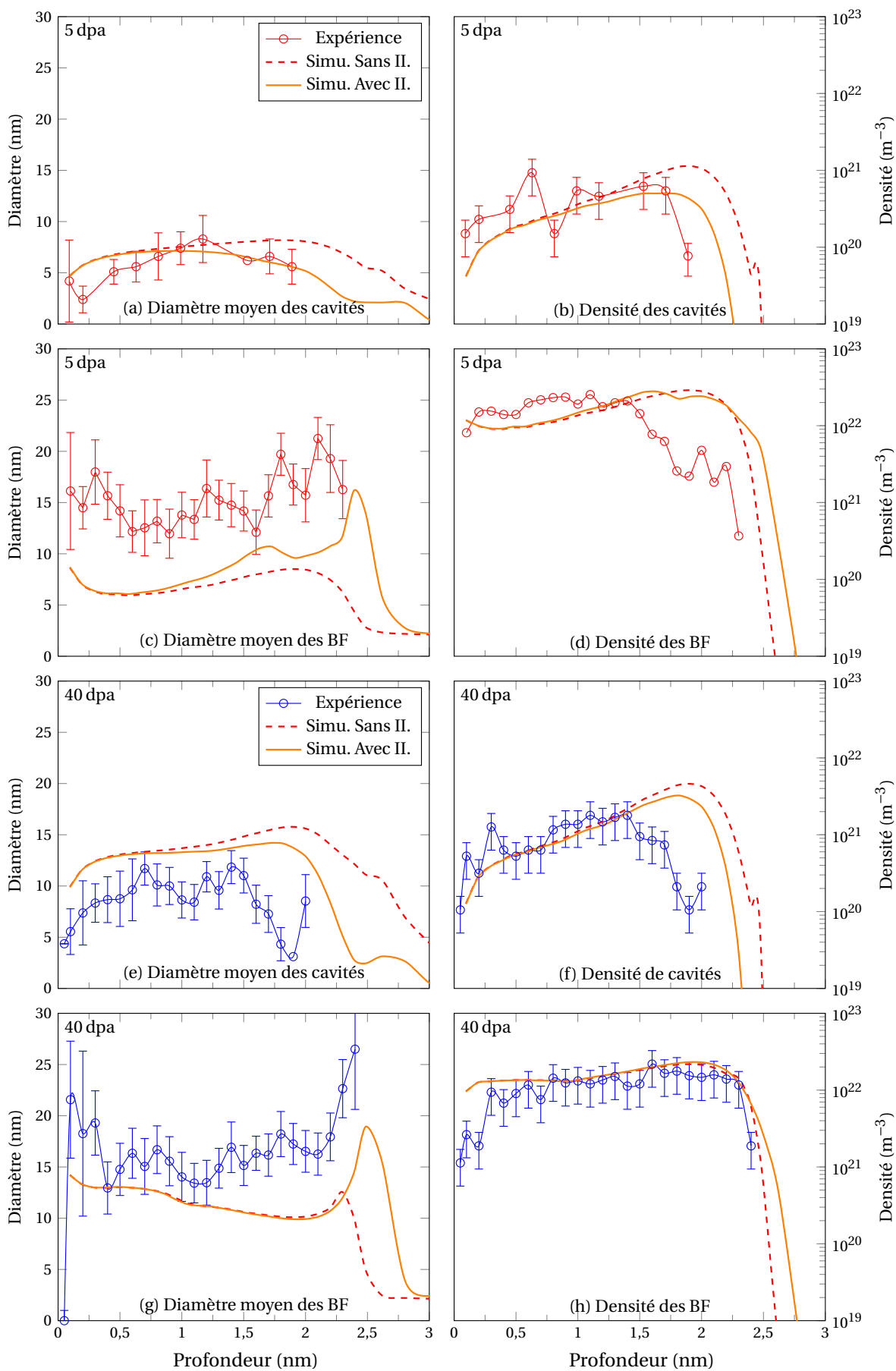


FIGURE 4.8 – Comparaison des évolutions de la microstructure avec la profondeur obtenues expérimentalement et par dynamique d'amas dans le 304L irradié à 450 °C avec des doses objectifs de 5 et 40 dpa à 650 nm sous la surface.

boucles. Étant donné qu'après le pic de dommage la densité totale de dislocations diminue du fait du plus faible taux de dommage, r_{max} va alors augmenter. Très en profondeur le taux de création est tellement faible que les boucles n'atteignent pas la taille critique r_{max} .

On observe par dynamique d'amas proche de la surface, une diminution de la taille moyenne des boucles de Frank pour les deux doses et une augmentation de la densité à 40 dpa alors qu'il s'agit d'une diminution à 5 dpa. On peut donc considérer qu'à saturation la microstructure de boucles est correctement reproduite.

Pour les cavités, les évolutions sont correctement reproduites pour les deux doses, jusqu'à environ 1,5 μm de profondeur. Il est retrouvé ce qui était observé expérimentalement proche de la surface une augmentation rapide de la taille et de la densité avec la profondeur dans les premières centaines de nanomètres aux deux doses. À 5 dpa les valeurs de taille et densité sont cohérentes avec l'expérience, à 40 dpa la taille est légèrement sur estimée ce qui était prévisible car déjà lors de la paramétrisation une taille légèrement supérieure était obtenue par simulation comparée aux observations. Pour les deux doses la densité et la taille moyenne des cavités sont très surestimées après 1,5 μm , ceci est discuté dans la partie 4.3.3

4.3.2 Effet de la surface

La figure 4.9 montre l'évolution des défauts sur le premier micromètre d'irradiation pour des simulations considérant le profil de dommage en présence d'une surface (condition de Dirichlet) ou non (condition de Neumann). Ces deux calculs permettent de décorréler l'effet de la surface à d'éventuels effets de variation du débit de dose avec la profondeur. L'augmentation de la densité et de la taille des cavités avec la profondeur est bien retrouvée lorsqu'une surface est considérée en $z = 0$, alors que la simulation sans surface ne reproduit pas l'évolution rapide de ces grandeurs. Pour les boucles de Frank la différence entre les deux simulations est plus faible mais montre la même tendance qu'observée expérimentalement, c'est-à-dire une diminution du diamètre et une augmentation de la densité des boucles de Frank avec la profondeur.

De plus, les simulations convergent vers une même microstructure pour une profondeur d'environ 300 à 400 nm. Expérimentalement, il avait été considéré que la surface impactait la microstructure sur 300 nm, l'approche par dynamique d'amas confirme les conclusions expérimentales sur un effet de la surface. Au vu du bon accord sur les profondeurs impactées par la surface par simulation et par l'expérience on peut penser que le choix des énergies de migration et des pré-facteurs de diffusion est correct. En effet, la zone dépeuplée proche de la surface peut être attribuée à la diffusion des lacunes vers la surface [GARNER et THOMAS, 1973]. Il peut être noté qu'à basse température une augmentation de la densité des cavités proche des surfaces est observée dans certaines études, en effet à basse température la mobilité des lacunes est plus faible [BARBU et collab., 2005; KIRITANI et collab., 1975].

La diminution de la densité des boucles de Frank proche de la surface obtenue par simulation s'explique par l'élimination des interstitiels en surface qui vont diminuer la sur-saturation en interstitiels et par conséquent la densité des boucles. Expérimentalement une diminution plus importante est observée que par simulation. Ceci peut être expliquée par la force image qui attire les dislocations vers la surface, et qui n'est pas prise en compte dans le modèle. En effet il a été observé expérimentalement dans d'autres études que les boucles de dislocations parfaites produites par défautement des boucles de Frank

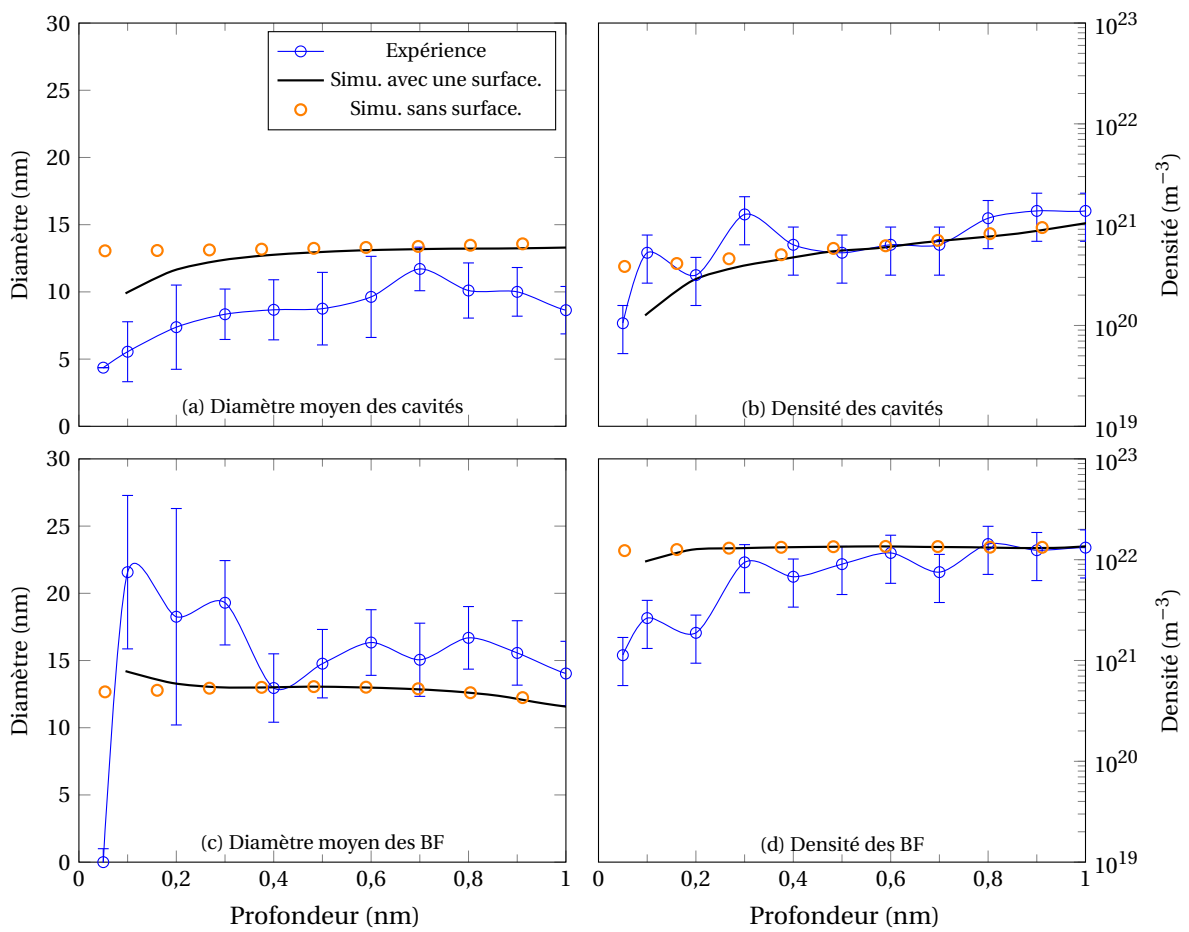


FIGURE 4.9 – Évolution de la microstructure avec la profondeur dans le premier μm pour une simulation tenant compte de la présence d'une surface et une simulation ne considérant pas de surface en $z = 0$, réalisée pour une irradiation à 40 dpa-450 °C.

peuvent migrer dans des alliages complexes [SATO et collab., 2012, 2015].

4.3.3 Effet des interstitiels injectés

De nombreuses études expérimentales ont attribué la disparition ou la présence d'un double pic de gonflement lors d'irradiations aux ions à l'effet des interstitiels injectés [GARNER, 1983; GIGAX et collab., 2015; LEE et collab., 1979; SHAO et collab., 2014; SUN et collab., 2015]. Dans notre étude le taux d'implantation aux pic est fort, car il atteint $872 \text{ appm.dpa}^{-1}$.

Dans cette partie est discuté l'effet des interstitiels injectés lors de l'irradiation aux ions. Les simulations de la figure 4.8 ont été faites d'une part sans interstitiel injecté et d'autre part avec les interstitiels injectés. La paramétrisation avait été réalisée pour le cas simple d'une irradiation avec un taux de dommage homogène et sans interstitiel. Il a été observé, dans le paragraphe précédent, que les simulations utilisant le profil entier de dommage donne des microstructures identiques à 650 nm à celle du cas simple. Il a ensuite été réalisé les simulations en utilisant le même jeu de paramètres et avec ajout des interstitiels injectés, d'après la distribution d'implantation obtenue par calculs SRIM, pour ces conditions d'irradiation.

En figure 4.8, il apparaît que l'ajout des interstitiels injectés permet une diminution de la taille et de la densité des cavités au niveau du pic d'implantation pour les deux doses 5 et 40 dpa. L'évolution de la taille moyenne des cavités avec la profondeur est mieux reproduite en tenant compte des interstitiels injectés. Cependant, un écart avec les observations expérimentales aux pics de dommage et d'implantation subsiste. Cet écart est très marqué pour la densité des cavités à 40 dpa où l'ajout des interstitiels injectés ne permet pas d'obtenir une diminution de la densité de cavités avec la profondeur dès $1,5 \mu\text{m}$.

Pour les boucles de Frank l'ajout des interstitiels injectés ne change pas fondamentalement la densité de boucles de Frank mais va augmenter significativement la taille moyenne au pic d'implantation. Dans le cas du 5 dpa, l'ajout des interstitiels injectés va permettre d'atteindre le régime de saturation plus rapidement. En effet, au delà de $1,5 \mu\text{m}$ la microstructure de boucles de Frank, modélisée par dynamique d'amas, est similaire à celle obtenue à 40 dpa dans la même zone avec les interstitiels injectés. L'augmentation de la taille moyenne pour des profondeurs supérieures à $2 \mu\text{m}$ observée expérimentalement est d'autant mieux reproduite que l'effet des interstitiels injectés est considéré.

L'évolution du gonflement le long du profil de dommage est donné en figure 4.10. On observe une réduction importante du gonflement par les interstitiels injectés par la réduction simultanée de la taille et de la densité de cavités.

Ces simulations prenant en compte les interstitiels injectés montrent clairement l'effet important qu'ont les particules injectées lors des irradiations aux ions. Bien que les interstitiels injectés montrent un effet significatif pour la densité et la taille de cavités ainsi que pour le gonflement, cet effet est néanmoins sous-estimé au vu des résultats expérimentaux. D'autres études comparant simulations et résultats expérimentaux montrent des résultats similaires pour le gonflement [SHORT et collab., 2016]. Il est donc légitime de savoir si l'écart est le résultat d'une mauvaise prise en compte des interstitiels injectés dans le code ou d'un autre phénomène.

Les équations de cinétique chimique homogène [SIZMANN, 1968] prenant en compte les effets d'interstitiels injectés [BRAILSFORD et MANSUR, 1977] peuvent s'écrire, avec G

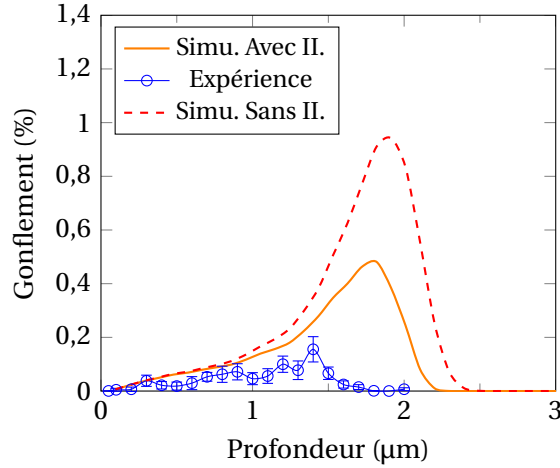


FIGURE 4.10 – Évolution du gonflement par dynamique d'amas et par l'expérience le long du profil de dommage pour une irradiation à 40 dpa dans la zone d'intérêt.

dans ce cas le taux de dommage sans prendre en compte les recombinaisons ($g = g_{\text{SRIM}}$) :

$$\begin{aligned} \frac{dC_v}{dt} &= \eta g - K_{iv} C_i C_v - k_v^2 D_v C_v, \\ \frac{dC_i}{dt} &= \eta g + \delta g - K_{iv} C_i C_v - k_i^2 D_i C_i. \end{aligned} \quad (4.29)$$

Avec K_{iv} la constante de recombinaison et k_v^2 ainsi que k_i^2 les forces de puits de la microstructure globale pour les lacunes et les interstitiels respectivement. En négligeant l'émission de lacunes par les cavités (comme il l'a déjà été fait dans l'équation 4.29 en négligeant \bar{C}_v devant C_v) et en régime stationnaire établi, les concentrations d'amas peuvent alors s'écrire :

$$\begin{aligned} C_v &= \frac{k_i^2 D_i}{2K_{iv}} \left[-\frac{\xi \delta g}{4\eta g} + \sqrt{\left(\frac{\xi \delta g}{4\eta g} + 1\right)^2 + \xi - 1} \right] \\ C_i &= \frac{k_v^2 D_v}{2K_{iv}} \left[-\frac{\xi \delta g}{4\eta g} + \sqrt{\left(\frac{\xi \delta g}{4\eta g} + 1\right)^2 + \xi - 1} \right], \end{aligned} \quad (4.30)$$

avec,

$$\xi = \frac{4K_{iv}\eta g}{k_i^2 D_i k_v^2 D_v}. \quad (4.31)$$

Le flux net de défauts vers les cavités de rayon r qui sont des puits neutres peut alors s'écrire :

$$\Phi = 4\pi r \frac{D_v D_i}{2K_{iv}} \left[- (k_i^2 + k_v^2) \frac{\xi \delta g}{4\eta g} + (k_i^2 - k_v^2) \left[\sqrt{\left(\frac{\xi \delta g}{4\eta g} + 1\right)^2 + \xi - 1} \right] \right]. \quad (4.32)$$

Sous irradiation la microstructure peut soit être en régime de recombinaison soit en régime d'élimination aux puits. En régime de recombinaison, le coefficient $K_{iv}g$ est alors très grand (K_{iv} grand et/ou g grand) devant les forces de puits de la microstructure, ou plus exactement $k_i^2 D_i k_v^2 D_v$, et $\xi \gg 1$, alors qu'en régime d'annihilation aux puits, les forces de puits sont très grandes donc $\xi \ll 1$.

Dans notre étude, à 650 nm, il a été calculé à 5 dpa $\xi = 0,2$ et à 40 dpa $\xi = 0,02$, la microstructure est donc en régime d'annihilation aux puits.

Dans ce cas, on peut écrire,

$$\Phi = \Phi_0 + \delta\Phi, \quad (4.33)$$

avec,

$$\begin{aligned} \Phi_0 &= 4\pi r \frac{D_v D_i}{2K_{iv}} [(k_i^2 - k_v^2)] \frac{\xi}{2}, \\ \delta\Phi &= -4\pi r \frac{\delta g}{k_i^2}. \end{aligned} \quad (4.34)$$

De ces équations, il peut être directement conclu que le flux $\delta\Phi$ de défauts ponctuels vers les cavités induit par les interstitiels injectés dépend uniquement des forces de puits k_i^2 , c'est-à-dire de la microstructure. Ceci signifie que si la microstructure est correctement reproduite dans les simulations, ce qui est le cas en particulier à 650 nm, alors l'effet des interstitiels injectés sur la croissance des cavités est correctement pris en compte quelle que soit la paramétrisation. En particulier on note que la différence d'absorption $Z_i - Z_v$ (*i.e.* le biais) et η n'interviennent pas dans $\delta\Phi$. Il a en effet été vérifié que la modification d'un paramètre tel que Z_i ou η dans la simulation, tout en gardant la même microstructure (*i.e.* les mêmes forces de puits) par la modification d'autres paramètres, ne modifie pas considérablement l'effet des interstitiels injectés.

Ceci est valable tant qu'il est considéré que la microstructure peut être décrite par le même modèle, mais n'est probablement pas le cas lorsque la précipitation intervient dans la microstructure ou si la structure des cascades change avec la profondeur.

Donc au vu de l'argument précédent, pour une microstructure obtenue, il peut être considéré que l'effet des interstitiels injectés est correctement simulé. Ceci montre qu'au pic de dommage et d'implantation les interstitiels injectés ont pour effet de réduire la taille et la densité des cavités et par conséquent le gonflement, mais leur effet n'est pas suffisant pour expliquer complètement les diminutions à 1,5 μm . Il est probable qu'une évolution de la physique du modèle avec la profondeur soit responsable du désaccord avec l'expérience. Par exemple l'existence de précipitation ou l'évolution de la structure des cascades.

Des études ont tenté de mettre en avant l'effet des interstitiels injectés sur le gonflement lors d'irradiations aux ions par une corrélation expérience *vs* simulation [SHORT et collab., 2016]. Cependant, comme dans notre étude, l'effet des interstitiels injectés n'est pas suffisant pour expliquer la diminution aussi brutale de la taille moyenne et de la densité des cavités et donc du gonflement. De plus, nous venons de montrer que pour une microstructure donnée l'effet des interstitiels injectés sur la croissance des cavités est correctement pris en compte. Cette différence doit donc s'expliquer par une modification d'un paramètre physique entre la zone située à 650 nm et la zone des pics d'implantation et de dommage. Ceci modifierait alors le flux net de défauts non induits par les interstitiels injectés vers une cavité (Φ_o) dans la zone de fort dommage et d'implantation.

4.3.4 Effet de la cascade

Une première hypothèse est de dire qu'une des raisons du changement d'un paramètre physique serait la précipitation. Ceci serait valable pour des doses élevées, supérieures à 40 dpa, mais à 5 dpa, aucune précipitation n'est observée par microscopie électronique en transmission. Une seconde hypothèse qui est celle adoptée ici, est que le type

de dommage évolue avec la profondeur. Cela revient à dire que les cascades formées par irradiation ne sont pas identiques le long du profil de dommage. Par exemple, la superposition de cascades permet une recombinaison plus importante des auto-défauts ce qui devrait influencer l'évolution de la microstructure et principalement au niveau du pic de dommage [ABROMEIT, 1994]. Il a déjà été proposé dans la littérature que les termes sources des amas, générés par l'homogénéisation de la cascade dépendent de la profondeur dans les matériaux purs [JOURDAN et CROCOMBETTE, 2012]. Cependant, pour les alliages industriels aucun modèle cinétique à l'échelle atomique, nécessaire à la procédure d'homogénéisation des cascades, n'existe. Les banques de cascades, par dynamique moléculaire, pour les aciers 304L n'existent pas non plus. Le logiciel SRIM utilisé dans cette étude, ne donne pas la structure complète des cascades (seules les lacunes sont données). Il est donc impossible de procéder à l'homogénéisation de cascades dans notre cas. Nous devons donc nous limiter à des arguments simples pour appréhender une variation du terme source avec la profondeur.

Si l'on considère que les types de dommage dépendent de la taille des cascades produites à une certaine profondeur, donc de l'énergie du PKA, les spectres pondérés de PKA (pondération par le nombre de défauts créés) à différentes profondeurs peuvent être comparés. En effet, une approximation est de considérer que le type de dommage, ou la quantité de défauts mobiles, est dépendant du spectre pondéré de PKA [AVERBACK et collab., 1978b] et donc que deux spectres différents donnent des fractions de défauts mobiles différentes [REHN et collab., 1984]. Si les défauts sont principalement créés par des PKA de fortes énergies, la taille des cascades sera alors grande, favorisant ainsi les recombinaisons intercascades. Le nombre de défauts pouvant par la suite participer à l'évolution de la microstructure sera plus faible. La figure 4.11 donne le spectre pondéré de PKA créé par un ion incident à deux profondeurs distinctes, dans la zone d'intérêt 650 nm et au pic de dommage à 1,9 μm . On constate que les défauts sont d'avantage créés par des PKA de faibles énergie à 650 nm qu'à 1,9 μm . Plus de recombinaisons auront donc lieu à 1,9 μm . Ceci se caractérise par une efficacité de cascades η plus faible à 1,9 μm qu'à 650 nm.

Afin de vérifier si la modification du paramètre η influe fortement sur la microstructure d'irradiation au niveau des pics de dommage et d'implantation, le paramètre a été fixé à la moitié de sa valeur pour des profondeurs supérieures à 1,5 μm . Le choix de modifier le paramètre à 1,5 μm a été motivé par le fait qu'à partir de cette profondeur le taux de dommage augmente considérablement. La variation d'un facteur deux de l'efficacité de cascades vient du fait qu'au maximum le ratio W_1/W_2 est de deux (fig. 4.11). Les résultats sont présentés dans la figure 4.12. L'évolution de la taille et de la densité des cavités est en bien meilleur accord avec les résultats expérimentaux. On observe notamment un très bon accord avec le gonflement sur la totalité du profil de dommage. Concernant les boucles de Frank l'effet est moins marqué sur la densité cependant l'augmentation de la taille des boucles au-delà du pic de dommage est mieux reproduite. Le pic observé à 1,5 μm pour la densité des cavités et le gonflement est le résultat de la variation brutale du paramètre η . Il serait en effet plus réaliste de modifier progressivement l'efficacité de la cascade avec la profondeur, mais le but ici est de mettre clairement son effet en avant.

On constate que l'effet des interstitiels injectés semble plus important lorsque η est plus faible. La force de puits de la microstructure sur les lacunes ou interstitiels (k_v^2 et k_i^2) est dépendante de la microstructure de cavités (densité et taille). Si la densité et la taille diminuent, la force de puits est alors plus faible. Donc d'après l'équation 4.34, $\delta\Phi$ augmente. Parallèlement les équations eq. 4.31 et eq. 4.34 montrent que pour une diminution de η , ξ diminue, ce qui implique que le flux net Φ_0 de défauts vers les cavités diminue. Donc une diminution de l'efficacité de cascade va diminuer Φ_0 et augmenter $\delta\Phi$, l'effet du flux

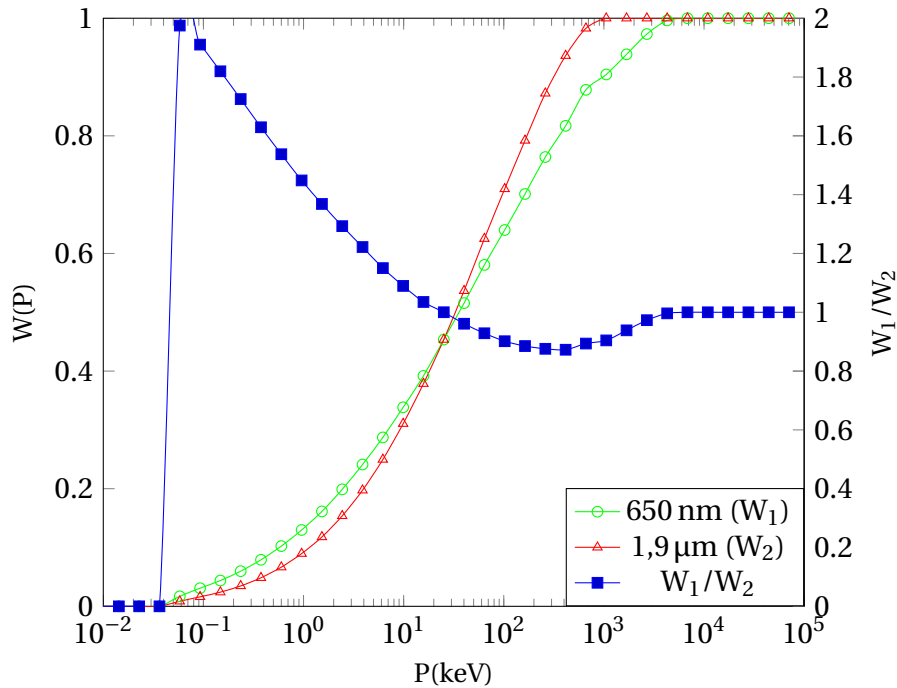


FIGURE 4.11 – Distribution du spectre pondéré de PKA ($W(P)$) en fonction de leur énergie P à 650 nm et 1,9 μm donnée par simulation SRIM.

de défauts vers les cavités induit par les interstitiels injectés sera comparativement plus important. Il est donc normal de trouver un effet plus marqué des interstitiels injectés lorsque l'efficacité des cascades est plus faible.

Finalement, l'accord entre les résultats de dynamique d'amas et des expériences est meilleur lorsque l'efficacité de la cascade peut varier avec la profondeur. La modification du paramètre d'efficacité n'est bien entendu pas la seule solution possible mais cette étude a pour but de montrer de façon simple que certains phénomènes (par exemple le recouvrement de cascades) seraient à prendre en compte lors de la définition du dommage afin de décrire correctement le dommage participant à l'évolution de la microstructure. Dans notre cas, il nous paraît hautement probable que ces phénomènes modifient finalement le terme d'efficacité η .

Il est établi dans la littérature que les interstitiels injectés ont un effet fort sur la microstructure en régime de recombinaison ($\xi \ll 1$). Le régime de recombinaison est principalement rencontré à faible température, faible densité de puits ou fort taux de dommage [MANSUR, 1978; NELSON et collab., 1971; WAS et AVERBACK, 2012]. Si la recombinaison est importante cela va conduire à une disparition rapide des amas interstitiels et lacunaires mobiles. Les interstitiels injectés n'ont par définition pas d'équivalent lacunaire ce qui va alors modifier l'équilibre, ils vont donc fortement contribuer au flux de défauts vers les cavités. Cependant, d'autres études montrent que les interstitiels injectés modifient aussi notablement la microstructure en régime de disparition aux puits [BRAILSFORD et MANSUR, 1977] si la force de puits des cavités est plus forte que celle des dislocations. Dans cette étude à 1,9 μm avec une efficacité de cascades $\eta = 0,005$ et en considérant les interstitiels injectés, la microstructure est en régime d'annihilation aux puits ($\xi = 0,04$). Le ratio des forces de puits des cavités sur celles des dislocations est de 0,04 si les interstitiels injectés sont pris en compte ou de 0,2 sinon. Les dislocations sont donc les puits participant le plus à la disparition des défauts et expérimentalement il est en effet ob-

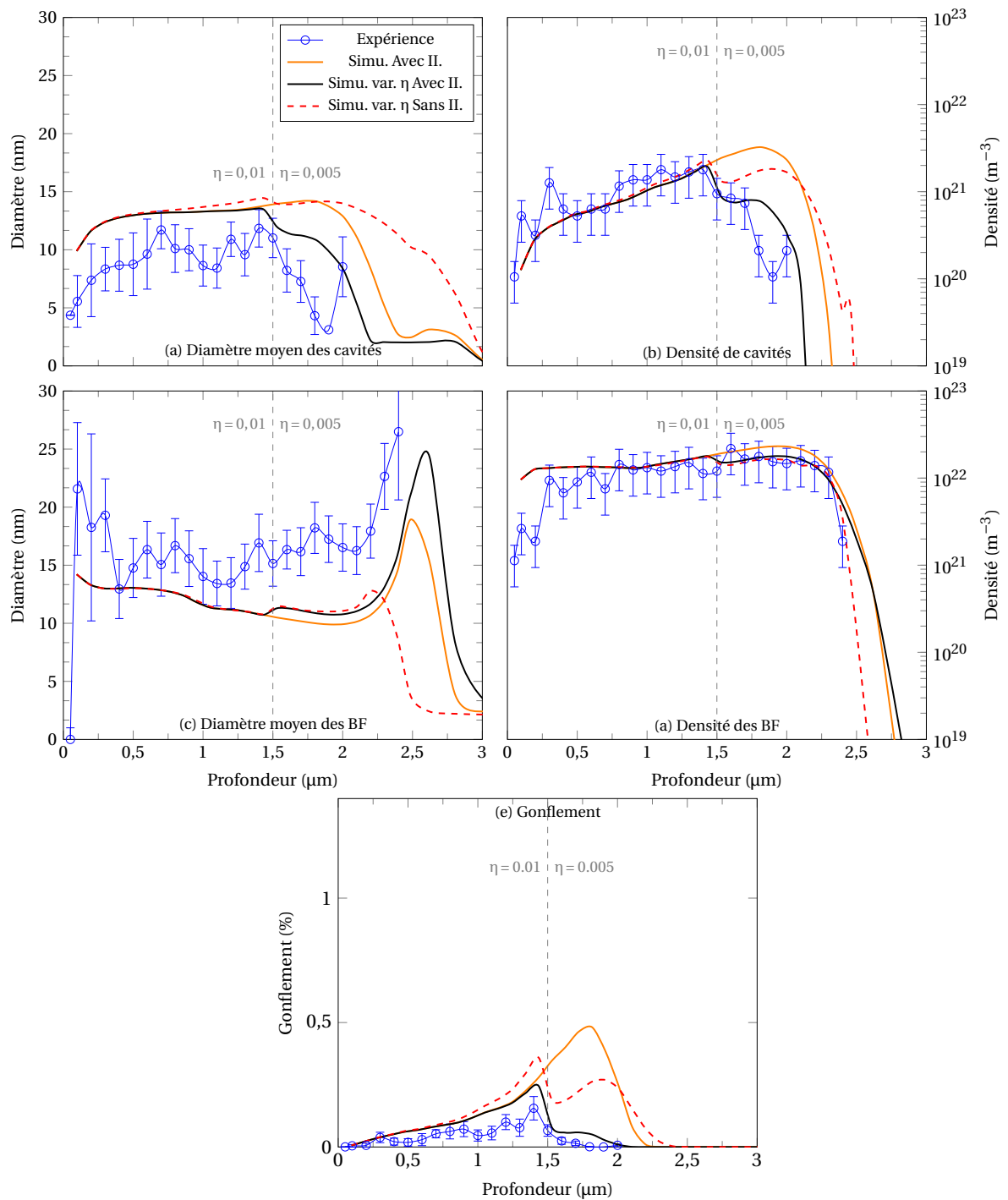


FIGURE 4.12 – Comparaison des évolutions de la microstructure obtenues expérimentalement et par dynamique d’amas dans le 304L irradié à 450 °C avec une dose objectif de 40 dpa à 650 nm sous la surface, en considérant une diminution de l’efficacité de cascades de $\eta = 0,01$ à $\eta = 0,005$ à 1,5 μm de profondeur.

servé des ségrégations importantes sur ces dernières mettant en évidence un flux fort des défauts mobiles vers les dislocations. Le fait d'obtenir un effet fort des interstitiels injectés en régime de disparition aux puits avec une force de puits des dislocations plus forte que celles des cavités montre une limite des équations simples de cinétique chimique homogène (Eq. 4.29). Le critère portant sur le ratio de la force de puits des cavités et des dislocations n'est probablement pas discriminant.

4.4 Conclusions

Dans ce chapitre, il a été établi un jeu de paramètres permettant de reproduire en dynamique d'amas (code CRESCENDO) l'évolution de la microstructure avec la dose dans le 304L à 450 °C. Ce jeu de paramètres a été obtenu à partir de la modélisation d'un cas simple, considérant un dommage homogène sans interstitiel injecté dans un échantillon ne contenant pas de surface. La paramétrisation a été réalisée à partir de données de la littérature pour les grandeurs pouvant être mesurées expérimentalement ou calculées par des méthodes de simulation à l'échelle atomique et ajustées sinon. Le jeu de paramètres permet d'obtenir les évolutions de la microstructure avec la dose ainsi que les distributions de défauts observées expérimentalement. Les évolutions microstructurales obtenues expérimentalement dans le chapitre précédent et celles par dynamique d'amas dans ce chapitre présentent un très bon accord. L'évolution et la distribution des défauts sont reproduites avec des valeurs fidèles aux expériences jusqu'à environ 40 dpa. Au-delà de 40 dpa, une forte précipitation est observée expérimentalement ce qui modifie l'évolution de certains défauts, une divergence entre les données expérimentales et de modélisation est alors constatée.

Une spatialisation de l'irradiation a été intégrée dans le code afin d'insérer le profil de dommage produit par les ions Fe^{5+} 10 MeV. Pour cela l'espace est discrétisé en volumes homogènes avec une corrélation spatiale. Il a été vérifié qu'avec le même jeu de paramètres, la même évolution de la microstructure avec la dose est observée à 650 nm que dans un échantillon homogène. Ces simulations en accord avec les observations mettent en évidence un effet de la surface irradiée sur 300 nm de profondeur. Cet effet a un impact sur la densité et la taille des défauts tels que les boucles de Frank et les cavités. L'évolution de la microstructure avec la profondeur d'irradiation est aussi correctement reproduite pour des irradiations jusqu'à 40 dpa où la précipitation peut être négligée, et jusqu'à une profondeur de 1,5 μm qui correspond à la zone de fort dommage et d'implantation.

L'effet des interstitiels injectés a été modélisé et observé à partir des profils donnés par SRIM. Comme les irradiations aux ions impliquent une implantation d'atomes, les modélisations avec et sans interstitiels injectés sont comparées aux résultats expérimentaux. Les interstitiels injectés ont pour effet de réduire sensiblement la densité et la taille des cavités dans la zone d'implantation mais n'ont pas d'effet significatif sur les profondeurs inférieures à 1,5 μm . Ils ont aussi pour effet d'augmenter la taille moyenne des boucles de Frank à la fin du profil de dommage, sans autre effet notable sur la densité.

Cependant, l'effet des interstitiels injectés ne permet pas d'expliquer complètement la disparition rapide des cavités entre 1,5 et 2 μm . Nous proposons dans cette étude, un effet de la taille des cascades au pic de dommage sur la microstructure. Au pic de dommage, des cascades plus denses sont présentes par rapport aux zones proches de la surface. Cette différence dans la taille des cascades se traduit par un taux de recombinaison des défauts ponctuels plus important, donc une efficacité de cascades η plus faible. Les calculs par dynamique d'amas tendent à confirmer cette hypothèse.

Pour conclure, dans ce chapitre le code CRESCENDO spatialisé et prenant en compte

un mécanisme de défautement des boucles de Frank permet de reproduire l'évolution de la microstructure avec la dose ainsi que le long du profil de dommage. L'effet de surface observé expérimentalement est validé par les simulations ainsi que l'effet des interstitiels injectés. Il est aussi proposé que l'efficacité des cascades puisse varier le long du profil de dommage afin de prendre en compte le changement de structure des cascades. Enfin, ces résultats de dynamique d'amas permettent de valider le choix expérimental de travailler avec des ions de forte énergie et en profondeur afin de s'affranchir des effets de surface et d'interstitiels injectés.

Conclusion Générale et Perspectives

Conclusion

Le contexte industriel actuel, animé d'un désir de prolonger la durée de fonctionnement des Réacteurs à Eau Pressurisée jusqu'à des durées de 60 ans, nécessite la compréhension de l'évolution de la microstructure et notamment d'un éventuel gonflement en conditions de Réacteur à Eau Pressurisée (REP).

Comme il a été vu dans l'étude bibliographique, en Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) le gonflement est un phénomène à seuil, c'est-à-dire qu'il présente une dose d'incubation durant laquelle la microstructure évolue et des cavités se forment. À plus forte dose la microstructure entre en régime de gonflement linéaire, les cavités vont alors croître et un gonflement macroscopique pourra être mesuré. La problématique du prolongement de la durée de fonctionnement des REP nécessite une bonne compréhension de ce phénomène pour les conditions d'irradiation correspondantes. Le gonflement a été amplement caractérisé en RNR, mais une transposition directe des résultats aux conditions REP n'est pas évidente. En effet, ces résultats ont laissé penser que le phénomène de gonflement n'aurait pas lieu, notamment à cause des faibles températures et doses lors des irradiations en REP. Des études sur des matériaux irradiés en REP ont cependant montré que de fines cavités ou bulles d'hélium étaient présentes en grand nombre, pour de faibles doses et faibles températures d'irradiation. Différentes études ont aussi montré que le flux, l'hélium et la composition chimique peuvent modifier la dose d'incubation. L'évolution des aciers utilisés pour les internes inférieurs de REP jusqu'aux fortes doses n'est donc pas aussi claire que pour les conditions RNR.

Afin d'apporter des éléments de réponses sur le comportement (évolution de la microstructure, gonflement potentiel) des matériaux d'internes en conditions REP, cette étude s'est articulée autour d'une partie expérimentale d'irradiations aux ions, qui a permis par la suite de développer une étude des effets d'irradiation par modélisation en dynamique d'amas avec le code CRESCENDO.

Deux nuances de 304 (haut et bas carbone) ont été irradiées aux ions depuis les faibles doses jusqu'à des doses supérieures à la centaine de dpa, à 450 °C, ainsi qu'à une dose intermédiaire à plus haute température (550 °C). Le choix d'une température à 450 °C avait pour objectif de se positionner dans des conditions d'irradiation proches de celles en REP, par la prise en compte d'un décalage en température afin de compenser un effet du taux de dommage plus élevé lors des irradiations aux ions.

L'évolution de la microstructure de boucles de Frank, du réseau de dislocations, des cavités et de la précipitation a été caractérisée par Microscopie Électronique en Transmission (MET) à chacune des doses et par Sonde Atomique Tomographique (SAT) à 100 dpa. Différents effets induits par les conditions d'irradiation et de composition ont été observés :

- *Effet de la dose* : une évolution très rapide de la microstructure lors des premiers dpa est constatée. La saturation en taille et densité des boucles de Frank est observée pour des doses supérieures à 5 dpa. Le réseau de dislocations évolue et semble tendre vers une saturation à forte dose. Les cavités sont en faible densité et bien qu'une microstructure de dislocations soit établie, il n'est pas observé de régime de gonflement avec un taux de $1\% \cdot \text{dpa}^{-1}$ à 450 °C. Ceci montre que la condition sur le réseau de dislocation est nécessaire mais pas suffisante. Des carbures ont été observés par MET et SAT, ils apparaissent à des doses intermédiaires. Des amas enrichis

en nickel et silicium ainsi que des ségrégations importantes aux dislocations ont été observées par SAT.

- *Effet de la température* : pour une augmentation de la température, une diminution de la densité des boucles de Frank est mesurée ainsi qu’une augmentation de la taille des cavités et des boucles. Cependant, la densité des cavités reste inchangée entre 450 °C et 550 °C. Les irradiations aux ions reproduisent les microstructures de boucles de Frank ainsi que la taille des cavités observées en conditions réacteur. Un décalage en température d’environ 25 °C par décade de flux a été mesuré entre les irradiations de cette étude et celles en réacteur. Mais les irradiations aux ions, dans ces conditions, ne permettent pas de reproduire correctement la densité de cavités, ni la précipitation.
- *Effet du carbone* : l’effet de composition chimique est attribué au carbone. Il est observé que le carbone retarde la germination des cavités, à 5 dpa la nuance à plus forte teneur en carbone ne présente pas de cavité. En plus du retard de germination des cavités, il est observé une fraction volumique plus faible des cavités, quelle que soit la température, aux plus fortes doses. Un effet du carbone sur la microstructure de boucles de Frank semble possible au vu des résultats à 550 °C mais pas à 450 °C. L’effet du carbone s’expliquerait par la création de complexes carbone-lacunes réduisant la mobilité et la densité de lacunes disponibles pour l’évolution de la microstructure. Il est aussi observé que la nuance avec une haute teneur en carbone présente une plus forte densité de carbures.
- *Effet des irradiations aux ions* : lors d’irradiations aux ions il est nécessaire de se placer dans des conditions permettant de minimiser certains effets non désirés, surface, interstitiels injectés, contamination. Expérimentalement il a été observé que la surface et les interstitiels injectés ont un effet important sur la microstructure. L’effet de la surface est visible sur environ 300 nm sur des échantillons FIB prélevés le long du profil de dommage. Un effet des surfaces sur lame mince est donc important. Les interstitiels injectés lors des irradiations aux ions peuvent atteindre des quantités très importantes (8 %_{atm} à 100 dpa) au pic de dommage, ils peuvent donc avoir un effet important sur la microstructure. En effet, il a été montré qu’au pic d’implantation les boucles de Frank étaient de grandes tailles, tandis que les cavités ne sont plus observables. Ces effets observés sur des lames FIB valident le choix expérimental de travailler avec des lames minces prélevées à 650 nm sous la surface.

CRESCENDO est un code de dynamique d’amas permettant de déterminer l’évolution des concentrations d’amas lacunaires ou interstitiels sous irradiation. Ce code prend en compte l’évolution du réseau de dislocations, par l’incorporation des boucles de Frank dans le réseau ainsi que par l’annihilation des lignes de dislocations. Il a en outre été introduit la possibilité d’étudier l’évolution de la microstructure avec la profondeur, en discrétisant l’espace en tranches successives autorisant les espèces mobiles à diffuser suivant la profondeur. Le code peut ainsi prendre en compte une évolution spatiale de la microstructure, ce qui est particulièrement intéressant pour étudier des irradiations aux ions.

Dans un premier temps les résultats expérimentaux à 450 °C ont permis de déterminer un jeu de paramètres reproduisant l’évolution de la microstructure avec la dose pour la zone d’étude située à 650 nm sous la surface. Sans modification du jeu de paramètres, les évolutions de la microstructure avec la profondeur (boucles de Frank et cavités), en comparaison avec les résultats expérimentaux sur lames FIB, ont été correctement simulés.

Différents effets ont par la suite été étudiés par dynamique d'amas ;

- *Effet de surface* : l'effet de la surface observé expérimentalement est retrouvé par simulation, on retrouve une zone de 300 nm impactée par la surface.
- *Effet des interstitiels injectés* : la prise en compte des interstitiels injectés par dynamique d'amas lors des irradiations aux ions confirme les résultats expérimentaux dans la zone d'implantation des ions. Cependant, la densité et la taille des cavités sont encore légèrement surestimées.
- *Évolution de l'efficacité de la cascade* : comme les effets des interstitiels injectés ne semblent pas suffisants pour expliquer la disparition des cavités dans la zone des pics d'implantation et de dommage, il a été proposé qu'aux ions l'efficacité des cascades à produire des défauts libres de migrer, évolue avec la profondeur. Au vu des énergies des PKA en amont du pic et au pic de dommage, il est proposé que l'efficacité des cascades diminue avec la profondeur.

Perspectives

Malgré le grand nombre d'études sur les aciers austénitiques irradiés, cette étude permet d'ouvrir de nouvelles perspectives tant expérimentalement que par modélisation en dynamique d'amas.

Expérimentalement, un point clé sur l'étude du gonflement en REP par des irradiations aux ions est la réalisation d'irradiations avec implantation d'hélium jusqu'à des fortes doses sur des échantillons massifs. Les microstructures irradiées aux ions en mono-faisceau ont été étudiées expérimentalement et par dynamique d'amas, il a été constaté que les microstructure de boucles obtenues ont des similarités avec celles en réacteurs. Les observations in-situ n'ont pas montré d'effet majeur de l'hélium, il est quand même observé une taille de cavités un peu plus grande. La réalisation d'irradiations avec implantation d'hélium jusqu'à forte dose, dans les mêmes conditions que cette étude, permettrait de d'établir une description plus complète de l'effet de l'hélium et aussi une meilleure représentation des conditions REP par les irradiations aux ions (dommage et transmutation). En effet, cet axe n'a pu être réalisé dans cette étude, l'installation de l'accélérateur Pandore sur l'installation JANNuS-Saclay devrait permettre ce type d'irradiation bi-faisceau par la suite. La réalisation de simulation par dynamique d'amas de ces irradiations sera une étape nécessaire pour la prédiction de l'effet de l'hélium sur gonflement en conditions REP.

En outre, il a été observé dans cette étude des carbures allongés qui n'ont pu clairement être identifiés et qui semblent modifier la germination des cavités à forte dose. Bien que des analyses SAT et des premières analyses en MET-HR aient été faites, des caractérisations plus poussées en MET haute résolution notamment, suivant différentes orientations, mériteraient d'être réalisées. Dans ce sens par dynamique d'amas, un axe de développement intéressant serait dans un premier temps la prise en compte du carbone en solution solide par la création de complexes favorisant la recombinaison des lacunes avec les interstitiels. Dans un second temps car cela est plus compliqué à mettre en œuvre, il serait intéressant de pouvoir introduire la précipitation au sein de la dynamique d'amas, ceci par l'ajout de différents types de puits correspondant aux précipités observés expérimentalement.

Ajoutons que, comme il l'a été indiqué dans la partie techniques expérimentales, il a été annoncé en fin de thèse que les doses d'irradiation obtenues sur l'installation JANNuS-

Saclay, n'étaient pas exactes. Il est donc nécessaire de déterminer les vraies dose reçues par les échantillons. Lors des irradiations, un échantillon de carbone vitreux avait été inséré à la place d'une lame, dans l'objectif de pouvoir remonter au nombre d'ions implantés. Ces échantillons ont été fournis afin que des analyses par RBS soient réalisées et que la dose puisse être rapidement validée.

Bibliographie

- ABROMEIT, C. 1994, «Aspects of simulation of neutron damage by ion irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 216, p. 78–96. [161](#)
- ALLEN, T., J. COLE, C. TRYBUS, D. PORTER, H. TSAI, F. GARNER, E. KENIK, T. YOSHITAKE et J. OHTA. 2006, «The effect of dose rate on the response of austenitic stainless steels to neutron radiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 348, p. 148–164. [17](#), [25](#), [28](#), [29](#), [30](#), [128](#)
- ALLEN, T., G. S. WAS et E. A. KENIK. 1997, «The effect of alloy composition on radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 244, p. 278–294. [115](#)
- ALLEN, T. R., J. I. COLE, J. GAN, G. S. WAS, R. DROPEK et E. A. KENIK. 2005, «Swelling and radiation-induced segregation in austenitic alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 342, n° 1-3, p. 90–100. [19](#), [20](#), [32](#)
- AVERBACK, R., R. BENEDEK et K. MERKLE. 1978a, «Efficiency of defect production in cascades», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 69-70, p. 786–789. [9](#)
- AVERBACK, R., R. BENEDEK et K. MERKLE. 1978b, «Ion-irradiation studies of the damage function of copper and silver», *Physical Review B*, vol. 18, n° 8, p. 4156–4171. [9](#), [142](#), [145](#), [161](#)
- AZAM, M., J. DELAPLACE et L. LE NAOUR. 1979, «Apport des techniques de simulation à l'étude du gonflement des aciers austénitiques», dans *Conférence internationale sur le comportement des matériaux métalliques et des composants des coeurs de réacteurs rapides*. [19](#)
- BACON, D. J., A. F. CALDER et F. GAO. 1997, «Defect production due to displacement cascades in metals as revealed by computer simulation», *Journal of Nuclear Materials*, , n° 251, p. 1–12. [9](#)
- BARBU, A., C. BECQUART, J. BOCQUET, J. DALLA TORRE et C. DOMAIN. 2005, «Comparison between three complementary approaches to simulate large-fluence irradiation : application to electron irradiation of thin foils», *Philosophical Magazine*, vol. 85, n° 4-7, p. 541–547. [124](#), [156](#)
- BARBU, A. et G. MARTIN. 1993, «Radiation effects in metals and alloys», *Solid State Phenomena*, vol. 30-31, p. 179–228. [16](#)
- BATES, J. et R. POWELL. 1981, «Irradiation-induced swelling in commercial alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 102, p. 200–213. [32](#), [33](#), [120](#)
- BECK, L., Y. SERRUYS, S. MIRO, P. TROCELLIER, E. BORDAS, F. LEPRÊTRE, D. BRIMBAL, T. LOUSSOUARN, H. MARTIN, S. VAUBAILLON, S. PELLEGRINO et D. BACHILLER-PEREA. 2015, «Ion irradiation and radiation effect characterization at the JANNUS-Saclay triple beam facility», *Journal of Materials Research*, vol. 30, n° 9, p. 1–12. [43](#)
- BERNAS, H., J. CHAUMONT, E. COTTEREAU, R. MEUNIER, A. TRAVERSE, C. CLERC, F. LALU, D. LE DU, G. MOROY et M. SALOMÉ. 1992, «Progress report on Aramis, the 2 MV tandem at Orsay», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. B62, p. 416–420. [47](#)

- BLAVETTE, D. et B. DECONIHOUT. 2013, «Sonde atomique tomographique SAT», *Techniques de l'ingénieur*, vol. P900v2, p. 1–14. [61](#), [62](#), [63](#)
- BLAVETTE, D. et A. MENAND. 1989, «Microscopie ionique à effet de champ et sonde atomique», *Techniques de l'ingénieur*, vol. P900, n° V1, p. 1–16. [61](#)
- BLOOM, E. et J. STIEGLER. 1970a, «A comparison of irradiation-induced swelling and void formation in two austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 35, p. 244–246. [128](#)
- BLOOM, E. E. et J. STIEGLER. 1970b, «The effect of helium in void formation in irradiated stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 36, p. 331–334. [128](#)
- BOOTHBY, R. M. et T. M. WILLIAMS. 1988, «The effects of silicon and titanium on void swelling and phase transformations in neutron irradiated 12Cr-15Ni steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 152, n° 2-3, doi :10.1016/0022-3115(88)90318-2, p. 123–138. [33](#)
- BORODIN, O., V. BRYK, A. KALCHENKO, V. MELNICHENKO, V. VOYEVODIN et F. GARNER. 2013, «Synergistic effects of helium and hydrogen on self-ion-induced swelling of austenitic 18Cr10Ni stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 442, n° 1-3, p. S817–S820. [13](#), [30](#), [31](#), [119](#)
- BORODIN, O., V. BRYK, A. KALCHENKO, A. PARKHOMENKO, B. SHILYAEV, G. TOLSTOLUTSKAYA et V. VOYEVODIN. 2009, «Microstructure evolution and degradation mechanisms of reactor internal steel irradiated with heavy ions», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 385, p. 325–328. [34](#), [35](#)
- BRAGER, H. 1975, «The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 57, p. 103–118. [34](#)
- BRAGER, H., L. BLACKBURN et D. GREENSLADE. 1984, «The dependence on displacement rate of radiation-induced changes in microstructure and tensile properties of AISI 304 and 316», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 123, p. 332–337. [17](#), [19](#), [128](#)
- BRAGER, H., F. GARNER, E. GILBERT, J. FLINN et W. WOLFER. 1977, «Stress-affected microstructural development and the creep-swelling interrelationship», dans *International conference on radiation effects in breeder reactor structural materials*, Scottsdale, AZ. [18](#), [19](#), [114](#), [137](#)
- BRAGER, H. et J. STRAALSUND. 1973, «Irradiation temperature dependence of void formation in cold-worked type 316 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 46, p. 103–106. [19](#)
- BRAGER, H., J. STRAALSUND, J. HOLMES et J. BATES. 1971, «Irradiation-Produced Defects in Austenitic Stainless Steel», *Metallurgical Transaction*, vol. 2, p. 1894–1904. [17](#), [128](#)
- BRAILSFORD, A. et L. MANSUR. 1977, «Effect of self-ion injection in simulation studies of void swelling», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 71, p. 110–116. [38](#), [158](#), [162](#)
- BRAILSFORD, A. D. et R. BULLOUGH. 1972, «The rate theory of swelling due to void growth in irradiated metals», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 44, n° 2, p. 121–135. [38](#)

- BRIMBAL, D. 2011, *Evolution microstructurale du fer pur et d'un alliage Fe-Cr sous irradiation avec injection simultanée d'hélium : étude expérimentale et modélisation*, thèse de doctorat, Université Paris-Sud. [50](#)
- BRISTOL GROUP. 1984, *Convergent Beam Electron Diffraction of Alloy Phases*, Adam Hilger Ltd, ISBN 0-85274-771-3. [89](#)
- BRUEMMER, S., E. SIMONEN, P. M. SCOTT, P. ANDRESEN, G. WAS et J. NELSON. 1999, «Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular failure of light-water-reactor core internals», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 274, p. 299–314. [2](#), [16](#), [20](#)
- BYRNE, S., S. FYFITCH, H. XU, F. GARNER et I. WILSON. 2001, «Technical Basis Document Concerning Irradiation Induced Stress Relaxation and Void Swelling in PWR RV Internals Components (MRP-50), EPRI», . [12](#), [33](#)
- BYRNE, S., I. WILSON et R. SHOGAN. 2002, «Microstructural characterization of baffle bolts», dans *Fontevraud 5*, p. 343–346. [18](#), [42](#), [129](#), [130](#)
- CARLANDER, R., S. HARKNESS et F. YAGGEE. 1969, «Fast-neutron effects on type-304 stainless steel», *Nuclear applications & Technology*, vol. 7, p. 67–75. [128](#)
- CAUVIN, R., O. GOLTRANT, Y. ROUILLON, E. VERZAUX, A. CAZUS, P. DUBUISSON, P. POITRENAUD et S. BELLET. 1994, «Endommagement des structures internes inférieures soumises à forte fluence, apports de l'expertise», dans *Fontevraud 3*, p. 54–65. [18](#), [130](#)
- CAWTHORNE, C. et E. J. FULTON. 1967, «Voids in irradiated stainless steel», *Nature*, vol. 216, p. 575. [3](#), [25](#), [128](#)
- CHARPAGNE, M.-A. 2013, «Rapport de stage : Swelling behavior of 304L and 316 stainless steels under particle irradiation», cahier de recherche. [151](#)
- CHAUMONT, J., F. LALU, M. SALOME et A.-M. LAMOISE. 1981, «A medium energy facility for variable temperature», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 189, p. 193–198. [47](#)
- CHEN, D., K. MURAKAMI, K. DOHI, K. NISHIDA, N. SONEDA, Z. LI, L. LIU et N. SEKIMURA. 2015a, «Depth distribution of Frank loop defects formed in ion-irradiated stainless steel and its dependence on Si addition», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 365, p. 503–508. [33](#)
- CHEN, W.-Y., M. LI, X. ZHANG, M. A. KIRK, P. M. BALDO et T. LIAN. 2015b, «In situ TEM study of G-phase precipitates under heavy ion irradiation in CF8 cast austenitic stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*. [119](#), [121](#), [122](#)
- CISSE, S. 2012, *Influence de la localisation de la déformation plastique sur la corrosion sous contrainte des aciers inoxydables austénitiques. Application à l'IASCC des internes de cuves.*, thèse de doctorat, Université de Toulouse. [65](#), [66](#)
- COLE, J. I., H. TSAI, T. R. ALLEN, T. YOSHITAKE, N. AKASAKA, I. YAMAGATA et Y. NAKAMURA. 2006, «Strain-rate effects on microstructural deformation in irradiated 316 SS», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 351, p. 316–323. [17](#)

- CONERMANN, J., R. SHOGAN, S. YAMAGUCHI, H. KANASAKI, S. NASHIDA, K. FUJIMOTO, Y. YAMAGUCHI et T. YONEZAWA. 2002, «Materials Reliability Program : Characterizations of Type 316 Cold Worked Stainless Steel Highly Irradiated Under PWR Operating Conditions (MRP-73), EPRI, Palo Alto, CA and MRP/International IASCC Committee», cahier de recherche. [3](#)
- COTTEREAU, E., J. CAMPLAN, J. CHAUMONT, H. BERNAS et R. MEUNIER. 1990, «ARAMIS an ambidextrous 2 MV accelerator for IBA and MeV implantation», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. B45, p. 293–295. [47](#)
- COTTEREAU, E., J. CAMPLAN, J. CHAUMONT et R. MEUNIER. 1989, «ARAMIS : an accelerator for research on astrophysics, microanalysis and implantation in solids», *Materials Science and Engineering B*, vol. B2, p. 217–221. [47](#)
- COTTRELL, A. H. et B. A. BILBY. 1949, «Dislocation Theory of Yielding and Strain Ageing of Iron», *Proceedings of the Physical Society. Section A*, vol. 62, n° 1, p. 49. [33](#)
- CUNAT, P.-J. 2000, «Aciers inoxydables Critères de choix et structure», dans *Technique de l'ingénieur*, vol. m4540. [65](#)
- DAI, Y., X. JIA, J. C. CHEN, W. F. SOMMER, M. VICTORIA et G. S. BAUER. 2001, «Microstructure of both as-irradiated and deformed 304L stainless steel irradiated with 800 MeV protons», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 296, n° 1-3, p. 174–182. [14](#)
- DECONIHOUT, B., A. BOSTEL, A. MENAND, J. M. SARRAU, M. BOUET, S. CHAMBRELAND et D. BLAVETTE. 1993, «On the development of a 3D tomographic atom-probe», *Applied Surface Science*, vol. 67, p. 444–450. [61](#)
- DIMITROV, C., A. BENKADDOUR, O. DIMITROV, C. CORBEL et P. MOSER. 1987, «Point Defects in FC Fe-Cr-Ni Alloys», vol. 15-18, p. 1275–1280. [145](#), [146](#)
- DOMAIN, C., C. S. BECQUART et J. FOCT. 2004, «Ab initio study of foreign interstitial atom (C, N) interactions with intrinsic point defects in alpha-Fe», *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 69, n° 14, doi :10.1103/PhysRevB.69.144112, p. 1–16. [120](#)
- DONG, Y., B. SENCER, F. GARNER et E. MARQUIS. 2015, «Microchemical and microstructural evolution of AISI 304 stainless steel irradiated in EBR-II at PWR-relevant dpa rates», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 467, p. 692–702. [20](#), [21](#), [32](#), [117](#), [128](#)
- DUBUISSON, P. 1986, *Etude par simulation aux électrons de 1 MeV de l'influence d'éléments d'addition sur le gonflement d'alliages austénitiques*, thèse de doctorat, Université Paris-Sud. [115](#), [118](#)
- DUBUISSON, P. 2011, «Le Gonflement des aciers austénitiques», *Revue de Métallurgie*, n° 108, p. 33–37. [3](#)
- EDWARDS, D., F. GARNER, S. BRUEMMER et P. EFSING. 2009, «Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 384, p. 249–255. [5](#), [12](#), [18](#), [22](#), [25](#), [32](#), [130](#)
- EDWARDS, D., F. GARNER, E. SIMONEN et S. BRUEMMER. 2006, «Characterization of Neutron Irradiated 300-Series Stainless Steels to Assess Mechanisms of Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking Volume 2 : Core Components», *EPRI*, vol. 2, n° 3. [14](#)

- EDWARDS, D., E. SIMONEN, F. GARNER, L. GREENWOOD, B. OLIVER et S. BRUEMMER. 2003a, «Influence of irradiation temperature and dose gradients on the microstructural evolution in neutron-irradiated 316SS», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 317, p. 32–45. [5](#), [12](#), [15](#), [18](#), [21](#), [22](#), [23](#), [24](#), [30](#), [32](#), [129](#), [130](#)
- EDWARDS, D. J., E. SIMONEN et S. BRUEMMER. 2003b, «Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275 °C», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 317, p. 13–31. [14](#), [15](#), [18](#), [19](#), [22](#), [56](#)
- EDWARDS, D. J., E. P. SIMONEN et S. M. BRUEMMER. 1999, «Radiation hardening in austenitic stainless steels irradiated in LWR's», dans *Ninth international symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors-*, p. 1007–1013. [18](#), [19](#)
- EGERTON, R. F. 2008, «Electron energy-loss spectroscopy in the TEM», *Reports on Progress in Physics*, vol. 72, n° 1, p. 016 502. [60](#)
- ERNST, F., D. LI, H. KAHN, G. M. MICHAL et A. H. HEUER. 2011, «The carbide M7C3 in low-temperature-carburized austenitic stainless steel», *Acta Materialia*, vol. 59, n° 6, doi :10.1016/j.actamat.2010.11.058, p. 2268–2276. [95](#), [116](#), [126](#)
- ESMAILZAEDEH, B. et A. S. KUMAR. 1985, «Influence of Composition on Steady-State Void Nucleation in Irradiated Alloys», dans *12th International symposium, Effects of Radiation on materials, ASTM 870*, p. 469–480. [32](#)
- ETHERINGTON, E., J. BRAMMAN, R. NELSON et M. NORGETT. 1975, «A UKAEA evaluation of displacement damage models for iron», *Nuclear Engineering and Design*, vol. 33, p. 82–90. [11](#)
- ETIENNE, A. 2009, *Etude des effets d'irradiations et de la nanostructuration dans les aciers austénitiques inoxydables*, thèse de doctorat, Université de Rouen. [19](#), [56](#), [61](#), [115](#), [117](#)
- ETIENNE, A., M. HERNÁNDEZ-MAYORAL, C. GENEVOIS, B. RADIGUET et P. PAREIGE. 2010a, «Dislocation loop evolution under ion irradiation in austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 400, p. 56–63. [20](#), [32](#), [113](#), [114](#), [115](#), [118](#), [122](#)
- ETIENNE, A., B. RADIGUET, N. J. CUNNINGHAM, G. R. ODETTE et P. PAREIGE. 2010b, «Atomic scale investigation of radiation-induced segregation in austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 406, n° 2, p. 244–250. [16](#), [115](#)
- ETIENNE, A., B. RADIGUET, P. PAREIGE, J.-P. MASSOUD et C. POKOR. 2008, «Tomographic atom probe characterization of the microstructure of a cold worked 316 austenitic stainless steel after neutron irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 382, p. 64–69. [5](#), [129](#), [130](#)
- FOSTER, J. P., D. L. PORTER, D. HARROD, T. MAGER et M. BURKE. 1995, «316 stainless steel cavity swelling in a PWR», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 224, n° 3, p. 207–215. [5](#), [130](#)
- FOSTER, J. P. et R. V. STRAIN. 1974, «Empirical swelling equation for solution annealed type 304 stainless steel», *Nuclear Technology*, vol. 24, p. 93–98. [27](#), [28](#)
- FU, C. C., E. MESLIN, A. BARBU, F. WILLAIME et V. OISON. 2008, «Effect of C on Vacancy Migration in alpha-Iron», *Solid State Phenomena*, vol. 139, p. 157–164. [120](#)

- FU, C.-C., J. D. TORRE, F. WILLAIME, J.-L. BOCQUET et A. BARBU. 2005, «Multiscale modelling of defect kinetics in irradiated iron», *Nature Materials*, vol. 4, n° 1, p. 68–74. [140](#)
- FUJIMOTO, K., T. YONEZAWA, E. WACHI, Y. YAMAGUCHI, M. NAKANO, R. SHOGAN, J. MASSOUD et T. MAGER. 2005, «Effect of accelerated irradiation and hydrogen-Helium gas on IASCC characteristics for highly irradiated austenitic stainless steels», dans *Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System - Water Reactors*, p. 299–310. [30](#), [42](#), [129](#), [130](#)
- FUKUYA, K., K. FUJII, H. NISHIOKA et Y. KITSUNAI. 2006, «Evolution of Microstructure and Microchemistry in Cold-worked 316 Stainless Steels under PWR Irradiation», *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 43, n° 2, p. 159–173. [5](#), [12](#), [14](#), [16](#), [18](#), [22](#), [23](#), [25](#), [32](#), [42](#), [129](#), [130](#)
- GAN, J., E. SIMONEN, S. BRUEMMER, L. FOURNIER, B. SENCER et G. WAS. 2004, «The effect of oversized solute additions on the microstructure of 316SS irradiated with 5 MeV Ni⁺⁺ ions or 3.2 MeV protons», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 325, p. 94–106. [16](#), [17](#), [112](#), [113](#), [114](#), [118](#)
- GARNER, F. 1983, «Impact of the injected interstitial on the correlation of charged particle and neutron-induced radiation damage», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 117, p. 177–197. [158](#)
- GARNER, F. 1984, «Recent insights on the swelling and creep of irradiated austenitic alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 123, p. 459–471. [4](#), [26](#), [33](#)
- GARNER, F. 1994, «Irradiation performance cladding and structural steels in liquid metal reactors», dans *Comprehensive Nuclear Materials*, p. 419–543. [5](#)
- GARNER, F. 2012, «Radiation Damage in Austenitic Steels», dans *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier Inc., p. 33–95. [4](#), [5](#), [12](#), [25](#), [26](#), [27](#), [29](#), [30](#), [34](#), [120](#)
- GARNER, F., C. BLACK et D. EDWARDS. 1997, «Factors which control the swelling of Fe-Cr-Ni ternary austenitic alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 245, n° 2, p. 124–130. [26](#), [27](#)
- GARNER, F. et H. BRAGER. 1988, «Influence of Mo, Si, P, C, Ti, Cr, Zr and various trace elements on the neutron-induced swelling of AISI 316 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 157, p. 833–837. [33](#)
- GARNER, F., H. BRAGER et W. WOLFER. 1981, «The role of cold-work in the temporary suppression of void swelling», dans *International Conference on Neutron Irradiation Effects*. [34](#)
- GARNER, F., D. EDWARDS, S. BRUEMMER, S. POROLLO, Y. KONOBEV, V. NEUSTROEV, V. SHAMARDIN et A. KOZLOV. 2002, «Recent developments concerning potential void swelling of pwr internals constructed from austenitic stainless steels», dans *Fontevraud* 5, p. 393–404. [34](#)
- GARNER, F., L. GREENWOOD et D. HARROD. 1993, «Potential high fluence response of pressure vessels internals constructed from austenitic stainless steels», dans *6th international Conference on environmental degradation of materials in nuclear power systems water reactors*, p. 783–790. [2](#), [12](#), [35](#), [48](#)

- GARNER, F. et A. KUMAR. 1987, «The influence of both major and minor element composition on void swelling in austenitic steels», *Radiation-Induced Changes in Microstructure :13th International Symposium (Part I)*, ASTM STP 955, p. 289–314. [33](#), [116](#)
- GARNER, F., S. POROLLO, Y. KONOBEEV, V. NEUSTROEV et O. MAKSIMKIN. 2006, «Void swelling of russian austenitic stainless steels at PWR-relevant displacement rates and temperatures», dans *Proceedings of Fontevraud-6 Symposium on Contribution of Materials Investigations to Improve the Safety Performance of LWRs*, p. 637–648. [5](#), [12](#), [13](#), [22](#)
- GARNER, F. et L. THOMAS. 1973, «Production of voids in stainless steels by high-Voltage electrons», dans *Effects of radiation on substructure and mechanical properties of metals and alloys*, ASTM STP 529, p. 303–325. [50](#), [156](#)
- GARNER, F. et W. WOLFER. 1984, «Factors which determine the swelling behavior of austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 122-123, p. 201–206. [4](#)
- GARNER, F. A., H. BRAGER, R. DODD et R. LAURITZEN. 1986, «Ion-induced spinodal-like decomposition of Fe-Ni-Cr invar alloys», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 16, p. 244–250. [32](#)
- GARNIER, J. 2007, *Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des réacteurs à eau pressurisée*, thèse de doctorat, Grenoble-INP. [56](#), [57](#)
- GELLES, D. 1981, «A frank loop unfaulting mechanism in fcc metals during neutron irradiation», dans *International conference on dislocation modeling of physical systems*, p. 158. [15](#), [16](#), [114](#), [137](#)
- GELLES, D. 1993, «Effects of stress on microstructural evolution during irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 205, p. 146–161. [15](#), [16](#)
- GETTO, E., Z. JIAO, A.M. MONTERROSA, K. SUN et G. WAS. 2015, «Effect of irradiation mode on the microstructure of self-ion irradiated ferritic-martensitic alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 465, p. 116–126. [26](#)
- GHONEIM, N. et S. SHARAFAT. 1980, «A numerical solution to the Fokker-Planck equation describing the evolution of the interstitial loop microstructure during irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 92, p. 121–135. [38](#)
- GIGAX, J., E. AYDOGAN, T. CHEN, D. CHEN, L. SHAO, Y. WU, W. LO, Y. YANG et F. GARNER. 2015, «The influence of ion beam rastering on the swelling of self-ion irradiated pure iron at 450°C», *Journal of Nuclear Materials*. [26](#), [158](#)
- GLOWINSKI, L. D., J. M. LANORE, C. FICHE et Y. ADDA. 1976, «Étude de la formation des cavités d'irradiation dans le cuivre iv-etude des mecanismes», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 61, p. 41–52. [28](#)
- GOLTRANT, O., R. CAUVIN, D. DEYDIER et A. TRENTY. 1998, «Eléments internes inférieur : apports de l'expertise d'une cornière de Chooz A», dans *Fontevraud 4*, vol. I, p. 183–193. [18](#), [130](#)
- GOLUBOV, S., A. OVCHARENKO, A. BARASHEV et B. SINGH. 2001, «Grouping method for the approximate solution of a kinetic equation describing the evolution of point-defect clusters», *Philosophical Magazine A*, vol. 81, n° 3, p. 643–658. [38](#)

- GOLUBOV, S. I., R. E. STOLLER, S. J. ZINKLE et A. M. OVCHARENKO. 2007, «Kinetics of coarsening of helium bubbles during implantation and post-implantation annealing», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 361, p. 149–159. [38](#)
- GREENWOOD, L. R. 1983, «A new calculation of thermal neutron damage and helium production in nickel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 115, p. 137–142. [12](#)
- HAMADA, S., P. J. MAZIASZ, M. P. TANAKA, M. SUZUKI et A. HISHINUMA. 1988, «Temperature dependence of swelling in type 316 stainless steel irradiated in HFIR», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 155-157, p. 838–844. [34](#)
- HAMADA, S., M. SUZUKI, P. J. MAZIASZ et A. HISHINUMA. 1991, «Microstructural evolution in austenitic stainless steels irradiated to 57 dpa in HFIR», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 179-181, n° PART 1, p. 515–518. [24](#), [33](#)
- HARDOUIN DUPARC, A., C. MOINGEON, N. SMETNIANSKY-DE-GRANDE et A. BARBU. 2002, «Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 302, n° 2-3, p. 143–155. [38](#)
- HASHIMOTO, N., T. S. BYUN et K. FARRELL. 2006, «Microstructural analysis of deformation in neutron-irradiated fcc materials», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 351, n° 1-3, p. 295–302. [14](#)
- HASHIMOTO, N., Y. EDA et H. TAKAHASHI. 1996, «Effect of crystal orientation on grain boundary migration and radiation-induced segregation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 239, p. 180–184. [20](#)
- HASHIMOTO, N., E. WAKAI, J. P. ROBERTSON, T. SAWAI et A. HISHINUMA. 2000, «Microstructure of austenitic stainless steels irradiated at 400C in the ORR and the HFIR spectral tailoring experiment», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 280, n° 2, p. 186–195. [24](#), [120](#)
- HEPBURN, D. J., D. FERGUSON, S. GARDNER et G. J. ACKLAND. 2013, «First-principles study of helium, carbon, and nitrogen in austenite, dilute austenitic iron alloys, and nickel», *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 88, n° 2, p. 1–26. [33](#), [120](#)
- HORIKI, M., T. YOSHIE, S. HUANG, K. SATO, X. CAO, Q. XU et T. TROEV. 2013, «Effects of alloying elements on defect structures in the incubation period for void swelling in austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 442, p. S813–S816. [33](#)
- HOYT, J. J. et F. A. GARNER. 1991, «The solute dependence of bias factors in irradiated FeNi alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 179-181, p. 1096–1099. [32](#), [33](#)
- HUANG, Y., J. WIEZOREK, F. GARNER, P. FREYER, T. OKITA, M. SAGISAKA, Y. ISOBE et T. ALLEN. 2015, «Microstructural characterization and density change of 304 stainless steel reflector blocks after long-term irradiation in EBR-II», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 465, p. 516–530. [17](#), [117](#), [118](#), [127](#), [128](#)
- INOUE, A. et T. MASUMOTO. 1980, «Carbide reactions (M3C-M7C3-M23C6-M6C) during tempering of rapidly solidified high carbon Cr-W and Cr-Mo steels», *Metallurgical Transactions A*, vol. 11, n° 5, p. 739–747. [116](#)

- ISOBE, Y., M. SAGISAKA, F. GARNER et T. OKITA. 2009, «Precipitate evolution in low-nickel austenitic stainless steels during irradiation at very low dose rates», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 386-388, p. 661–665. [128](#)
- JENKINS, M. et M. A. KIRK. 2001, *Characterization of radiation damage by transmission electron microscopy*, Institute of Physics Publishing (IoP). [53](#), [54](#)
- JIAO, Z. et G. WAS. 2011, «Novel features of radiation-induced segregation and radiation-induced precipitation in austenitic stainless steels», *Acta Materialia*, vol. 59, n° 3, p. 1220–1238. [20](#)
- JIAO, Z. et G. WAS. 2014, «Precipitate behavior in self-ion irradiated stainless steels at high doses», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 449, n° 1-3, p. 200–206. [112](#), [117](#)
- JIN, H.-H., E. KO, S. LIM et J. KWON. 2015, «Effects of helium and hydrogen on radiation-induced microstructural changes in austenitic stainless steel», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 359, p. 69–74. [113](#), [115](#), [118](#), [122](#)
- JOHNSTON, W. G., J. H. ROSOLOWSKI, A. M. TURKALO et T. LAURITZEN. 1973a, «Nickel-ion bombardment of annealed and cold worked type 316 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 48, p. 330–338. [30](#)
- JOHNSTON, W. G., J. H. ROSOLOWSKI, A. M. TURKALO et T. LAURITZEN. 1973b, «Nickel ion bombardment of type 304 stainless steel : comparison with fast reactor swelling data», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 47, p. 155–167. [30](#), [31](#)
- JOHNSTON, W. G., J. H. ROSOLOWSKI, A. M. TURKALO et T. LAURITZEN. 1974, «An experimental survey of swelling in commercial Fe-Cr-Ni alloys with 5 MeV Ni ions», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 54, p. 24–40. [32](#)
- JOURDAN, T. 2015, «Influence of dislocation and dislocation loop biases on microstructures simulated by rate equation cluster dynamics», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 467, p. 286–301. [38](#), [137](#), [141](#), [144](#), [149](#)
- JOURDAN, T. et G. ADJANOR. 2015, «User Documentation for CRESCENDO v3 . 1», , p. 1–101. [134](#), [135](#), [137](#)
- JOURDAN, T., G. BENCTEUX et G. ADJANOR. 2014, «Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects : A cluster dynamics approach», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 444, n° 1-3, p. 298–313. [38](#), [134](#), [144](#)
- JOURDAN, T. et J.-P. CROCOMBETTE. 2012, «Rate theory cluster dynamics simulations including spatial correlations within displacement cascades», *Physical Review B*, vol. 86, p. 054 113–1. [143](#), [161](#)
- JOURDAN, T., G. STOLTZ, F. LEGOLL et L. MONASSE. 2016, «An accurate scheme to solve cluster dynamics equations using a Fokker-Planck approach», *Computer Physics Communications*, vol. In press. [135](#)
- JUBLLOT-LECLERC, S., X. LI, L. LEGRAS, M.-L. LESCOAT, F. FORTUNA et A. GENTILS. 2016, «Microstructure of Au-ion irradiated 316L and FeNiCr austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 480, p. 436–446. [113](#), [117](#), [123](#)

- JUNG, P. 1983, «Displacement functions of cubic metals», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 117, p. 70–77. [9](#)
- KALCHENKO, A., V. BRYK, N. LAZAREV, I. NEKLYUDOV, V. VOYEVODIN et F. GARNER. 2010, «Prediction of swelling of 18Cr10NiTi austenitic steel over a wide range of displacement rates», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 399, p. 114–121. [26](#), [35](#), [42](#)
- KATOH, Y., R. E. STOLLER, Y. KOHNO et A. KOHYAMA. 1994, «The influence of He/dpa ratio and displacement rate on microstructural evolution : a comparison of theory and experiment», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 210, p. 290–302. [24](#), [30](#), [31](#), [42](#), [113](#)
- KATOH, Y., R. E. STOLLER et A. KOHYAMA. 1992, «Modeling the effects of damage rate and He/dpa ratio on microstructural evolution», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 194, p. 1144–1149. [5](#), [30](#), [31](#)
- KELLY, T. F. et D. J. LARSON. 2000, «Local electrode atom probes», *Materials Characterization*, vol. 44, n° 1-2, p. 59–85. [63](#)
- KENIK, E. A. et J. T. BUSBY. 2012, «Radiation-induced degradation of stainless steel light water reactor internals», *Materials Science and Engineering R : Reports*, vol. 73, p. 67–83. [21](#), [22](#)
- KINCHIN, G. H. et R. S. PEASE. 1955, «The mechanism of irradiation disordering of alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 1, p. 200–202. [10](#)
- KINNEY, J., M. GUINAN et Z. MUNIR. 1984, «Defect production efficiencies in thermal neutron irradiated copper and molybdenum», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 123, p. 1028–1032. [9](#), [145](#)
- KIRITANI, M. 1973, «Analysis of the Clustering Process of Supersaturated Lattice Vacancies», *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 35, n° 1, doi :10.1143/JPSJ.35.95, p. 95–107. [38](#)
- KIRITANI, M. 1994, «Microstructure evolution during irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 216, n° C, p. 220–264. [14](#)
- KIRITANI, M., H. TAKATA, N. YASHIDA et Y. MAEHARA. 1975, «Long range interaction between radiation-induced point defects and dislocations», dans *Fundamental aspects of radiation damage in metals*, vol. 2, p. 889–895. [124](#), [156](#)
- KIRITANI, M., T. YOSHIIE, S. KOJIMA, Y. SATOH et K. HAMADA. 1990, «Fission-fusion correlation by fission reactor irradiation with improved control», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 174, n° 2-3, p. 327–351. [14](#)
- KOJIMA, S., Y. SANO, T. YOSHIIE, N. YOSHIDA et M. KIRITANI. 1986, «Conversion of stacking fault tetrahedra to voids in electron irradiated Fe-Cr-Ni», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 141-143, n° PART 2, p. 763–766. [14](#)
- LAU, T. T., C. J. FÖRST, X. LIN, J. D. GALE, S. YIP et K. J. V. VLIET. 2007, «Many-body potential for point defect clusters in Fe-C alloys», *Physical Review Letters*, vol. 98, n° 21, p. 98–101. [120](#)

- LE MILLIER, M. 2014, *Fragilisation des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation : évolution de la microstructure et amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP*, thèse de doctorat, Mines ParisTech. [16](#), [105](#), [113](#), [114](#), [122](#), [142](#)
- LEE, E. H., L. K. MANSUR et M. H. YOO. 1979, «Spatial variation in void volume during charged particle bombardment - the effects of injected interstitials», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 85-86, p. 577–581. [158](#)
- LEE, E. H., A. F. ROWCLIFFE et L. K. MANSUR. 1981, «Precipitation and cavity formation in austenitic stainless steels during irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 104, p. 1475–1480. [24](#)
- LEVY, V., D. GILBON et C. RIVERA. 1985, «Influence of Helium on swelling of Steels», dans *12th International symposium, Effects of Radiation on materials, ASTM 870*, p. 317–329. [31](#)
- LORETTO, M. et R. SMALLMAN. 1975, *Defect analysis in electron microscopy*, Chapman and Hall, 1–144 p.. [53](#)
- MAKIN, M., G. WALTERS et A. FOREMAN. 1980, «The void swelling behaviour of electron irradiated type 316 austenitic steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 95, p. 155–170. [120](#)
- MAKSIMKIN, O., K. TSAI, L. TURUBAROVA, T. DORONINA et F. GARNER. 2004, «Characterization of 08Cr16Ni11Mo3 stainless steel irradiated in the BN-350 reactor», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 329-333, p. 625–629. [5](#)
- MAKSIMKIN, O., K. TSAI, L. TURUBAROVA, T. DORONINA et F. GARNER. 2007, «Void swelling of AISI 321 analog stainless steel irradiated at low dpa rates in the BN-350 reactor», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 367-370, p. 990–994. [5](#)
- MANSUR, L. 1978, «Correlation of neutron and heavy-ion damage PartII : The predicted temperature shift in swelling with changes in radiation dose rate», vol. 78, p. 156–160. [29](#), [36](#), [42](#), [127](#), [129](#), [162](#)
- MANSUR, L. 1994, «Theory and experimental background on dimensional changes in irradiated alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 216, p. 97–123. [38](#), [127](#), [129](#)
- MANSUR, L. K. et M. H. YOO. 1979, «Advances in the theory of swelling in irradiated metals and alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 85-86, p. 523–532. [38](#)
- MAO, S., S. SHU, J. ZHOU, R. S. AVERBACK et S. J. DILLON. 2015, «Quantitative comparison of sink efficiency of Cu-Nb, Cu-V and Cu-Ni interfaces for point defects», *Acta Materialia*, vol. 82, p. 328–335. [9](#), [145](#), [146](#)
- MATSUBARA, T., T. TSUTSUI, Y. KAMEI et M. KITSU. 2010, «Stress evaluation of Baffle Former Bolt for IASCC failure prediction», dans *Fontevraud 7*. [3](#)
- MAZIASZ, P. 1992, «Temperature dependence of the dislocation microstructure of PCA austenitic stainless steel irradiated in ORR spectrally-tailored experiments», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 194, p. 701–705. [19](#)

- MAZIASZ, P. 1993, «Overview of microstructural evolution in neutron irradiated austenitic stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 205, p. 118–145. [3](#), [14](#), [19](#), [22](#)
- MAZIASZ, P. et C. MCHARGUE. 1987, «Microstructural evolution in annealed austenitic steels during neutron irradiation», *International Materials Reviews*, vol. 32, n° 4, p. 190–219. [21](#), [22](#)
- MCDONALD, S. et A. TAYLOR. 1973, «Void Swelling Behavior of Types 304 and 316 stainless steel irradiated with 4-MeV Ni+ Ions», dans *Effects of radiation on substructure and mechanical properties of metals and alloys*, ASTM STP 529, p. 228–243. [113](#), [114](#), [115](#)
- MENZINGER, F. et F. SACCHETTI. 1975, «Dose-rate dependence of swelling and damage in ion-irradiated nickel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 57, p. 193–197. [28](#)
- MILLER, M. 2000, *Atom Probe Tomography -Analysis at the atomic scale*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York. [61](#)
- MONNET, I., G. DECROIX, P. DUBUISSON, J. REUCHET et O. MORLENT. 2002, «Investigation of the Chooz A nuclear power plant bolts», dans *Fontevraud 5*, p. 371–379. [18](#), [129](#), [130](#)
- MUROGA, T., F. A. GARNER et S. OHNUKI. 1991, «Microstructural investigation of swelling dependence on nickel content in fast neutron-irradiated Fe-Cr-Ni austenitic ternaries», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 179-181, p. 546–549. [32](#)
- NELSON, R., D. MAZEY et J. HUDSON. 1971, «Voids formed by irradiation of reactor materials», dans *British Nuclear Energy Society Proceeding of a European Conference held at Reading University*. [162](#)
- NEUSTROEV, V., V. SHAMARDIN, Z. OSTROVSKY, A. PECHERIN et F. GARNER. 1998, «Temperature-shift of void swelling observed at PWR-relevant temperatures in annealed Fe-18Cr-10Ni-Ti stainless steel irradiated at high and low DPA rates in Bor-60», dans *International Symposium on Contribution of Materials Investigation to the Resolution of Problems Encountered in Pressurized Water Reactors*, vol. I. [28](#)
- NORGETT, M., M. ROBINSON et I. TORRENS. 1975, «A proposed method of calculating displacement dose rates», *Nuclear Engineering and Design*, vol. 33, p. 50–54. [11](#)
- OKAMOTO, P. et S. HARKNESS. 1973, «Stress-biased loop nucleation in irradiated type 316 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 48, p. 204–206. [56](#)
- OKITA, T., T. SATO, N. SEKIMURA, T. IWAI et F. GARNER. 2007, «The synergistic influence of temperature and displacement rate on microstructural evolution of ion-irradiated Fe – 15Cr – 16Ni model austenitic alloy», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 367-370, p. 930–934. [5](#), [26](#)
- OKITA, T., W. WOLFER, F. GARNER et N. SEKIMURA. 2005, «Effects of titanium additions to austenitic ternary alloys on microstructural evolution and void swelling», *Philosophical Magazine*, vol. 85, n° 18, p. 2033–2048. [28](#), [29](#), [30](#)
- OSETSKY, Y. N. et D. J. BACON. 2003, «Atomic-scale modelling of primary damage and properties of radiation defects in metals», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 202, p. 31–43. [9](#)

- PACKAN, N., K. FARRELL et J. STIEGLER. 1978, «Correlation of neutron and heavy-ion damage», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 78, p. 143–155. [28](#)
- PANAÏT, C., E. FARGEAS, S. MILOUDI, P. MOULART, N. MONTEIL et C. POKOR. 2014, «Metallurgical examinations update of baffle bolts removed from operating French PWR Microstructural investigations of a baffle to former bolt located on a high level of the internal structures», dans *Fontevraud 8 - Contribution of Materials Investigations and Operating Experience to LWRs' Safety, Performance and Reliability*. [18](#), [129](#), [130](#)
- PIRONET, G., A. HEUZÉ, O. GOLTRANT et R. CAUVIN. 1998, «Expertise des vis de liaison cloison-renfort de la centrale de Tihange 1», dans *Fontevraud 4*, p. 195. [18](#), [129](#), [130](#)
- POKOR, C. 2002, *Caractérisation microstructurale et modélisation du durcissement des aciers austénitiques irradiés des structures internes des réacteurs à eau pressurisée*, thèse de doctorat, Grenoble-INP. [16](#), [18](#), [19](#), [38](#), [42](#), [113](#), [114](#), [118](#), [122](#), [129](#)
- POKOR, C., Y. BRECHET, P. DUBUISSON, J.-P. MASSOUD et X. AVERTY. 2004a, «Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels : experimental investigation and modeling. Part II : Irradiation induced hardening», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 326, n° 1, p. 30–37. [17](#), [144](#)
- POKOR, C., Y. BRECHET, P. DUBUISSON, J.-P. MASSOUD et A. BARBU. 2004b, «Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels : experimental investigation and modeling. Part I : Evolution of the microstructure», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 326, p. 19–29. [118](#), [128](#)
- POKOR, C., Y. THEBAULT, J.-P. MASSOUD, M. DELNONDEDIEU, D. LOISNARD, P. DUBUISSON, J. KOCIK, E. KEILOVÀ, E. LEMAIRE et N. LIGNEAU. 2006, «Microstructural evolution of neutron irradiated stainless steels : comparison between irradiations in experimental reactors and in pressurized water reactors», *Proceedings Fontevraud 6*. [17](#), [18](#), [128](#), [129](#), [130](#)
- POROLLO, S., A. DVORIASHIN, Y. KONOBEV, A. IVANOV, S. SHULEPIN et F. GARNER. 2006, «Microstructure and mechanical properties of austenitic stainless steel 12X18H9T after neutron irradiation in the pressure vessel of BR-10 fast reactor at very low dose rates», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 359, p. 41–49. [5](#)
- POROLLO, S., Y. KONOBEV, A. DVORIASHIN, A. VOROBYEV, V. KRIGAN et F. GARNER. 2002, «Void swelling at low displacement rates in annealed 12X18H9T stainless steel at 4 – 56 dpa and 280 – 332 ° C», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 311, p. 339–342. [5](#), [22](#)
- POROLLO, S., S. SHULEPIN, Y. KONOBEV et F. GARNER. 2008, «Influence of silicon on swelling and microstructure in Russian austenitic stainless steel EI-847 irradiated to high neutron doses», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 378, p. 17–24. [33](#)
- PORTER, D., G. HUDMAN et F. GARNER. 1991, «Irradiation creep and swelling of annealed Type 304L stainless steel at 390°C and high neutron fluence», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 181, p. 581–584. [29](#)
- REHN, L. 1990, «Production of freely-migrating defects», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 174, p. 144–150. [9](#), [145](#), [146](#)

- REHN, L., P. OKAMOTO et R. AVERBACK. 1984, «Relative efficiencies of different ions for producing freely migrating defects», *Physical Review B*, vol. 30, n° 6, p. 3073–3080. [9](#), [161](#)
- REHN, L., P. OKAMOTO, D. POTTER et H. WIEDERSICH. 1978, «Effect of solute misfit and temperature of irradiation-induced segregation in binary Ni alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 74, p. 242–251. [9](#), [20](#), [115](#)
- RENAULT, A. 2012, «Microstructure / Microchimie d'aciers austénitiques inoxydables après irradiation dans l'expérience Elixir - Confrontation avec les mesures du PTE et de la pesée (réacteur Phénix)», cahier de recherche. [21](#)
- RENAULT, A., J. MALAPLATE, C. POKOR et P. GAVOILLE. 2012, «TEM and EFTEM characterization of solution annealed 304L stainless steel irradiated in PHENIX, up to 36 dpa and at 390°C», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 421, p. 124–131. [17](#), [24](#), [80](#), [115](#), [117](#), [118](#), [127](#)
- RENAULT, A., J. MALAPLATE, C. POKOR, P. GAVOILLE, J.-P. MASSOUD et J. GARNIER. 2010, «Effects of chemical composition, metallurgical state and stress during irradiation on microstructure of neutron-irradiated austenitic stainless steels : comparison of PWR and BOR-60 irradiations», dans *Fontevraud 7*. [21](#), [55](#)
- RENAULT, A., C. POKOR, J. GARNIER et J. MALAPLATE. 2009, «Microstructure and grain boundary chemistry evolution in austenitic stainless steels irradiated in the BOR-60 reactor up to 120 dpa», dans *14th International Conference of Materials in Nuclear Power Systems*, p. 1324–1334. [17](#), [18](#), [21](#), [114](#), [118](#), [121](#), [126](#), [127](#), [128](#)
- RENAULT LABORNE, A., P. GAVOILLE, J. MALAPLATE, C. POKOR et B. TANGUY. 2015, «Correlation of radiation-induced changes in microstructure/microchemistry, density and thermo-electric power of type 304L and 316 stainless steels irradiated in the Phénix reactor», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 460, p. 72–81. [18](#), [34](#), [55](#), [114](#), [121](#), [127](#)
- RENAULT-LABORNE, A., J. MALAPLATE, C. POKOR et B. TANGUY. 2014, «Characterization of Precipitates in 316 Stainless Steel Neutron-Irradiated at 390°C by the Combination of CDF-TEM, EF-TEM and HR-TEM», dans *Effects of Radiation on Nuclear Materials : 26th Volume*, p. 1–24. [17](#), [21](#), [24](#), [33](#), [55](#), [89](#), [115](#), [117](#), [118](#), [128](#)
- ROBINSON, M. T. 1994, «Basic physics of radiation damage production», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 216, p. 1–28. [11](#)
- ROBINSON, M. T. 2002, «MARLOWE Binary Collision Cascade Simulation Program, version 15b, A guide for users», . [11](#)
- ROBINSON, M. T. et I. M. TORRENS. 1974, «Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation», *Physical review B*, vol. 9, n° 12, p. 5008–5024. [11](#)
- RUVAULT, M. O., F. FORTUNA, H. BERNAS, J. CHAUMONT, O. KAÏTASOV et V. A. BORODIN. 2005, «In situ Transmission Electron Microscopy Ion Irradiation Studies at Orsay», *Journal of Materials Research*, vol. 20, n° 07, p. 1758–1768. [47](#)
- RUSSELL, K. 1971, «Nucleation of Voids in Irradiated Stainless Steel», *Acta Metallurgica*, vol. 19, p. 753–758. [38](#)

- RUSSELL, K. C. 1978, «The theory of void nucleation in metals», *Acta Metallurgica*, vol. 26, p. 1615–1630. [38](#)
- SACCHETTI, F. 1977, «Simulation of the fast neutron void swelling in AISI 316 stainless steel. Dose and dose-rate dependences», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 64, p. 115–120. [28](#)
- SANDUSKY, D., C. SPALARIS et U. WOLFF. 1972, «Irradiation temperature dependence of void formation in type 304 stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 42, p. 133–141. [23](#), [27](#), [128](#)
- SARRAU, J. M., F. DANOIX, B. SECONIHOUT, M. BOUET, A. MENAND et D. BLAVETTE. 1994, «Rouen energy-compensated atom probe», *Applied Surface Science*, vol. 76-77, p. 367–373. [61](#)
- SATOH, Y., H. ABE et S. KIM. 2012, «One-dimensional migration of interstitial clusters in SUS316L and its model alloys under electron irradiation», *Philosophical Magazine*, vol. 92, n° 9, p. 1129–1148. [50](#), [124](#), [158](#)
- SATOH, Y., H. ABE, Y. MATSUKAWA, T. MATSUNAGA, S. KANO, S. ARAI, Y. YAMAMOTO et N. TANAKA. 2015, «One-dimensional migration of interstitial clusters in SUS316L and its model alloys at elevated temperatures», *Philosophical Magazine*, vol. 95, n° 14, p. 1587–1606, ISSN 1478-6435. [50](#), [124](#), [158](#)
- SATOH, Y., S. ABE, H. MATSUI et I. YAMAGATA. 2007, «Void swelling behavior in electron irradiated Fe-Cr-Ni model alloys under temperature variation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 367-370 B, p. 972–976. [14](#)
- SAWAI, T., Y. KITSUNAI, S. SAITO et K. KIKUCHI. 2006, «Microstructural evolution of SINQ irradiated austenitic stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 356, n° 1-3, p. 118–121. [14](#)
- SCHÄUBLIN, R., Z. YAO, N. BALUC et M. VICTORIA. 2005, «Irradiation-induced stacking fault tetrahedra in fcc metals», *Philosophical Magazine*, vol. 85, doi :10.1080/14786430412331319929, p. 769–777. [14](#)
- SCHIBLI, R. et R. SCHÄUBLIN. 2013, «On the formation of stacking fault tetrahedra in irradiated austenitic stainless steels – A literature review», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 442, n° 1-3, p. S761–S767. [14](#)
- SEEGER, A. et U. GÖSELE. 1977, «Steady-state diffusion of point defects to dislocation loops», *Physics Letters A*, vol. 61, n° 6, p. 423–425. [141](#)
- SEKIMURA, N., M. TAGUCHI et S. ISHINO. 1988, «Inhomogeneous microstructural evolution in ion-irradiated austenitic steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 155-157, n° PART 2, p. 828–832. [14](#)
- SENCER, B. H., G. S. WAS, M. SAGISAKA, Y. ISOBE, G. M. BOND et F. A. GARNER. 2003, «Proton irradiation emulation of PWR neutron damage microstructures in solution annealed 304 and cold-worked 316 stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 323, p. 18–28. [22](#), [31](#), [35](#), [56](#)

- SERAN, J.-L. et J.-M. DUPOUY. 1983, «Effect of time and dose rate on the swelling of 316 cladding in Phenix», dans *Conference on dimensional stability and mechanical behaviour of irradiated metals and alloys*, vol. 6, Brighton, UK. [5](#), [28](#), [29](#)
- SHAO, L., C.-C. WEI, J. GIGAX, A. AITKALIYEVA, D. CHEN, B. SENCER et F. GARNER. 2014, «Effect of defect imbalance on void swelling distributions produced in pure iron irradiated with 3.5 MeV self-ions», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 453, p. 176–181. [158](#)
- SHIMADA, M., S. NAKAHIGASHI et M. TERASAWA. 1976, «Swelling of type 304 stainless steels bombarded with 200 keV C+ ions», *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 13, p. 743–751. [113](#), [115](#), [118](#)
- SHORT, M., D. GASTON, M. JIN, L. SHAO et F. GARNER. 2016, «Modeling injected interstitial effects on void swelling in self-ion irradiation experiments», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 471, p. 200–207. [26](#), [35](#), [38](#), [158](#), [160](#)
- SIMONEN, E. P. et S. M. BRUEMMER. 1996, «Lattice defect and grain boundary interactions related to IASCC», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 239, p. 185–193. [19](#), [115](#)
- SIZMANN, R. 1968, «The effect of radiation upon diffusion in metals», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 69-70, p. 386–412. [38](#), [158](#)
- STEVENS, K. J. et P. B. JOHNSON. 1997, «Defocussed TEM contrast from small helium bubbles in copper», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 246, p. 17–29. [57](#)
- STIEGLER, J. et E. BLOOM. 1969, «The effects of large fast-neutron fluences on structure of stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 33, p. 173–185. [17](#), [128](#)
- STOENESCU, R., R. SCHÄUBLIN, D. GAVILLET et N. BALUC. 2007, «Welding-induced microstructure in austenitic stainless steels before and after neutron irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 360, n° 2, p. 186–195. [14](#), [15](#)
- STOLLER, E. et G. ODETTE. 1988, «The effects of helium implantation in an austenitic alloy», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 154, p. 286–304. [14](#)
- STOLLER, R., M. TOLOCZKO, G. WAS, A. CERTAIN, S. DWARAKNATH et F. GARNER. 2013, «On the use of SRIM for computing radiation damage exposure», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, vol. 310, doi :10.1016/j.nimb.2013.05.008, p. 75–80. [11](#), [12](#), [43](#)
- STOLLER, R. E. 1990, «The influence of helium on microstructural evolution : Implications for DT fusion reactors», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 174, n° 2-3, p. 289–310. [30](#)
- STOLLER, R. E. et G. R. ODETTE. 1987, «A Composite Model of Microstructural Evolution in Austenitic Stainless Steel under Fast Neutron Irradiation», dans *Radiation Induced Changes in Microstructure : 13th International Symposium (Part I)*, p. 371–392. [38](#)
- STRAALSUND, J. L., R. POWELL et B. A. CHIN. 1982, «An overview of neutron irradiation effects in LMFBR materials», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 108-109, p. 299–305. [3](#)
- SUN, C., S. ZHENG, C. C. WEI, Y. WU, L. SHAO, Y. YANG, K. T. HARTWIG, S. MALOY, S. ZINKLE, T. ALLEN, H. WANG et X. ZHANG. 2015, «Superior radiation-resistant nanoengineered austenitic 304L stainless steel for applications in extreme radiation environments.», *Scientific reports*, vol. 5, p. 7801. [112](#), [113](#), [115](#), [117](#), [124](#), [158](#)

- TAN, L. et J. BUSBY. 2013, «Alloying effect of Ni and Cr on irradiated microstructural evolution of type 304 stainless steels», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 443, n° 1-3, p. 351–358. [17](#), [128](#)
- TANIGAWA, H., A. KOHYAMA et Y. KATOH. 1996, «A modeling of radiation induced microstructural evolution under applied stress in austenitic alloys», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 239, p. 80–84. [15](#)
- TISSOT, O. 2016, *Effets de l'irradiation sur la démixtion du Cr dans les alliages FeCr*, thèse de doctorat, Université de Rouen. [125](#)
- TROCELLIER, P., Y. SERRUYS, S. MIRO, E. BORDAS, S. PELLEGRINO, S. VAUBAILLON, M. O. RUAULT, S. HENRY et O. KAÏTASOV. 2008, «Application of multi-irradiation facilities», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. B 266, p. 3178–3181. [43](#)
- TSUCHIDA, H. 1996, «In situ observation of austenitic stainless steels during dual-beam irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 239, p. 112–117. [30](#), [31](#)
- ULLMAIER, H. et W. SCHILLING. 1980, «Radiation damage in metallic reactor materials», dans *Physics of modern materials*, vol. I, p. 301–397. [8](#)
- UNDERWOOD, E. E. 1970, «Statistically exact expressions for points, lines, surfaces and volumes», dans *Quantitative stereology*, Addison-Wesley publishing company, p. 23–46. [59](#)
- VOLGIN, A. 2012, *Characterization and understanding of ion irradiation effects on the microstructure of austenitic stainless steels*, Thèse de doctorat de l'université de Rouen, thèse de doctorat, Université de Rouen. [20](#), [32](#), [35](#), [42](#), [50](#), [58](#), [61](#), [80](#), [113](#), [114](#), [115](#), [117](#), [123](#), [142](#)
- WAKAI, E., N. HASHIMOTO, J. P. ROBERTSON, T. SAWAI et A. HISHINUMA. 2002, «Swelling of cold-worked austenitic stainless steels irradiated in HFIR under spectrally tailored conditions», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 307-311, p. 352–356. [33](#), [34](#)
- WAS, G., M. ATZMON et E. KENIK. 1999, «Microchemistry and microstructure of proton-irradiated austenitic alloys : toward an understanding of irradiation effects in LWR core components», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 270, p. 96–114. [35](#)
- WAS, G. et R. AVERBACK. 2012, «Radiation Damage Using Ion Beams», dans *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier Inc., p. 195–221. [36](#), [42](#), [117](#), [119](#), [162](#)
- WAS, G., J. BUSBY, T. ALLEN, E. KENIK, A. JENSSSEN, S. BRUEMMER, J. GAN, A. EDWARDS, P. SCOTT et P. ANDRESEN. 2002, «Emulation of neutron irradiation effects with protons : validation of principle», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 300, p. 198–216. [10](#), [14](#), [35](#)
- WAS, G., Z. JIAO, A. VAN DER VEN, S. BRUEMMER et D. EDWARDS. 2012, «Aging and Embrittlement of High Fluence Stainless Steels», cahier de recherche. [17](#), [112](#), [113](#), [114](#), [115](#), [118](#), [122](#)
- WAS, G. S. 2007, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, 827 p.. [5](#), [9](#), [10](#), [17](#), [27](#), [35](#)
- WESTMORELAND, J. E., J. A. SPRAGUE, F. A. SMIDT et P. R. MALMBERT. 1975, «Dose rate effects in nickel-ion-irradiated nickel», *Radiation effects*, vol. 26, p. 1–16. [28](#)

- WIEDERSICH, H. et J. L. KATZ. 1979, «The nucleation of voids and other irradiation-produced defect aggregates», *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 10, n° 1, p. 33–71. [38](#)
- WILLIAMS, D. B. et C. B. CARTER. 2009, *Transmission electron microscopy*, 2^e éd., Springer-Verlag New York Inc. [53](#), [60](#), [61](#)
- WILLIAMS, T. M. 1980, «The effect of soluble carbon on void swelling and low dose dislocation structures in type 316 austenitic stainless steel irradiated with 46,5 MeV Ni ions», vol. 88, p. 217–225. [33](#), [113](#), [120](#)
- YOSHIDA, N. 1990, «Microstructure formation and its role on yield strength in AISI 316 SS irradiated by fission and fusion neutrons», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 174, p. 220–228. [14](#)
- ZHANG, C. H., K. Q. CHEN, Y. S. WANG et J. G. SUN. 1998, «Temperature dependence of bubble structure in 316L stainless steel irradiated with 2.5 MeV He ions», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 258-263, p. 1623–1627. [30](#), [31](#)
- ZIEGLER, J. F., J. P. BIRSBACK et M. D. ZIEGLER. 2008, *The Stopping and Range of ions in Matter*. [11](#), [43](#)
- ZINKLE, S., P. MAZIASZ et R. STOLLER. 1993, «Dose dependence of the microstructural evolution in the neutron-irradiated austenitic stainless steel», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 206, p. 266–286. [3](#), [5](#), [13](#), [14](#), [15](#), [16](#), [17](#), [18](#), [22](#), [34](#)
- ZINKLE, S. J., G. L. KULCINSKI et R. W. KNOLL. 1986, «Microstructure of copper following high dose 14-MeV Cu ion irradiation», *Journal of Nuclear Materials*, vol. 138, p. 46–56. [14](#)
- ZOUARI, M. L. 2012, *Modélisation par dynamique d'amas des évolutions microstructurales et du gonflement sous irradiation dans les aciers inoxydables austénitiques*, thèse de doctorat, Université de Grenoble. [26](#), [29](#), [32](#), [38](#), [116](#), [129](#), [144](#)