



HAL
open science

Etude du gonflement par cavités d'un alliage d'aluminium irradié sous faisceau d'ions

Victor Garric

► **To cite this version:**

Victor Garric. Etude du gonflement par cavités d'un alliage d'aluminium irradié sous faisceau d'ions. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Grenoble Alpes, 2019. Français. NNT : 2019GREAI091 . tel-02459099v2

HAL Id: tel-02459099

<https://theses.hal.science/tel-02459099v2>

Submitted on 3 Mar 2020

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie
(2MGE)**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Victor GARRIC

Thèse dirigée par **Patricia DONNADIEU**, Directeur de
Recherche, Université Grenoble-Alpes, et
codirigée par **Kimberly COLAS**, Ingénieur de Recherche, **CEA
Saclay**, et **Bénédicte KAPUSTA**, Ingénieur de Recherche, **CEA
Saclay**

préparée au sein du **Laboratoire de Microscopie et d'Etude de
l'Endommagement (CEA)**
dans l'**École Doctorale Ingénierie, Matériaux, Mécanique,
Energétique, Environnement, Procédés, Production (I-MEP2)**

Etude du gonflement par cavités d'un alliage d'aluminium irradié sous faisceau d'ions

Thèse soutenue publiquement le **21 Novembre 2019**,
devant le jury composé de :

Mme. Brigitte DECAMPS

Directeur de Recherche au CSNSM, Président

Mme. Patricia DONNADIEU

Directeur de Recherche à l'Université Grenoble Alpes, Directeur

Mme. Marie-France BARTHE

Directeur de Recherche au CEMTHI-CNRS, Rapporteur

M. Joël DOUIN

Directeur de Recherche du CEMES-CNRS, Rapporteur

M. Philippe VERMAUT

Maitre de Conférence à l'ENSCP Chimie ParisTech, Examinateur



"Hurrah pour l'aluminium !"

Jules Verne, De la terre à la lune, 1865

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été réalisée au Service d'Etude des Matériaux Irradiés (SEMI) au sein du Laboratoire de Microscopie et d'Etude de l'Endommagement (LM2E) dans le Département des Matériaux pour le Nucléaire (DMN). A ce titre, je tiens à remercier l'ensemble du département pour les moyens d'étude exceptionnels mis à la disposition des thésards et des expérimentateurs plus généralement.

Après plus de trois années passées à travailler au sein du SEMI, je regarde derrière mon épaule et contemple tous ceux dont j'ai croisé le chemin. Si je ne devais dire qu'un mot, un seul, pour décrire mon expérience au CEA, ce serait « bienveillance ». J'ai dû frapper à de nombreuses portes durant cette thèse, poser de nombreuses questions et demander du temps à beaucoup de monde et je dois dire que je n'ai jamais trouvé une porte fermée ni un refus. L'entraide extraordinaire qui règne en ces lieux m'a profondément touché et restera à jamais gravée dans ma mémoire.

En tout premier lieu, je souhaite remercier mon équipe d'encadrement et ma directrice de thèse, mesdames **Bénédicte Kapusta**, **Kimberly Colas** et **Patricia Donnadieu**. Vous avez été toutes trois un soutien sans faille dans cette thèse et avez apporté trois visions distinctes et complémentaires dans ce projet. Je crois pouvoir dire que c'est cette pluralité des idées qui a amené à la richesse de ce travail. Ces plus de trois années à travailler ensemble sur ce projet auront été un immense plaisir.

Au sein du LM2E, je tiens tout d'abord à remercier **Bénédicte Verhaeghe** pour son infinie patience à mon égard et ses réponses toujours pertinentes sur mes questions relatives au MET. Je remercie **Véronique Cloute-Cazalaa** pour son implication dans les travaux FIB qui ont assurément permis de donner les réponses aux questions essentielles de cette thèse. Un grand merci à **Coraline Hossepied** pour son aide dans les travaux SAT et bien entendu pour sa sympathie sans pareil. Toute ma gratitude à **Arnaud Courcelle** pour sa bonne humeur et ses conseils précieux en microscopie de même qu'à **Michaël Jublot**. Je remercie **Didier Bossu** pour son aide sur les préparations métallurgiques. Et bien entendu un grand merci à **Marc Tupin** ses remarques toujours pertinentes.

Je tiens également à remercier les membres du Laboratoire de Comportement Mécaniques des Matériaux Irradiés (LCMI) qui m'ont aidé durant cette thèse : **Philippe Grange**, **Johann Pegaitaz** sur les essais mécaniques, **David Le Boulch** pour les accès au réseau de calcul. Bien évidemment, un grand merci à **Tom Petit** pour ses conseils d'une grande qualité.

Remerciements

Je remercie **Pierre Gavoille** et **Olivier Doyen**, chefs du LM2E, qui ont été des interlocuteurs de qualité durant cette thèse ainsi que **Christophe Blandin** et **Jean-Daniel Lulewicz** chef du SEMI et adjoint jusqu'à peu, qui ont soutenu ces travaux.

J'adresse un grand merci au **projet RJH** et plus particulièrement à **Bruno Maugard** et **Régis Vallée** avec qui j'ai toujours pu avoir un dialogue franc et des réponses pertinentes.

Au sein du Service de Recherche en Métallurgie Appliquée (SRMA), je remercie **Thierry Vandenberghe** pour son aide sur les préparations de lames MET, **Benoit Arnal** pour son aide au FIB, **Stéphane Urvoy** pour les travaux de microdureté ainsi que **Jérôme Garnier** pour les études mécaniques.

Au sein du Service de Recherche en Métallurgie Physique (SRMP) et plus particulièrement de la plateforme d'irradiation JANNuS, je remercie chaudement **Frédéric Leprêtre**, **Marie Loyez-Prost** ainsi que **Anna Paula**, pour les formidables expériences d'irradiation réalisées et le temps consacré à leur préparation.

Je remercie également **Gilles Renou** du SIMAP du Grenoble pour son aide en microscopie et plus particulièrement en ASTAR.

J'adresse un immense merci à **Sylvain Etzol** pour son travail assidu et acharné sur la MEB et les essais mécaniques. Ces six mois passés ensemble sur le projet ont été riches de résultats captivants. J'espère ne pas t'en avoir trop demandé parfois.

Je remercie **Marie-France Barthe** et **Joël Douin**, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse ainsi que **Brigitte Decamps** et **Philippe Vermaut** pour leur participation au jury.

Je remercie bien entendu **ma famille** : ma mère, mes sœurs, mes beaux-frères, mon neveu et ma grand-mère. Je n'en serais jamais arrivé là sans vous, sans votre aide et votre soutien. C'est bien entendu à vous qu'est dédié cette thèse et aussi à mon grand-père, de qui je crois tenir cet esprit scientifique. Mamie, maman, vous avez toujours voulu le meilleur pour moi, j'espère par ce travail, vous le donner en retour.

Un immense merci à mon camarade de thèse et ami, **Benoit Queylat**, avec qui je n'ai jamais manqué de sujet de discussion ni de nouvelles idées scientifiques et (souvent) farfelues. Bien que nos sujets de thèses aient été très différents, nous avons toujours su échanger et nous pousser l'un l'autre en avant.

Remerciements

Un grand merci à **Simon Valfré**, alias « **Moulinator** » qui malgré la distance qui nous sépare, a toujours su trouver les mots pour rire, et dieu sait qu'ils ont été réconfortants.

Mes derniers remerciements s'adressent à mon mari, **Alexis**, sans toi je n'aurais jamais réussi. Tu m'as soutenu en toutes occasions et a toujours été là pour moi. Tu t'es, à de nombreux égards, sacrifié pour que ce travail puisse voir le jour et je n'aurais jamais les mots pour te dire combien je te remercie. Ces plus de trois ans nous ont vu grandir, et le meilleur reste à venir.

TABLE DES MATIERES

Introduction	1
Chapitre 1 : Etude Bibliographique	4
I. Les alliages d'aluminium	5
1. Généralités.....	5
2. Eléments d'addition et nomenclature	6
II. Traitement thermiques.....	7
1. Adoucissement	8
2. Durcissement.....	11
3. Impact du traitement thermique sur les mécanismes de précipitation.....	13
III. Microstructure	22
1. Précipités d'échelle nanométrique.....	23
2. Phases submicroniques (dispersoïdes)	30
3. Particules d'échelle micronique	32
IV. Effets d'irradiation dans les alliages des série 6000.....	35
1. Généralités sur les effets d'irradiation.....	35
2. Effets d'irradiations sur la microstructure des alliages de série 6000	38
3. Influence de l'irradiation sur les propriétés mécaniques	43
4. Gonflement des alliages de série 6000	46
Conclusions	53
Bibliographie.....	55
Chapitre 2 : Matériaux et moyens de l'étude	60
I. Plan expérimental général	61
II. Matériau étudié.....	62
1. Alliage de l'étude	62
2. Préparations des échantillons	64
III. Traitements thermiques	66
1. Préambule.....	66
2. Caractéristiques du traitement thermique.....	67
3. Simulation numérique CAST3M.....	68
IV. Moyens de caractérisation microstructurale	68
1. Microscopie électronique en transmission (MET) et techniques associées.....	68
2. Microscopie électronique à balayage (MEB) et techniques associées	72
3. Sonde atomique tomographique (SAT).....	73
V. Caractérisations mécaniques	75
1. Essais de traction.....	75

2. Essais de ténacité.....	75
3. Indentation et cartographie de dureté Vickers.....	76
VI. Irradiations au ions.....	77
1. Principes et calculs pré-irradiations.....	77
2. Conditions d'irradiations.....	78
Conclusions.....	82
Bibliographie.....	83
Chapitre 3 : Caractérisation hors irradiation	84
I. Traitements thermiques.....	85
1. Résultats expérimentaux.....	85
2. Simulation numérique de la trempe.....	87
II. Etude de la microstructure.....	92
1. Echelle micronique.....	92
3. Echelle submicronique.....	102
2. Echelle nanométrique.....	112
III. Caractérisations mécaniques.....	121
1. Essais de traction.....	121
2. Microdureté Vickers.....	125
Conclusions et proposition d'un schéma de précipitation.....	130
Bibliographie.....	132
Chapitre 4 : Effets de l'irradiation sur la microstructure	133
I. Irradiation simple faisceau à fort dpa (2017).....	134
1. Trempe eau.....	134
2. Trempe huile.....	142
3. Trempe air.....	146
4. Synthèse et interprétation.....	149
II. Irradiations triple faisceau (2018).....	151
1. Trempe eau.....	151
2. Trempe huile.....	157
3. Trempe air.....	161
4. Synthèse et interprétation.....	163
Conclusions.....	166
Bibliographie.....	167
Chapitre 5 : Quantification et modélisation du gonflement	168
I. Revue bibliographique contextuelle.....	169
1. Considérations générales.....	169

Table des Matières

2. Modèle de Brailsford et Bullough	170
3. Modèle de la bulle critique (<i>CBM</i>).....	173
4. Discussion	174
II. Quantification expérimentale du gonflement	174
1. Trempe eau	175
2. Trempe huile.....	177
3. Trempe air	178
4. Discussion	179
III. Modélisation du gonflement.....	180
Conclusion.....	188
Bibliographie.....	189
Conclusions et perspectives	191
Annexes	194

INTRODUCTION

L'élaboration et la validation de nouveaux matériaux pour les réacteurs nucléaires est un processus long et complexe. Une des étapes cruciales de ce développement est l'irradiation aux neutrons de ces matériaux candidats afin de tester leurs propriétés mécaniques et physico-chimiques post-irradiation. Pour ce faire, des réacteurs de recherche sont nécessaires.

Ces réacteurs diffèrent des réacteurs de puissance par le fait qu'ils ne produisent pas d'électricité mais utilisent le flux neutronique pour irradier des matériaux cibles et produire des isotopes pour la médecine. Ces réacteurs fonctionnent à une température plus faible que les réacteurs de puissance (65°C contre 300°C en moyenne) et ne sont généralement pas pressurisés.

Cette absence de pressurisation est une différence nette avec les réacteurs à eau pressurisé (REP) utilisés dans le parc nucléaire français. Afin de réaliser des essais d'irradiation neutronique sur des matériaux candidats dans des conditions plus proches de celles observées en REP, le réacteur Jules Horowitz (RJH) a été conçu.

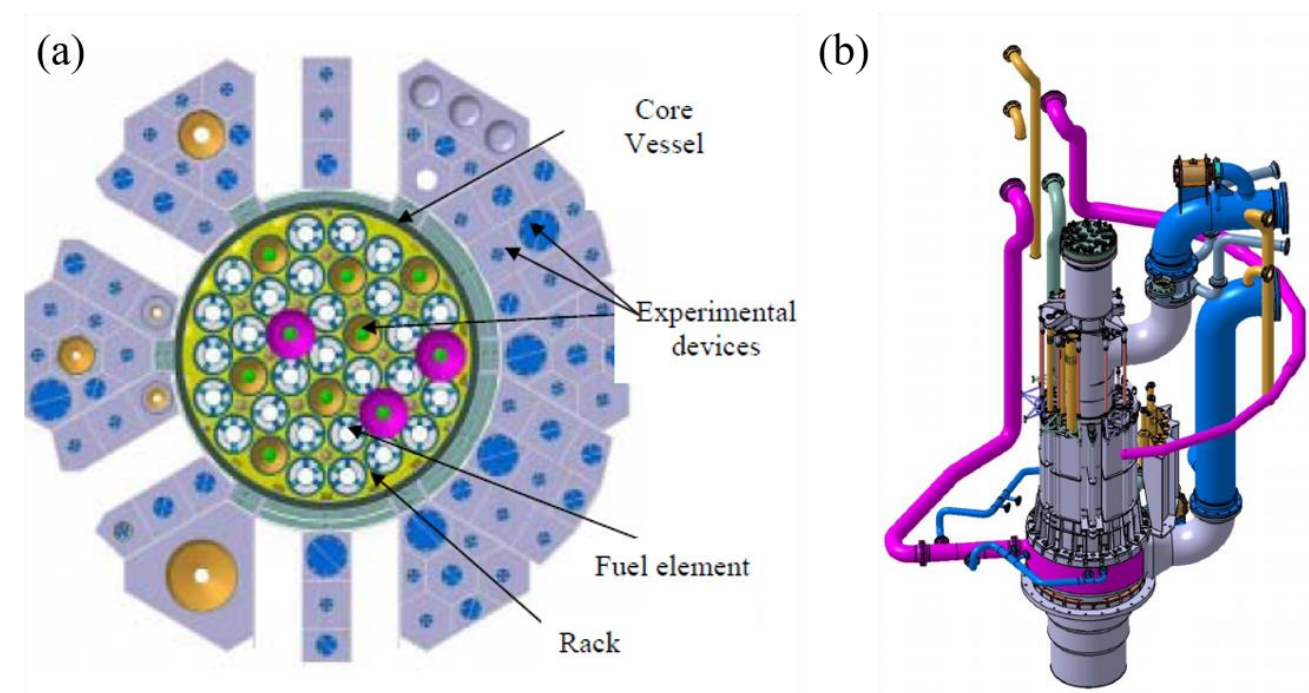


Figure 1 : Eléments du cœur du RJH : vue de dessus en coupe (a), et représentation 3D (b) [1].

La Figure 1 représente plusieurs vues du cœur du RJH. La Figure 1.a présente une vue de dessus en coupe du réacteur, la Figure 1.b présente quant à elle une vue en 3D du cœur du réacteur. Des emplacements paniers expérimentaux sont présents autour du cœur pour des irradiations sous flux de neutrons majoritairement thermiques ($E < 0,625\text{eV}$).

Au sein du cœur pressurisé d'autres emplacements expérimentaux sont présents, permettant des irradiations dans un spectre neutronique plus rapide ($E > 0,1 \text{ MeV}$). Le RJH a été conçu pour fonctionner à 100 MW thermique, la pression au sein du cœur peut atteindre 15 bars et la température de fonctionnement du caisson est aux environs de 70 °C. Cependant, le casier qui est une pièce massive contenant les éléments combustibles peut localement atteindre une température de 90°C.

Le combustible sélectionné pour le RJH est un siliciure d'uranium enrichi, U_3Si_2 , sous forme de plaques gainées dans un alliage d'aluminium commercial appelé AlFeNi (1% Fe et 1% Ni en masse).

D'une manière générale, le choix des alliages d'aluminium dans les réacteurs de recherche s'explique par plusieurs facteurs. Premièrement, les alliages d'aluminium sont peu coûteux et faciles à mettre en forme. Deuxièmement, ils sont extrêmement transparents aux neutrons, présentent une faible activation sous faisceau, s'échauffent très peu sous rayonnement gamma. Ces propriétés permettent de maximiser le flux neutronique tout en gardant une température inférieure à 100°C.

L'alliage d'aluminium choisi pour le casier et le caisson du réacteur est l'alliage 6061 à l'état T6 (6061-T6). Cet alliage d'aluminium, contenant du magnésium, silicium et cuivre (Al-Mg-Si(-Cu)) bénéficie d'un durcissement structural augmentant très fortement ses propriétés mécaniques grâce au traitement thermique T6 (mise en solution, trempe, revenu). En effet, ce traitement thermique permet de mettre en solution et retenir par la trempe une assez grande quantité de solutés, et cette solution solide sursaturée métastable se décompose ensuite en donnant des nanoprecipités appelés β'' qui ont un effet durcissant sur l'alliage.

Il a été observé que, sous faisceau neutronique, les alliages d'aluminium gonflent. Ce gonflement a deux origines : la transmutation de l'aluminium en silicium par les neutrons thermiques et la formation de cavités par les neutrons rapides [2]. Le gonflement total qui est mesuré sur des échantillons irradiés en réacteur dépend donc du spectre neutronique. Le gonflement par transmutation est bien connu et a déjà été estimé par calculs à partir des teneurs en silicium mesurées. Le gonflement par cavités lui n'a été que très peu étudié. Ce manque de documentation est dû au fait que les spectres neutroniques des réacteurs de recherche sont majoritairement dominés par les neutrons thermiques. Cependant le RJH présente dans le cœur un fort flux de neutrons rapides et il est donc important d'étudier le gonflement par cavités pour garantir un fonctionnement sûr et efficace du RJH.

Plus généralement, l'alliage 6061-T6 sélectionné pour le RJH a majoritairement été utilisé dans l'industrie automobile [3–5] avant d'être utilisé dans les réacteurs expérimentaux. L'industrie automobile utilisant des pièces de faibles épaisseurs, l'effet de trempe n'a donc été que très peu étudié pour des pièces épaisses ; or cette étape du traitement T6 impacte fortement la microstructure et les propriétés finales du matériau. Les casiers démonstrateurs du RJH présentant une grande épaisseur ($D_2 : 64,2 \times 66,8 \text{ cm}^2$ de section sur une hauteur de 160 cm), et les études précédentes montrant un lien entre microstructure et comportement sous irradiation [6–8], cet aspect doit être étudié.

L'étude de ces deux aspects doit donc être corrélée afin de comprendre les mécanismes mis en jeu et de pouvoir les modéliser. Les objectifs de la thèse présentée dans ce manuscrit sont de conduire une étude de la microstructure et du comportement mécanique d'alliages 6061-T6 correspondant à différentes vitesses de trempe, d'examiner les mêmes alliages après irradiation aux ions (choisis pour obtenir de fort taux de dommages très rapidement) dans différentes conditions de flux, d'estimer ensuite le gonflement par cavités et ses corrélations à la microstructure afin de proposer une modélisation du gonflement.

Le manuscrit sera divisé en cinq chapitres. Le premier, établira une revue bibliographique des effets des traitements thermiques dans les alliages de série 6000 d'une part, et des effets d'irradiation d'autre part. Le deuxième chapitre présentera les techniques expérimentales utilisées dans cette thèse ainsi que des protocoles de préparation des différents échantillons et éprouvettes. Le troisième chapitre rapportera les résultats expérimentaux sur les états microstructuraux avant irradiation. Le quatrième chapitre présentera une description qualitative des effets d'irradiation ionique sur la microstructure à plusieurs niveaux d'endommagement. Enfin, le cinquième chapitre développera la quantification du gonflement par cavités et s'efforcera de présenter un modèle cohérent et d'identifier les paramètres cruciaux en vue d'une amélioration ultérieure du modèle.

Références

- [1] Kapusta B. « Irradiation effects on 6061-t6 aluminium alloy used for JHR internal structures ». In : *Proceeding IGORR 2009 Conf.* 2009. p. 13.
- [2] Bénédicte Kapusta. *Estimation du gonflement du 6061-T6*. Rapport, SEMI/LCMI/NE/2008/003/A, CEA-Saclay, 2008.
- [3] Fridlyander I. N. et al. « Aluminum Alloys: Promising Materials in the Automotive Industry ». *Met. Sci. Heat Treat.* 1 septembre 2002. Vol. 44, n°9-10, p. 365-370.
- [4] Hirsch J. « Aluminium Alloys for Automotive Application ». In : *Mater. Sci. Forum.* 1997.
- [5] Miller W. et al. « Recent development in aluminium alloys for the automotive industry ». *Mater. Sci. Eng. A.* 15 mars 2000. Vol. 280, n°1, p. 37-49.
- [6] Camille Flament. *Etude des évolutions microstructurales sous irradiation de l'alliage 6061-T6*. Thèse de Doctorat. Grenoble : Université Grenoble-Alpes, 2015.
- [7] Farrell K. *Effects of structural imperfections on voids in aluminium – Microstructure impurity effects on void formation characteristics in neutron irradiated aluminium*. Rapport, ORNL-TM-3493, Oak Ridge National Lab., 1971.
- [8] Jahnke B. *Porenbildung in einer Al-Mg-Si-Legierung mit unterschiedlichen Ausscheidungszuständen und in Reinstaluminium nach Bestrahlung mit 100 keV Al-Ionen*. Thèse de Doctorat. 1978.

CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Ce chapitre présente une étude bibliographique des alliages d'aluminium et plus particulièrement des traitements thermiques associés et leur impact sur la microstructure. La fin du chapitre est consacrée aux effets d'irradiation.

I.	Les alliages d'aluminium	5
1.	Généralités.....	5
2.	Eléments d'addition et nomenclature	6
II.	Traitement thermiques.....	7
1.	Adoucissement	8
2.	Durcissement	11
3.	Impact du traitement thermique sur les mécanismes de précipitation	13
III.	Microstructure	22
1.	Précipités d'échelle nanométrique.....	23
2.	Phases submicroniques (dispersoïdes)	30
3.	Particules d'échelle micronique	32
IV.	Effets d'irradiation dans les alliages des série 6000.....	35
1.	Généralités sur les effets d'irradiation.....	35
2.	Effets d'irradiations sur la microstructure des alliages de série 6000	38
3.	Influence de l'irradiation sur les propriétés mécaniques	43
4.	Gonflement des alliages de série 6000	46
	Conclusions	53
	Bibliographie.....	55

I. Les alliages d'aluminium

1. Généralités

L'aluminium est un métal, parfois classé parmi les semi-métaux du fait de sa légèreté comme la plupart des métaux dont les électrons de valence appartiennent aux couches p . Si ses propriétés mécaniques pures sont, comme pour la majorité des métaux, très médiocres, l'aluminium présentant une grande ductilité, c'est son comportement en corrosion à l'air libre qui en a très vite fait un métal de choix. [1]

Suivant les traitements effectués pendant sa production, l'aluminium peut avoir différents grades de pureté qui influent de façon significative sur ses propriétés ultérieures. A titre d'exemple, un écart de 0,990% de pureté induit une différence de 3°C pour la température de fusion, plus de 0,1 g.cm⁻³ de masse volumique et 1% pour le module élastique. L'aluminium pur cristallise dans un réseau cubique face centrée (cfc) pour toute plage de température jusqu'à son point de fusion (660°C). Le paramètre de maille est de 4.04 Å à 25°C, ce qui est plus élevé que d'autres métaux cristallisant dans le réseau cfc (pour le cuivre, $a=3.610$ Å) et qui constitue donc un premier indice quant à sa capacité à former des solutions solides. [2]

Concernant les propriétés mécaniques de l'aluminium pur, ce dernier est caractérisé par une importante ductilité. La pureté de celui-ci, *c.a.d.* la présence d'éléments d'addition, va grandement influencer ces propriétés. Les impuretés tendent à réduire la ductilité et à augmenter la résistance à rupture et la dureté de ce dernier comme présenté Figure 1 : . Il est ici observé une différence importante de la contrainte maximale, qui se trouve être doublée entre un aluminium pur à 99.9% et un aluminium pur à 99.0%.

Concernant la dureté Brinell, elle est également doublée passant de 2.5 à 5 pour une perte de pureté de 1% [2]. De même que pour ses alliages et les autres métaux, le traitement mécanique de l'aluminium pendant son élaboration influe grandement sur ses propriétés mécaniques. En effet, pour un aluminium pur, l'allongement à rupture sans déformation préalable est de 50 à 70% environ. Un laminage à froid à 70% réduit l'allongement à rupture à 15-20% par formation de dislocations [3]. Cependant, augmenter ce taux de laminage au-delà de 70% ne modifiera pas outre mesure l'allongement à rupture. Concernant les contraintes maximales et limites d'élasticité, une croissance continue avec le taux de laminage est observée: pour un taux variant de 0 à 95%, la contrainte maximale passe de 40 à 140 MPa et la limite d'élasticité passe de 15 à 110 MPa.

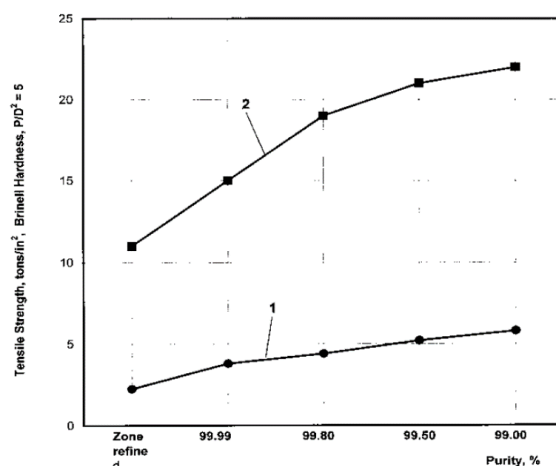


Figure 1 : Paramètres mécaniques en fonction de la pureté : (1) Contrainte maximale en traction (tonne/pouce²) ; (2) dureté Brinell [2]

De ces données, deux leviers permettant la modification des propriétés mécaniques des alliages d'aluminium sont identifiés : les éléments d'alliages permettant une précipitation ou la formation de solutions solides ainsi que les traitements thermomécaniques pouvant influencer la microstructure en termes de tailles de grains et texture notamment.

2. Eléments d'addition et nomenclature

Les éléments d'addition convenant à l'aluminium sont très nombreux. Leur choix dépend des propriétés désirées pour l'alliage : renforcement mécanique, capacité de soudage, résistance à la corrosion, biocompatibilité. A des fins de normalisation, une nomenclature internationale a été établie, elle est présentée dans le Tableau 1.

Code	Principal élément d'alliage	Exemple d'usage
1000	Aluminium pur (>99%)	Nucléaire
2000	Cuivre	Applications militaires, réservoirs cryogéniques
3000	Manganèse	Industrie chimique, Applications générales et tôles
4000	Silicium	Soudage des autres alliages d'aluminium
5000	Magnésium	Applications nécessitant une forte résistance à la corrosion (milieu marin)
6000	Magnésium et Silicium	Nucléaire Industrie automobile
7000	Zinc	Industries automobile et aéronautique
8000	Autres éléments d'addition	

Tableau 1: Nomenclature des alliages d'aluminium [3,4]

Ces séries d'alliages, après solidification, subissent un traitement thermique et mécanique complexe dont l'influence sur les propriétés dépend de la chimie du composé. De ce fait, leur nomination est

modifiée par une nomenclature supplémentaire indiquant le traitement thermique subi, cette dernière est répertoriée dans le Tableau 2.

Code d'état	Traitement subi
F	Brut
O	Recuit
H	Ecroui
W	Trempé non stabilisé
T	Durci par traitement thermique

Tableau 2 : Nomenclature des traitements thermiques [3,4]

Dans le cas de cette étude, on s'intéresse à un aluminium de la série 6000 : le 6061 à l'état T6 (6061-T6). Le terme T6 signifie non seulement qu'il a été durci par traitement thermique mais également la nature de ce traitement thermique. Ce dernier sera explicité plus tard. La composition typique d'un alliage 6061 selon la norme EN 573-1 est donnée dans le Tableau 3.

Elément	%wt
Si	0,4-0,8
Fe	0,7
Cu	0,15-0,4
Mn	0,15
Mg	0,8-1,2
Cr	0,04-0,35
Zn	0,25
Ti	0,15
Al	<i>reste</i>

Tableau 3 : Composition d'un alliage 6061 selon la norme EN 573-1

II. Traitement thermiques

Afin de décrire davantage les traitements thermiques, il est nécessaire de comprendre qu'un traitement thermique est avant tout un couple temps-température dans lequel plusieurs phénomènes physico-chimiques vont intervenir. En effet, si souvent un phénomène particulier est désiré, plusieurs entrent en jeu. La Figure 2 montre le « chevauchement » de ces phénomènes concernant les traitements d'homogénéisation et de recristallisation.

Concernant ces phénomènes en eux-mêmes, deux catégories sont identifiées : les traitements d'adoucissement et de durcissement. Bien que notre étude soit particulièrement fondée sur les traitements dits de durcissement, il convient, pour les raisons exposées ci-dessus, de décrire également les traitements adoucissants. [5]

1. Adoucissement

Les différents traitements thermiques évoqués (mise en solution, trempe, maturation, revenu) spécifiques au durcissement structural (état T), seront explicités dans la section qui suit. On se focalise à présent sur les traitements qui précèdent ou qui peuvent faire suite au durcissement structural ou à l'érouissage, c'est à dire un traitement mécanique pour accroître la dureté du matériau. [3,4]

1.1 Homogénéisation

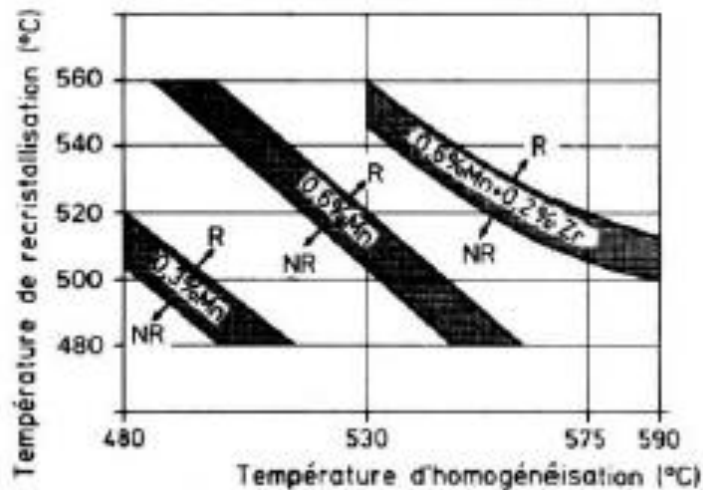


Figure 2 : Corrélation entre température d'homogénéisation et recristallisation. [3]

L'homogénéisation est une étape déterminante et incontournable après la coulée : elle consiste à élever l'alliage à une température T où, idéalement, les éléments d'addition pourront diffuser dans le métal. En effet, il subsiste généralement (dans l'alliage brut de coulée) des phases intermétalliques et précipités aux joints de grains qui peuvent être indésirables. Les traitements d'homogénéisation ont pour but de lisser ces gradients de concentration en permettant une redistribution homogène de la matière. Dans l'industrie, cette étape doit être maîtrisée. En effet, une élévation de température peut induire l'activation de certains phénomènes (recristallisation, précipitation, etc...) qui ne sont pas désirables pendant le traitement d'homogénéisation. Les traitements d'homogénéisation ont une durée variable de 5 à 18 heures. En outre, l'épaisseur de la pièce doit être prise en compte afin que cette dernière soit à une température homogène [6].

1.2 Recuit et recristallisation

Lorsqu'un alliage a subi des contraintes mécaniques ayant amené à une déformation plastique (augmentation de la densité de dislocations due à l'érouissage) ou que ce dernier a été trempé, il possède

une dureté accrue ainsi qu'un allongement à rupture amoindri [6]. Effectuer un recuit permet de restaurer les propriétés plastiques jusqu'au point désiré si la maîtrise du traitement thermique est effectuée correctement. Durant le recuit, plusieurs étapes se succèdent en fonction de la durée (la température influant sur la présence ou non de certains phénomènes).

Dans un premier temps, le réseau cristallin est inchangé au sens où il n'y a pas de formation de grains d'orientations différentes, et cette absence de recristallisation perdure d'autant plus dans le temps que la température est faible. Au-delà d'un certain temps, de nouveaux germes de cristaux se forment aux joints de grains et constituent alors un sous-réseau.

C'est à partir de cette deuxième étape qu'est observé une baisse significative de la contrainte à rupture du matériau. Cette seconde étape constitue le début du phénomène de recristallisation. Enfin, à mesure que les nouveaux grains grossissent par migration des joints de grains, on accède à la troisième phase où l'on observe uniquement les nouveaux grains issus de la recristallisation. C'est alors l'état recuit.

Connaissant ces différentes étapes et réactions, les paramètres de temps de séjours et température sont modulables afin d'obtenir la microstructure et les propriétés mécaniques désirées. Un traitement rapide à température élevée aura tendance à former des germes de recristallisation sans en débiter la croissance mais devra nécessiter une grande maîtrise pour en empêcher ladite croissance. A l'inverse, un traitement long à plus faible température permettra d'annihiler les dislocations sans atteindre la recristallisation [3].

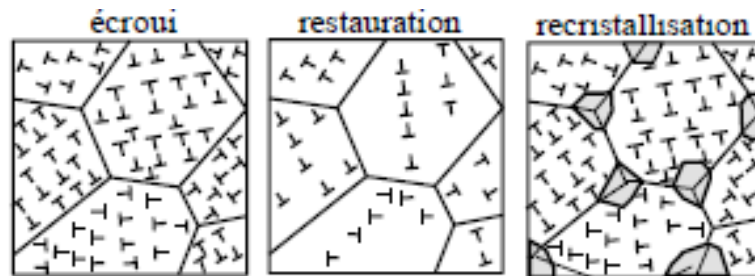


Figure 3: Différents états microstructuraux en fonction du traitement thermique ou mécanique [7]

D'autre part, d'un point de vue mécanique, il est préférable d'avoir des grains fins. Selon la loi de Hall-Petch, des grains fins augmentent fortement la limite élastique du matériau :

$$\sigma_c = \sigma_0 + \frac{k}{\sqrt{d}},$$

avec d la taille de grain, k et σ_0 des constantes et σ_c , une contrainte proportionnelle au $R_{p,0.2}$

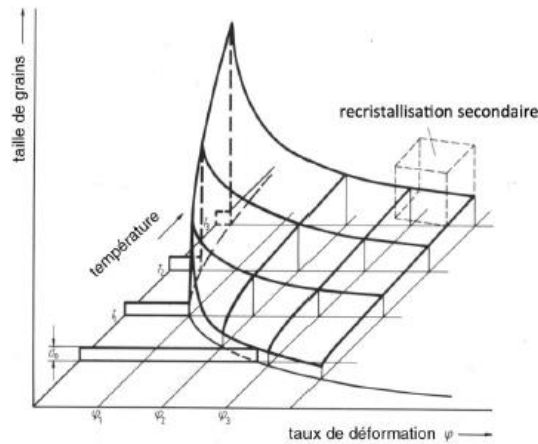


Figure 4: Relation écouissage, température de recuit et taille de grain [7].

Cependant, dans deux cas, l'apparition de gros grains est observée : il s'agit soit d'une recristallisation sur écouissage critique ou d'un phénomène de recristallisation secondaire au cours duquel la croissance de certains grains est favorisée au détriment d'autres. Les conditions d'apparition de ces deux phénomènes sont représentées schématiquement Figure 4.

Intérêt	Recuit sur écroui				Restauration		Recuit sur métal trempé		
	T(°C)	t (min)	Refroi.	Ecroui	T(°C)	t(h)	T(°C)	t(h)	Refroi.
1050	325-360	30	Air	20%	225-280	1 à 4			
201X	375-410	30	Lent	15%			415	2 à 3	Lent
3003	365-400	30		20%			415	2 à 3	
5005	345-380	30	Air	20%	240-280	1 à 4			
6061	375-410	30	Lent	20%	240-280	1 à 4			
70XX	375-410	30	Lent	15%			415	2 à 3	Lent

Tableau 4 : Traitements thermiques usuels pour différents alliages d'aluminium [1,3]

Cette figure montre qu'il existe pour chaque température de recuit, un taux d'écouissage critique à partir duquel des gros grains sont formés lors d'un recuit de recristallisation. Il est également observé que, pour des températures de recuit plus faible, le risque de grossissement des grains ainsi que la taille de ces derniers est extrêmement amoindrie et ce, quel que soit le taux d'écouissage du matériau. Cependant, à de faibles températures, la durée du traitement sera elle très longue. De ce fait, il apparait que le couple temps-température idéal pour un industriel serait un traitement à haute température pendant une courte durée après un fort écouissage du matériau. Cependant, dans de telles conditions, l'apparition du phénomène de recristallisation secondaire est observé, c'est à dire un grossissement important de certains grains qui peut amener le matériau à une certaine texture. En outre, que la recristallisation secondaire est d'autant plus négligeable que l'aluminium est allié. La Figure 3 et le Tableau 4 résument les effets des différents traitements thermiques présentés précédemment.

2. Durcissement

Certaines séries d’alliages d’aluminium (2000,6000,7000), par un traitement thermique approprié voient leur résistance mécanique augmenter par la précipitation à très fine échelle. Ce phénomène de durcissement structural est propre aux états T. Dans le cadre de cette étude, un alliage d’aluminium de série 6000 a été étudié dont la série de traitement thermique, à savoir : mise en solution, trempe et revenu, est schématisé Figure 5 et explicité par la suite.

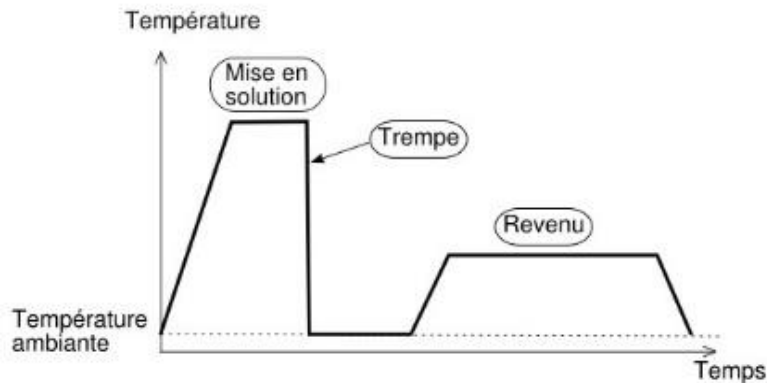


Figure 5 : Traitement thermique des alliages de série 6000

2.1 Mise en solution

La première étape dans un traitement de durcissement est la mise en solution de l’alliage. En effet, il s’agit là d’élever l’alliage à une température où tous les éléments seront solubles de telle sorte qu’une solution solide monophasée sera obtenue. Concrètement et à titre d’exemple, il s’agira, pour un alliage à 10% pds de cuivre, de chauffer le métal à une température de 550°C de telle sorte qu’une solution solide de Cu dans Al et non plus une solution biphasée contenant les phases α et θ serait obtenue. Une chauffe à 650°C pourrait être tout aussi efficace et même plus rapide. Cependant, à partir d’une certaine température appelée température de brûlure, le matériau se dégrade en manifestant une fusion partielle menant à des phénomènes de décohésion localisée lors du refroidissement de ce dernier [5]. En effet, le couple temps-température (t-T) influe beaucoup sur les caractéristiques mécaniques du matériau après traitement. Le Tableau 5 répertorie pour un alliage type 2000 trempé et mûri après une mise en solution depuis l’état recuit, les valeurs de $R_{p,0.2}$ et de contrainte maximale suivant les conditions de mise en solution. [2]

Caractéristiques (MPa)	$R_{p,0.2}$	R	$R_{p,0.2}$	R	$R_{p,0.2}$	R
t(min) \ T (°C)	375		450		505	
0.25	50	200	75	200	100	250
64	50	225	175	375	225	470
1024	50	225	175	385	250	475

Tableau 5 : Caractéristiques mécaniques d’un alliage de série 6000 suivant le couple t-T pendant la mise en solution [1,3]

Pour tous les couples t-T, il est observé que passer d'une mise en solution de 64 minutes à 1024 minutes (soit environ 16 heures de plus) ne permet pas d'améliorer, ou très peu, la réponse mécanique du matériau. En revanche, il apparaît très clairement qu'à même durée de mise en solution, une température élevée permet d'avoir de meilleures propriétés. Cette durée dépend tout naturellement de l'alliage mais aussi de l'épaisseur de ce dernier et de son taux d'écrouissage avant traitement. En outre, la mise en solution peut exacerber les phénomènes de ségrégation de surface pour les alliages dont certains éléments ont une forte énergie de surface (solution non idéale) [3].

2.2 Trempe

L'étape qui suit la mise en solution est la trempe. Elle a pour but de figer la solution solide obtenue dans un état métastable, par des facteurs cinétiques. Pour ce faire, l'alliage est brutalement refroidi à une température bien définie et à une vitesse déterminée. Une notion importante sur ce traitement thermique est la vitesse critique de trempe (v_{crit}). Si la trempe est effectuée à une vitesse inférieure à v_{crit} alors on ne pourra pas obtenir une solution solide sursaturée. La valeur de v_{crit} en elle-même dépend notamment de l'alliage considéré et s'étend sur plusieurs décades. Pour un alliage 7020, elle est seulement de $0,5^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ alors que pour un 6061 elle est de $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ [3].

Les éléments d'addition qui contribuent à l'augmentation de v_{crit} sont principalement le manganèse et le chrome. Si de grand volumes de matière sont considérés, il paraît évident que la vitesse de trempe ne sera pas homogène du fait du gradient thermique dans le matériau. Dès lors, dans l'industrie, il sera préférable d'effectuer une trempe sur des éléments peu épais. Pour des tiges, les vitesses de refroidissement entre le cœur et la surface de la barre sont reliées par la formule de Fink et Willey [8]:

$$v_{cœur} = \left(\frac{1}{d_{barre}}\right)^{2.4} v_{surface}, \text{ avec } v_{surface} \text{ en } ^{\circ}\text{C} \text{ et } d_{barre} \text{ en mm}$$

Suite à la trempe, des états de contraintes internes peuvent apparaître. La présence ou non de ces contraintes dépend principalement du fluide choisi pour obtenir la vitesse de trempe souhaitée, l'eau froide ayant tendance à exacerber cet effet alors que d'autres fluides comme les huiles ou l'eau chaude sont recommandés pour les pièces épaisses ou à géométrie complexe. Cependant, suivant la valeur de v_{crit} , le choix du fluide n'est pas toujours très large et il n'est jamais possible d'éviter totalement la présence de ces contraintes. Il convient alors d'en étudier les conséquences. Parmi les risques auxquels s'expose la pièce, on notera la rupture et la corrosion sous contrainte si elle est soumise à un environnement agressif. Pour atténuer ces effets, la pièce peut par exemple, être pré-usinée, ou soumise à des contraintes correctrices après trempe ou, le cas échéant, à un revenu après la trempe.

D'ordre général, les effets de trempe sont mal connus et peu étudiés mis à part quelques travaux relativement récents [9–11]. L'explication vient du fait que les alliages d'aluminium, et plus particulièrement ceux de la série 6000, ont été largement utilisés dans l'industrie automobile, sur des tôles de faible épaisseur où la vitesse de trempe est toujours supérieure à la vitesse critique de trempe

[12]. De ce fait, la vitesse de trempe sur des composants de forte épaisseur reste une inconnue majeure pour des applications industrielles, notamment dans le milieu du nucléaire ; c'est pourquoi la vitesse de trempe sera un paramètre d'étude de choix dans le cadre de cette thèse.

2.3 Maturation et revenu

Si la maturation consiste en une évolution naturelle de l'alliage à température proche de l'ambiante, le revenu quant à lui consiste à élever la température pour obtenir une précipitation partielle ou totale des éléments en solution solide sursaturée.

Suivant la cinétique de précipitation, l'apparition de zones de Guinier-Preston (zones G-P) peut être observée pendant la phase de maturation. Ces zones sont constituées d'éléments d'alliages agrégés et cohérents avec la matrice métallique : ils constituent les pré-germes qui amèneront l'apparition de précipités pendant le revenu. La maturation et le revenu s'accompagnent d'un durcissement structural. En effet, l'apparition de zones G-P et de précipités limite le déplacement des dislocations par effet d'obstacle. Le temps de maturation et de revenu modifie donc considérablement la microstructure finale de l'alliage et donc ses propriétés mécaniques.

Alliage	Traitement	Revenu immédiat			Revenu après 7 jours		
	T(°C)	R(MPa)	R _{p,0.2} (MPa)	A(%)	R(MPa)	R _{p,0.2} (MPa)	A(%)
6181	170	365	335	5	325	305	2.5
	210	340	325	2.5	320	295	2
7020	120	325	210	17.6	355	380	16.2

Tableau 6: Influence du temps de maturation pré-revenu [3,6]

Pour certains alliages, une longue maturation pré-revenu (c.a.d. un temps d'attente long entre trempe et revenu) sera favorable, dans d'autres cas cela sera défavorable. Dans le premier cas, cela s'explique par le fait que les précipités mûrissant après la trempe sont durcissants, les zones G-P et précipités ne participant pas à l'amélioration des propriétés mécaniques de l'alliage sont redissous par le revenu. Dans le cas d'une maturation défavorable il s'agit généralement du phénomène inverse que celui présenté précédemment. Le Tableau 6 montre clairement la différence de réponse entre les alliages. Pour le 6181, la maturation entre le revenu et la trempe a un effet négatif à tout point de vue, alors que pour le 7020, attendre entre les deux étapes du processus permet de gagner plus de 80% sur la limite d'élasticité.

3. Impact du traitement thermique sur les mécanismes de précipitation

Le durcissement structural est associé à la précipitation de nanoprecipités métastables répartis de manière homogène dans le matériau. Afin d'obtenir cet effet, une série de traitements est effectuée comme schématisé Figure 6 pour un alliage de la série 6000. Le traitement thermique se décompose en une mise en solution, suivie d'une trempe et d'un revenu. Dans ce cas précis, la mise en solution permet d'augmenter la solubilité du silicium dans la matrice d'aluminium. La trempe a pour objectif de figer le

silicium, quasi insoluble à température ambiante, dans la matrice d'aluminium tandis que le revenu (appelé *artificial aging* en anglais), a pour objectif la précipitation des nanophases métastables. [5]

Les couples temps-température (t - T) de ces traitements typiques sont à déterminer pour chaque alliage et pour chaque partie du traitement, notamment pour le revenu dont le contrôle influence la séquence de précipitation, et donc les propriétés finales de l'alliage. L'influence de ce choix sur les propriétés mécaniques est illustré Figure 7 à titre d'exemple.

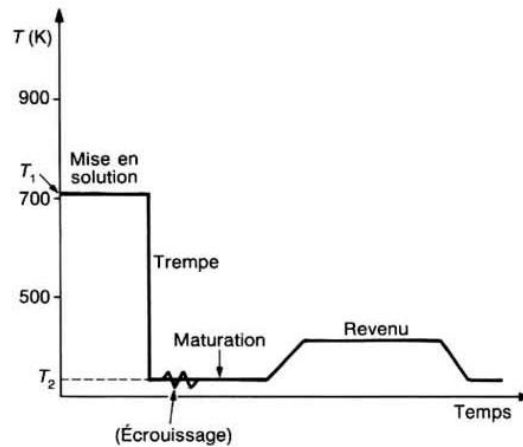


Figure 6 : Traitement thermique de durcissement structural appliqué à un alliage de série 6000 [5]

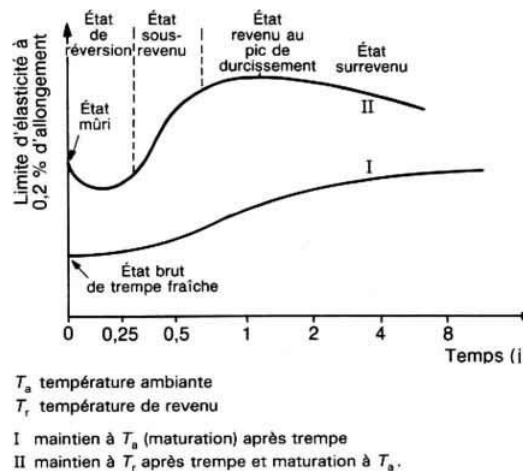


Figure 7 : Influence du temps de revenu à une température donnée sur les propriétés mécaniques (figure générale) [5]

3.1 Mécanismes de précipitation

Pour obtenir la précipitation d'une phase quelconque, il est nécessaire d'avoir un germe. Il est considéré que l'énergie nécessaire à la formation d'un germe s'exprime comme la somme des énergies de Gibbs de volume et de surface de l'échantillon, cette valeur donne la courbe d'énergie libre totale en fonction de R , le rayon hypothétique du précipité sphérique comme présenté Figure 8. Il est clairement observé que si un germe se forme spontanément à une taille R inférieure à R^* , la thermodynamique tendra à sa

disparition. Cependant, si le germe formé a une taille R' supérieure à R^* alors sa croissance pourra commencer. Concernant la germination en elle-même, elle peut s'effectuer de deux manières :

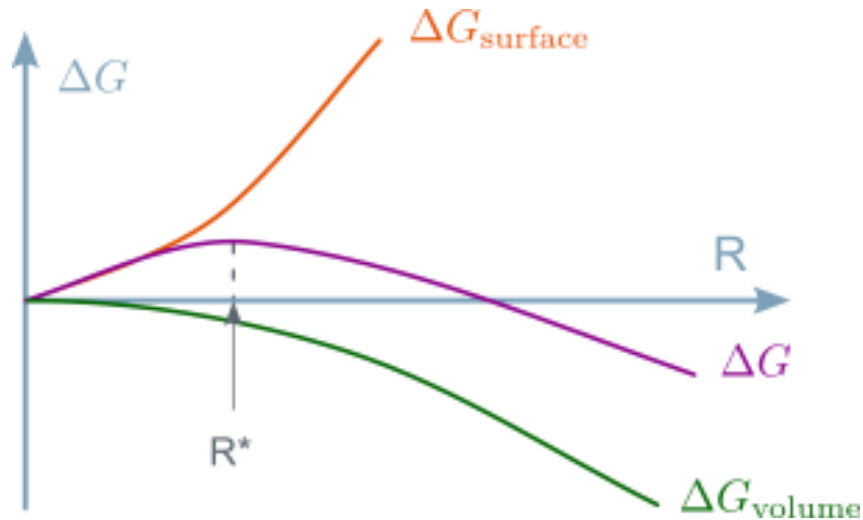


Figure 8: Énergie du système du germe en fonction de son rayon

— Homogène : Apparition d'une nouvelle phase cohérente avec la matrice

— Hétérogène : Germination depuis un défaut dans la matrice

La nucléation homogène est un phénomène statistique et stochastique de regroupement d'atomes dans le soluté. La formation de précipités par cette méthode est totalement gérée par des phénomènes thermodynamiques. Elle assure généralement une répartition homogène des précipités dans la matrice.

Concernant la croissance des zones G-P, deux étapes cinétiques de croissance se succèdent : rapide puis lente. La cinétique rapide s'explique par la présence de lacunes en sursaturation, la diffusion du soluté vers les zones G-P est alors grandement favorisée. Lorsque la concentration de lacunes devient plus homogène aux abords des zones G-P, ce ne sont plus lacunes et solutés qui transitent mais des complexes lacunes-soluté dont le déplacement est fortement ralenti. [13] Lorsque le précipité est formé, sa croissance est assurée par des mécanismes de diffusion dans la matrice. La vitesse de ce phénomène est régie soit par diffusion du soluté à l'interface matrice/précipité, soit par diffusion du soluté dans la matrice, la vitesse de croissance est pilotée par la diffusion. Dans le premier cas, le rayon du précipité est proportionnel au temps, dans l'autre il est proportionnel à la racine carrée du temps. En outre, la fin de la croissance du précipité est observable lorsque les éléments en solution n'ont plus la capacité de diffuser jusqu'au précipité.

3.2 Aspects cristallographiques

Pour bien comprendre les mécanismes de formation des précipités, nous devons considérer les relations des précipités à la matrice cristalline. La précipitation en elle-même commence à l'apparition de zones riches en éléments d'alliage : les zones Guinier-Preston (G-P). Lors du revenu, les zones G-P

disparaissent pour former des précipités plus grands mais surtout possédant une maille cristalline généralement différente de la matrice, ce qui induira les propriétés de durcissement.

Un précipité est dit cohérent avec la matrice lorsque celui-ci présente une continuité cristallographique avec cette dernière. L'absence de continuité est l'incohérence. Si le précipité n'est cohérent avec la matrice que selon certains plans cristallins, on parle de cohérence partielle. La semi-cohérence est obtenue lorsqu'il y a un écart entre le réseau de la matrice et du précipité. Une représentation schématique est donnée Figure 9.

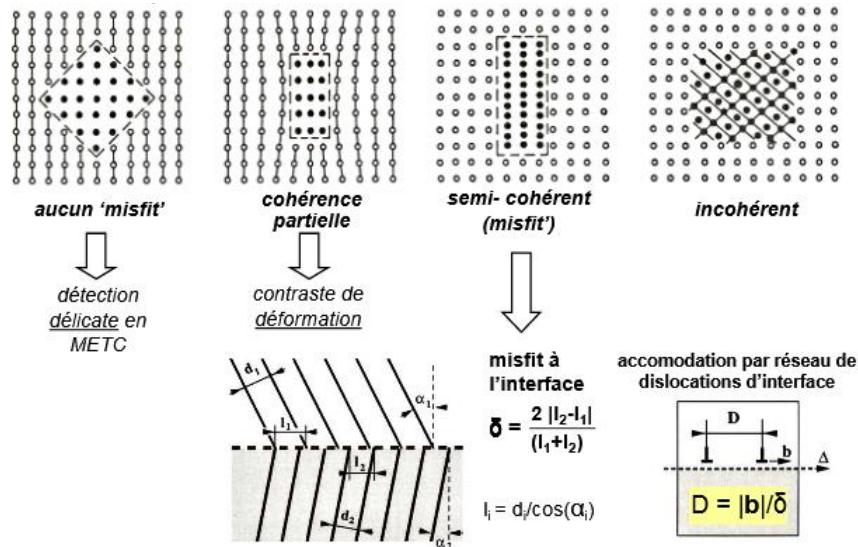


Figure 9 : Les différents types de cohérences appliqués à une observation en microscopie en transmission [15]

En effet, le schéma présenté Figure 10 présente les deux modes de passage des dislocations autour des précipités dans la matrice métallique. Pour rappel, le mouvement des dislocations conditionne la réponse mécanique du métal : plus il est limité, plus le métal aura une limite élastique élevée et plus sa plasticité sera limitée. On observe sur la Figure 10 que lorsque le précipité est cohérent avec la matrice, les dislocations opèrent à un cisaillement c'est à dire le passage de la dislocation à travers le précipité. Un autre moyen est présenté Figure 10 : il s'agit du contournement (appelé contournement d'Orowan) qui consiste à former une nouvelle boucle autour de ce précipité. [13]

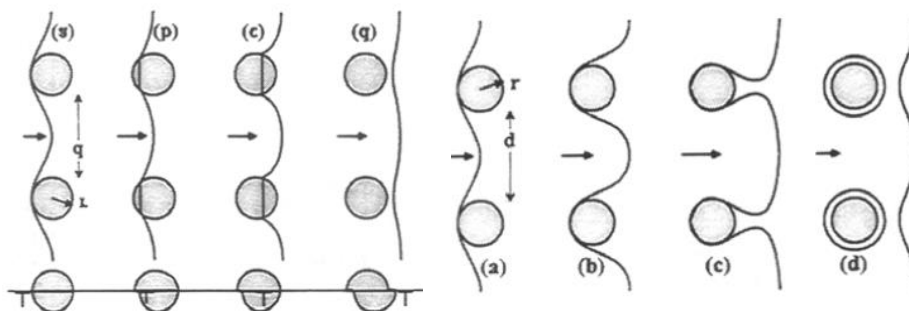


Figure 10: Mécanisme de cisaillement (à gauche) et de contournement (à droite) [13]

Les deux mécanismes sont donc en compétition et celui retenu sera le moins coûteux en énergie. Le choix du mécanisme sera déterminé par la contrainte minimale pour activer l'un des deux. Considérons deux précipités de même taille, l'un cohérent avec la matrice et l'autre non. Numériquement, les contraintes de cisaillement et de contournement critique sont données par les formules suivantes [14]:

$$\tau_{c,Orowan} \equiv Gb \frac{\sqrt{f_v}}{R}$$

$$\tau_{c,Cisaillement} \equiv G \sqrt{\frac{f_v R}{b}}$$

Avec b le vecteur de burgers, R le rayon de la particule et G le module de cisaillement. D'après les hypothèses énoncées précédemment, égalisons les contraintes critiques [5]:

$$R \equiv b$$

La taille précipité constituant le durcissement maximal par précipitation du matériau est donc proportionnelle au vecteur de burgers. D'ordre général, le rayon optimal des précipités est d'une taille située entre 5 et 10 nm. Une évolution des contraintes décrites précédemment est donnée Figure 11.

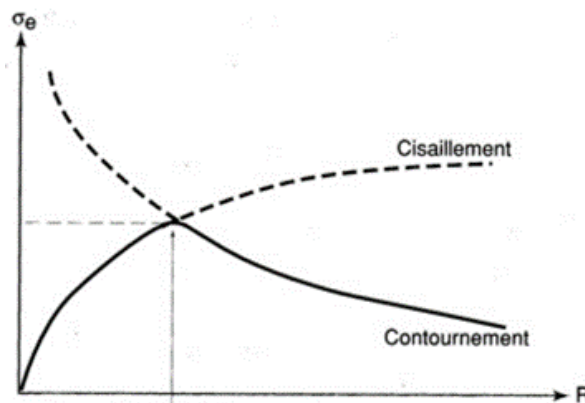


Figure 11: Evolution des contraintes de cisaillement et de contournement en fonction du rayon de la particule

D'une manière générale, parler d'une totale incohérence entre précipités et matrice métallique n'est pas correct. En réalité, une grandeur nommée « écart à la cohérence » notée δ est définie. Elle prend en compte les rapports des différentes distances réticulaires d_{hkl} de la matrice d'une part et $d_{h'k'l'}$ dans le précipité d'autre part :

$$\delta = 2 \frac{d_{hkl} - d'_{h'k'l'}}{d_{hkl} + d'_{h'k'l'}}$$

De ces faits, bien qu'un précipité totalement cohérent n'apporte pas grand-chose en terme de propriétés mécaniques, il en est de même qu'un précipité totalement incohérent. La cohérence partielle et le champ de contraintes associé sont les moteurs du durcissement structural.

3.3 Thermodynamique de la précipitation

La détermination expérimentale des enthalpies par DSC apporte une vision énergétique des phénomènes ayant lieu lors des traitements thermiques, phénomènes parfois mal compris si bien qu'il n'est pas rare, à l'échelle industrielle, d'entreprendre un traitement thermique pour obtenir des propriétés particulières sans en savoir les réels effets sur la microstructure même du matériau. La solubilité du silicium dans l'aluminium est au mieux de 1,5% atomique et ce à 850 K : il est alors observé que lors d'une trempe, la solution solide sursaturée va précipiter par vieillissement ou revenu [15]. Ces considérations théoriques mises à part, Schumacher et al présente la détermination d'enthalpie de précipitation de Al-Si [16]. Dans cette étude, deux alliages Al-Si avec deux taux de silicium différents (0.26% et 0.72% de silicium en masse) ont été chauffés à 600°C puis refroidis lentement, puis dans un deuxième cas à nouveau réchauffé afin de comparer les pics de précipitation et mises en solution. Plusieurs vitesses de trempe ont été utilisées allant de 2 K.s⁻¹ à 0.001 K.s⁻¹ sur les deux alliages. D'après le diagramme de phase, pour ces deux teneurs en silicium, il devrait être obtenu in fine deux phases distinctes : aluminium pur et une phase riche en silicium cristallisant dans un réseau type diamant. Les données obtenues par calorimétrie (Figure 12) montrent cependant un pic de précipitation à plus basse température pour l'alliage le plus riche en silicium qui n'est pas détecté sur l'alliage à 0.26%. [16]

Ces observations vont dans le sens d'une précipitation exacerbée lors de vitesses plus rapides ce qui est en accord avec le caractère métastable des phases formées et la très faible solubilité du silicium dans la matrice d'aluminium.

D'autre part, l'augmentation des pics exothermiques correspondants à la précipitation avec la diminution de la vitesse de refroidissement s'explique par une diffusion accrue pendant la trempe. De ces expériences, il est possible de définir la vitesse de trempe critique supérieure (Upper Critical Cooling Rate (UCCR)) correspondant à la vitesse de trempe la plus faible à laquelle la sursaturation est conservée. Cette notion n'est pas conjointe à v_{crit} qui est beaucoup plus approximative, elle a été introduite en opposition à la vitesse critique de trempe inférieure (Lower Critical Cooling Rate (LCCR)), vitesse de trempe la plus rapide au-dessus de laquelle la précipitation a lieu. En d'autres termes, les notions d'UCCR et LCCR admettent la présence d'une plage intermédiaire où le comportement du matériau quant à sa capacité de précipitation serait intermédiaire, notion qui n'est pas incluse dans v_{crit} . Dans le cas de l'alliage à 0.72% de Si, l'UCCR est de 1 K.s⁻¹ alors que dans celui à 0.26% elle est déterminée à 0.02 K.s⁻¹.

Les analyses par DSC du réchauffement après trempe montrent des phénomènes encore différents. Comme présenté Figure 12, le recuit montre différents comportements en fonction de la trempe effectuée précédemment. En effet, pour les alliages ayant subi une vitesse de trempe supérieure à $0.003 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$, il est observé que la précipitation n'a pas été totale et des pics exothermiques apparaissent aux températures inférieures à 350°C alors que pour des vitesses inférieures, aucun signal n'est observé en deçà de cette température. Il est également remarqué que c'est seulement pour la vitesse de $0.001 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ qu'il n'y a plus de pic exothermique et donc de précipitation : il s'agit de la LCCR de l'alliage à 0.72% de Si.

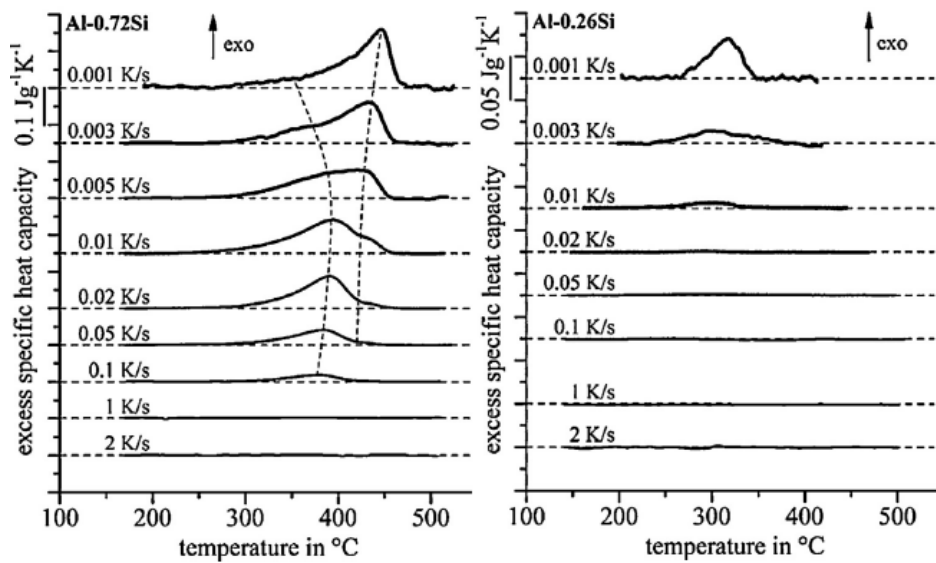


Figure 12: Données obtenues par calorimétrie pour deux alliages Al-Si avec des vitesses de trempe différentes après refroidissement [17]

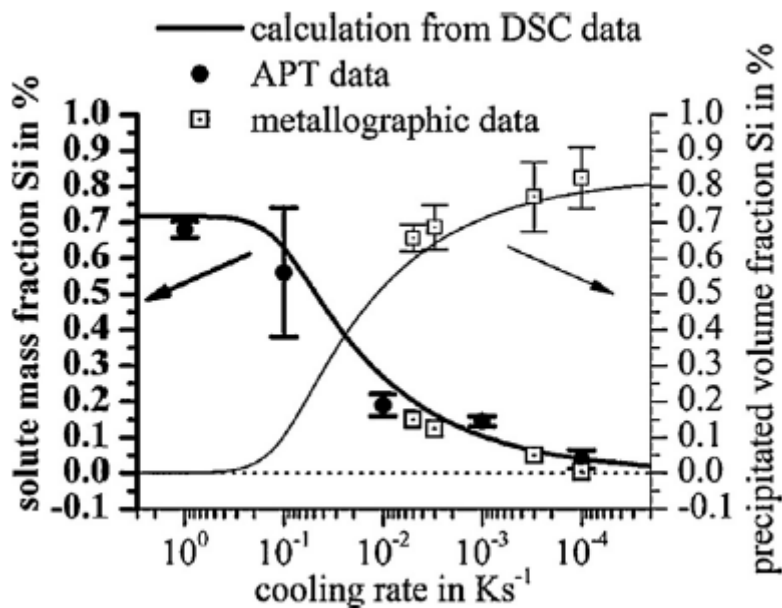


Figure 13: Estimation par le calcul des concentrations de soluté et de précipité dans l'alliage à 0.72% de silicium en fonction de la vitesse de refroidissement [16]

La Figure 13 montre les variations de concentration de soluté (Si) ou de précipité en fonction de la vitesse de refroidissement. La concentration de soluté a été calculée et les données de précipitation ont été mesurées par métallographie et complétées par des informations sur la solution solide issues d'études en sonde atomique tomographique. Il paraît clair que le calcul à partir des enthalpies nous donne un modèle très précis et concordant avec les expériences. En outre, on notera qu'il s'agit là d'un moyen plus précis de déterminer les LCCR et UCCR.

3.4 Influence du traitement thermique sur les propriétés mécaniques : illustrations

Les propriétés mécaniques du matériau sont un aspect essentiel du traitement thermique. Si les différentes étapes de traitement du matériau a posteriori sont importantes, la trempe n'en reste pas moins une étape très influente. Saito et al. ont effectué plusieurs essais de trempe avec de nombreux paramètres. Notamment, les effets de différentes vitesses de trempe et de traitements mécaniques après trempe que nous développerons plus tard. [17]

Référence	Mg/Cu	Cu(%) Massique
LC1	1.19	0.001
LC2	1.14	0.01
LC3	1.17	0.093

Tableau 7: Alliage d'Aluminium de série 6000 étudiés par Saito et al. [17]

La diversité des alliages d'aluminium étudiés par Saito et al. [17] est présentée Tableau 6. Concernant le rapport Mg/Si, ce dernier ne fluctue quasiment pas et se trouve dans la limite inférieure des alliages 6061. Cependant, la quantité de cuivre est, quant à elle, échelonnée entre 0.001 et 0.093 % massique.

Les différents traitements thermiques présentés (Figure 14) ont pour but de donner un large éventail des effets possibles d'un traitement thermique sur la matière. Le traitement noté (i) représente le traitement classique T6 effectué en fonderie, le second (ii) est représentatif d'une première trempe dans l'air avant la trempe classique dans l'eau. Les expériences (iii) et (iv) sont identiques aux traitements (i) et (ii) à ceci près qu'elles ajoutent une pré-déformation de 1% avant revenu. Le revenu sera quant à lui toujours échelonné entre 20 minutes et 24 heures.

Expérimentalement, il est observé que, dans les conditions (i), si le revenu dépasse 12 heures, la dureté n'est pas améliorée. Dans le cas du traitement type (ii), le pic de dureté est obtenu après 9 heures seulement. Dans les deux cas, la dureté maximale obtenue est identique. En conclusion, le traitement type (ii) permet d'obtenir la dureté maximale plus rapidement. Cependant, il est à noter que pour le traitement thermique de type (ii), la dureté augmente rapidement avant de baisser intensément : le revenu demandera donc une plus grande maîtrise pour une application industrielle.

Concernant les conditions (iii) et (iv), il convient de les comparer tout d'abord à leurs homologues (i) et (ii). Sur ces conditions, la formation d'un plateau de dureté correspondant également à la dureté maximale au bout de respectivement 3h et 6h est observée, ce qui témoigne non seulement d'une réduction du temps nécessaire à obtenir la dureté maximale mais également d'une plus grande aisance à l'obtenir.

Si ces expériences montrent les différents comportements du matériau après traitement thermique, il n'en est rien concernant le revenu d'un matériau ayant subi de grandes déformations. Farshidi et al. ont fait certaines expériences en faisant subir à différents morceaux d'aluminium 6061-T6 des contraintes de pression isostatiques et de cisaillement par un procédé nommé Tube Channel Pressing (TCP). Le protocole expérimental est constitué d'une mise en solution à 530°C pendant 1h puis d'une trempe, de passes sur le TCP et enfin d'un revenu à 185°C. Dans le cas de Saito, entre 0 et 3 passes ont été effectuées. Les résultats de dureté Vickers après différentes durées de maturation de Farshidi et al. sont présentés Figure 15 [18].

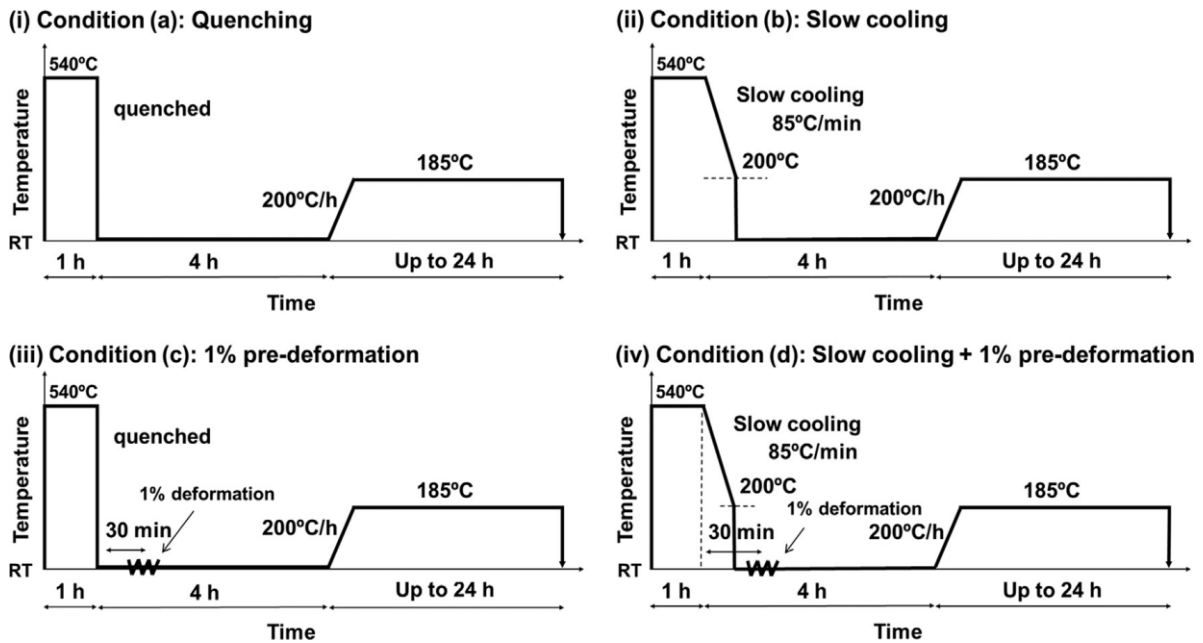


Figure 14: Différents traitements thermiques effectués par Saito et al. [17]

Deux comportements différents sont observés entre l'échantillon vierge et ceux ayant subi des passes au TCP. Dans le premier cas, la dureté ne fait qu'augmenter avec le temps, ce qui coïncide avec les résultats décrits par Saito et al. [17]. Cependant, pour les éprouvettes ayant subi des passes au TCP, la dureté est accrue dans les premiers temps qui suivent le traitement mécanique. Pourtant, après moins de dix heures de revenu, la dureté commence à chuter lentement. Au bout de 500 heures, la dureté de l'échantillon vierge a même dépassé celle de l'échantillon ayant subi une passe. Les résultats de Farshidi sur les grandes déformations concordent donc avec ceux de Saito vers une baisse de la dureté avec le temps dès lors qu'une déformation est présente dans le traitement thermomécanique et ce avant ou après revenu. Cependant, si dans cette partie nous avons traité les événements d'un point de vue strictement thermique,

il convient de sonder les effets microstructuraux, c'est à dire la précipitation pour en comprendre les causes et conséquences [18].

Ces comportements de déformation extrême et changements en matière de dureté constitue un des premiers indices quant au durcissement du matériau dans des conditions extrêmes. On est ainsi amené à s'interroger sur l'impact des conditions extrêmes dues à l'irradiation en réacteur sur la précipitation et les propriétés mécaniques

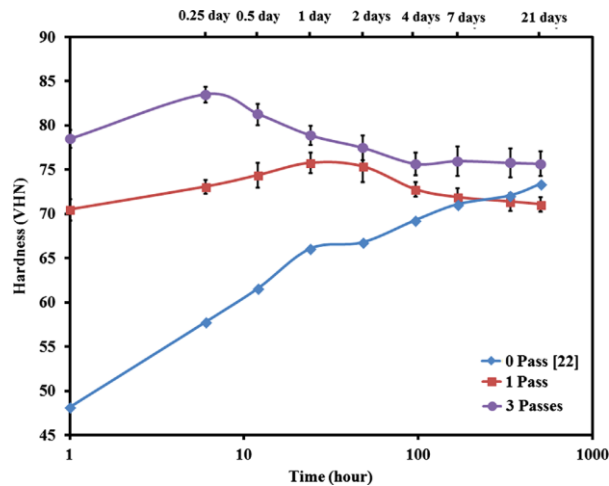


Figure 15: Dureté Vickers en fonction du temps de maturation pour différents nombres de passes [18]

III. Microstructure

Si la présence d'éléments d'alliages est la condition de base pour l'apparition de précipités, la concentration dans le métal et le traitement thermique de l'alliage modifie considérablement la précipitation et donc le comportement du matériau. Dans cette partie, nous allons nous intéresser aux deux aspects principaux du phénomène de précipitation : dans un premier temps d'un point de vue strictement métallographique (relation traitement thermique et précipitation, taille des précipités, etc...) puis dans un deuxième temps les conséquences en termes de propriétés mécaniques sur le matériau.

Une spécificité des alliages de la série 6000, est la présence de trois échelles de précipités microstructuraux : micronique, sub-micronique et nanométrique. [9,19,20]

- La microstructure à l'échelle micronique présente des particules de grande taille (entre 20 μm et 50 μm) dont les éléments de bases constitutifs sont le silicium et le fer. Ces phases sont très peu sensibles au traitement thermique T6 et n'ont pas d'effet positif sur les propriétés mécaniques.
- La microstructure sub-micronique présente des phases de nature chimique et cristalline très différentes, totalement incohérentes avec la matrice et dont les effets sur les propriétés mécaniques et de corrosion sont très variables. Leur taille varie entre 100 nm et quelques μm .

- Enfin la microstructure à l'échelle nanométrique présente, normalement, des précipités cohérents ou semi-cohérents, bénéfiques pour les propriétés mécaniques du matériau et obtenues grâce au traitement thermique T6. Leur taille caractéristique est d'environ 10 nm.

1. Précipités d'échelle nanométrique

Comme présenté précédemment (Tableau 3), les alliages de série 6000 ont pour spécificité de contenir à la fois du magnésium et du silicium. Ces alliages sont dits à durcissement structural. En effet, à la suite d'un traitement thermique spécifique, ces alliages précipitent des nanophases de type $Mg_xSi_yAl_z$ [21] qui, dispersées de manière homogène dans le matériau, lui confèrent un fort pouvoir durcissant. La séquence de précipitation de ces phases est indiquée comme suit [19]:

SSSS (Solution solide sursaturée) \rightarrow Amas Si/Mg \rightarrow Zones GP \rightarrow β'' \rightarrow β' \rightarrow β

Phase	Structure	Paramètres de maille (nm)
β''	Monoclinique C2/m	a=1.516, b=0.405, c=0.674, $\beta=105.3^\circ$
β'	Hexagonale P6 ₃	a=b=0.715, c=0.405, $\gamma=120^\circ$
β	CFC Fm3m	a=0.639

Tableau 7 : Paramètres cristallographiques des phases durcissantes usuelles

En pratique, dans la solution solide sursaturée, commencent à germer des amas de silicium et magnésium. Sous l'action d'un traitement thermique, ces amas se transforment en zones de Guinier-Preston (GP), ces zones riches en éléments d'alliage se distinguent des amas par leur taille (6-10 nm) et leur organisation. Ces zones, arrivées à maturation vont former les précipités durcissants en forme d'aiguille appelés β'' . L'effet durcissant de ces aiguilles est dû à une semi-cohérence entre les réseaux cristallins de la matrice d'aluminium et le précipité (voir les informations cristallographiques présentées dans le Tableau 7). Si le traitement thermique se poursuit, les phases β'' se transforment en β' : elles perdent grandement en cohérence et leur dispersion n'est plus optimale, amoindrissant l'effet durcissant. Enfin, l'apparition de phases β , totalement incohérentes constitue l'équilibre thermodynamique du système et n'apporte aucun bénéfice mécanique à l'alliage. Dans la pratique, les alliages 6000 contiennent avant forgeage des particules Mg_2Si grossières ainsi que du magnésium et du silicium. En effet, une dispersion des particules Mg_2Si durant la forge aide à la précipitation des phases β'' durcissantes pendant le revenu mais peut également se dissocier pendant le forgeage de l'alliage pour former des zones GP puis des β'' .

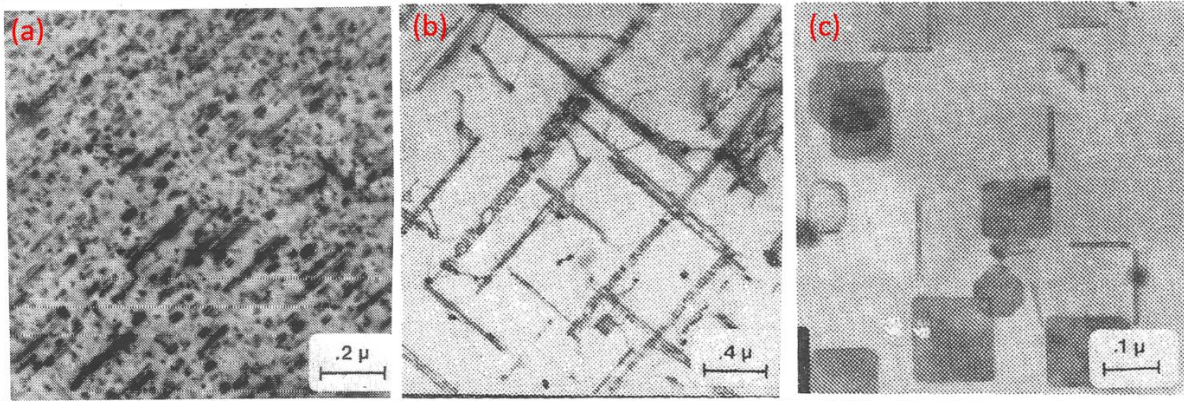


Figure 16: De gauche à droite, image obtenue par MET de trois types de précipités : β'' , β' et β [22]

En microscopie électronique à transmission (MET), les β'' se distinguent par une forme dite "en aiguille" le long de leur axe comme présenté sur la Figure 16.a. Les phases β' qui se distinguent par une taille plus importante ainsi qu'une morphologie à plus grand facteur d'aspect (Figure 16.b) que les β'' . Les précipités β'' sont souvent dits en forme de « bâtonnets », les précipités β' en forme d'aiguille. Enfin, les précipités de type β sont distinctement visibles et sont repérables par leur forme en plaquette ([22,23]) dans les plans $\{100\}$ comme mis en évidence par leurs différents variants Figure 16.c. Par la suite, nous allons distinguer cette précipitation en deux catégories : les alliages à ratio Mg/Si égal à 2 et les autres.

1.1 Généralités sur la précipitation durcissante

Pour un revenu à faible température pendant une longue durée (100°C, 1000h), aucune précipitation n'est observée sur les images MET (Figure 17). Cependant, s'il est effectué un cliché de diffraction en sélection d'aire, des traînées de diffusion diffuse sont visibles lorsque l'alliage contient une teneur élevée en Mg et Si. Ces traînées sont la signature de la présence de très petits précipités certainement cohérents avec la matrice. En effet, la cinétique de croissance des précipités à basse température est très lente ce qui explique la faible taille des précipités présents au bout de 1000h : il s'agit là de zones GP ou de très petits germes de β'' (Figure 17).

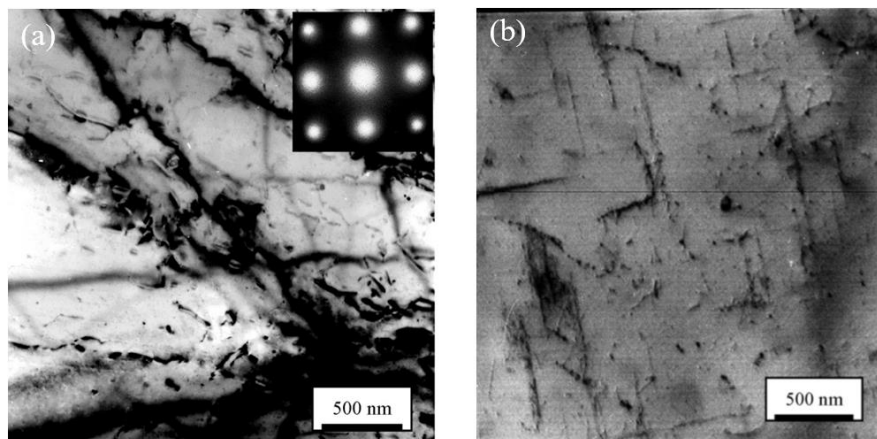


Figure 17: Observation MET selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$: alliage revenu 1000h à 100°C (a), 30h à 185°C (b) [24]

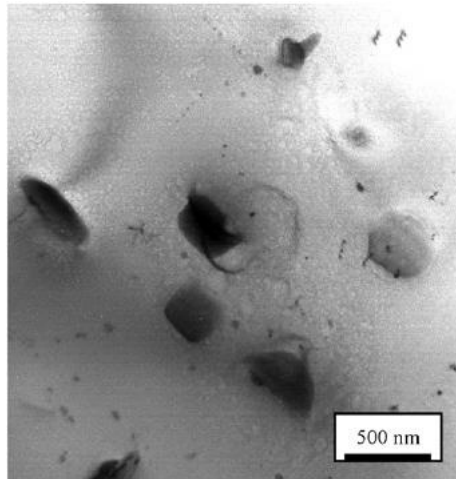


Figure 18 : Microstructure d'un aluminium 6000 sur-revenu

Après une augmentation de la température et une réduction de la durée du revenu, (185°C, 30h [24]), la précipitation d'aiguilles β'' est observée. Cependant, la taille de ces derniers varie beaucoup. Une teneur plus élevée en Mg et Si, respectant toujours le rapport 2 a tendance à augmenter la densité de précipités au détriment de leur taille, ce qui amène à une précipitation plus fine.

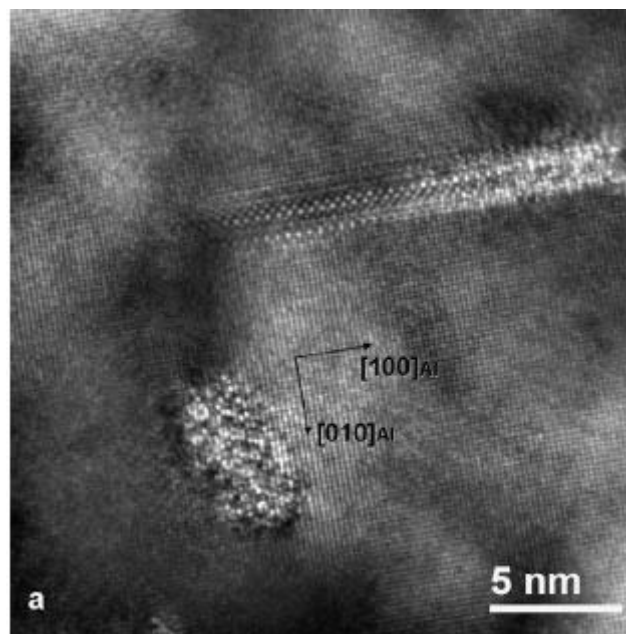


Figure 19: Observation au MET haute résolution d'un alliage d'aluminium 6061 [19]

Ces considérations nous amènent à étudier plus précisément la forme et la distribution des précipités. Une étude sur l'aluminium 6061-T6 présente des résultats complémentaires à ceux mentionnés précédemment [19]. Dans ce cas, l'aluminium a été trempé à une vitesse de $26^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ depuis un palier de 560°C . Cette fois-ci, une image obtenue par MET-HR (Haute Résolution) permet d'observer à l'échelle atomique. L'image MET obtenue après la trempe, montre que l'orientation des précipités en aiguille semble parallèle à des orientations cristallographiques $\langle 100 \rangle$ définies de la matrice métallique. Des

précipités de type β'' sont ici observés: le métal n'ayant pas subi de revenu, la cinétique de formation des précipités est limitée par la diffusion à température ambiante.

En outre, des composés autres que les précipités Mg-Si se trouvent dans le métal. En effet, des intermétalliques de grande taille ($>1\mu\text{m}$) sont présents en quantité dans le matériau. Leur chimie, déterminée par dispersion de l'énergie de rayons X (EDX), montre que certains sont constitués de fer, chrome, manganèse mais aussi de magnésium et silicium. Ces intermétalliques ne présentent, a priori, aucun bénéfice en terme de propriétés mécaniques pour le matériau.

1.2 Alliages à ratio Mg : Si différent de 2

S'il a été précédemment présenté des systèmes contenant une quantité stœchiométrique de silicium et magnésium dans Mg_2Si , il est à noter qu'une variation de cette stœchiométrie entraîne d'importantes modifications dans la précipitation. Par exemple, un excès de silicium dans le matériau conduit à une augmentation significative du taux de silicium dans les précipités β'' , modifiant considérablement les propriétés mécaniques de par la modification de la dispersion des précipités [25]. En outre, un sur-revenu amène à la croissance de précipités beaucoup plus gros et présents en forte densité (Figure 18). En conséquence, malgré une concentration de ces phases beaucoup élevée (Figure 20), l'effet durcissant des précipités s'amenuise.

L'excès de magnésium quant à lui, a une forte tendance à enrichir les phases β non durcissantes. En effet, comme présenté Figure 21, les plaquettes de β dans le matériau présentent la même apparence et la même morphologie (contrairement au cas de l'excès de silicium) mais une composition très fortement enrichie en magnésium [26]. Comme il a été vu à travers ces deux exemples, une variation de stœchiométrie implique de nombreux changements dans la microstructure finale du matériau ayant des conséquences importantes sur les propriétés mécaniques, c'est pourquoi il est préférable de toujours avoir un matériau stœchiométrique avec un rapport Mg/Si (atomique) proche de 2. Dans la pratique, des teneurs un peu supérieures en Mg par rapport au rapport stœchiométrique sont choisies afin d'éviter d'obtenir des précipités peu durcissants.

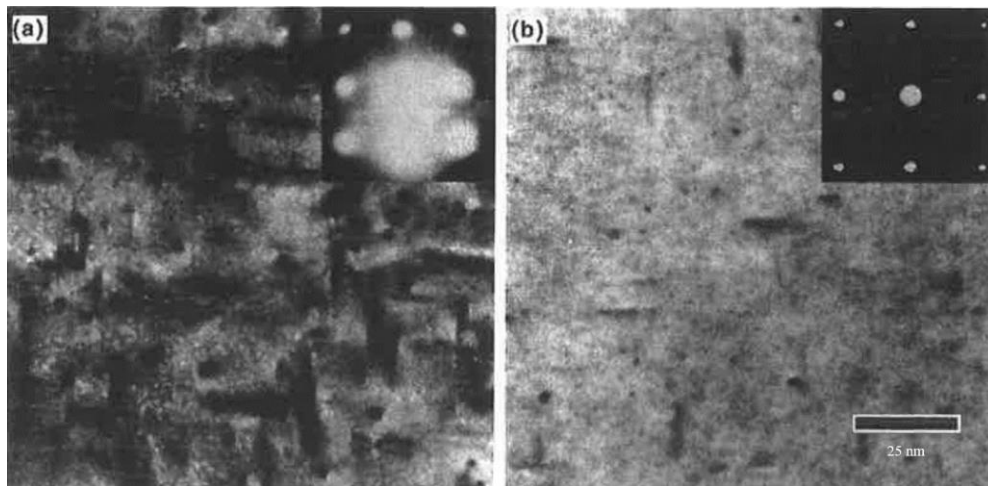


Figure 20: Images MET de deux Al-6061 revenus à 175°C pendant 10h : (a) : excès de Si, (b) : quantité stœchiométrique [25]

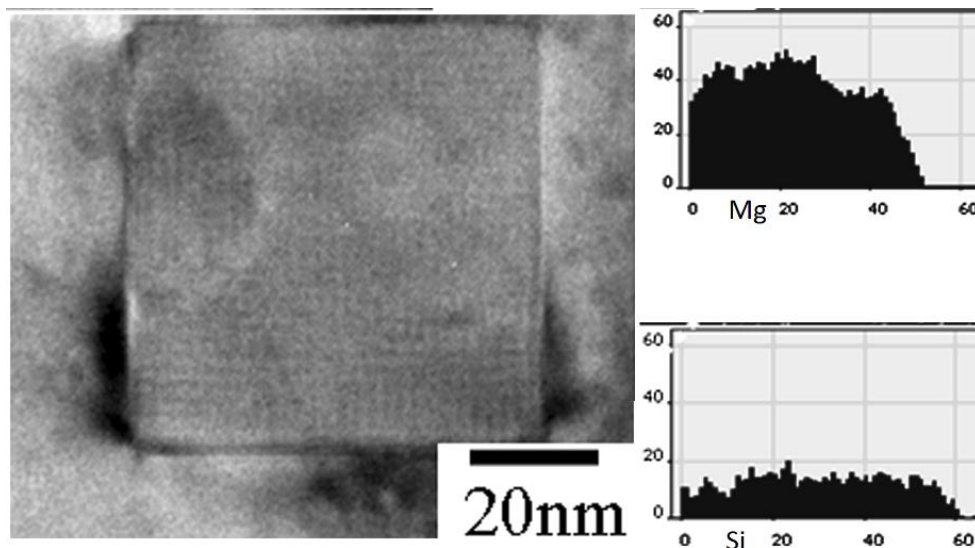


Figure 21: Composition d'une plaquette de phase β dans un Al-6061 enrichi fortement en magnésium [26]

1.3 Variétés des phases durcissantes et effets du cuivre

Le cuivre quant à lui, semble augmenter la densité de précipités sans influencer leur taille [27]. Il serait en fait, un catalyseur de formation de sites pour les précipités. Si la température du traitement thermique est encore augmentée, d'autres formes de précipitation (300°C, 3 minutes, 1h, 1000h [24] ou 560°C, 20 minutes [19]) peuvent être observées. Pour une exposition courte et une température modérément élevée (300°C, 3min) deux comportements distincts se présentent. C'est encore une fois l'alliage à forte teneur en Mg_2Si qui présente des précipités quand l'autre n'en présente aucun, et ce, quel que soit le taux de cuivre (Tableau 8).

Alliage		Précipités	
Cu	Mg ₂ Si	Densité (10 ¹³ .cm ⁻³)	Longueur (nm)
0.1	0.32	6.67	790
0.001	0.32	5.56	937
0.1	0.8	455.29	269
0.001	0.8	353.04	273

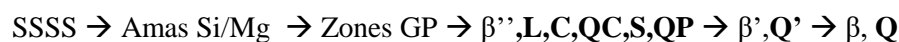
Tableau 8 : Densité volumique et taille des précipités en fonction des caractéristiques de l'alliage pour un revenu de 30h à 185°C [19]

De plus, sur le cliché de diffraction obtenu dans l'alliage à forte teneur en Mg₂Si (Figure 17.a) aucune traînée diffuse indiquant l'existence de précipités ultrafins n'est observable. Thermodynamiquement, cet effet d'augmentation de la teneur en phases durcissantes peut s'expliquer par la teneur plus élevée en Mg₂Si dans le métal. Plus la sursaturation en Mg₂Si est grande, plus il sera facile de précipiter, c'est la force motrice principale de précipitation.

Paramètre		Densité (10 ¹³ .cm ⁻³)		Facteur multiplicatif
Cu	Mg ₂ Si	300°C, 1h	185°C, 30h	
Elevé	Elevé	455.29	34.02	13
Faible	Elevé	353.04	11.9	30
Elevé	Faible	6.67	1.67	4
Faible	Faible	5.56	1.24	4.5

Tableau 9 : Comparaison des effets des traitements thermiques sur la microstructure en fonction de la composition [19]

Si les effets du cuivre ont été précédemment décrits d'un point de vue global sur les densités de précipités et leur agencement, il n'en reste pas moins un acteur important quant à la modification de la structure cristallographique de ces précipités. En effet, de nombreuses études ont démontré que la nature cristallographique et chimique des phases des alliages δ_{xxx} contenant du cuivre était différente de celles n'en contenant pas. La séquence de précipitation dans ces alliages est indiquée comme suit pour des alliages contenant à minima 0.1% wt de Cuivre :



De cette séquence, on comprend qu'une grande variété de nanophases peuvent précipiter du fait de l'addition de cuivre. Cependant, bien que chaque phase aie ses particularités, ce sont principalement les effets d'homogénéité, de densité, de taille et de cohérence qui accordent à ces précipités l'effet durcissant recherché. Le Tableau 10, présente les particularités de chacune de ces phases comparativement à leur phase « native » dans les alliages Al-Mg-Si.

Phase	Aspect en MET	Formule	Cristallographie
β''	Aiguille	Mg_5Si_6	Monoclinique
L	Plaquette	$Mg/Si \rightarrow 1$?
C	Plaquette	$Mg/Si \rightarrow 1$	Monoclinique
QC	Aiguille	?	Hexagonal
S	Aiguille	?	Hexagonal
QP	Aiguille	?	Hexagonal
β'	Bâtonnet	Mg_9Si_5	Hexagonal
Q'	Latte	Variable	Hexagonal
β	Plaquette	Mg_2Si	CFC
Q	Aiguille	Variable	Hexagonal

Tableau 10 : Phases nanométriques en présence dans un alliage Al-Mg-Si-Cu contenant au moins 0.1%wt Cu [27-30]

A ce sujet, de nombreuses études ont été menées sur le plan cristallographique [21] – [24]. Si toutes semblent s'accorder sur la composition globale des phases en présence et leur système cristallin, l'association d'une phase dans un alliage contenant du cuivre avec son équivalent en absence de cuivre reste encore peu claire à l'heure actuelle bien que la coexistence de ces phases ait été établie comme présenté Figure 22.

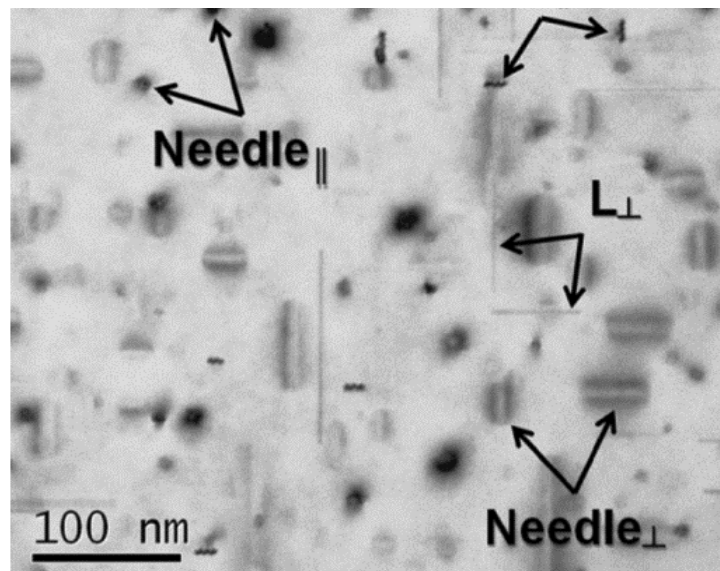


Figure 22: Microstructure d'un alliage 6xxx avec addition de cuivre selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ observée au MET : Observation d'aiguilles de phases β'' dans le plan et vues debout avec des lattes de phases L vue debout et dans le plan [22]

2. Phases submicroniques (dispersoïdes)

La particularité des phases submicroniques, également appelées dispersoïdes, est leur grande diversité chimique et cristallographique. Ce sont le plus souvent des phases intermétalliques caractérisées par des grands paramètres de maille et des motifs atomiques complexes. En effet, souvent incohérents avec la matrice métallique, leur structure cristalline et conditions d'apparition sont des facteurs qui ont fait l'objet de nombreuses études à ce jour. Apparaissant uniquement à haute température et pendant la trempe, ils ont une grande influence sur la taille des grains. Le Tableau 11 présente un inventaire non exhaustif des phases submicroniques généralement rencontrées dans les alliages 6000. En outre, du fait de la nomenclature de ces derniers ces dispersoïdes sont également appelés phases α .

Elément majoritaire	Phase
Mn	α -AlMnSi
Cr	α -Al(CrMn)Si α -AlCrSi Al ₇ Cr
Mn+Cr	α -Al(CrMnFe)Si / θ
Fe	α -AlFeSi β -AlFeSi

Tableau 11: Inventaire des dispersoïdes majoritaires en fonction de l'espèce chimique majoritaire [31–34]

2.1 Particules dispersoïdes AlFeSi

Comme expliqué précédemment, l'aluminium commercial contient toujours une faible quantité de fer qui ne saurait être totalement supprimée. De ce fait, une fois en solution solide, il forme des phases intermétalliques avec l'aluminium et les autres éléments d'alliage. La principale catégorie d'intermétalliques formés dans les aluminiums de série 6000 sont les types Al-Fe-Si. En effet, le silicium tout comme le fer possède une faible solubilité dans l'aluminium alors que le magnésium peut être en solution solide jusqu'à 17.4% en masse. Les intermétalliques de type Al-Fe-Si sont classés en deux groupes α et β . La stœchiométrie de ces composés n'est pas exactement déterminée. Pour un rapport voisin de 1, les intermétalliques AlFeSi correspondent à la phase β -AlFeSi de structure monoclinique. Pour un rapport Fe/Si entre 1.5 et 2.0, les intermétalliques AlFeSi sont des phases α -AlFeSi de structure cubique ou hexagonal. [32]

2.2 Dispersoïdes Al-Mn-Cr

Les dispersoïdes qui seront présentés sommairement ici ont fait l'objet de nombreuses études. Cependant, les conclusions en matière de bénéfique ou non pour le matériau ne sont pas toujours bien connues. Ces particules, possédant de très nombreuses formes et compositions ont généralement une répartition très hétérogène dans le matériau. Quelques phases remarquables propres à la série 6000 sont répertoriées ici. Une grande famille de dispersoïdes observés dans les aluminiums issus de la série 6000 sont les Mn-Cr. En effet, bien que les alliages de la série 6000 présentent principalement les éléments fer, silicium et magnésium, le manganèse et le chrome y sont également présents. Les éléments

manganèse et chrome forment quant à eux des phases à part. Le cuivre est soluble en petite quantité à température ambiante dans l'aluminium. Compte tenu des faibles teneurs dans le 6061-T6, il sera en grande majorité en solution solide. Il est cependant possible qu'une infime fraction de cuivre forme un précipité de CuAl_2 mais ils ne seront pas détaillés ici, ces précipités étant minoritaires et peu d'études s'attachant à leur effet dans le 6061-T6. [31]

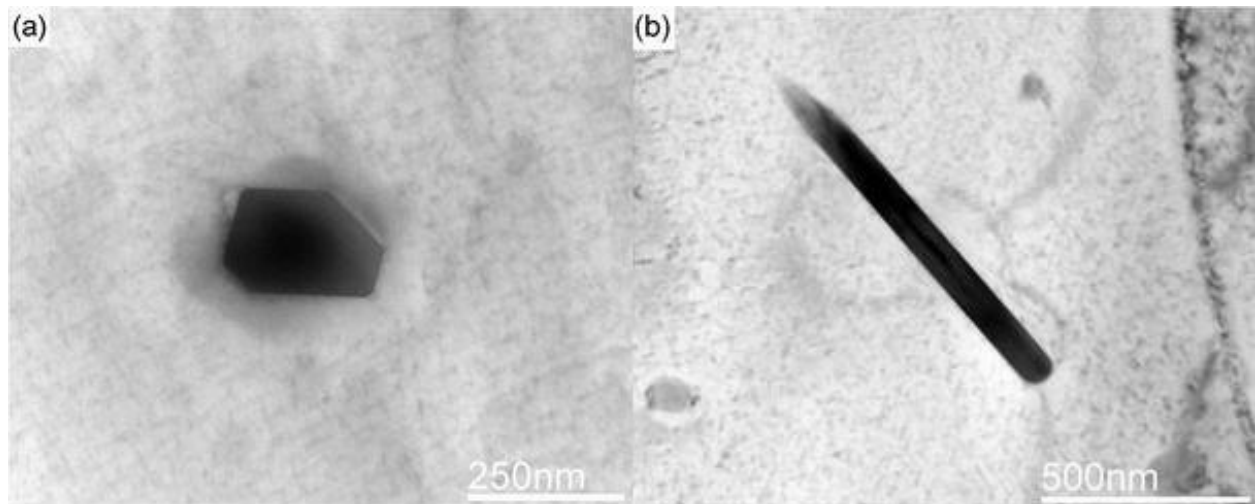


Figure 23 : Image MET d'un dispersoïde θ en forme de plaquette (a) et de bâtonnet (b) [33]

Les particules à base de manganèse et chrome sont très généralement associées à des éléments métalliques comme l'aluminium, le fer et le silicium. Elles ont une structure cubique. Les phases biphasées de type aluminium-chrome ou aluminium-manganèse sont généralement des précipités θ monocliniques. D'autres phases monocliniques sont observées, avec du fer en addition mais toujours sans silicium. ([9,33]). Les deux morphologies possibles de ces phases sont présentés Figure 23.

Comme présenté Tableau 11, la variété des phases à base Mn-Cr est très importante. Expérimentalement, la détection de ces phases se fait par analyse chimique EDS sur une zone spécifique d'une image MET.

Concernant la composition de ces dispersoïdes, on peut remarquer sur le Tableau 11 que pour les particules à base de manganèse, plusieurs compositions sont données. Ces compositions sont les plus récentes observées. En réalité, bien d'autres ont été explicitées dans la littérature. En général, la composition est très variable en fonction de celle de l'alliage et que ces phases sont ternaires de composition $\text{Al}_p(\text{Fe},\text{Mn})_q\text{Si}_r$, avec p, q et r des entiers. [34]

2.3 Impact des dispersoïdes sur les propriétés mécaniques

L'effet des précipités et dispersoïdes sur les propriétés mécaniques du matériau sont diverses. En effet, si les précipités de type β'' et β' ont un effet durcissant avéré, les phases Mg_2Si grossières n'ont quant à elles aucun bénéfice du point de vue mécanique. Concernant les dispersoïdes, il peut être théoriquement considéré qu'ils ont un effet durcissant dès lors qu'ils ont une cohérence partielle avec la matrice et une

densité suffisante. Malgré tout, les intermétalliques incohérents peuvent avoir d'autres effets, plutôt bénéfiques, sur le matériau, notamment face à l'irradiation, la corrosion ou la recristallisation.

En effet, la présence des particules aux joints de grains limite la croissance des grains, ce qui est très avantageux comme vu avec la loi de Hall-Petch. Par opposition, les résultats présentés Tableau 12 montrent un effet contraire en ce qui concerne les dispersoïdes chrome-manganèse : l'ajout de chrome et de manganèse a tendance à augmenter la taille de grain. En effet, les phases β' durcissantes contenant des éléments chrome et manganèse, tendent à se transformer en phase dite "u-phase". Cette phase, enrichie en chrome et manganèse appauvrit fortement les intermétalliques au joint de grain en chrome ce qui réduit l'effet de réduction de la taille des grains. [31]

Cr (%wt)	Mn (%wt)	Taille de grain (μm)
0.002	0.007	70
0.002	0.267	69
0.002	0.535	75
0.149	0.011	95
0.144	0.547	96
0.145	0.285	82

Tableau 12 : Taille de grain en fonction du taux de chrome dans l'alliage [31]

Comme il a été illustré à travers cet exemple, les dispersoïdes ont une forte tendance à réduire la taille de grain. Cependant, des comportements secondaires peuvent réduire cet effet bénéfique. L'introduction de ces espèces en solution solide doit donc être mesurée. D'autre part, les dispersoïdes peuvent également avoir des bénéfices pour les propriétés de résistance au gonflement ou devenir le lieu privilégié de précipitation des phases durcissantes β' tout comme les clusters de cuivre. Ces phases se révèlent donc importantes d'un point de vue macroscopique pour le matériau.

3. Particules d'échelle micronique

La dernière échelle de particules observée dans les alliages d'aluminium de série 6000 sont les phases dites microniques également appelées intermétalliques au Fer (*IMF*). Leur taille varie entre 20 et 50 μm environ. Ces phases sont donc principalement observés en microscopie électronique à balayage ou en microscopie optique. La présence de ces phases grossières s'explique notamment par une très faible solubilité des éléments d'addition comme le fer dans l'aluminium : elle est de 0.8% à 500°C pour le fer et ne cesse alors de chuter avec la température. Ainsi, il est généralement considéré que, lors d'une trempe, la solidification totale des IMF intervient avant la solidification de la matrice même. [35].

La microstructure des phases microniques est très complexe et liée à la composition chimique de l'alliage. Cependant, on distingue tout de même deux grandes familles de phase : (α , β) et π . Les phases α et β , respectivement de composition $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si}$ et Al_5FeSi et cristallisent dans le système CFC et

monoclinique. La Figure 24.a présente une micrographie d'une phase β . Comme on peut le voir, elle possède la forme d'une aiguille sombre. Ces phases sont extrêmement néfastes pour la tenue mécanique du matériau. En effet, elles constituent une zone d'amorçage préférentielle des fissures. La croissance de ces phases est liée à la vitesse de refroidissement du matériau lors de sa trempe et leur densité sera d'autant plus grande que le refroidissement sera lent. [32,35–37]

Outre l'impact sur la ténacité, les phases β induisent une chute locale de la ductilité, amenant une mise en forme difficile du matériau. La phase α quant à elle ne présente aucune incidence majeure sur les propriétés mécaniques du matériau. Comme présenté Figure 24.b, elle prend la forme de schémas complexes parfois appelés « chinese scripts ». Cette morphologie particulière est parfois reprise par les phases π , mais cette fois-ci de manière plus dense, comme présenté Figure 24.d. [38]

L'effet néfaste des phases IMF β peut être neutralisé à condition d'effectuer un traitement thermique d'homogénéisation. En effet, sous l'action thermique, les bâtonnets IMF β auront tendance à se fractionner et se transformer en phase α en totalité. En outre, une teneur élevée en manganèse et

magnésium aura tendance à modifier la chimie des phases α et π pour induire une totale disparition des phases β . Le Tableau 13 présente cette modification chimique. [32]

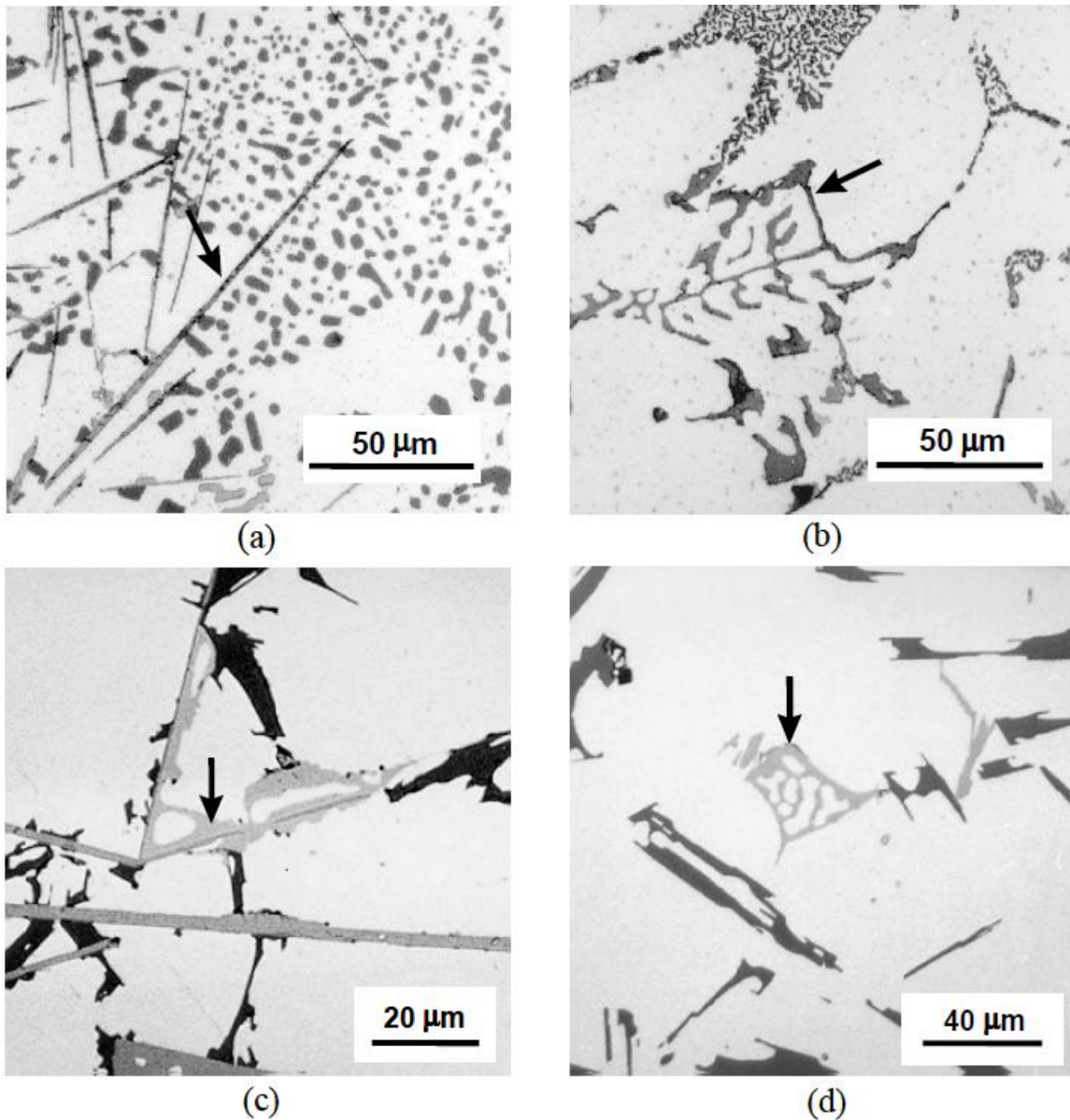


Figure 24 : Micrographie d'intermétalliques au Fer : a) phase β , b) phase α , c) croissance de phase π sur phase β , d) phase π [36]

Phase	Chimie usuelle	Adjonction Mg + Mn
α	Al_8Fe_2Si	$Al_{15}(FeMn)_3Si$
β	Al_3FeSi	sans
π	Al_3FeSi_2	$Al_8FeMg_3Si_6$

Tableau 13: Effet de la chimie du matériau sur les principales particules microniques [36]

La diversité de la précipitation dans les alliages d'aluminium a été soulignée à travers les nombreux exemples de cette partie. Si l'effet de chaque phase n'est pas toujours compris ou identifié, il est évident que l'interaction de ces derniers avec des particules irradiantes en réacteur ou sous faisceau ionique aura une influence remarquable sur l'alliage et ses propriétés. Aussi, la partie suivante s'attache à décrire les effets d'irradiation sur les alliages de série 6000.

IV. Effets d'irradiation dans les alliages des série 6000

1. Généralités sur les effets d'irradiation

1.1 Matériaux métalliques

Les effets d'irradiation dans les matériaux peuvent être très divers du fait de la variété des énergies et la nature des particules irradiantes. Dans un cœur de réacteur nucléaire, il s'agit généralement de neutrons issus des réactions de fission du combustible ou d'atomes voisins qui entrent en collision avec d'autres atomes. L'atome en question va alors obtenir de l'énergie transférée par le neutron. Si cette énergie est supérieure à la somme des énergies de liaisons de l'atome dans son site, à supposer que le matériau considéré soit cristallin, alors ce dernier sera éjecté de son site. Cette énergie, appelée énergie de déplacement, est notée E_d . Si l'atome est déplacé de son site cristallin il génère alors une lacune et transmet son énergie cinétique aux autres atomes qu'il rencontre durant son déplacement dans la matrice. Il génère alors une cascade de déplacements. A mesure que son énergie cinétique diminue, l'atome déplacé se stoppe alors soit dans un site vacant, une lacune, soit en interstitiel dans la matrice métallique. On a alors une paire de Frenkel. Considérant les possibles diffusions des atomes dans la matrice métallique, ces paires de lacunes et interstitiels peuvent alors se recombinaison. Ainsi, il se forme, en régime statique, une génération des défauts d'irradiation pilotée par le taux de génération de ces derniers et leur résorption. [39]

L'énergie maximale de transfert d'une particule incidente I d'énergie E_I et de masse m_I , sur un atome A de masse m_A s'exprime comme :

$$E_{max} = 4E_I \frac{m_I m_A}{(m_I + m_A)^2}$$

En effet, afin de quantifier et comparer plusieurs niveaux de dommages, il convient de pouvoir construire une grandeur tenant compte du nombre moyen de déplacements de chaque atome autour de son site originel cristallin. Cette grandeur sans unité s'appelle le DPA pour déplacement par atome, ou encore *displacement per atom* en anglais. [40] L'expression mathématique de cette grandeur peut se faire de différentes manières. Une première approche, utilisée pour les dégâts neutroniques, consiste à l'exprimer comme suit :

$$DPA = \Phi \int_0^T \frac{0.8T}{2E_d} \frac{\partial \sigma}{\partial T} (E_n(x), T) dT$$

Avec Φ un flux neutronique d'énergie E_n , T l'énergie transférée, σ la section efficace d'interaction. Il s'agit donc ici d'une probabilité de transfert d'énergie entre les deux particules. En pratique, ce mode de calcul du DPA n'est utilisé que lors de simulations physiques pour reproduire des cascades de dommages par dynamique moléculaire notamment, comme présenté Figure 25. Une précision dernière doit être apportée sur ce mode de calcul. En effet, le coefficient correctif de 0.8 est une addition au modèle originel de Kichin-Pease par Norgett, Robinson et Torrens [41] prenant en compte l'asymétrie des cascades de déplacement.

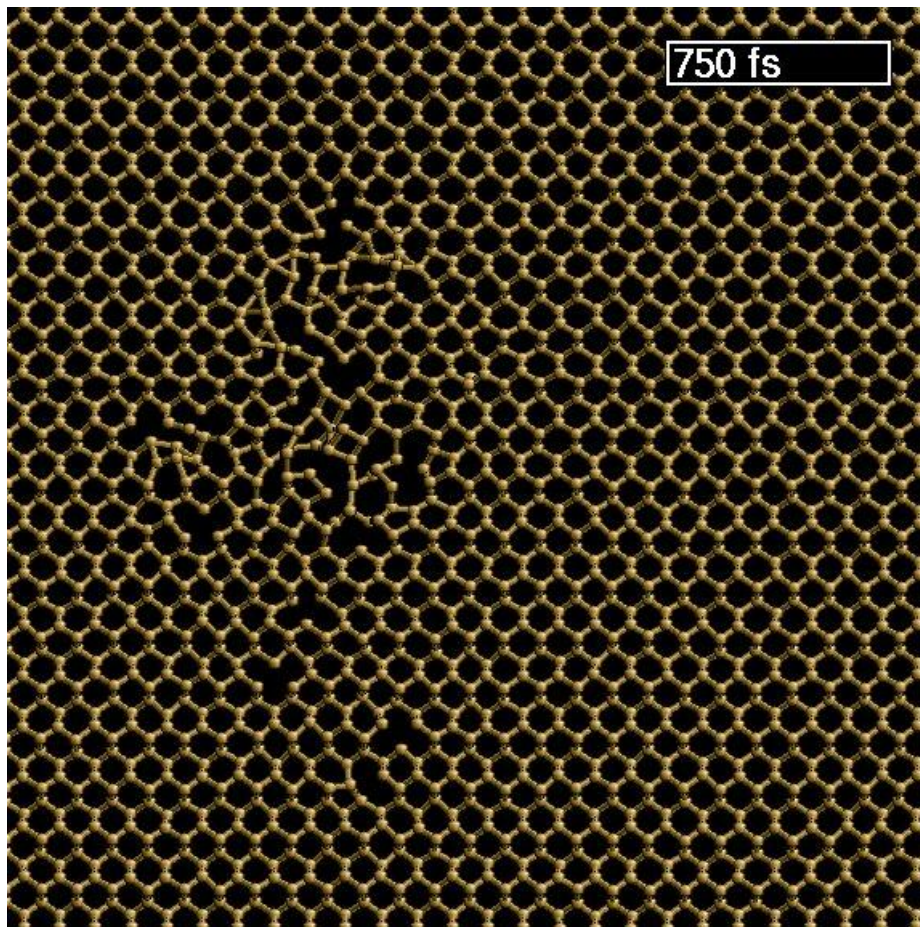


Figure 25: Modélisation des dégâts d'irradiation en cascade dans une matrice de silicium pur par dynamique moléculaire [42]

Une expression plus pratique lors d'irradiations ioniques du DPA s'écrit comme suit :

$$DPA = \frac{\Phi \Delta t DPI}{d}$$

Avec Δt le temps, Φ le flux de particules, DPI le nombre de déplacement par unité de longueur et d la densité atomique du matériau. [43,44].

Les matériaux en réacteur subissent des dégâts liés à l'irradiation neutronique. L'étude de matériaux irradiés en réacteurs est difficile du fait de l'aspect irradiant et contaminant des échantillons. C'est pour cela que l'irradiation aux ions est largement utilisée dans le domaine de l'étude des matériaux nucléaires afin de reproduire au mieux et en des temps très courts les dégâts subis en réacteur. Cependant, comme le montre le Tableau 14, de nettes différences sont observables entre les deux formes d'irradiation ce qui induit un questionnement important sur la représentativité des irradiateurs ioniques dans le milieu scientifique.

	Irradiation ionique	Réacteur
Dégâts	10^{-5} - 10^{-3} DPA.s ⁻¹	$<5.10^{-6}$ DPA.s ⁻¹
Température	0-700 °C	50-500 °C
Cycles	<i>sans</i>	multiples
Particule irradiante	Ions de masses variées	Neutron, Proton, Particules α , Produits de fission
Difficulté des études <i>post irradiations</i>	Faible	Très grande
Volume impacté/analysable	Limité par l'implantation ionique (10 μ m max)	Directement lié au volume de la pièce
Spectre d'énergie	Discret	Multiple

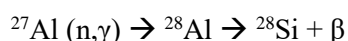
Tableau 14: Comparaison des irradiations ioniques et neutroniques [44]

En effet, dans le cas d'irradiations ioniques, de forts taux de dommages sont atteints en des temps très courts. Outre les formations des espèces induites par la fission qui ne sont pas retrouvées lors d'irradiations ioniques, la vitesse à laquelle les dégâts sont formés peuvent varier de plusieurs décades ce qui, dans le cas des irradiations ioniques, limite grandement les effets de relaxation et de recombinaison de même que l'absence de cycle de combustion comme il peut être vu en réacteur. [45]. Outre cet aspect, les flux neutroniques présentent toujours deux composantes : une dite « rapide » concernant des neutrons d'énergie supérieure à 0.1 MeV et une dite « thermique », soit des neutrons d'énergie inférieures à 0.625 eV.

1.2 Effet des neutrons dans les alliages de série 6000

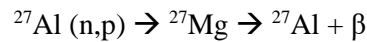
Les réacteurs de recherche utilisent de manière prépondérante des alliages d'aluminium, pour leur bonne transparence neutronique et leur utilisation à basse température. L'aluminium, contrairement aux aciers ou aux alliages de zirconium, a la particularité de se transmuter très facilement sous flux neutronique. Ainsi, dans le cas des alliages d'aluminium, sont généralement considérées les séquences suivantes [46,47] :

- ➔ Réaction avec un neutron n, produisant un photon γ : absorption neutronique à très forte section efficace (230 mbarn)



Puis par absorptions neutroniques successives sur ^{28}Si , ^{29}Si et ^{30}Si , on obtient du ^{31}Si qui par désintégration β^- produit du ^{31}P

- Réaction avec un neutron n, produisant un proton p, à faible section efficace (3,86 mbarn)



- Réaction avec un neutron n, produisant une particule α , à très faible section efficace (0,7 mbarn)



- Réaction avec un noyau d'hélium



De ces équations et considérations précédentes, il peut être établi l'observation de défauts divers dus aux cascades de déplacement, un fort enrichissement en silicium du matériau ainsi que de faibles variations des teneurs en magnésium, sodium, phosphore, une production d'hydrogène due aux réactions (n,p), et une production d'hélium due aux particules α .

2. Effets d'irradiations sur la microstructure des alliages de série 6000

Les effets d'irradiation neutroniques sur les alliages de type Al-Mg-Si ont été étudiés depuis les années 70 dans les réacteurs expérimentaux américains. Les études liées aux irradiations ioniques et la comparaison avec les études neutroniques n'ont débuté que dans les années 80. Concernant les analyses microstructurales de ces derniers, seules les échelles nanométriques et submicroniques ont été observées. L'absence d'analyse à l'échelle micronique peut s'expliquer simplement par la taille très imposante des précipités microniques, peu susceptibles d'être directement affectés par les effets d'irradiations, sauf à des taux de dommages très élevés.

Dans la suite du manuscrit, les valeurs de DPA pour les irradiations neutroniques dans les alliages d'aluminium seront calculées selon la conversion suivante : $1,8 \cdot 10^{23} \text{ n.cm}^{-2} (E > 0.1 \text{ MeV}) \equiv 260 \text{ DPA}$ [48]

2.1 Irradiations aux neutrons

Les effets d'irradiation aux neutrons en réacteur sur les alliages d'aluminium résultent majoritairement d'expériences effectuées dans deux réacteurs : « High Flux Isotope Reactor » (HFIR) et « High Flux Beam Reactor » (HFBR). La plupart de ces études ont été menées par Farrell et King [48,50–58]. La différence majeure entre les expériences HFIR et HFBR résulte dans le spectre neutronique qui leur est associé. Pour permettre une comparaison des résultats sur des alliages irradiés dans différents réacteurs avec des spectres neutroniques différents, la dose en neutrons thermiques ($E < 0,625 \text{ eV}$) est alors définie par convention pour une énergie de neutrons strictement égale à $0,0254 \text{ eV}$: elle correspond à la dose à cette énergie qui produirait la teneur en silicium effectivement produite sous l'effet du flux neutronique thermique intégré dans l'intervalle d'énergies $[0 ; 0,625 \text{ eV}]$. Le flux thermique ainsi défini est appelé

flux thermique conventionnel. Le réacteur HFBR présente un spectre majoritairement thermique avec un rapport flux thermique conventionnel / flux rapide (R) maximal de 20. Et HFIR présente un flux rapide plus important avec un rapport thermique conventionnel/rapide allant jusqu'à 1,3.

La transmutation de l'aluminium en silicium durant l'irradiation neutronique sursature la matrice d'aluminium en silicium. En effet, comme vu au paragraphe II.2, le silicium est très peu soluble dans l'aluminium, de plus, les alliages de la série 6000 présentent déjà une forte teneur en silicium avant irradiation : la matrice est déjà en situation de saturation. La Figure 26 présente le cas de d'un alliage d'aluminium de série 1000 (99% pur) et 6000 après irradiation aux neutrons : dans les deux cas, de larges particules de silicium sont observées dans toute la zone irradiée. [49,51].

La localisation préférentielle de ces phases apparaissant sous irradiation n'est pas clairement déterminée. En effet, d'après les observations de Jostsons [50], l'apparition de ces phases serait très éloignée des joints de grains, comme illustré Figure 26. Cependant, les observations de Weeks [58] présentées Figure 27 indiquent au contraire une concentration importante de ces phases aux joints de grain, spécifiquement dans les alliages de la série 6000. Ces observations contradictoires semblent indiquer une forte dépendance de la précipitation aux caractéristiques de l'alliage avant irradiation.

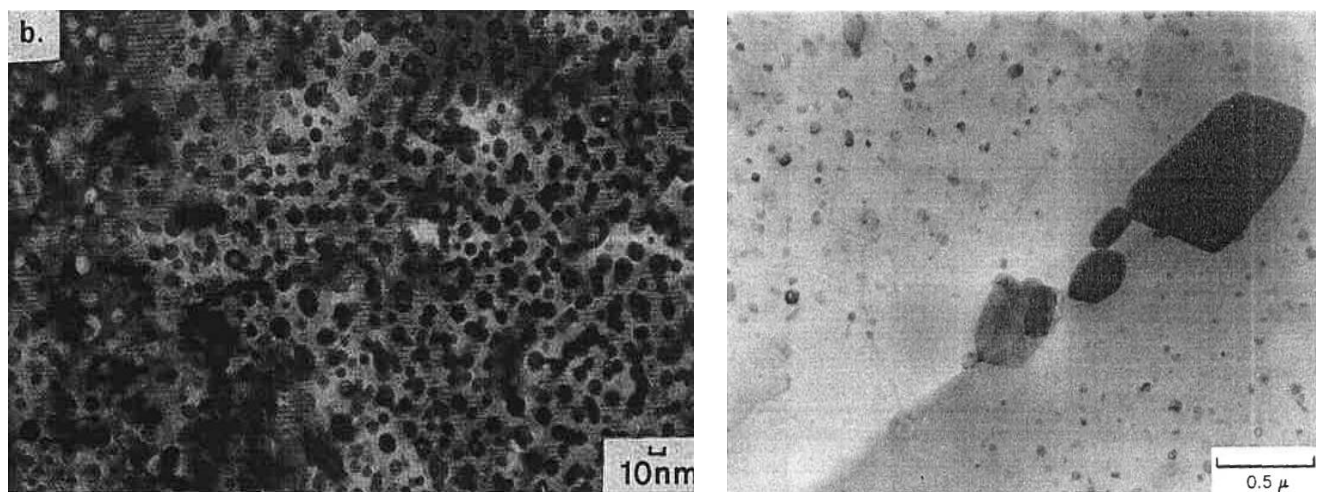


Figure 26: Particules de silicium observées dans un alliage 6000 (gauche [49], 28 DPA, R=20) et 1000 (droite [50]) après irradiation aux neutrons

L'influence importante de l'état métallurgique avant irradiation sur la microstructure post irradiation a été démontrée par Farrell en 1983 [54] sur l'examen microstructural de quatre nuances d'aluminium : Al pur, Al pur recuit, 6061-T6 et 5052-O. Ses observations montrent un nombre important de cavités et de phases silicium sur l'alliage pur. L'alliage pur recuit montre une densité moins importante de cavités et précipités silicium ainsi qu'une tendance à ségréger aux joints de grains pour ces défauts. Les alliages 6061 et 5052 présentent quant à eux une précipitation silicium ainsi qu'une densité de cavités encore moindre. Concernant la précipitation nanométrique, les effets de l'irradiation neutronique ne sont pas clairement définis. Plusieurs rapports ne montrent aucun effet sur cette dernière [54,57] alors que d'autres présentent la totale disparition des phases nanométriques [58]. Cependant, dans chaque cas les

rapports de fluences thermiques et rapides sont très différentes. Le Tableau 15 Tableau 15 présente une étude comparative de ces observations dans des alliages de série 6000.

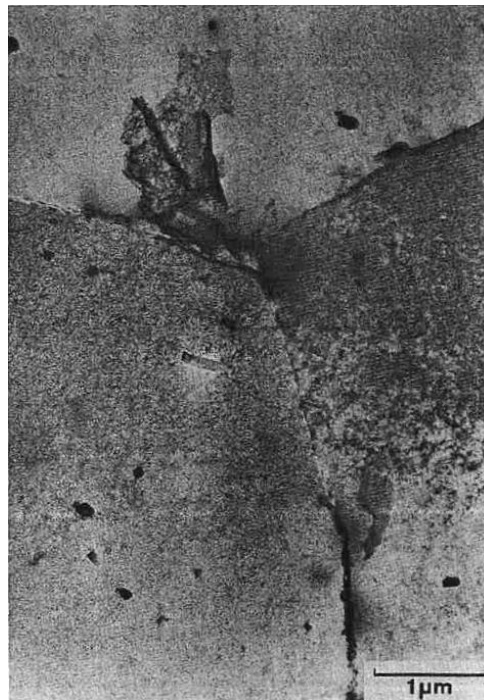


Figure 27 : Concentration de phases au silicium aux joints de grains après irradiation neutronique (8 DPA, $r=1,64$) [58]

R	Amas de silicium	Phases nanométriques
1.3	Oui	Stable
1.6	Oui	Stable
1.7	Oui	Stable
1.9	Oui	Stable
2	?	?
2.5	Oui	Stable
20	Oui	Disparues

Tableau 15 : Etude comparative de la microstructure en fonction du rapport R [47,49–57]

On remarque que, si les amas de silicium semblent toujours présents quelle que soit la nature du flux majoritaire, les phases nanométriques semblent extrêmement sensibles à un flux fortement thermalisé.

Les effets d'irradiation neutroniques explicités dans cette partie montrent bien le caractère complexe et microstructure-dépendant de ces derniers. Afin de simuler les dégâts d'irradiations plus rapidement et d'effectuer des études paramétriques, des irradiations aux ions sont souvent entreprises.

2.2 Irradiation aux ions

Les effets d'irradiation aux ions sur la microstructure des alliages de la série 6000 consistent en une série limitée d'articles de revue [59–61] ainsi que la thèse de C.Flament et les articles associés [62–65]. Les apports de Flament et al. sur les différents aspects microstructuraux du 6061 sous irradiation, ionique notamment, sont majeurs. La Figure 28.a, présente une organisation cœur coquille des dispersoïdes pré-irradiation mise en évidence par des analyses EDX au MET. Après irradiation ionique (W^+ , 165 dpa), la même structure est toujours observée, Figure 28.b. Cependant, un examen détaillé montre une diminution globale de la taille moyenne des dispersoïdes ce qui induit une dissolution partielle de ces phases et donc un relâchement chimique dans la matrice comme présenté Figure 28.c. En outre des cavités d'environ 10 nm de diamètre ont été observées sur l'interface dispersoïde matrice. La nucléation de ces cavités est supposée être liée à la dissolution partielle des précipités à leur interface créant une zone d'entropie suffisante à la formation d'amas de lacunes puis de cavités. [64]

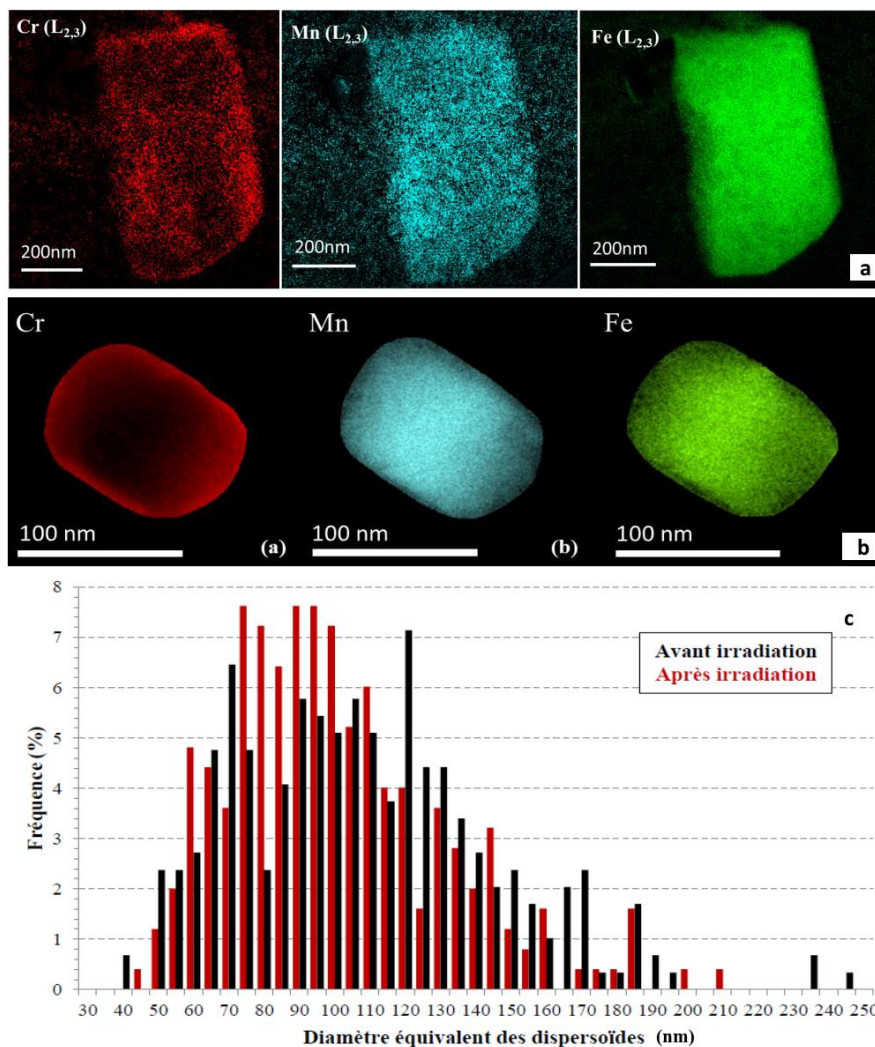


Figure 28: Analyse comparative des dispersoïdes et de l'effet de l'irradiation aux ions W^{3+} , 165 dpa : (a) structure cœur-coquille avant irradiation, (b) après irradiation et analyse quantitative des diamètres équivalents avant et après irradiation en nm [62,64]

Concernant la microstructure à l'échelle nanométrique, les irradiations ioniques montrent, à première vue, une diminution globale de la taille moyenne des nanophases [63]. En effet, les mesures effectuées par Flament et al. indiquent une diminution du rayon moyen de 0.5 nm après irradiation aux ions Au²⁺ pour une dose finale de 95 dpa. Cette observation corrobore une augmentation de la densité moyenne des phases nanométriques dans l'alliage, passant de $3,5 \cdot 10^{22} \cdot \text{m}^{-3}$ à $4 \cdot 10^{22} \cdot \text{m}^{-3}$ d'après les mesures EFTEM. Outre ces modifications des phases préexistantes, de nouvelles phases se forment sous faisceau ionique ont été détectées selon l'axe de zone [112]. Ces nouvelles phases présentent une densité d'environ $2,5 \cdot 10^{21} \cdot \text{m}^{-3}$ après une irradiation jusqu'à 95 dpa. Une irradiation jusqu'à 165 dpa ne montre pas d'évolution de cette densité mais une modification de la morphologie des phases avec un allongement de ces dernières (Figure 29). L'analyse chimique montre que ces phases sont particulièrement enrichies en magnésium, silicium, cuivre et chrome. A ce sujet, Flament propose un mécanisme de formation de ces phases sous irradiation : l'origine chimique du cuivre, silicium et magnésium de ces nouveaux précipités proviendrait de la dissolution des nanoprecipités préexistants, tandis que le chrome serait apporté par la dissolution partielle des dispersoïdes en structure cœur-coquille. Outre l'aspect purement chimique et cristallographique, il est montré que ces phases contribuent au durcissement de l'alliage et contribuent donc à l'augmentation de la dureté après irradiation. [63,64]

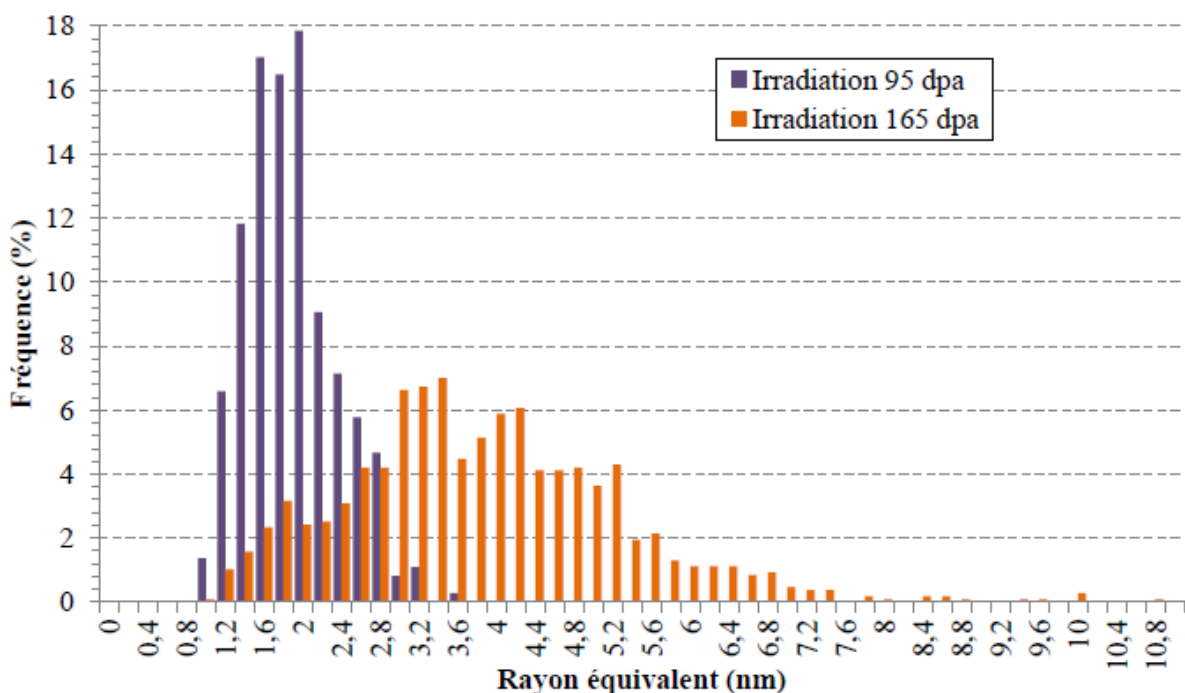


Figure 29 : Distribution en taille des nouveaux précipités observés post irradiation selon l'axe de zone [112] en fonction de la dose [64]

Si aucun autre auteur n'a observé ces phases nouvelles, d'autres études se sont attachées à la croissance et la stabilité des nanophases sous irradiations ioniques [60,61]. Les études de Victoria et Singh [61] consistent en une série d'irradiations d'alliages de série 6000 non revenus sous des conditions de

température équivalentes à un revenu classique T6 (120-170 °C). Ces expériences montrent qu'une précipitation de nanophases durcissantes habituelles (β'') sous irradiation est possible mais que la taille moyenne de ces phases semble être diminuée au prix d'une plus forte densité comparativement à des conditions de revenu temps-température équivalent. En outre, pour une température d'irradiation plus élevée (plus de 200°C) une redissolution partielle des précipités formés est observée.

3. Influence de l'irradiation sur les propriétés mécaniques

La création de défauts par l'irradiation (boucles, cavités, défauts ponctuels), modifie les propriétés mécaniques des alliages métalliques. Les modifications microstructurales se traduisent par une perte de ductilité, l'augmentation de la dureté, l'augmentation de la limite d'élasticité, et une évolution de la ténacité dépendante des conditions d'irradiation.

3.1 Irradiation aux neutrons

La Figure 30 représente les effets de l'irradiation neutronique sur les propriétés en traction de l'alliage 6061-T6 dans diverses conditions réacteur. Premièrement, l'observation des courbes de traction de l'état neuf à 55°C et 150°C montre une grande ductilité pour toutes deux. Deux états irradiés sont testés 187 dpa et 144 dpa tous deux avec un coefficient R du même ordre de grandeur et à deux températures : 55°C et 150°C. Comme attendu, les deux courbes présentent un durcissement et une augmentation de la limite élastique très importante mais surtout un allongement à rupture beaucoup plus faible [54].

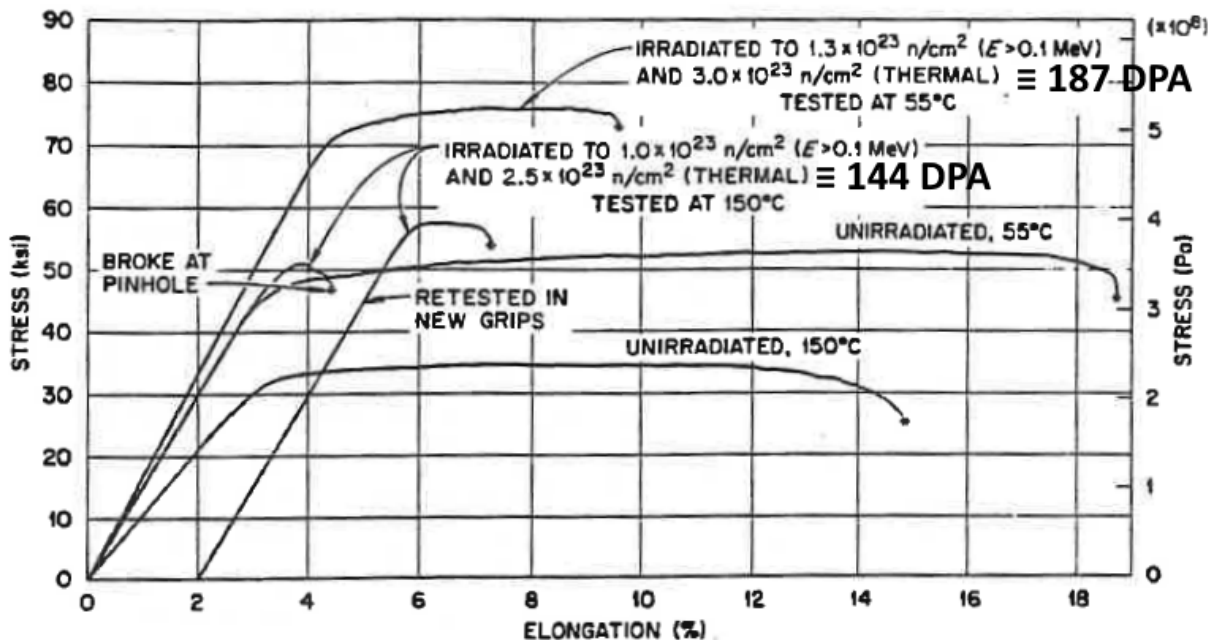


Figure 30 : Comportement en traction de l'alliage 6061-T6 en fonction de l'état (irradié/neuf) et de la température [54]

Les études de Farrell et al. ont porté sur l'influence des différents spectres neutroniques (rapides et thermiques) et de l'état métallurgique sur les propriétés mécaniques des alliages 6000. La Figure 31.a

présente l'évolution des contraintes (limite élastique et charge à rupture) et des allongements uniforme et à rupture en fonction de la dose de neutrons rapides pour un rapport R constant de 1.66 dans un 6061-T6. On y observe tout d'abord un effet de palier concernant la chute des allongements aux alentours de $1.10^{26} \text{ n.m}^{-2}$. D'autre part, à partir d'environ $1.10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ un important durcissement du matériau qui, à des niveaux d'irradiation plus faibles demeurait très limité commence à être observé.

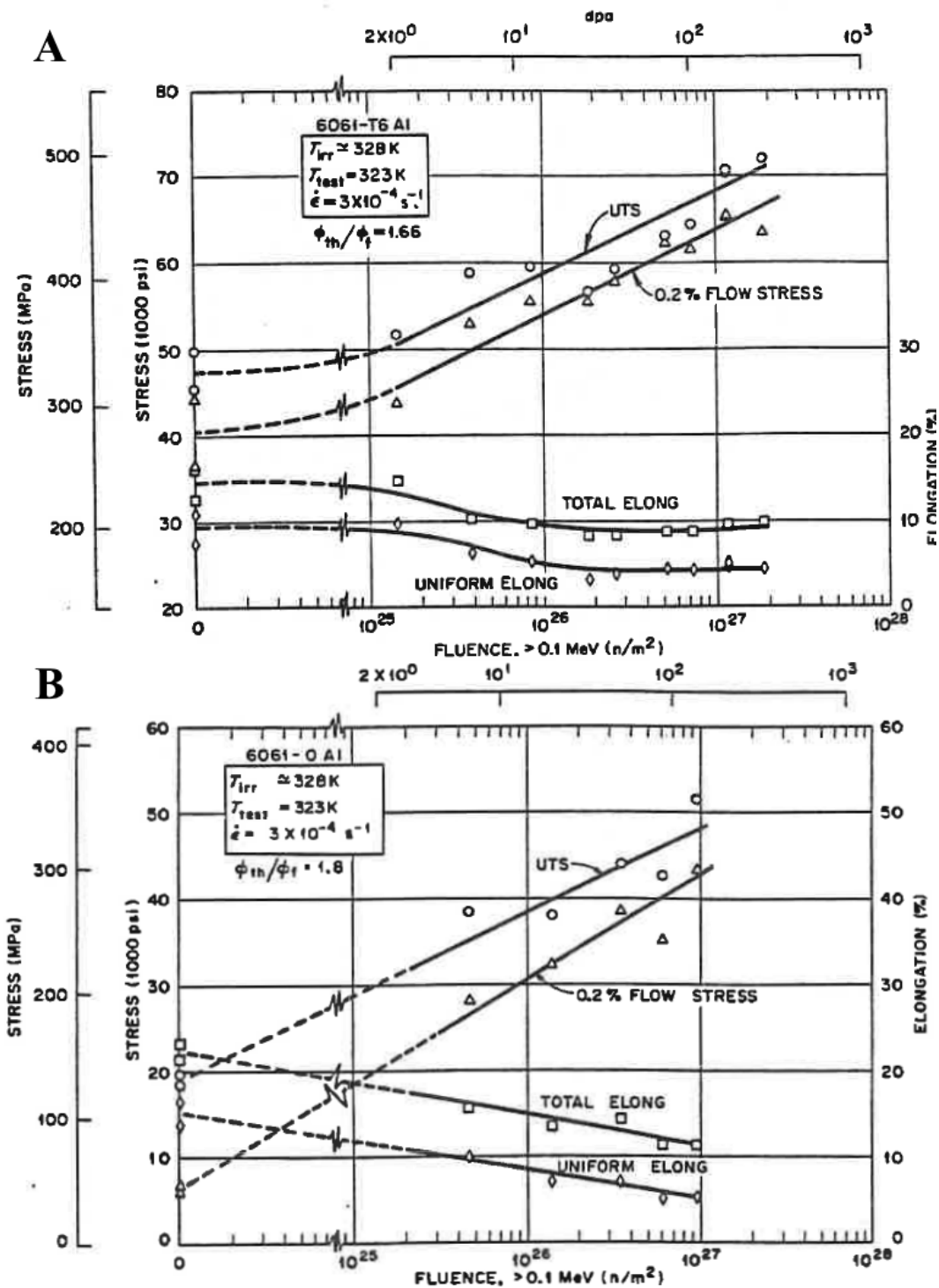


Figure 31: Propriétés mécaniques d'un alliage 6061 irradié en réacteur, traction effectuée à 50°C : influence de la dose rapide pour un rapport R constant : (a) : Etat revenu T6, (b) Etat recuit O [48]

La Figure 31.b présente les mêmes expériences sur un 6061-O (non revenu). Une absence totale de plateau et la dégradation linéaire des propriétés mécaniques est ici observée.

Ces expériences montrent l'importance de la nanopréciipitation quant à la préservation des propriétés mécaniques sous irradiation. De son côté, Weeks [66] met en évidence l'effet prépondérant du spectre thermique : plus R est élevé, plus la dégradation des propriétés mécaniques en traction sera rapide sous flux neutronique.

3.2 Irradiations aux ions

Les études sur les effets des irradiations ioniques sur les propriétés mécaniques sont peu nombreuses. Ce constat peut s'expliquer par le fait que l'irradiation ionique par nature n'impacte qu'un très petit volume de matière, contrairement aux irradiations neutroniques qui impactent généralement la pièce dans sa globalité. Ainsi, des essais de types traction, ténacité nécessitent des adaptations micromécaniques. Ainsi, la majorité des études d'irradiations ioniques sur les alliages de série 6000, et les métaux plus généralement, se concentrent généralement sur des analyses de microdureté voire de nanodureté [59].

Les résultats de Flament [64] par des essais de nanodureté le long d'un profil irradié aux ions W^{3+} montrent une élévation de la dureté en surface liée aux défauts d'irradiation mais aussi à la précipitation nouvelle explicitée précédemment (Figure 32).

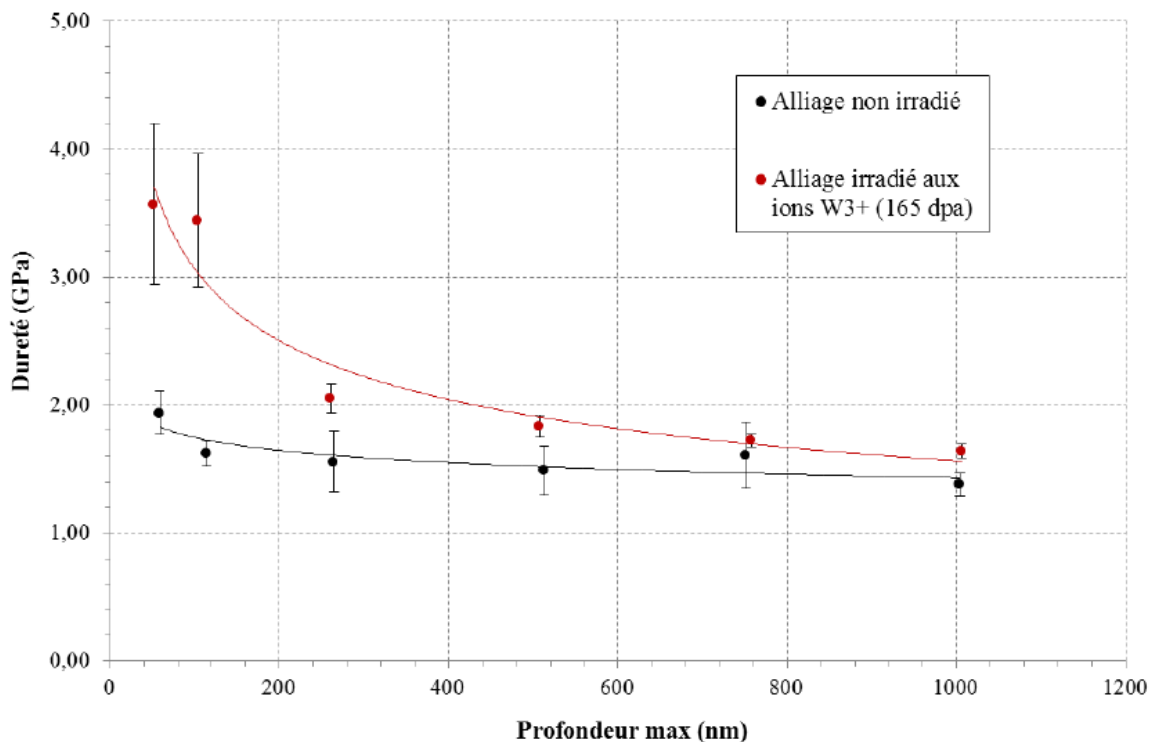


Figure 32 : Profil de dureté en fonction de la profondeur : comparaison entre état neuf et irradié aux ions sur un alliage 6061-T6 [64]

4. Gonflement des alliages de série 6000

Le gonflement des matériaux métalliques sous irradiation est un phénomène complexe résultant de plusieurs facteurs encore mal compris à ce jour. Cet effet est observable tant sur les propriétés mécaniques des pièces que dans leur microstructure même. Aussi, sa compréhension étant l'objectif principal de cette thèse, il convient de le traiter comme phénomène à part entière bien qu'il puisse, strictement parlant, être traité comme un défaut d'irradiation.

Dans les alliages de la série 6000, le gonflement sous flux neutronique peut être séparé en deux contributions distinctes liées aux deux composantes du spectre neutronique. Ainsi, il peut être distingué le gonflement lié à la transmutation $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{28}\text{Si}$ issue du flux neutronique thermalisé, du gonflement par cavités et par transmutation produisant hélium et hydrogène obtenu sous flux rapide [52,67,68].

4.1 Gonflement par le Silicium

Comme explicité dans la section 1 de cette partie, la réaction $^{27}\text{Al} (n,\gamma) \rightarrow ^{28}\text{Al} \rightarrow ^{28}\text{Si} + \beta$ induite par les neutrons thermiques produit du silicium dans le matériau. Le silicium étant très faiblement soluble dans l'aluminium aux températures de fonctionnement des réacteurs de recherche (environ 60°C), il va par conséquent précipiter. L'aluminium et le silicium précipitent tous deux dans le système CFC. Cependant, l'aluminium présente une densité plus forte que le silicium : 2,70 pour l'aluminium contre 2,33 pour le silicium. Par conséquent, la précipitation du silicium obtenu par transmutation sous irradiation va induire un gonflement du matériau dans les alliages de la série 6000. [69,70] On notera cependant que dans les alliages de la série 5000, la forte présence de magnésium en solution solide amène à la précipitation de composés Mg-Al (par vieillissement thermique) et Mg-Si (sous flux de neutrons thermiques) qui induit une densification du réseau cristallin par appauvrissement de la matrice en Mg, diminuant l'effet de gonflement sur cette série d'alliages. Le gonflement total d'aluminium pur et d'alliages des séries 1000, 5000 et 6000 a été mesuré empiriquement par Farrell en 1995 [52]. La Figure 33 représente le gonflement de plusieurs alliages d'aluminium en fonction de la fluence rapide, la courbe en pointillés représentant la contribution calculée du silicium au gonflement (dans le spectre du réacteur HFIR) qui semble linéaire avec la dose. Il est ici observé que si les alliages faiblement alliés présentent un gonflement majoritairement induit par la production de cavités, les alliages de série 6000 montrent un gonflement plus mixte entre cavités et silicium. Farrell explique cet effet par l'importante précipitation dans cette série d'alliages qui reporterait la formation de cavités à des doses plus élevées que dans les aluminiums purs ou les alliages de série 1000.

Dans un rapport interne CEA [67], B.Kapusta propose un autre calcul physique pour déterminer le gonflement induit par le silicium en tenant compte de la dose de neutrons thermiques contrairement à la représentation de Farrell tenant compte du rapport F_{th}/F_r , cette représentation étant plus physique compte tenu de l'origine du gonflement lié au silicium. Moyennant un développement limité, il est montré que :

$$G_{Si} = 4.2714.10^{-4}.F_{thconv}$$

qui s'écrit aussi :

$$G_{Si} = 4.2714 \cdot 10^{-2} \cdot F_{thconv} \%$$

Avec F_{thconv} la fluence thermique conventionnelle exprimée en $10^{22} \text{ n.cm}^{-2}$. Un comparatif des estimations de Kapusta et Farrell est donné en Figure 34. La conversion de flux thermique/thermique conventionnel des données de Farrell a été opérée en prenant une fourchette haute et basse. Les deux modèles suivent une loi linéaire similaire. [52,67]

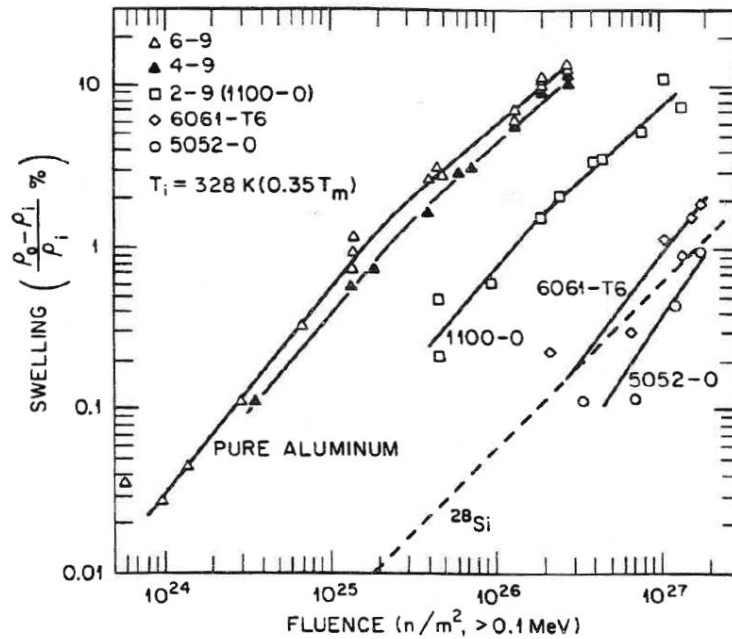


Figure 33: Gonflement de différents alliages d'aluminium en fonction de la dose rapide [52]

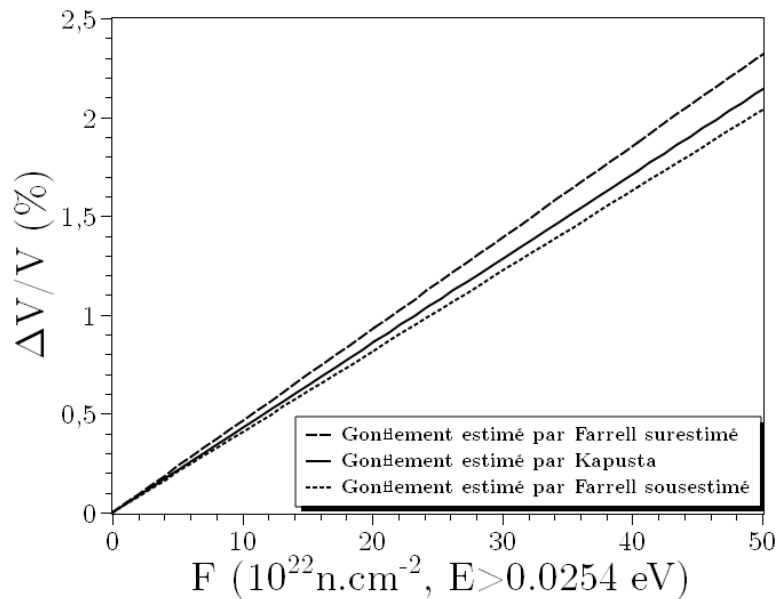


Figure 34: Comparaison des modèles de gonflement par la contribution du silicium proposés par Farrell et Kapusta [67]

4.2 Gonflement par cavités

Le gonflement par cavités des alliages d'aluminium et plus particulièrement des séries 6000 est un phénomène extrêmement complexe et encore mal compris. En effet, comme expliqué précédemment, il semble intimement influencé par la microstructure initiale du matériau. D'autre part, contrairement au gonflement induit par le silicium qui est homogène dans le matériau, la germination de cavités a lieu dans des sites préférentiels, généralement induits par accumulation de lacunes et elle présente une forte dépendance de la température. La multiplicité des paramètres d'étude et la capacité à former des cavités par faisceau a conduit, comme dans les parties précédentes, tant à des études sur matériau irradié aux neutrons, qu'à la formation de cavités par irradiation ionique, permettant d'atteindre de fortes valeurs de dpa. [50,53,60,61,71,72]

La formation des cavités sous faisceaux d'ions a été observée par Flament [64]. Une formation importante de cavités est observée aux alentours des dispersoïdes, notamment dans la zone de dissolution de ces derniers. Ainsi, il est avancé que la dissolution et l'accumulation de lacunes dans cette zone favorisent grandement la croissance des cavités. Corroborées aux observations de Farrell présentées dans la section précédente et plus particulièrement Figure 33, on observe ici un comportement antagoniste de la précipitation vis-à-vis du gonflement par cavités : si la précipitation nanométrique durcissante semble avoir tendance à grandement diminuer l'effet du gonflement par cavités, la précipitation submicronique, de par sa dissolution partielle, devient un site préférentiel de germination des cavités. Plus généralement, les effets de microstructures ont commencé à être évoqués par Farrell en 1971 [53,56]. Dans cette étude, des cavités sont observées dans un alliage 1100 ($\text{Al} \geq 99\%$, $\text{Fe} + \text{Si} \leq 0,95\%$, $0,05\% \leq \text{Cu} \leq 0,20\%$, $\text{Mn} \leq 0,05\%$, $\text{Zn} \leq 0,1\%$) et se présentent en association avec des phases submicroniques (Figure 36). De même, comme présenté Figure 35, l'effet de l'hélium commence à être théorisé : il est observé qu'une pré-injection d'hélium dans la matrice avant irradiation a tendance à densifier le réseau de cavités au prix d'une diminution du rayon moyen.

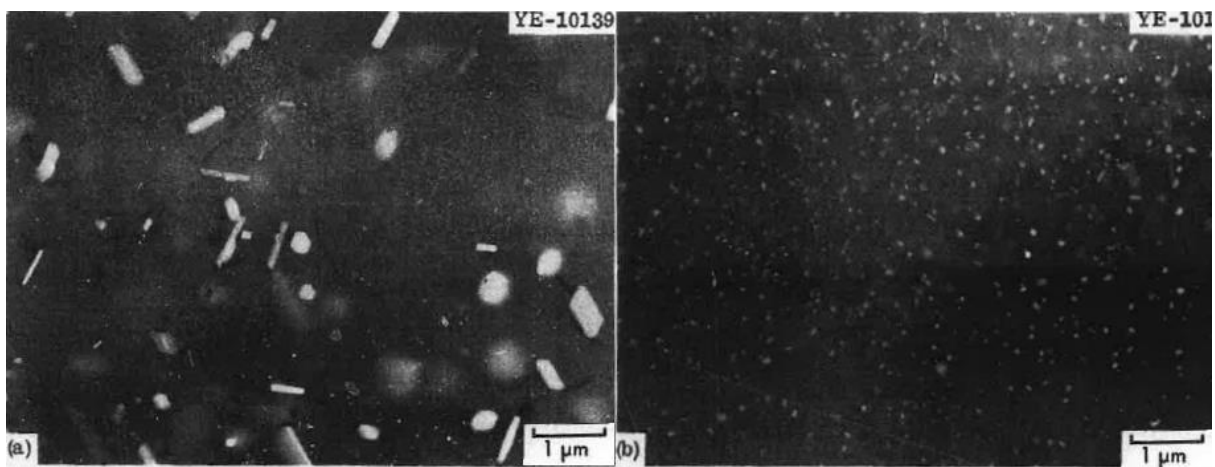


Figure 35 : Microstructure d'un aluminium 1100 après irradiation aux neutrons à 1.15 DPA (dose calculée selon la relation présentée en début de partie) : (a) sans adjonction d'hélium, (b) avec adjonction d'hélium [53]

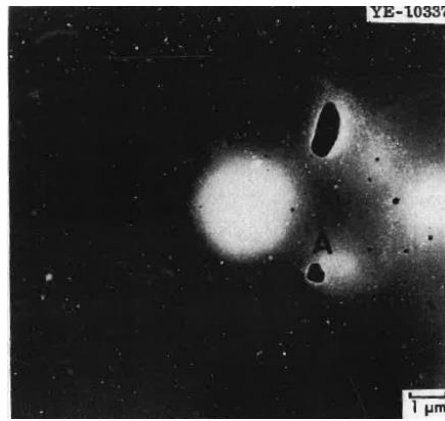


Figure 36 : Cavités (en blanc) dans un alliage d'aluminium 1100 à proximité de dispersoïdes (en noir). (Neutrons, 23 DPA) [50]

Un autre paramètre d'intérêt étudié dans la littérature sur le gonflement par cavités est la température. En effet, il est observé que le gonflement varie selon une courbe en cloche avec la température pour un matériau donné [73]. Ainsi, il existe deux température limites T_m et T_f , respectivement les températures de début et de fin de régime. Pour une température T en dehors de l'intervalle $[T_m ; T_f]$, aucun gonflement par cavités ne sera observé. Cet effet peut être expliqué physiquement : en dessous de la limite basse T_m , la mobilité des lacunes est trop faible pour qu'elles puissent s'agglomérer et former des cavités. D'autre part, au-delà de la limite supérieure T_f , la mobilité est telle que la recombinaison de paires lacunes interstitielles sera toujours effective [74]. Lors d'irradiations aux ions Al^+ d'aluminium pur et d'alliages modèles Al-Mg-Si à différents niveaux de dommages (de 0,8 à 80 dpa) obtenus en faisant varier le flux ionique, Jahnke [73] obtient ainsi les différentes courbes de gonflement en fonction de la température.

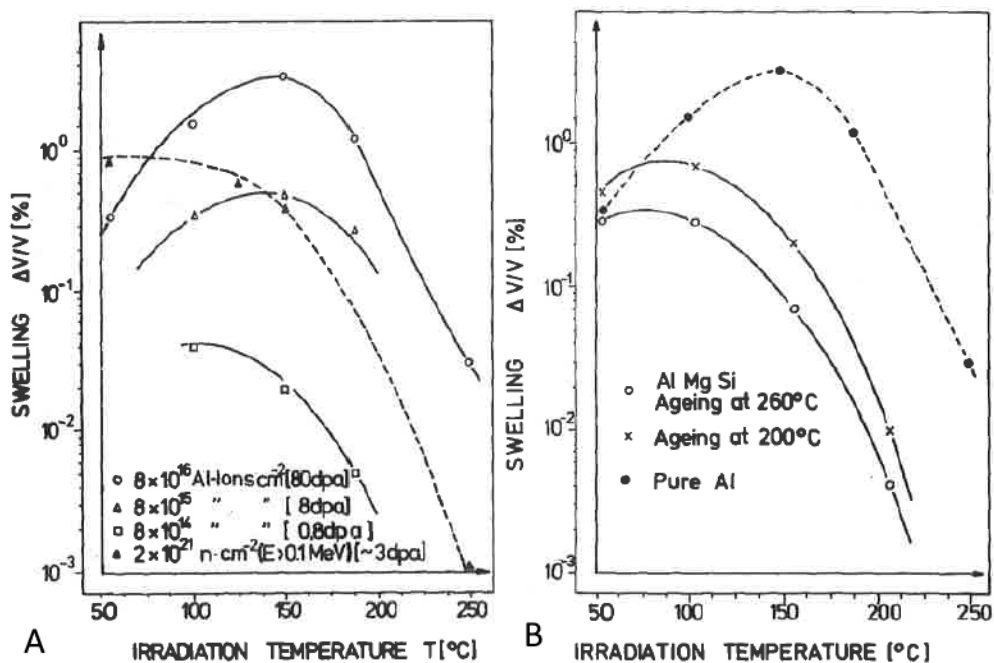


Figure 37 : Evolution du gonflement avec la température : (A) : Effet de la source irradiante et du flux sur Al pur, (B) : Effet de la microstructure sur Al-Mg-Si et comparaison avec Al pur (irradiation ionique) [73]

Présentées Figure 37, ces courbes montrent plusieurs effets inattendus. Premièrement, la Figure 37.A montre pour l'aluminium pur une augmentation importante du gonflement avec la dose (et donc le flux) sur les irradiations ioniques, ainsi qu'un décalage du pic de gonflement vers les hautes températures aux forts flux. Cet effet de flux est accentué avec l'irradiation neutronique (flux de dégâts environ 1000 fois plus faible) où la courbe de gonflement en fonction de la température est totalement modifiée : pic de gonflement décalé vers les basses températures et gonflement plus important qu'avec les irradiations aux ions à dommage équivalent. D'autre part, Jahnke montre également le lien entre microstructure des alliages Al-Mg-Si et gonflement : aucune cavité n'a été observée sur l'alliage après traitement d'homogénéisation, ce qui peut s'expliquer par le piégeage des lacunes sur les atomes de silicium en solution. Et un traitement de durcissement structural conduisant à des précipités cohérents résulte aussi en l'absence de cavités dans la gamme de températures $0,35 T_s \leq T \leq 0,44 T_s$ (où T_s = température du solidus) correspondant habituellement au gonflement maximal. Cette absence de cavités est expliquée par le piégeage des lacunes sur les interfaces cohérentes des précipités Mg_2Si car ils sont entourés d'une zone en compression de la matrice, du fait de leur volume plus important. Par contre, les traitements thermiques qui conduisent à la formation de précipités incohérents ou partiellement cohérents induisent un gonflement sous irradiation.

La Figure 37.B présente les courbes gonflement-température de deux alliages modèles de la série 6000 en fonction de la température de revenu (*i.e* la densité de précipités nanométriques) : l'alliage fortement sur-revenu gonfle moins que celui légèrement sur-revenu, ce qui pourrait résulter d'une remise en solution partielle du silicium issu des précipités Mg_2Si qui se dissolvent sous irradiation à 260°C. Une comparaison des microstructures de l'alliage sur-revenu observées au MET après irradiation à 80 dpa à 100 et 150°C montre qu'à 100°C où le gonflement est maximal, de nombreuses petites cavités (taille moyenne 103 Å) sont réparties dans le grain, tandis qu'à 150°C elles sont plus grosses (taille moyenne 232 Å), moins nombreuses et localisées uniquement dans les joints de grains.

En outre, la courbe pour un aluminium pur est donnée à titre indicatif sur la Figure 37.B : le pic de gonflement est décalé vers les hautes températures, et le gonflement est beaucoup plus important que sur l'alliage ; cette nette différence avec les alliages de la série 6000 a aussi été observée par Farrell [56] sur des matériaux irradiés en réacteur et plus généralement par Kmetyk [75] dans les métaux. Une particularité à noter est celle de Singh et al. [60] qui, par des irradiations d'un alliage Al-Mg-Si de haute pureté aux protons de 600 MeV à 150°C et 0,47 dpa observent un emplacement préférentiel des cavités aux joints de grains, et à 240°C et 0,55 dpa non seulement dans les joints de grains mais aussi dans les grains avec une zone dénudée de cavités entre les deux.

Ces observations sont confirmées par les études de Jahnke [73] qui observent également une population de cavités aux joints de grains à 150°C dans des conditions d'irradiation différents (ions Al^{1+} à 100 keV).

Ces cavités intragranulaires sont attribuées à la dissolution d'un grand nombre de précipités durant l'irradiation à 240°C. En effet des irradiations protons à 800 MeV à basse température (de 40 °C à 100°C) ont montré qu'à 0,1 DPA les précipités nanométriques sont complètement dissous.

King [76] lors d'irradiations aux neutrons à 60°C à une dose rapide ($E > 0,821$ MeV) de 10^{22} n/cm² d'un alliage Al-Ni1% étiré à froid montre également un réseau très dense de cavités à des concentrations de l'ordre de 10^{15} /cm³. Après une heure de recuit, ces cavités persistent jusqu'à 175°C, mais ne sont plus observables au MET à 220°C. Tandis que des recuits de plus longue durée à 150°C mettent en évidence une réduction de la taille des cavités. King et al (1973) observe la formation de cavités dans un alliage de série 6000 à une dose neutronique équivalent à 133 DPA en flux rapide [77]. Une formation importante de cavités a été observée. La comparaison avec l'état métallurgique avant irradiation a mis en évidence que les cavités dans la matrice s'étaient formées uniquement dans les zones dénudées de nanoprecipités.

Dans l'alliage 6061-T6 irradié aux neutrons à environ 60°C jusqu'à une dose rapide ($E > 0,1$ MeV) de $9,2 \cdot 10^{22}$ n/cm², une forte concentration de cavités est observée au voisinage des joints de grains et près des gros précipités Mg₂Si et des intermétalliques. Une comparaison des microstructures avant et après irradiation, montre que les cavités se localisent dans les zones initialement dénudées de précipités nanométriques. De plus, les premières cavités sont observées à partir d'une dose rapide de $2,8 \cdot 10^{22}$ n/cm², et elles sont localisées uniquement près des gros précipités. Ainsi, le Tableau 16 présente un résumé non exhaustif de ces phénomènes.

	Irradiation ionique	Irradiation neutronique
Température	Seuils limites différents	Seuils limites différents
Effet de l'hélium	?	Diminution de la taille des cavités et augmentation de la densité
Dispersoïdes	Localisation préférentielle des cavités près des dispersoïdes	A dose réduite, localisation préférentielle des cavités près des dispersoïdes et gros Mg ₂ Si
Phases nanométriques	Dissolution partielle et précipitation de nouvelles phases Dissolution totale à forte énergie d'ions	Stabilité de ces phases sauf en cas de fort flux thermalisé Absence de cavités dans les zones riches en phases nanométriques
Revenu (densité de phases nanométriques)	Modification des limites en température	Valeurs de gonflement modifiées
Joint de grain	A forte énergie et haute température, localisation des cavités au niveau du joint de grain et dans le grain. Zone de déplétion intermédiaire	A forte dose, localisation des cavités près des joints de grains et des dispersoïdes

Tableau 16 : Résumé des observations présentées dans cette partie [52–57,62–65,76]

Cet inventaire bibliographique a montré une grande diversité dans les formes de gonflement et l'impact de la microstructure et des conditions d'irradiation sur celui-ci. Si de nombreuses observations et liens entre les conditions expérimentales et l'apparition de ces phénomènes ont partiellement été mis en évidence, aucune étude paramétrique ni de mises en évidences des mécanismes de gonflement par cavités dans les alliages d'aluminium n'ont été entreprises. Ce constat constitue une des motivations principales de la thèse, s'ajoutant au besoin d'une meilleure connaissance des effets de trempe.

Conclusions

La recherche sur les alliages d'aluminium et leur tenue à l'irradiation constitue un axe majeur de la conception des réacteurs expérimentaux. A ce titre, l'alliage 6061-T6 sera étudié dans cette thèse.

La caractérisation microstructurale des alliages de série 6000 avant irradiation semble exhaustive et met au jour de nombreux effets à différentes échelles de précipitation. Néanmoins, certains manques sur les interactions entre les traitements thermiques et la précipitation sont à noter. Si les effets du revenu sont globalement bien compris, des travaux supplémentaires sur l'impact de la vitesse de trempe, notamment dans les pièces épaisses, doivent être entrepris.

Les effets d'irradiations sur la microstructure et les propriétés mécaniques, bien qu'ils ne soient pas toujours compris, sont globalement inventoriés et observés. Concernant le gonflement plus spécifiquement, les effets des cavités, leur lieu de croissance et la modélisation de ces dernières restent mal connues. Ce manque de données s'explique par les difficultés de mise en ces études (réalisation des irradiations, défauts à échelle très fine et difficile à imager correctement en microscopie en transmission).

De plus, les différentes études présentées ici concluent toutes à un effet important de la microstructure initiale sur le gonflement par cavités mais aussi à une interaction importante entre ce gonflement et les éléments produits par transmutation durant l'irradiation neutronique.

Ainsi, l'étude présentée dans cette thèse portera tant sur la compréhension de l'effet de la vitesse de trempe sur la précipitation avant irradiation que sur l'impact de la microstructure produite sur le gonflement après irradiation. Pour ce faire, un plan expérimental en trois parties est proposé :

1. **Etude préliminaire du matériau hors irradiation** : Une étude hors irradiation des phénomènes de trempe et des modifications induites sur la microstructure. Pour ce faire, un matériau de référence, décrit plus tard, a été remis en solution puis trempé de différentes manières et enfin revenu. Ces différents états métallurgiques, ont ensuite été analysés tant microstructuralement que mécaniquement puis sélectionnés en fonction de leurs différences et intérêt.
2. **Etude des effets d'irradiation aux ions** : Des irradiations ioniques présentant différents niveaux d'endommagement ont été effectuées. Le choix s'est porté sur des irradiations simple faisceau pour obtenir de lourds dommages balistiques, triple faisceau pour simuler des effets de précipitation observés en réacteur et différentiel pour comprendre les effets de flux. *A posteriori*, des analyses microstructurales de ces échantillons ont été entreprises afin de comprendre les effets d'irradiation et de formation de cavités sur les différentes microstructures cataloguées et établies précédemment. En outre, une quantification des cavités selon chaque état a été établie et une observation qualitative des lieux de nucléation a été entreprise.

3. **Analyse des données obtenues et modélisation du comportement** : Des données bibliographiques numériques sur le gonflement des alliages d'aluminium ont été compilées. Elles sont constituées tant des valeurs que des observations qualitatives. Une comparaison avec les données obtenues dans le cadres de cette thèse sous irradiation ionique est établie. D'autre part, différents modèles sont analysés pour caractériser le gonflement par cavités. Ils ne sont pas propres aux alliages d'aluminium et ne demandent pas tous le même niveau de connaissance du matériau pour évaluer ce gonflement. Un modèle est alors établi pour correspondre aux valeurs observées tant dans la littérature que nos observations. En outre, le modèle a été modifié pour faire prendre en compte des effets d'incubation observés mais jamais intégrés ainsi que des effets d'épaisseur observés lors des irradiations ioniques.

Le prochain chapitre décrira les matériaux et moyens de l'étude utilisés à ces fins tandis que les chapitres suivants décriront successivement les résultats obtenus pour chaque axe d'étude.

Bibliographie

- [1] Davis J. R., Committee A. I. H. *Metals Handbook Desk Edition 2nd Edition*. Taylor & Francis, 1998. (75th anniversary ASM handbooks). ISBN : 978-0-87170-654-6.
- [2] Totten G. E., MacKenzie D. S. *Handbook of Aluminum: Vol. 1: Physical Metallurgy and Processes*. CRC Press, 2003. 1314 p. ISBN : 978-0-203-91259-1.
- [3] Stucky M. « Traitements thermiques des alliages d'aluminium Matériels et recommandations ». *Tech. Ing. Trait. Therm. Aciers Alliages Fontes*. 2016. Vol. base documentaire : TIB364DUO., n°ref. article : m1290,.
- [4] « L'aluminium ». *Tech. Ing. Tech. Bâtim. Connaître Matér. Constr.* 2016. Vol. base documentaire : TIE804DUO., n°ref. article : tba1066,.
- [5] Dubost B., Sainfort P. « Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium ». *Tech. Ing. Méthodes Caractér. Anal. Métaux Alliages*. 2016. Vol. base documentaire : TIB532DUO., n°ref. article : m240,.
- [6] Davis J. R. *Aluminum and Aluminum Alloys*. ASM International, 1993. 796 p. ISBN : 978-0-87170-496-2.
- [7] Ecole Polytechnique de Lausanne. « Ecroutissage de Recristallisation ».
- [8] Fink & Willey. « Quenching of 75S Aluminum Alloy ». *Trans AIME*. 1947. Vol. 175, p. 414-427.
- [9] Strobel K. et al. « Relating Quench Sensitivity to Microstructure in 6000 Series Aluminium Alloys ». *Mater. Trans. JIM*. 2011. Vol. 52, n°5, p. 914-919.
- [10] Cavazos J. L., Colás R. « Quench sensitivity of a heat treatable aluminum alloy ». *Mater. Sci. Eng. A*. 2003. Vol. 363, n°1-2, p. 171-178.
- [11] Cavazos J. L., Colás R. « Precipitation in a heat-treatable aluminum alloy cooled at different rates ». *Mater. Charact.* 2001. Vol. 47, n°3-4, p. 175-179.
- [12] Hirsch J. « Aluminium Alloys for Automotive Application ». In : *Mater. Sci. Forum*. 1997.
- [13] Christian Vargel. « Le Comportement de l'aluminium et de ses alliages ». Dunod, 1979.
- [14] Gorges-Lorenzon A.-F. « Durcissement par précipitation : Mécanismes Généraux ». 2002.
- [15] K.C. Hari Kumar. « Al-Mg-Si (Aluminium - Magnesium - Silicon) ». In : *Light Met. Syst. Part 3*.
- [16] Schumacher P. et al. « Quench-induced precipitates in Al-Si alloys: Calorimetric determination of solute content and characterisation of microstructure ». *Thermochim. Acta*. 20 février 2015. Vol. 602, p. 63-73.
- [17] Saito T. et al. « The effects of quench rate and pre-deformation on precipitation hardening in Al-Mg-Si alloys with different Cu amounts ». *Mater. Sci. Eng. A*. 15 juillet 2014. Vol. 609, p. 72-79.
- [18] Farshidi M. H., Kazeminezhad M., Miyamoto H. « On the natural aging behavior of Aluminum 6061 alloy after severe plastic deformation ». *Mater. Sci. Eng. A*. 15 septembre 2013. Vol. 580, p. 202-208.

- [19] Maissonette D. et al. « Effects of heat treatments on the microstructure and mechanical properties of a 6061 aluminium alloy ». *Mater. Sci. Eng. A*. 2011. Vol. 528, n°6, p. 2718-2724.
- [20] Wang N., Zhou Z., Lu G. « Microstructural Evolution of 6061 Alloy during Isothermal Heat Treatment ». *J. Mater. Sci. Technol.* 2011. Vol. 27, n°1, p. 8-14.
- [21] Hasting H. S. et al. « Composition of β'' precipitates in Al–Mg–Si alloys by atom probe tomography and first principles calculations ». *J. Appl. Phys.* 15 décembre 2009. Vol. 106, n°12, p. 123527.
- [22] Ryum et al. « Precipitation Reactions in an Aluminium 1wt.% Mg₂Si Alloy ». *Z. Met.* 1979. Vol. 70, n°8, p. 528-535.
- [23] Buha J. et al. « Secondary precipitation in an Al–Mg–Si–Cu alloy ». *Acta Mater.* 1 mai 2007. Vol. 55, n°9, p. 3015-3024.
- [24] Jaafar A. et al. « Effect of Mg, Si and Cu content on the microstructure of dilute 6000 series aluminium alloys ». *J. Alloys Compd.* 2011. Vol. 509, n°35, p. 8632-8640.
- [25] Murayama et al. « Pre-precipitates clusters and precipitation processes in Al-Mg-Si alloys ». *Acta Metall.* 1999. Vol. 47, n°5, p. 1537-1548.
- [26] Matsuda K. et al. « Cube-phase in excess Mg-type Al-Mg-Si alloy studied by EFTEM ». *J. Mater. Sci.* 2006. Vol. 41, n°9, p. 2605–2610.
- [27] Chakrabarti et al. « Precipitation in Al-Mg-Si alloys with Cu additions and the Role of the Q' and Related Phases ». *Mater. Sci. Forum.* 2002. Vol. 396-402, p. 857-862.
- [28] Marioara C. D. et al. « The effect of Cu on precipitation in Al–Mg–Si alloys ». *Philos. Mag.* 2007. Vol. 87, n°23, p. 3385-3413.
- [29] Cayron C., Buffat P. A. « Transmission electron microscopy study of the β' phase (Al–Mg–Si alloys) and QC phase (Al–Cu–Mg–Si alloys): ordering mechanism and crystallographic structure ». *Acta Mater.* 14 juin 2000. Vol. 48, n°10, p. 2639-2653.
- [30] Marioara C. D. et al. « Improving Thermal Stability in Cu-Containing Al-Mg-Si Alloys by Precipitate Optimization ». *Metall. Mater. Trans. A*. juin 2014. Vol. 45, n°7, p. 2938–2949.
- [31] Lodgaard L., Ryum N. « Precipitation of dispersoids containing Mn and/or Cr in Al–Mg–Si alloys ». *Mater. Sci. Eng. A*. 2000. Vol. 283, n°1–2, p. 144-152.
- [32] Claves S. R., Elias D. L., Misiolek W. Z. *Analysis of the Intermetallic Phase Transformation Occurring during Homogenization of 6xxx Aluminum Alloys*. Zuerich-Uetikon, Switzerland : Trans Tech Publications, 2002.
- [33] Buchanan K. et al. « Identification of monoclinic θ -phase dispersoids in a 6061 aluminium alloy ». *Philos. Mag. Lett.* 2016. Vol. 0, n°0, p. 1-11.
- [34] Barbosa C. « Identification of precipitates in 6013 aluminium alloy (Al-Mg-Si-Cu) ». *Z. Met.* 2002. Vol. 93, n°3, p. 208-211.
- [35] Vargel C. « Métallurgie de l'aluminium ». *Tech. Ing.* 2010. p. 27.
- [36] Taylor J. « The effect of iron in Al-Si casting alloys ». *35th Aust. Foundry Inst. Natl. Conf.* 2004. p. 148-157.

- [37] Mrówka-Nowotnik G., Sieniawski J. « Influence of heat treatment on the microstructure and mechanical properties of 6005 and 6082 aluminium alloys ». *J. Mater. Process. Technol.* 15 mai 2005. Vol. 162–163, p. 367-372.
- [38] Sha G., O'Reilly K., Cantor B. « Characterization of Fe-Rich Intermetallic Phases in a 6xxx Series Al Alloy ». *Mater. Sci. Forum.* 2006. Vol. 519-521, p. 1721-1726.
- [39] Lemaignan C. « Nuclear Materials and Irradiation Effects ». *Handb. Nucl. Eng.* 2010. p. 543-642.
- [40] Kinchin G. H., Pease R. S. « The Displacement of Atoms in Solids by Radiation ». *Rep. Prog. Phys.* 1955. Vol. 18, n°1, p. 1.
- [41] Norgett M. J., Robinson M. T., Torrens I. M. « A proposed method of calculating displacement dose rates ». *Nucl. Eng. Des.* 1 août 1975. Vol. 33, n°1, p. 50-54.
- [42] « (9) (PDF) Multiscale modelling of irradiation in nanostructures ». In : *ResearchGate*.
- [43] Nordlund K. « Primary Radiation Damage in Materials ». *Nucl. Sci.* 2015. p. 87.
- [44] Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. « SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010) ». *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* juin 2010. Vol. 268, p. 1818-1823.
- [45] Vijayalakshmi M. « Materials Response Under Irradiation ». In : *Mater. Extreme Cond.* Elsevier, 2017. p. 615-650. ISBN : 978-0-12-801300-7.
- [46] Curie I., Joliot F. « I. Production artificielle d'éléments radioactifs - II. Preuve chimique de la transmutation des éléments ». *J. Phys. Radium.* 1934. Vol. 5, n°4, p. 153-156.
- [47] Farrell K. « Transmutation-produced silicon precipitates in irradiated aluminum ». *Metallography.* 1970. Vol. 1970, n°3, p. 275-284.
- [48] Farrell K., King R. T. « Tensile Properties of Neutron-Irradiated 6061 Aluminum Alloy in Annealed and Precipitation-Hardened Conditions ». *Eff. Radiat. Struct. Mater.* janvier 1979.
- [49] Alexander D. J. « The effect of irradiation on the mechanical properties of 6061-T651 Aluminum ». In : *16th ASTM.* Philadelphia : 1993.
- [50] Jostsons A. « Annealing of voids in aluminum ». In : *Radiat. Induc. Voids Met. Congr. Proceeding.* 1971.
- [51] Jostsons A., King R. T. « Transmutation produced Mg₂Si precipitation in an irradiated Al-2.5% Mg alloy ». *Scr. Metall.* 1972. Vol. 6, p. 447-452.
- [52] Farrell K. *Assessment of aluminum structural materials for service within the ANS reflector vessel.* Rapport, ORNL/TM-13049, Oak Ridge National Lab., 1995.
- [53] Farrell K. *Effects of structural imperfections on voids in aluminium – Microstructure impurity effects on void formation characteristics in neutron irradiated aluminium.* Rapport, ORNL-TM-3493, Oak Ridge National Lab., 1971.
- [54] Farrell K. *Response of aluminum and its alloys to exposure in the high flux isotope reactor.* Rapport, CONF-830418--3, Oak Ridge National Lab., 1983.
- [55] Farrell K., Stiegler J. O., Gehlbach R. E. « Transmuted produced silicon precipitates in Irradiated Aluminium ». *Metallography.* 1970. Vol. 3, p. 275-284.

- [56] Farrell K., Wolfenden A., King R. T. « The effects of irradiation temperature and preinjected gases on voids in aluminium ». *Irradiat. Eff.* 1971. Vol. 8, p. 107-114.
- [57] K. Farrell, R.T. King et A. Jostsons. *Examination of the irradiated 6061 aluminium HFIR target holder*. Rapport, ORNL-TM-4139, Oak Ridge National Lab., 1973.
- [58] Weeks J. R., Czajkowski C. J., Farrell K. *Effects of high thermal neutron fluence on type 6061 aluminum*. Rapport, BNL-46330; CONF-9206282-1, Brookhaven National Lab., 1993.
- [59] Ueyama D. et al. « Hardness modification of Al–Mg–Si alloy by using energetic ion beam irradiation ». *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* 2015. Vol. 351, p. 1-5.
- [60] Singh B. N. et al. « Effects of 600 MeV proton irradiation on nucleation and growth of precipitates and helium bubbles in a high-purity Al-Mg-Si alloy ». *J. Nucl. Mater.* 1 novembre 1986. Vol. 141, p. 743-747.
- [61] Victoria M. et al. « Nucleation and growth of precipitates and helium bubbles in a high-purity AlMgSi alloy irradiated with 600 MeV protons ». *J. Nucl. Mater.* 1988. Vol. 155–157, Part 2, p. 1075-1078.
- [62] Flament C. et al. « Electron irradiation-enhanced core/shell organization of Al(Cr, Fe, Mn)Si dispersoids in Al–Mg–Si alloys ». *Philos. Mag.* 2015. Vol. 95, n°8, p. 906-917.
- [63] Flament C. et al. « Stability of β'' nano-phases in Al-Mg-Si(-Cu) alloy under high dose ion irradiation ». *Acta Mater.* 2017. Vol. 128, p. 64-76.
- [64] Camille Flament. *Etude des évolutions microstructurales sous irradiation de l'alliage 6061-T6*. Thèse de Doctorat. Grenoble : Université Grenoble-Alpes, 2015.
- [65] Ribis J. et al. « Radiation-induced cavities in aluminium alloy imaged by in line electron holography ». *Philos. Mag.* 2016. Vol. 96, n°24, p. 2504-2517.
- [66] Weeks J., Czajkowski C., Tichler P. « Effects of High Thermal and High Fast Fluences on the Mechanical Properties of Type 6061 Aluminum on the HFBR ». *Eff. Radiat. Mater. 14th Int. Symp. Vol. II.* janvier 1990.
- [67] Bénédicte Kapusta. *Estimation du gonflement du 6061-T6*. Rapport, SEMI/LCMI/NE/2008/003/A, CEA-Saclay, 2008.
- [68] Bénédicte Kapusta. *Irradiation effects on 6061-T6 aluminium alloy used for JHR internal structures*. Rapport,
- [69] Hom T., Kiszenik W., Post B. « Accurate lattice constants from multiple reflection measurements. II. Lattice constants of germanium silicon, and diamond ». *J. Appl. Crystallogr.* 1 août 1975. Vol. 8, n°4, p. 457-458.
- [70] Karmazin L., James W. J. « Precise measurement of lattice parameters of pseudocubic lattices ». *Acta Crystallogr. Sect. A.* 1 mars 1972. Vol. 28, n°2, p. 183-187.
- [71] Wolfer W. G., Mansur L. K. « The capture efficiency of coated voids ». *J. Nucl. Mater.* 1 juillet 1980. Vol. 91, n°2, p. 265-276.
- [72] Mansur L. K. « Void Swelling in Metals and Alloys Under Irradiation: An Assessment of the Theory ». *Nucl. Technol.* 1 août 1978. Vol. 40, n°1, p. 5-34.

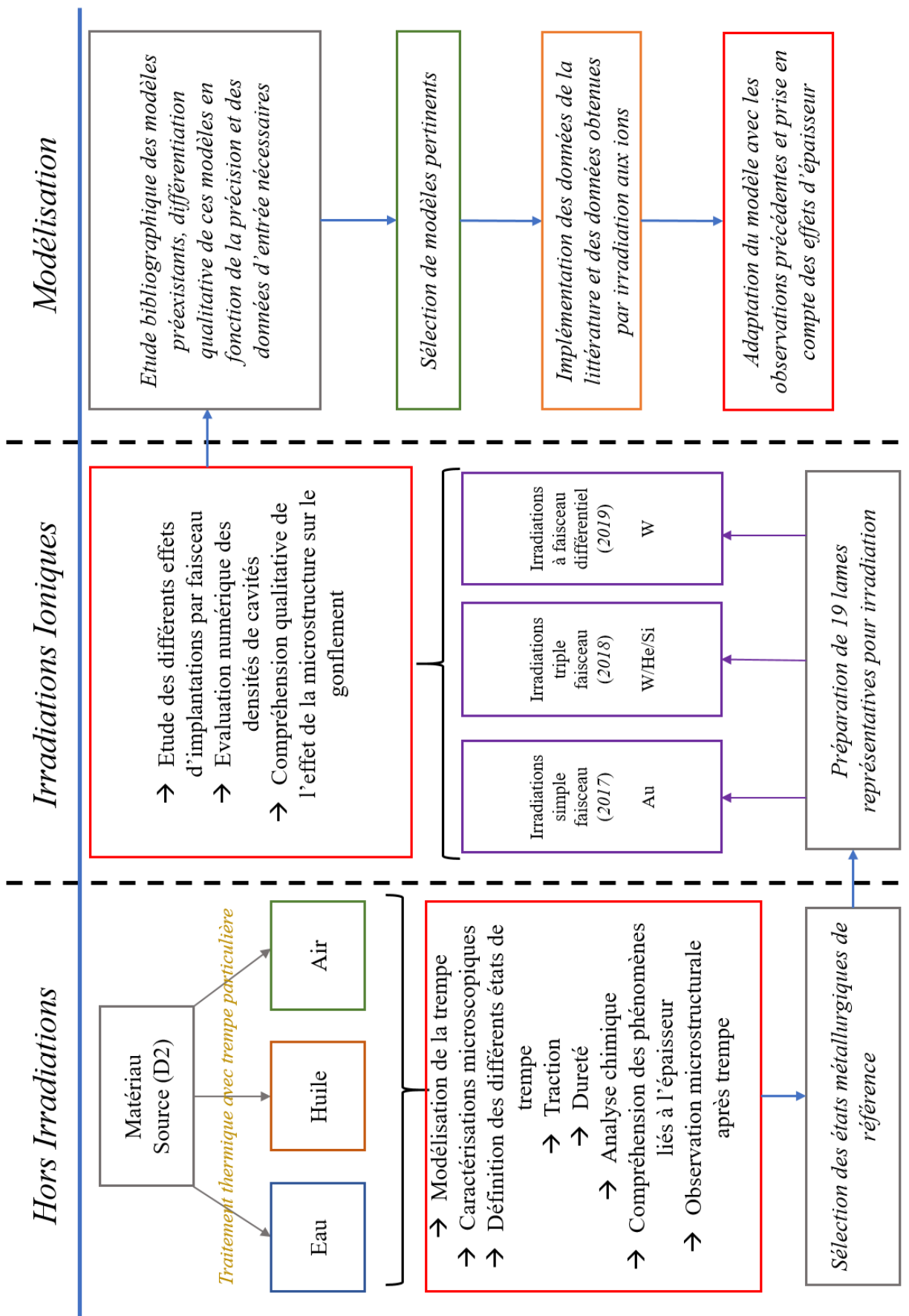
- [73] B. Jahnke, K. Ehrlich. « Void formation in an Al-Mg-Si alloy under different precipitation conditions after irradiation with 100keV Al ions ». *J. Mater. Sci.* 1980. Vol. 15, p. 831-838.
- [74] Dai Y., Odette G. R., Yamamoto T. « 1.06 - The Effects of Helium in Irradiated Structural Alloys ». In : Konings RJM (éd.). *Compr. Nucl. Mater.* Oxford : Elsevier, 2012. p. 141-193. ISBN : 978-0-08-056033-5.
- [75] Kmetyk L. N., Sommer W. F., Weertman J. *The effect of cyclic pulsed temperature on void growth in metals during irradiation.* Rapport, LA-UR-81-2437, Los Alamos National Laboratory,
- [76] King R. T. et al. « High-neutron fluence damage in an aluminum alloy ». *J. Nucl. Mater.* 1970. Vol. 35, p. 231-243.
- [77] King R. T., Jostsons A., Farrell K. *Neutron irradiation damage in a precipitation-hardened aluminum alloy.* Rapport, CONF-720604-1, Oak Ridge National Lab., Tenn., 1972.

CHAPITRE 2 : MATERIAUX ET MOYENS DE L'ETUDE

Ce chapitre présente le matériau de l'étude. Dans un deuxième temps, les traitements thermiques et les moyens de suivi associés sont décrits. S'en suit les moyens de caractérisation microstructurale ainsi que les caractérisations mécaniques. Enfin les irradiations aux ions sont explicitées.

I.	Plan expérimental général	61
II.	Matériau étudié.....	62
1.	Alliage de l'étude	62
2.	Préparations des échantillons	64
III.	Traitements thermiques	67
1.	Préambule.....	67
2.	Caractéristiques du traitement thermique.....	67
3.	Simulation numérique CAST3M.....	68
IV.	Moyens de caractérisation microstructurale	69
1.	Microscopie électronique en transmission (MET) et techniques associées.....	69
2.	Microscopie électronique à balayage (MEB) et techniques associées	72
3.	Sonde atomique tomographique (SAT).....	73
V.	Caractérisations mécaniques	75
1.	Essais de traction	75
2.	Essais de ténacité.....	75
3.	Indentation et cartographie de dureté Vickers.....	76
VI.	Irradiations aux ions	77
1.	Principes et calculs pré-irradiations.....	77
2.	Conditions d'irradiations.....	78
	Conclusions	82
	Bibliographie.....	83

I. Plan expérimental général



II. Matériau étudié

Dans cette étude, la préparation des échantillons, observations et essais ont été réalisés directement par le thésard, hormis les études de traction, ténacité et observation à l'échelle micronique (MEB-EBSD) qui ont été effectuées par un stagiaire.

1. Alliage de l'étude

L'alliage de série 6xxx sélectionné pour cette étude est un 6061 à l'état T6. Les échantillons ont été extraits du caisson D2 (*démonstrateur numéro 2*) du RJH. Ce caisson a été coulé puis forgé par forgeage libre. C'est-à-dire qu'il a été compressé suivant les 6 directions de l'espace puis détentionné. En outre, il a subi le traitement thermique T6 explicité dans le chapitre précédent, à savoir une mise en solution à 530°C pendant 4h puis une trempe dans une eau à 50/60 °C agitée suivie d'un détensionnement par compression et enfin revenu à 175°C pendant 12h (Figure 1).

La composition chimique de la coulée dont est issu le caisson resserrée est indiquée dans le Tableau 1. Elle respecte les spécifications chimiques du 6061 selon la norme NF EN 573, avec une limitation supplémentaire sur la teneur en plomb ($Pb \leq 30$ ppm) imposée pour le 6061A utilisé pour les récipients sous pression.

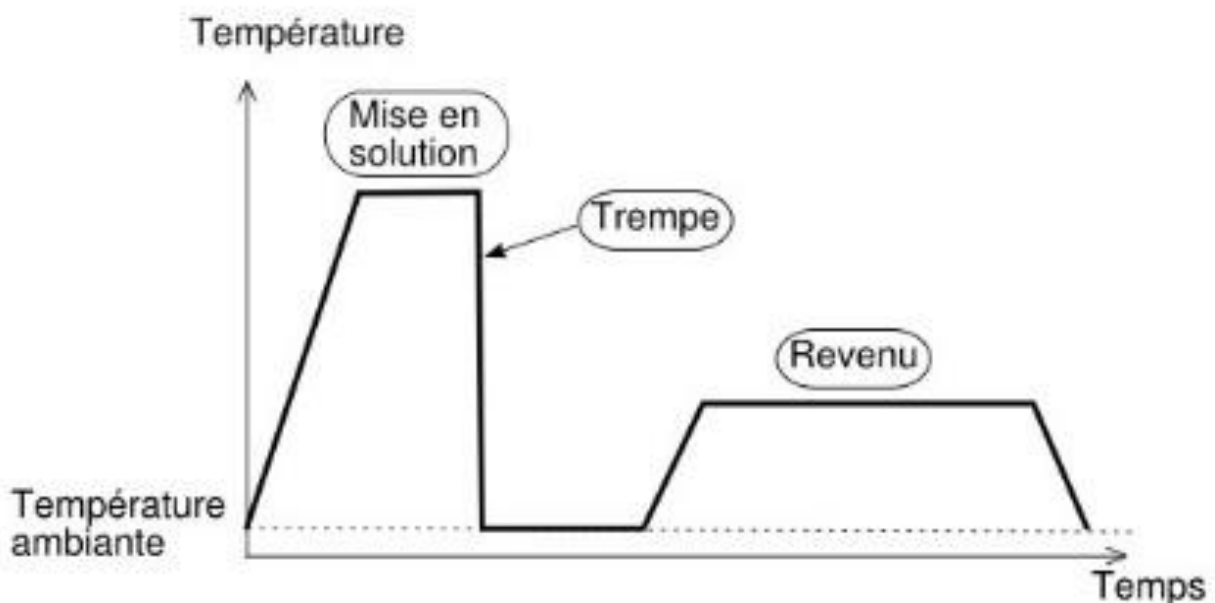


Figure 1: Traitement thermique T6

Elément	%wt
Si	0,53
Fe	0,38
Cu	0,22
Mn	0,06
Mg	1,08
Cr	0,18
Ni	0,0045
Zn	0,22
Ti	0,02
Al	balance

Tableau 1: Composition chimique de la coulée dont est issu le caisson D2

Le caisson présente une géométrie parallélépipédique de section 64,2x66,8 mm² sur une hauteur de 160 cm. Pendant toute la suite de l'étude présentée ici, l'axe z est défini comme celui parallèle à la hauteur du caisson, de même que le plan xy comme celui dont la normale est l'axe z. La Figure 2 présente la dureté Vickers, la taille de grain et la densité de phases microniques (*chinese scripts*) mesurée sur le caisson D2 brut dans le plan xy ainsi que les caractéristiques en traction selon l'axe z. Le diagramme Figure 2.C présente une population hétérogène en taille d'intermétalliques au fer (IMF) comme l'on pouvait s'y attendre d'après le chapitre 1. Les résultats de dureté Vickers (Figure 2.B) sont obtenus sur une moyenne de 50 indentations, les essais de traction ont été effectués sur 34 éprouvettes cylindriques dont la forme est explicitée en annexe A, prélevées dans différentes zones du caisson à cœur et en périphérie. Enfin la taille de grain est le résultat d'analyses d'images par interceptes avec Image J, sur une moyenne de plus d'une centaine de grains, révélés par l'attaque chimique présentée dans le paragraphe 2.4.

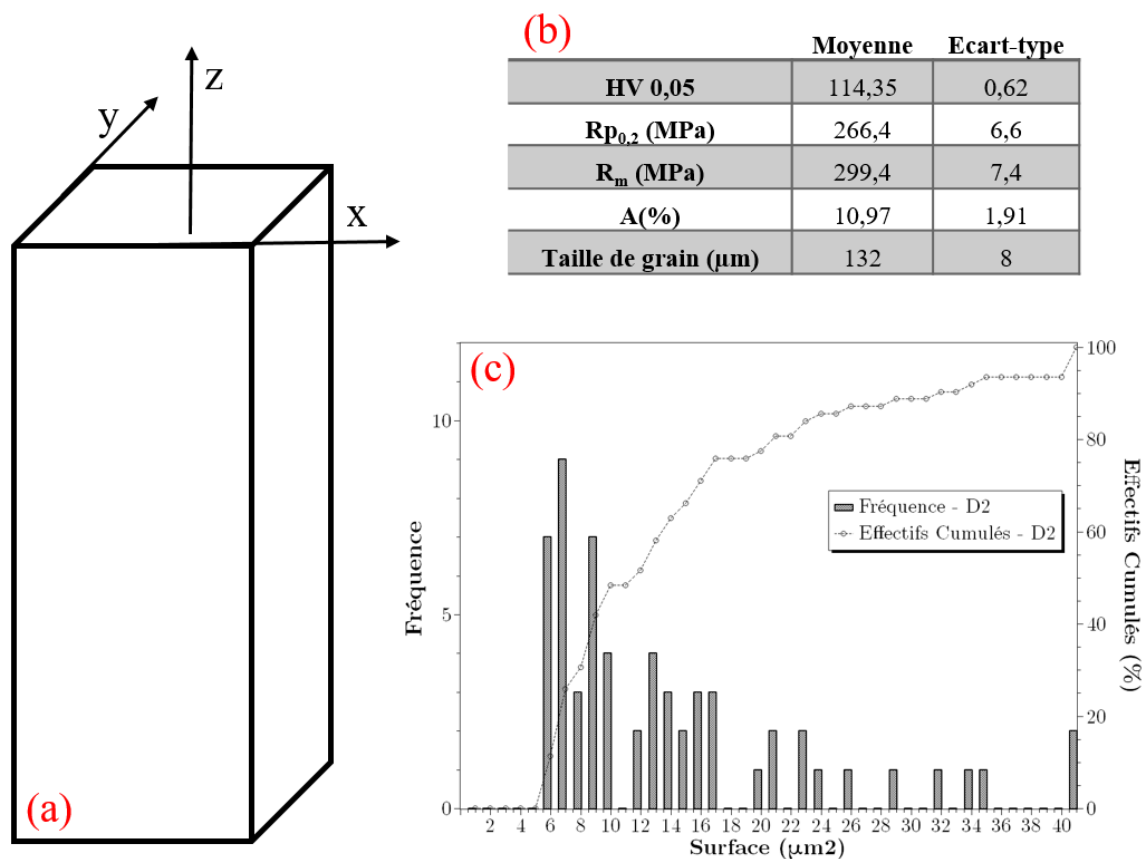


Figure 2: Le caisson D2 : (a) : Représentation schématique du caisson avec les axes correspondants, (b) : quelque propriétés mécaniques et microstructurales dans le plan xy et traction selon l'axe z, (c) : analyse surfacique des phase micrométriques (chines scripts) dans le plan xy d'après une imagerie MEB

2. Préparations des échantillons

2.1 Polissage

D'ordre général, tous les échantillons pour examens métallographiques présentés dans cette étude ont été polis selon la méthode suivante :

- 1- Polissage au disque SiC : P 180/600/800/1200 (ESCIL/Struers). Choix du disque de départ à déterminer selon l'état de surface initial de l'échantillon. Polissage jusqu'à disparition des rayures précédentes.
- 2- Polissage à la pâte diamantée (ESCIL, suspensions à base d'eau): 3μm, 1μm, 1/4 μm. Polissage jusqu'à disparition des rayures précédentes.
- 3- Pour les préparations EBSD : polissage à l'OPS (solution de silice colloïdale à pH=6) pendant 1 à 2 heures sur platine vibrante (Brüher, Vibromet)

2.2 Lames MET

A l'exclusion des quelques lames MET préparées par FIB et PIPS présentées dans ce document qui seront explicitement indiquées, la totalité des lames présentées ici ont été électropolies sur un Tenupol-3 de Struers. Le perçage des lames non irradiées a été effectué à 17 V en double jet dans une solution

d'acide nitrique (HNO_3) à 30% dans du méthanol afin d'obtenir une zone fine observable au MET. Les lames irradiées ont été percées dans les mêmes conditions en simple jet, la face irradiée étant protégée par une couche de vernis (Lacomit, Agar Scientific), retirée après perçage.

Le PIPS (*Precision Ion Polishing System*) a été utilisé pour obtenir certaines lames lorsque la quantité de matière se révélait insuffisante pour l'électropolissage ou pour affiner certaines lames électropolies. Le polissage par PIPS s'effectue avec une tension entre 3,0 kV et 3,4 kV en double modulation avec une injection angulaire entre 5° et 8° en valeur absolue.

2.3 Retrait contrôlé d'épaisseur sur lame MET irradiée

Les retraits contrôlés de matière sur lame MET irradiées ont été effectués par vibropolissage dans une solution OPS similaire à celle utilisée pour le polissage EBSD. Avant polissage, quatre indents Vickers 0.05 ont été positionnés sur chaque lame. La profondeur de ces derniers a été calculée selon la formule :

$$h = \frac{\bar{Y}}{2 \tan(r)}$$

Avec \bar{Y} la moyenne des diagonales de l'indent et r la valeur de l'angle solide de l'indent, soit, pour notre cas, 0.27820 radians.

Après mesure des valeurs, des sessions de polissage successives de 5 à 15 minutes ont été effectuées, suivies pour chacune d'une mesure de profondeur afin d'estimer l'épaisseur de matière retirée jusqu'à obtenir la profondeur désirée.

Les lames ont ensuite été percées en jet simple sur Tenupol-3 ou par PIPS.

2.4 Attaque chimique

Afin de révéler les joints de grains, une attaque chimique a été sélectionnée selon les standards ASTM pour les alliages de la série 6000 [1]. Cette solution est constituée de 2mL d'acide fluoridrique (HF), 3 mL d'acide chlorhydrique (HCl) et de 5 mL d'acide nitrique (HNO_3), le tout dilué dans 190 mL d'eau. Les échantillons ont été trempés dans cette solution pendant 1 à 2 minutes (contre 10 à 20 secondes selon la norme ASTM) puis rincés à l'eau. Bien qu'elle n'ait pas été choisie dans ce but pour cette étude, ce protocole peut également servir pour une préparation EBSD.

2.5 Extraction des échantillons millimétriques pour traitement thermique

Les échantillons pour traitement thermique ont été directement extraits du caisson D2 sur une face perpendiculaire au plan xy. Trois cubes d'arête 98 mm y ont été extraits et des trous pour y insérer des thermocouples ont été usinés. L'annexe B présente le plan de prélèvement des échantillons. La Figure 3 présente une photographie des différents échantillons pour comparaison des tailles caractéristiques.

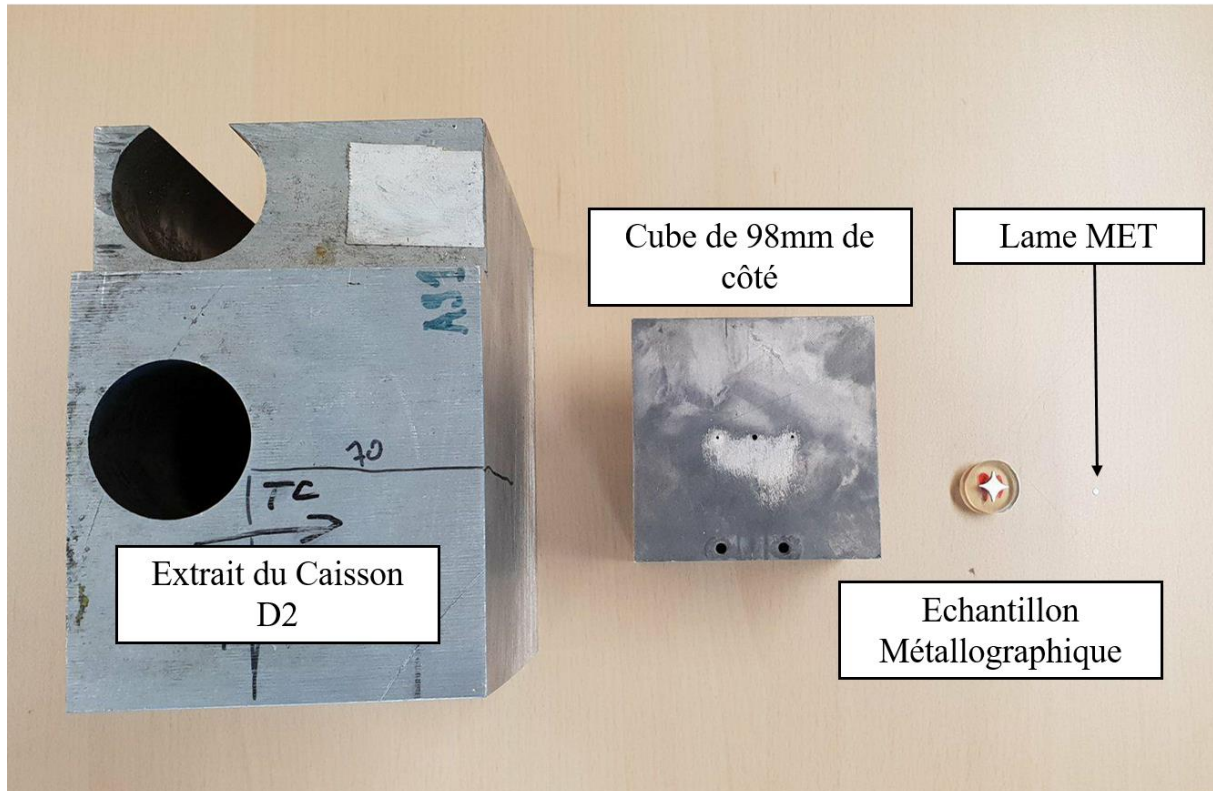


Figure 3 : Les différents échantillons du caisson, du cube à la lame MET

2.6 Prélèvement des échantillons pour analyse microstructurale

Après les traitements thermiques, des plaquettes ont été prélevées de chaque cube selon l'axe z au centre d'une face jusqu'au centre du cube (soit un parallépipède de longueur 49mm). Chaque plaquette présente donc un plan xy de section $12 \times 12 \text{ mm}^2$ et une épaisseur de 0,5 mm. Cette découpe a été effectuée par un prestataire (SAFIM - Argenteuil). La découpe choisie était au fil afin de réduire au maximum le trait de coupe tout en assurant un état de surface de suffisamment bonne qualité.

2.7 Prélèvement des éprouvettes de traction et de ténacité

Les éprouvettes de traction et de ténacité, respectivement nommées RAJAH et CTJ (voir plans en annexe A et B), ont été prélevées selon l'axe z des trois cubes. L'état de surface des éprouvettes était brut de découpe au fil. Les plans de prélèvement sont présentés en annexe D. De même que précédemment, l'usinage a été effectué par SAFIM – Argenteuil avec un état de surface brut de fil.

2.8 Pointes SAT

Les pointes utilisées pour la sonde atomique tomographique (SAT) ont été usinées par FIB et placées sur un support de pointe spécifique appelé microcoupon. Certaines pointes, nommées explicitement dans ce document, ont été obtenues par polissage électrolytique en 5 V et 7 V dans une solution d'acide nitrique à 30% dans le méthanol à partir d'un bâtonnet massif de 1,2 mm de long sur une section carrée de $300 \mu\text{m}$. Une autre solution d'acide acétique glacial à 10-25% d'acide perchlorique peut aussi être utilisée mais, pour des raisons d'optimisation, n'a pas été utilisée dans le cadre des travaux présentés ici.

III. Traitements thermiques

1. Préambule

Les traitements thermiques effectués ici ont pour objectif de créer un état T6 modifié par l'exploration d'un large spectre de vitesses de trempe. Les trois cubes de trempe ont été usinés de manière identique selon les mêmes plans. La trempe à l'huile a été confiée à un prestataire extérieur (*Bodycote Nitruvid, Argenteuil, Val-D'oise, France*) car elle n'a pu être faite au sein du CEA pour des raisons de sécurité. Les fours industriels ayant des limites techniques propres, aucune mesure de température fiable ou identique aux deux autres trempes n'a pu être obtenue.

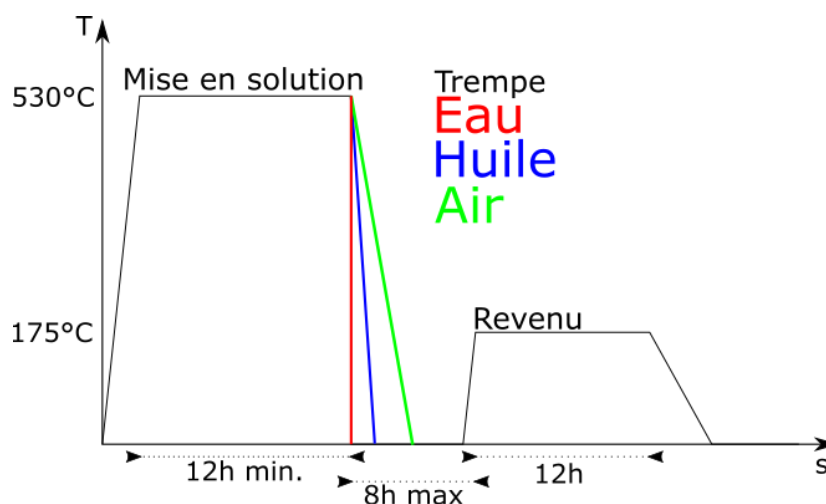


Figure 4 : Représentation schématique des traitements thermiques effectués

2. Caractéristiques du traitement thermique

Les caractéristiques globales des traitements thermiques effectués sont présentées Figure 4.

2.1 Trempe Eau et Air (réalisées au CEA)

Le traitement thermique a été effectué de la manière suivante : pour chaque cube, trois thermocouples à différentes positions ont été insérés, mesurant et enregistrant la température toutes les secondes (voir Tableau 2 et Figure 5). Pour chaque durée dans la suite de ce document, on comptera le début du traitement à partir du moment où le thermocouple central (*TC2*) atteint la température désirée. Dans un premier temps, une mise en solution à 530°C pendant 12h minimum a été entreprise afin d'avoir pour chaque traitement le même état microstructural de référence. A la fin de la mise en solution, le cube a été retiré du four pour refroidir lentement à l'ambiante (trempe à l'air). Lors du traitement thermique suivant, le cube a été plongé dans un volume d'eau de trempe à température ambiante d'environ 65 fois supérieur au volume du cube. Dans un délai maximal de 8h après la fin de la trempe (on considère la fin

de la trempe comme le moment où la température maximale du thermocouple central est inférieure à 50°C), chaque cube a été soumis à un revenu de 12h à 175°C.

	X	Y	Z
TC1	49	34	25
TC2	49	49	49
TC3	49	64	10

Tableau 2 : Positions des différents thermocouples (mm)

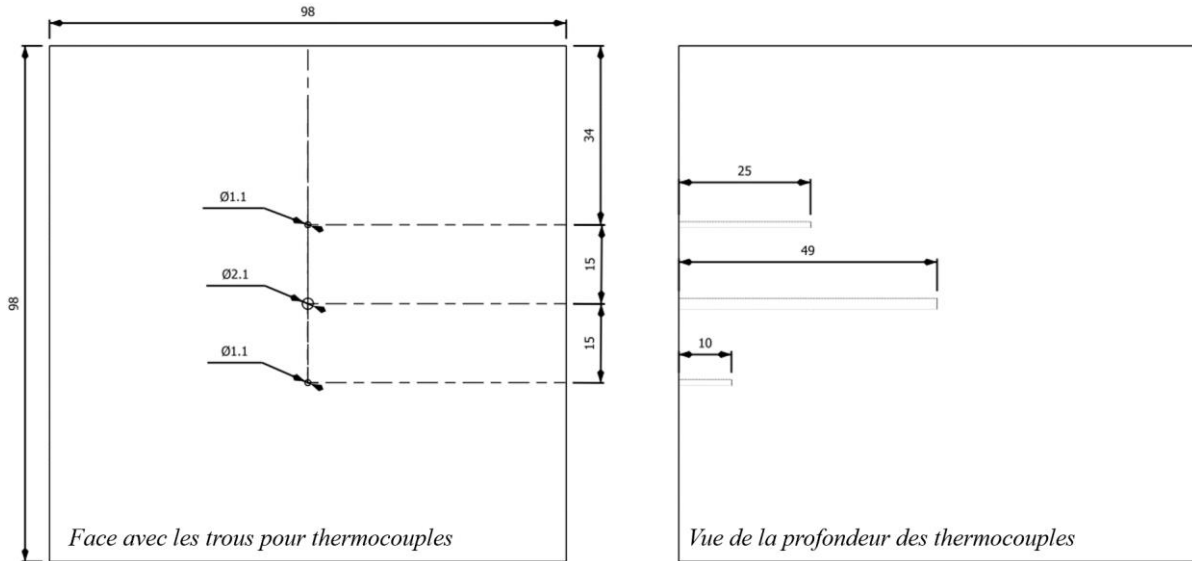


Figure 5: Vue des cotes des trous pour insertion des thermocouples

2.2 Trempe Huile (réalisée par Bodycote)

Le cube trempé à l'huile a subi un traitement thermique avec les mêmes spécifications que les trempes eau et air. Cependant, du fait des limitations industrielles, il a été impossible de connaître le moment où le centre de ce dernier atteint 530°C pendant la mise en solution, ni 175°C pendant le revenu. De ce fait un delta de temps d'environ 3h a été ajouté sur le temps de séjour dans le four, conformément aux observations faites lors des trempes eau et air. Pour ces mêmes raisons, la durée entre la fin de la trempe et le début du revenu (8h. maximum) a été estimée à partir de la durée entre le début de la trempe et le début du revenu.

3. Simulation numérique CAST3M

La simulation des traitements thermiques de trempe a été effectuée sous CAST3M [2]. Cast3m est un code de calculs par éléments finis. Le modèle choisi pour cet essai de trempe est un modèle de diffusion-convection dont les paramètres choisis seront explicités dans le chapitre suivant. La discrétisation des éléments a été optimisée pour obtenir une précision de l'ordre de 2 mm linéique sur un cube de 98 mm de côté, le tout reporté en trois dimensions. Les calculs de température ont été effectués de manière

dynamique pour obtenir les courbes temps-température en chaque élément fini du cube modélisé. Le post traitement et la conversion en courbes vitesse de trempe en fonction de la position spatiale ont été effectués par une macro Python dont le code est explicité en annexe E.

IV. Moyens de caractérisation microstructurale

1. Microscopie électronique en transmission (MET) et techniques associées

Les examens de lames MET ont été effectués sur trois microscopes différents.

- Au CEA/SEMI sur un microscope FEI – Tecnai G² 300 kV – LaB₆ présenté Figure 6. Les analyses chimiques EDS (*Energy Dispersion Spectroscopy*) de types spectre pur et ligne de spectres présentées dans ce mémoire sont issues de l'analyseur EDAX associé à ce microscope. De même, les spectres EELS (*Electron Energy Loss Spectroscopy*) et images EFTEM (*Energy Filtered Transmission Electron Microscopy*) sont issus de l'analyseur GIF (*Gatan Image Filtering*®) de ce microscope.
- Au CEA/SRMP sur un microscope FEI – Tecnai G² 200 kV – LaB₆. Seules des images de microscopie conventionnelle ont été obtenues sur ce microscope.
- Au SIMAP de Grenoble, sur un microscope JEOL-2100F - 200kV FEG duquel ont été extraites toutes les cartographies chimiques EDS ainsi que les cartographies ASTAR. [3,4]

La microscopie conventionnelle en champ clair (*BF*) a été effectuée sur un ensemble d'échantillons représentant un large panel de vitesses de trempe à de multiples grossissements (x25 – x71000). Les images en champ clair sont réalisés l'axe de zone <100>, axe le plus adapté pour imager les nanoprécipités dans les alliages 6XXX. Les images en champ sombre (*DF*), caractéristiques sont effectués en sélectionnant les lignes de diffusion diffuse caractéristiques de la précipitation fine β' , β'' dans les alliages Al-Mg-Si des nanoprécipités avec un diaphragme objectif centré sur la tache 100 de l'aluminium (Figure 6).

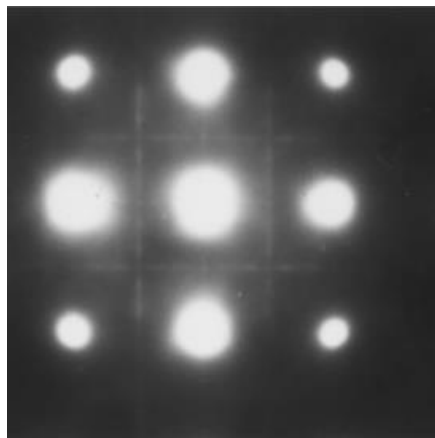


Figure 6 : Diagramme de diffraction dans l'axe <100> sur un alliage de la série 6000. Le signal en forme de croix est représentatif de la précipitation durcissante [5]

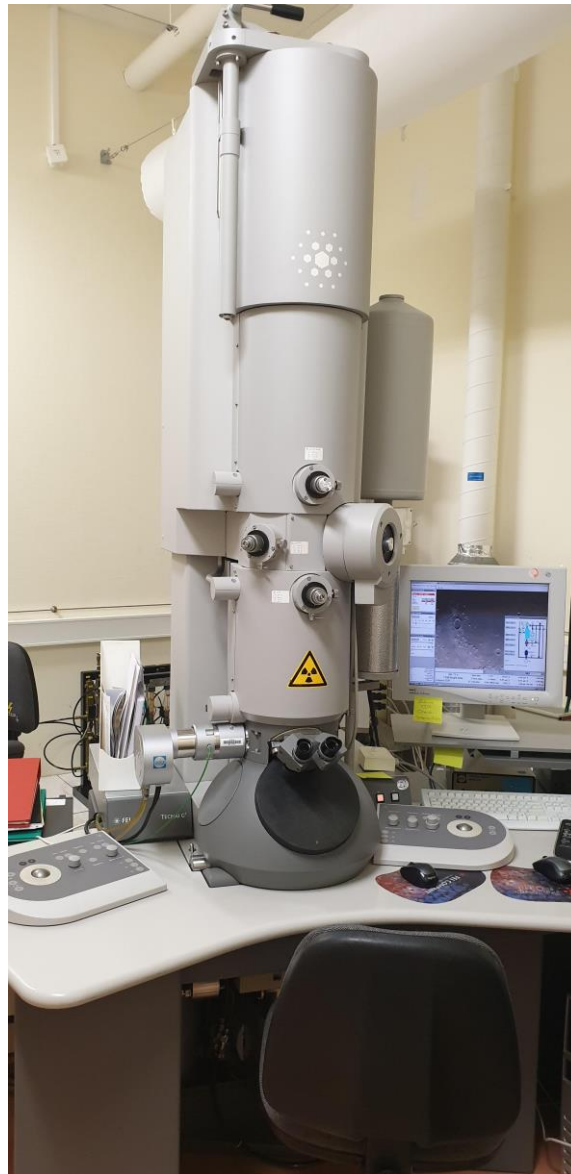


Figure 7 : Le MET FEI Tecnai G² du SEMI/LM2E

2.1 Analyses EDS

Les analyses EDS consistent en la détection et l'analyse de photons X émis par l'échantillon analysé dans le MET. En effet, sous faisceau électronique, une excitation des niveaux électroniques des atomes bombardés se produit. En se désexcitant vers des niveaux électroniques plus stables, des photons X sont émis. L'énergie de ces photons est directement liée au niveau quantique mis en jeu, l'ensemble des raies X émises est propre à un élément chimique donné. Ainsi on peut obtenir quantitativement la nature chimique des phases en présence dans la région observée. En outre, on notera que les éléments dont le numéro atomique est inférieur à 3 ne peuvent être détectés par l'analyseur.

Les analyses EDS mises en œuvre dans ce manuscrit ont pour but d'identifier les éléments en présence dans le matériau et les précipités. Il ne s'agit pas d'un but quantitatif mais d'avoir une information qualitative sur la composition des phases et la répartition des éléments chimiques.

2.2 ASTAR

ASTAR [3,4] est un système d'identification de phases et d'orientations cristallines sous forme de cartographie. L'opération consiste à balayer une zone avec un faisceau très fin et à acquérir de façon synchrone les diagrammes de diffraction (type *nanobeam diffraction*) en chaque point de la zone examinée. Un logiciel de reconnaissance automatique associée compare alors les diagrammes de diffraction expérimentaux à des diagrammes simulés que l'utilisateur a créé à partir des données cristallographiques (fichier CIF) des phases attendues ou préalablement identifiées en diffraction des rayons X. La reconnaissance de phases avec ASTAR peut alors déterminer où les phases sont présentes et selon quelle orientation. Il est possible ainsi d'obtenir une carte d'orientation similaire à de l'EBSD.

2.3 Imagerie EFTEM et EELS

La spectrométrie « EELS » Electron Energy Loss spectrometry est une technique qui consiste à analyser les pertes d'énergies des électrons traversant la lame observée au microscope. On obtient alors un diagramme de pertes d'énergie comme présenté Figure 8. Les spectres EELS présentent toujours un pic centré sur l'énergie 0 eV appelé « zero loss » : ce sont les électrons n'ayant pas perdu d'énergie. Les autres pics sont caractéristiques des éléments observés. Ainsi, on peut effectuer des cartographies d'éléments particuliers en utilisant l'imagerie filtrée (EFTEM) qui consiste à sélectionner une bande d'énergie et former l'image à partir des électrons contenus dans cette bande. Il est aussi possible d'effectuer une image du zero loss. Outre les cartographies chimiques, ces techniques EELS permettent d'obtenir des cartographies d'épaisseur des zones observées. Ces cartographies se présentent comme des cartographies d'intensité de valeurs t/λ , t représentant l'épaisseur et λ un paramètre dépendant du microscope et du matériau. λ s'exprime comme :

$$\lambda = \frac{106 \cdot F \cdot E_0}{E_m \ln\left(\frac{2\beta E_0}{E_m}\right)}$$

Avec β l'angle de collection propre à la colonne électronique, E_0 la tension d'accélération des électrons, F un facteur propre au matériau, et E_m l'énergie moyenne des électrons perdus par impact sur un noyau,. D'un point de vue pratique, cette formule est une approximation et ne doit normalement pas être utilisée pour des tensions d'accélération supérieures à 100 kV ni des angles collections supérieurs à 15 mrad. Dans la pratique, cette formule est souvent conservée car assez simple à utiliser [6].

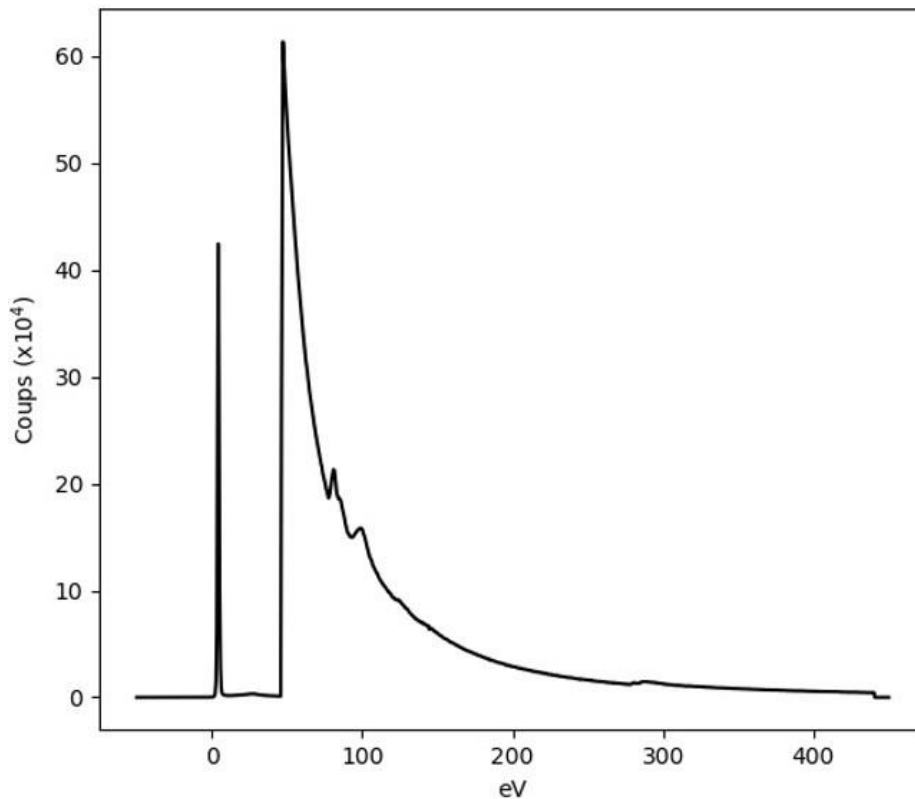


Figure 8 : Spectre EELS d'un film d'aluminium pur [7]

2. Microscopie électronique à balayage (MEB) et techniques associées

Les examens MEB présentés dans cette étude ont été effectués sur un microscope JEOL – IT300 présenté Figure 9. La tension d'accélération peut être portée de 5 kV à 30 kV sur ce microscope. Un détecteur EDS X-Max et EBSD NordlysMax³ Oxford accompagnent cet équipement.

2.1 EBSD

L'EBS (Electron Back Scattering Diffraction) permet la reconstruction de cartographie cristallographique d'orientation cristalline. Plus précisément, cette technique consiste en un découpage de l'espace observé par un maillage de taille raisonnable par rapport à la taille de grain du matériau. Chaque point sera alors indexé par son motif de diffraction associé formé par les lignes de Kikuchi. On obtient ainsi une carte des grains et joints de grains avec leur orientation sur toute la zone.

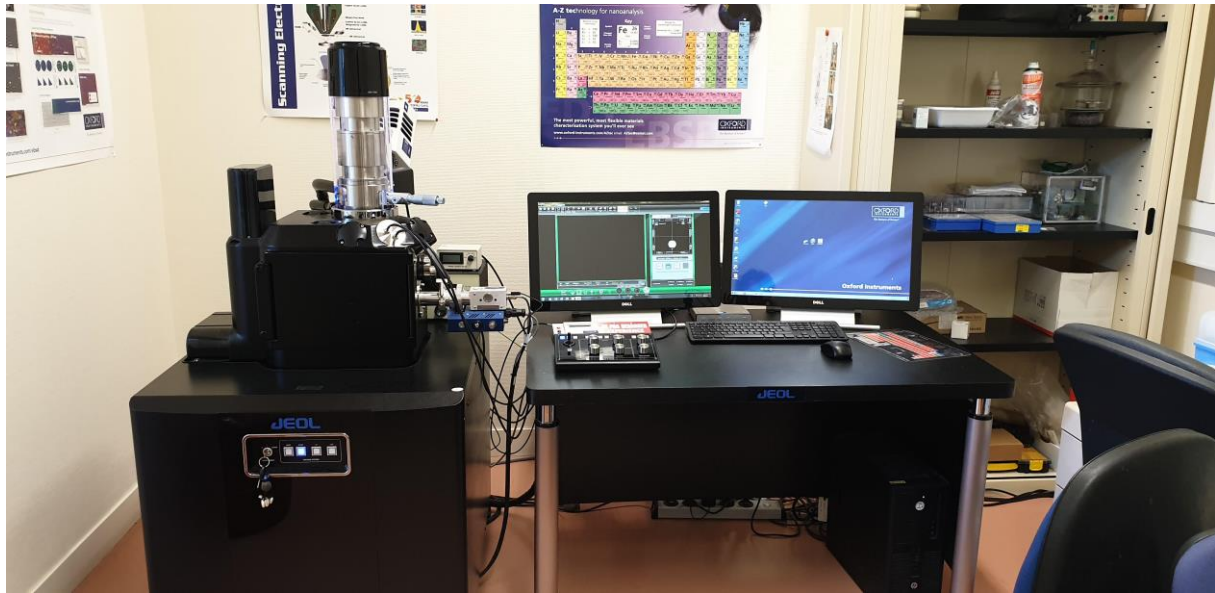


Figure 9 : Le MEB Jeol IT-300 du SEMI

La résolution d'une cartographie EBSD est dépendante des paramètres sélectionnés par l'utilisateur : le gain, la taille de la zone analysée mais surtout le pas, c'est-à-dire la surface représentée par un pixel *in fine* doivent être fixés avec soin afin d'obtenir l'information désirée.

Du fait des limitations en terme de taille des échantillons pouvant être analysés par le détecteur EBSD, chaque échantillon analysé, représentatif de la demi longueur du cube, a été séparé en deux moitiés de taille égale. Les informations recherchées dans le cadre de ces analyses se limitaient à la taille de grain ainsi qu'à l'orientation préférentielle de ces derniers.

3. Sonde atomique tomographique (SAT)

La sonde atomique tomographique (SAT) est une technique permettant d'effectuer de la microscopie tridimensionnelle à l'échelle atomique. Après avoir transité par la chambre d'introduction et la chambre tampon servant de stockage, la pointe est placée dans la chambre d'analyse de la SAT dans laquelle règne un vide de l'ordre de 10^{-9} Pa, et est refroidie entre 30 et 80K. Elle est de plus soumise à une tension continue élevée, mais légèrement trop basse pour permettre l'évaporation des atomes. Grâce à des impulsions électriques ou laser, l'instrument ionise les atomes qui s'évaporent à la surface de la pointe, couche atomique par couche atomique. Les impulsions électriques sont d'une durée de 0.5 à 5 ns et les impulsions laser ont une fréquence de 100 femto-secondes. Comme la pointe est placée en regard d'une électrode locale les ions évaporés suivent les lignes de champs et sont recueillis sur un détecteur. Le schéma de la Figure 10 reprend ces différents éléments.

Le détecteur relève la position de chaque atome et son temps de vol. Le temps de vol est propre à chaque espèce chimique ; plus un atome est « lourd », plus son temps de vol entre l'instant d'application de l'impulsion et l'instant de la détection sera long. Il permet donc d'identifier l'espèce chimique de chaque

ion évaporé. La position d'un atome sur le détecteur permet quant à elle de remonter à sa position initiale avant l'évaporation.

L'échantillon se présente sous la forme d'une pointe très fine, avec un rayon de courbure entre 25 et 100 nm en bout de pointe. Sa fabrication doit être bien réalisée pour une analyse réussie. En effet, la géométrie de la pointe conditionne sa résistance à la rupture, la taille de la zone exploitable, la qualité des trajectoires et la présence ou non d'artefacts lors du traitement des données. Une pointe mal réalisée aura tendance à rompre rapidement ou à ne pas s'évaporer correctement durant l'analyse à la SAT, ne permettant d'obtenir qu'un nombre réduit de données. D'une manière générale, il est considéré que les données obtenues avant 2 kV ou d'un échantillonnage inférieur à 2 millions d'ions ne sont pas exploitables. Elles-mêmes seront imprécises et peu exploitables par la présence d'artefacts. Les échantillons peuvent être usinés par deux techniques : l'électropolissage ou bien à l'aide d'une sonde ionique focalisée, plus connue sous le sigle anglais FIB qui est un microscope électronique à balayage équipé d'un canon ionique permettant d'usiner la matière.

A posteriori, ces données sont traitées afin de reconstruire le volume. Il est très important de noter que cette étape est cruciale, au sens où une mauvaise reconstitution peut impliquer des résultats absolument faux. Une fois la reconstruction effectuée, l'analyse, c'est-à-dire la recherche de clusters, précipités ou encore de ségrégations chimiques, peut être effectuée. Il s'agit, là encore, de manipulations de l'utilisateur afin de déterminer des seuils d'agrégats : distances maximales, concentrations minimales, facteur k dans un espace de Voronoï. Les analyses SAT ont été effectuées sur la sonde LEAP 400XHR du DMN (SEMI). Les résultats ont été obtenus en mode Voltage sur des pointes FIB et électropolies. La fraction de pulse électrique (*pulse fraction*) était de 0.1% en début de pointe et a été augmentée au fur et à mesure de l'expérience afin de garder le flux d'ions émis constant.

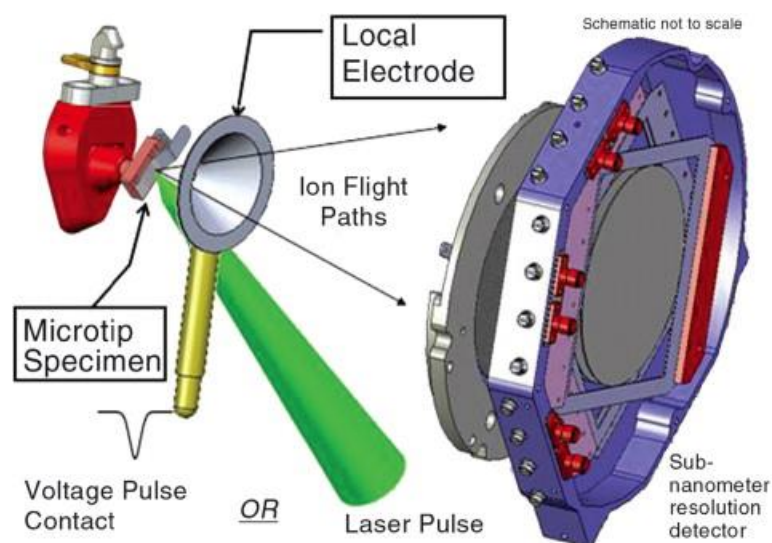


Figure 10 : Représentation schématique de la SAT [8]

V. Caractérisations mécaniques

1. Essais de traction

Les essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes présentées en annexe H ont été effectués à quatre températures différentes : ambiante ($\approx 20^\circ\text{C}$), 70°C , 90°C et 150°C . Le chauffage des échantillons a été assuré par un four trois points AET Technologies avec un balayage d'azote. Pour chaque température et condition métallurgique, trois éprouvettes ont été testées. La machine de traction qui a été utilisée était une Instron 8862 pilotée par le logiciel BlueHill. Les essais ont été entrepris avec un contrôle par position avec une vitesse de déformation de 5.10^{-4} s^{-1} et précédés d'une précharge de 50 N. La mesure des modules d'Young a été assurée par un extensomètre à couteaux MAYTEC, systématiquement retiré après passage dans le domaine plastique de l'échantillon. La totalité du post-traitement a été effectuée par le logiciel Odette II développé par le CEA. Les échantillons ont été récupérés après rupture et stockés pour observation de fractographies.

2. Essais de ténacité

Un matériau soumis à un effort peut voir des défauts de l'ordre de la taille de grain, comme des cavités, se former dans toute sa structure de manière homogène : c'est la mécanique de l'endommagement. Cependant, si ces défauts se développent progressivement jusqu'à atteindre une taille critique de 100 μm à 1 mm, ils deviennent des fissures et peuvent rompre le matériau : c'est la mécanique de la rupture. Cette dernière a pour but d'étudier sous quelles conditions une fissure déjà présente va continuer à progresser à mesure que la pièce est sollicitée. Pour ce faire, considérant la présence d'un phénomène de concentration des contraintes près des zones de changement de géométrie, on étudie des grandeurs locales en pointe de la fissure. En supposant que l'on reste dans le domaine élastique et dans le cas d'une fissure infiniment fine, on définit ainsi en coordonnées polaires la contrainte locale :

$$\sigma_{ij} = \frac{K}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta)$$

Avec K, le facteur d'intensité de contrainte, tel que $K = \sigma_\infty \sqrt{\pi a}$

Où σ_∞ est la contrainte appliquée et a la taille initiale de la fissure. Or, ce facteur K est relié au taux de restitution d'énergie G qui correspond à l'énergie nécessaire pour faire avancer la fissure. Donc, en définissant un seuil critique G_c au-delà duquel l'énergie est suffisante pour qu'il y ait rupture, on définit également une intensité de contrainte critique K_c . Au vu de sa définition, elle est atteinte lorsque la contrainte locale devient trop importante ou que la fissure devient trop grande. Néanmoins, en pratique, la propagation est toujours précédée d'un passage dans le domaine plastique en pointe de fissure. Ainsi, à moins de se placer en plasticité confinée avec une éprouvette ayant une dimension supérieure à 15 fois

le rayon de la zone plastique, il faut utiliser un modèle élasto-plastique faisant intervenir le taux de libération d'énergie J , permettant une avancée infinitésimale de la fissure.

Les éprouvettes compactes de traction, usinées par un prestataire (*SAFIM - Argenteuil*) avec rainurage à $b/20$ (b étant l'épaisseur de l'éprouvette) et pré-fissurées en interne ont ensuite été rainurées à $b/10$ par la SAFIM puis soumises à des cycles de traction avec un relâchement de la force de 15 % jusqu'à ce qu'elles rompent.

3. Indentation et cartographie de dureté Vickers

D'une part, les indentations Vickers ont été utilisées afin d'opérer à un retrait contrôlé d'épaisseur sur des lames MET irradiées. Cette technique permet d'atteindre un niveau de dommage (DPA) cible dans un volume de matière irradiée dont l'endommagement n'est pas homogène. Ces indentations Vickers ont été obtenues sur une machine de dureté Bruher Micromet 5104.

D'autre part, des cartographies de microdureté ont été effectuées sur des longueurs représentatives dans plusieurs états de trempe. Ces cartographies ont été réalisées sur une zone d'environ $47 \times 6 \text{ mm}^2$ avec une charge de 0,05 kg. Un pas de $200 \mu\text{m}$ a été appliqué entre chaque indent (Figure 11). Les indents ont été appliqués de manière automatique, de même que la lecture de la dureté. La machine utilisée a été une Buehler VH-3300. L'exactitude de la lecture automatique de dureté a été appuyée par de précédentes études sur cette machine, indiquant qu'une variation d'1% seulement était observable entre une lecture automatique et manuelle de la dureté. Les résultats de cette étude seront aussi bien présentés sous forme d'histogrammes représentatifs de plusieurs régions analysées dans l'échantillon ainsi que de cartographies reconstituées. Afin d'obtenir une idée plus nette des tendances, les cartographies ont été reconstituées selon une méthode de valeurs moyennes : ainsi, sur les cartographies, chaque pixel représentera la moyenne des duretés des 9 pixels de la zone : celle du pixel ainsi que celles des huit premiers voisins.

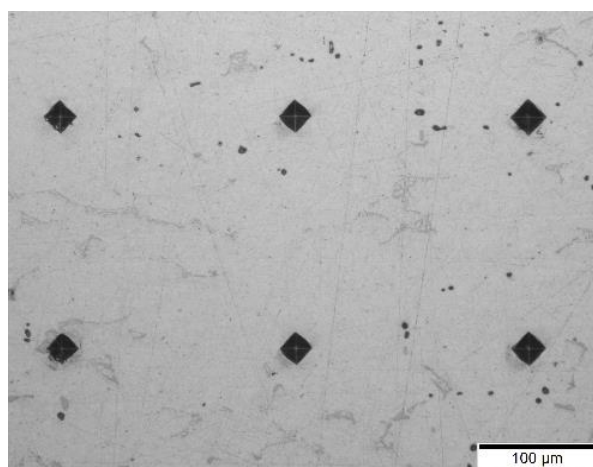


Figure 11 : Macrographie des indents Vickers en microscopie optique

VI. Irradiations au ions

1. Principes et calculs pré-irradiations

Les irradiations aux ions constituent un axe majeur de cette étude. Comme explicité dans le chapitre précédent, ces irradiations présentent de nombreux avantages comme l'absence d'activation du matériau (sous réserve d'utiliser des énergies en deçà du seuil d'activation du matériau) et la capacité d'obtenir de très forts taux de dommages en des temps très courts. Afin de sélectionner l'élément irradiant ainsi que l'énergie, il est important de connaître plusieurs règles générales qui régissent les irradiations ioniques :

- A énergie constante, plus un élément est lourd, plus il sera rapidement stoppé dans la matière mais tendra à produire plus de dégâts dans l'échantillon. A l'inverse, un élément léger s'implantera plus loin dans la matrice mais produira moins de dégâts.
- Augmenter l'énergie d'irradiation permet d'implanter plus loin l'élément et d'obtenir une courbe plus homogène d'irradiation au prix d'une diminution moyenne des dégâts sauf dans le pic d'irradiation.
- Les capacités en terme de flux des irradiateurs conditionnent toujours le temps d'irradiation.

Connaissant ces règles, des simulations sur le logiciel SRIM [9] peuvent être effectuées afin d'évaluer les dégâts. Le logiciel SRIM est un code de simulation Monte-Carlo qui présente l'avantage d'une facilité d'utilisation et permet d'obtenir rapidement des résultats numériques. Cependant, plusieurs lacunes sont à prendre en compte dans l'utilisation du code SRIM. En effet, le code SRIM n'évalue pas les recombinaisons des paires interstitiels lacunes dans le matériau. En outre, il s'agit d'une simulation en deux dimensions dont les résultats sont ramenés à une dimension. Ainsi, il est plus prudent de parler d'une évaluation de l'ordre de grandeur des dégâts et de la zone d'implantation, plutôt que de valeur stricte de DPA atteint. Enfin, il est à noter que, cette étude présentant un besoin important de calculs SRIM, un code de calcul systématique de SRIM sur système UNIX permettant d'obtenir de grands volumes de données (par exemple, la totalité des courbes de dommages entre 1 MeV et 20 MeV d'un ion donné sur une cible donnée par pas de 200 keV) a été développé durant cette thèse, à partir d'un code existant [10]. Dans toutes nos simulations SRIM, le mode de dommage choisi a été le « *Full Cascade* » qui, au prix d'un temps de calcul plus long, permet de simuler la totalité de la cascade de déplacements. Les cibles utilisées dans les simulations étaient toujours de l'aluminium pur avec une énergie de déplacement E_d de 16 eV. Le post traitement des données a été effectué afin de convertir les données brutes de SRIM (en $\text{\AA}\cdot\text{ion}^{-1}$) en dpa selon la formule suivante [9] :

$$DPA = \frac{D_v \cdot \phi \cdot 10^8 \cdot t}{d_{atm}}$$

Avec D_v , la densité de lacunes obtenue par SRIM en $\text{\AA} \cdot \text{ion}^{-1}$, Φ le flux ionique imposé par l'accélérateur (en $\text{ion} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), t la durée de l'irradiation en s, d_{atm} la densité atomique en $\text{atome} \cdot \text{cm}^{-3}$ et 10^8 , un facteur permettant l'homogénéité physique des grandeurs introduites ici.

2. Conditions d'irradiations

Les irradiations présentées dans cette thèse ont toutes été effectuées au laboratoire JANNuS - Saclay [11] (*Joint Accelerators for Nanoscience and Nuclear Science*) pendant trois campagnes (2017, 2018 et 2019). La plateforme JANNuS – Saclay possède trois irradiateurs. Epiméthée, permettant l'accélération d'ions de masse moyenne avec une tension d'accélération de 3 MV. Japet permet l'accélération d'ions divers, du Chlore jusqu'à l'Or. Enfin, Pandore est un accélérateur d'ions légers, majoritairement à partir de sources gazeuses. Le Tableau 3 présente un résumé des campagnes d'irradiation effectuées durant la thèse. Toutes les irradiations ont été effectuées sur 19 lames MET vierges, polies miroir non percées, représentant les états métallurgiques majeurs établis par trempe. La totalité des expériences d'irradiation a été effectuée à température ambiante afin d'éviter un échauffement à la température d'activation du revenu (150°C) qui modifierait alors la microstructure indépendamment de l'irradiation.

Campagne	Faisceau	Ion	Flux ($\text{ion}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)	Energie (MeV)	Durée (h)	Fluence (ion/cm^2)	DPA Ciblé (Zone d'observation)
2017	Simple	Au^{4+}	2.10^{11}	3.5	52h	$3.69 \cdot 10^{16}$	100-150
	Simple	Au^{4+}	2.10^{11}	3.5	36h	$1.96 \cdot 10^{16}$	60-90
2018	Triple	He^+	$6.17 \cdot 10^{11}$	0.5	5h30	$9.95 \cdot 10^{15}$	35
		Si^+	$6.17 \cdot 10^{11}$	2.5	5h30	$9.95 \cdot 10^{15}$	
		W^{9+}	$3.8 \cdot 10^{11}$	13	5h30	$6.15 \cdot 10^{15}$	
	Triple	He^+	$6.17 \cdot 10^{11}$	0.5	5h30	$9.95 \cdot 10^{15}$	18
		Si^+	$6.17 \cdot 10^{11}$	2.5	5h30	$9.95 \cdot 10^{15}$	
		W^{9+}	$1.9 \cdot 10^{11}$	13	5h30	$3.1 \cdot 10^{15}$	
	Simple	W^{9+}	$3.8 \cdot 10^{11}$	13	5h30	$6.15 \cdot 10^{15}$	<35

2019	Simple avec cache	W ⁹⁺	3.8.10 ¹¹	20	5h30	7.5.10 ¹⁵ (max)	15 à 50
	Simple avec cache	W ⁹⁺	2.10 ¹¹	20	5h30	4.10 ¹⁵ (max)	5 à 25
	Simple avec cache	W ⁹⁺	1.10 ¹¹	20	5h30	2.10 ¹⁵ (max)	2 à 10

Tableau 3 : Résumé des campagnes d'irradiation effectuées durant la thèse. Toutes les irradiations ont été effectuées à température ambiante.

2.1 Campagne d'irradiation 2017

La campagne d'irradiation 2017 a pour but d'obtenir des dommages élevés de manière la plus uniforme possible sur une zone de 100 nm (épaisseur d'observation au MET). De ce fait, il a été choisi d'utiliser des ions Au à forte énergie pendant des durées importantes. La Figure 12 présente les courbes de DPA en fonction de la profondeur ainsi que l'implantation obtenue lors de ces irradiations. Bien que les pentes présentent d'importantes variations en surface, ces irradiations ont l'avantage de pouvoir obtenir un fort taux de dommage en surface, permettant l'observation sans retrait contrôlé d'épaisseur.

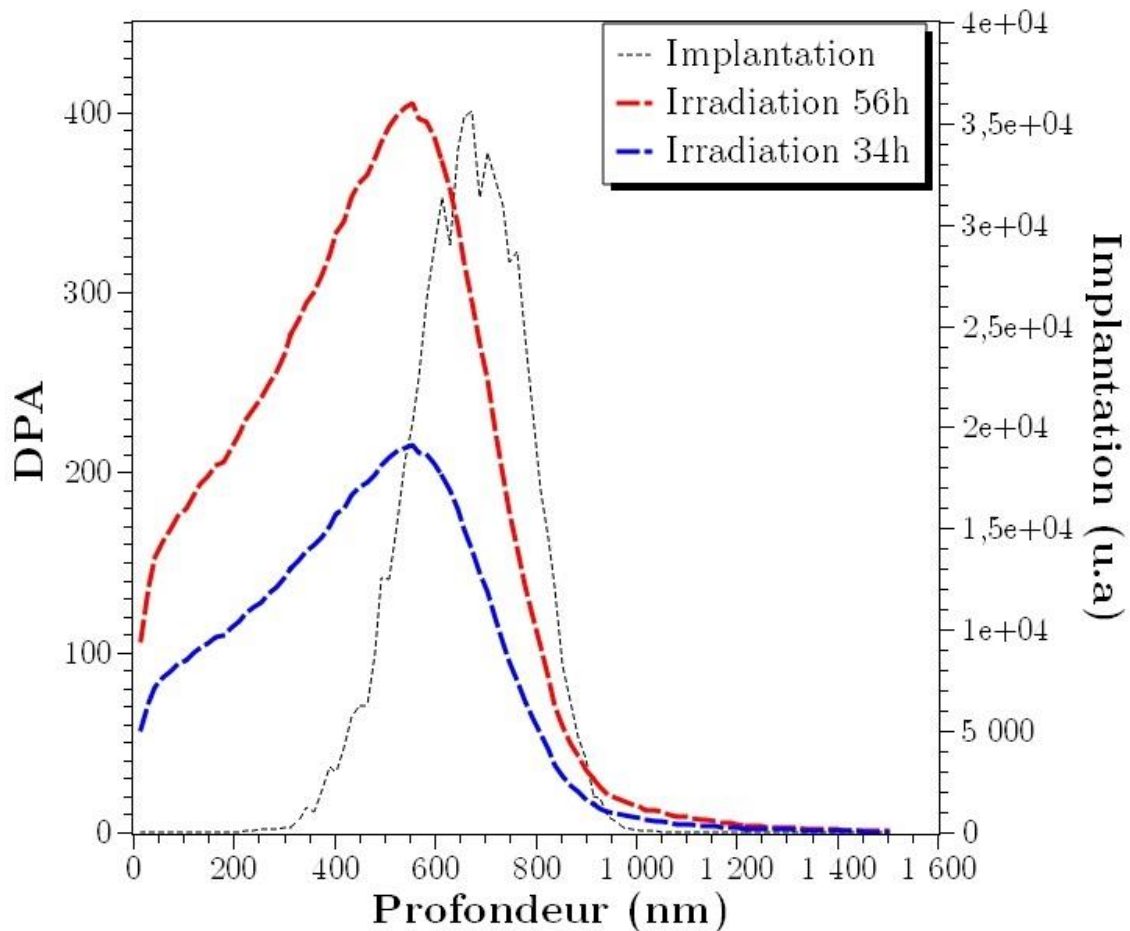


Figure 12 : Estimation des dommages et implantations obtenues lors de la campagne d'irradiation 2017

2.2 Campagne d'irradiation 2018

La campagne d'irradiation 2018 a pour objectif de reproduire des conditions de dommages les plus proches possibles de celles observées en réacteur tout en maintenant un niveau suffisant pour observer bulles et cavités. Pour ce faire, des irradiations triple faisceau ont été effectuées : le faisceau W à haute énergie (13 MeV) permet d'obtenir un maximum de dégâts tout en gardant un profil pseudo-linéaire avant le pic de dégâts. La relative profondeur du pic d'implantation permet de s'abstenir des effets de surface. Le profil général est présenté Figure 13. A cela s'ajoute un faisceau He de faible énergie (500 keV, soit le minimum pouvant être obtenu sur cet accélérateur) dont le but est de reproduire l'implantation de noyaux d'hélium observée en réacteur. Enfin, le faisceau Si vient compléter cette simulation de transmutation. Le choix de l'énergie de ce faisceau a été calibré pour que l'implantation se fasse à la même profondeur que l'hélium. Parallèlement à cette irradiation triple faisceau, une irradiation simple faisceau W dans les mêmes conditions que le triple faisceau a été entreprise pour étudier l'effet du tungstène seul. Enfin, une irradiation triple faisceau à flux de tungstène réduit de moitié a été effectuée.

2.3 Campagne d'irradiation 2019

La campagne de 2019 a pour objectif d'explorer les effets distincts de flux et de fluence. Pour ce faire, des irradiations W à haute énergie ont été entreprises. Durant l'irradiation, un cache épais en acier a été bougé afin d'obtenir trois fluences différentes pour un flux donné. Trois irradiations de ce type ont été entreprises. La Figure 14 présente les profils d'irradiation pour trois flux différents : en noir le flux le plus fort, en bleu le plus léger, en rouge le flux intermédiaire. Pour chaque flux, la dose d'irradiation complète est représentée par un rond, les échantillons ayant reçu deux tiers de la dose par un carré et enfin les échantillons ayant reçu 1/3 de la dose par un triangle. Ainsi, pour chaque irradiation, trois fluences différentes ont été obtenues pour un flux donné. Cette campagne avait pour but d'obtenir des données quantitatives afin de nourrir le modèle présenté dans le chapitre 5.

2.4 A propos des simulations SRIM

Munis des profils d'endommagement de SRIM, les lames MET brutes peuvent être polies et percées afin d'observer la zone d'intérêt choisie. Il convient cependant de préciser que les profils d'endommagements calculés par SRIM ne sont en aucun cas des valeurs absolues et précises. En effet, il s'agit en réalité d'ordres de grandeur. Aussi, bien que dans la suite du manuscrit, les valeurs de SRIM soient réutilisées, il convient de toujours garder à l'esprit que ces valeurs d'endommagement sont tout à fait relatives de même que les valeurs d'implantation.

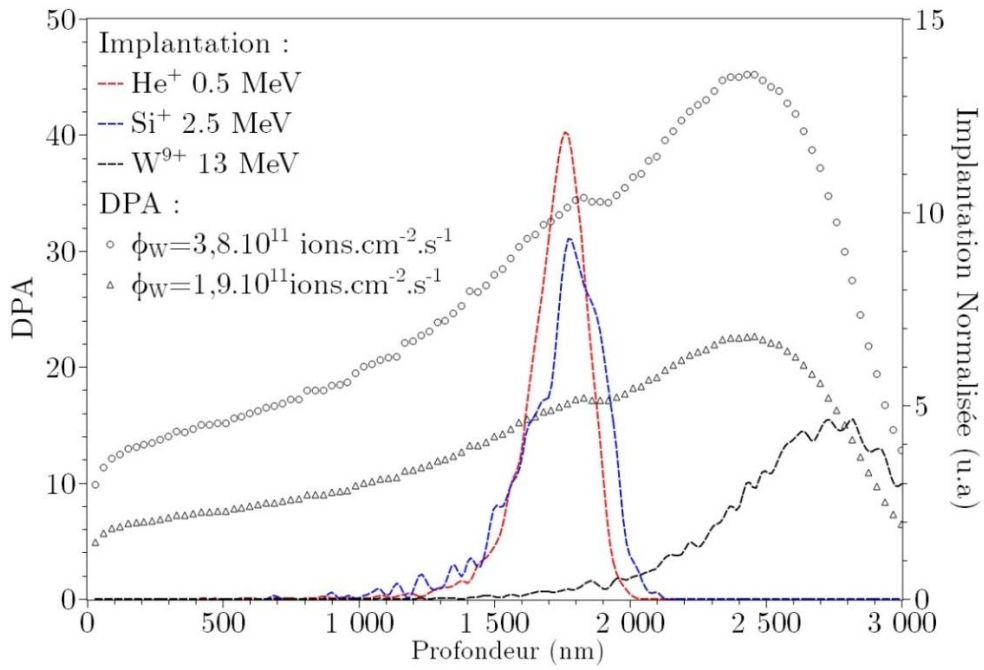


Figure 13 : Profil d'irradiation triple faisceau

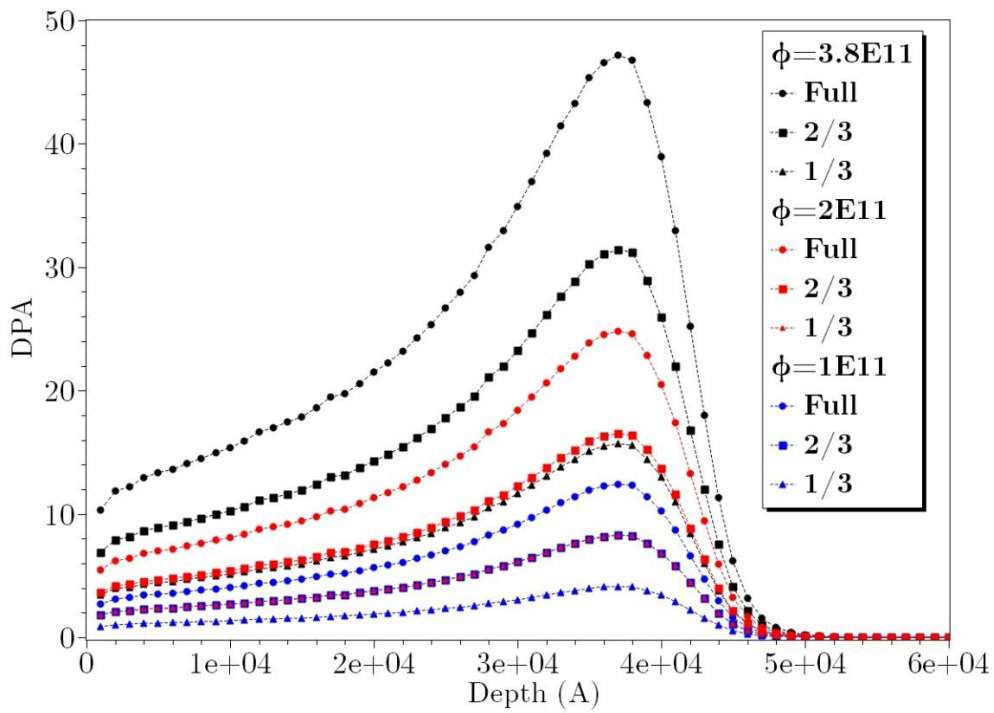


Figure 14 : Profils d'irradiation en différentiel (avec cache)

Conclusions

La diversité des méthodes expérimentales mises en jeu dans ce manuscrit témoigne de la complexité de l'étude ainsi que du réel besoin de caractériser le matériau à différentes échelles. Les liens étroits entre microstructures et propriétés tant mécaniques que physico-chimiques, exacerbées dans les alliages de la série 6000, doivent être compris afin d'évaluer le gonflement sous irradiation.

Dans un premier temps, les relations microstructures-propriétés seront évaluées hors irradiation pour chaque état de trempe. Une première analyse de la trempe et des résultats associés ainsi que la mise en œuvre de la simulation est effectuée. A la suite de ceci, les trois échelles microstructurales (micronique, submicronique et nanométrique) seront analysées par les techniques présentées dans ce chapitre (MEB, MET, EBSD, EDS, ASTAR, EELS, SAT). Enfin, des caractérisations mécaniques macroscopiques et microscopiques compléteront ces résultats et une analyse globale de ces résultats sera effectuée.

Dans un second temps des échantillons caractéristiques seront irradiés selon la procédure décrite dans ce chapitre. Ces échantillons seront caractérisés par les mêmes techniques microscopiques et une comparaison entre échantillons avant et après irradiation sera effectuée. Ces analyses s'accompagneront de quantifications des cavités et des différents défauts observés par les techniques de microscopies mises en œuvre.

La quantification des bulles et cavités amènera à la recherche d'un modèle caractéristique afin de quantifier et prévoir le gonflement d'un alliage similaire sous irradiation tout en tenant compte de l'effet de l'épaisseur sur la trempe. Pour ce faire, une brève étude bibliographique des modèles préexistants sera mise en œuvre à la suite de laquelle, un modèle sera sélectionné et adapté pour correspondre aux résultats observés dans la littérature et dans cette étude.

Bibliographie

- [1] E04 Committee. *Practice for Microetching Metals and Alloys*. Rapport, ASTM International,
- [2] CEA. *CAST3M*. (DEN/DM2S/SEMT).
- [3] Rauch E. F. et al. « Automatic crystal orientation and phase mapping in TEM by precession diffraction ». *Microsc Anal.* 2008. Vol. 22, n°93, p. S5-S8.
- [4] Rauch E. F. et al. « Automated nanocrystal orientation and phase mapping in the transmission electron microscope on the basis of precession electron diffraction ». *Z. Krist.* 2010. Vol. 225, n°2-3, p. 103-109.
- [5] Bergsma S. C., Kassner M. E. « The New Aluminum Alloy AA 6069 ». In : *Mater. Sci. Forum.* 1996.
- [6] *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope* / R.F. Egerton / Springer.
- [7] « Aluminum, EELS Spectrum ». In : *EELS.info*. 2015.
- [8] Miller M. K. et al. « The future of atom probe tomography ». *Mater. Today*. 1 avril 2012. Vol. 15, n°4, p. 158-165.
- [9] Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. « SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010) ». *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*. juin 2010. Vol. 268, p. 1818-1823.
- [10] Garric V. *A python alternative to SRIM*. 2018.
- [11] Serruys Y. et al. « JANNUS: A multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of the atomistic modelling ». *J. Nucl. Mater.* 30 avril 2009. Vol. 386-388, p. 967-970.

CHAPITRE 3 : CARACTERISATION HORS IRRADIATION

Ce chapitre présente les caractérisations microstructurales et mécaniques avant irradiation. Première, une analyse des données issues des traitements thermiques ainsi qu'une modélisation sera présentée. La microstructure des différentes nuances métallurgiques sera ensuite analysée à différentes échelles et sera suivie d'une caractérisation mécanique. Enfin, un schéma de précipitation sera proposé.

I.	Traitements thermiques	85
1.	Résultats expérimentaux.....	85
2.	Simulation numérique de la trempe.....	87
II.	Etude de la microstructure.....	92
1.	Echelle micronique.....	92
3.	Echelle submicronique	102
2.	Echelle nanométrique	112
III.	Caractérisations mécaniques	121
1.	Essais de traction	121
2.	Microdureté Vickers.....	125
	Conclusions et proposition d'un schéma de précipitation.....	130
	Bibliographie.....	132

I. Traitements thermiques

La caractérisation des matériaux avant irradiation est primordiale afin de connaître les microstructures type d'une pièce massive. Les traitements thermiques présentés ici ont pour but de simuler des cas extrêmes de trempe afin de mieux comprendre le comportement mécanique et la microstructure associée à des vitesses de trempe différentes.

1. Résultats expérimentaux

Trois cubes en aluminium 6061-T6 ont été soumis à un traitement thermique T6 avec un fluide de trempe différent (eau, huile, air). Les cubes trempés à l'eau et l'air étaient équipés de thermocouples permettant de suivre la vitesse de trempe. La Figure 1 présente les courbes de trempe mesurées pour ces deux cubes.

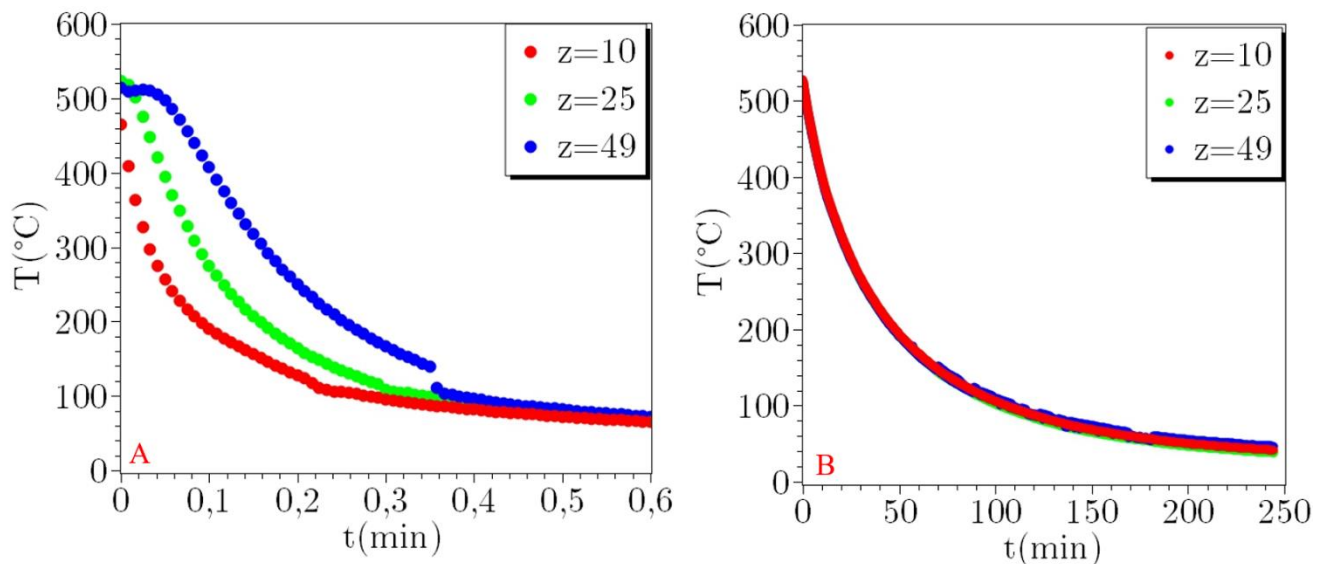


Figure 1 : Courbes de trempe brute pour la trempe eau (A) et air (B). Les valeurs de z correspondent à des profondeurs en mm, le cube ayant une arête de 98 mm

Sur la courbe de refroidissement du cube trempé eau, Figure 1.A, on observe un décalage très net des trois jeux de données récoltés par les trois thermocouples à différentes profondeurs ($z=10, 25, 49$ mm). L'aspect général montre un refroidissement d'autant plus lent que le thermocouple est implanté profondément, ce qui est en accord avec la physique de transferts thermiques. Il est à noter cependant que le thermocouple le plus profond ($z=49$) présente un saut de température aux alentours de l'abscisse 0,35 minutes. Cette baisse brutale de température est à une dégradation du contact entre le matériau et ce dernier. En effet, pour des raisons techniques, le trou d'insertion du thermocouple possède un diamètre double de celui du thermocouple lui-même (voir Annexe C). Dans la pratique, ce trou a été bouché à l'aide de feuillards d'aluminium. Les courbes de refroidissement du cube trempé air, Figure 1.B, montrent un comportement tout à fait différent du trempé eau. En effet, une superposition des courbes correspondant aux différentes profondeurs est observée. D'autre part, le temps nécessaire pour

obtenir l'équilibre thermique est plus de 400 fois supérieur pour la trempe air que pour la trempe eau, passant de 0,6 à 250 minutes.

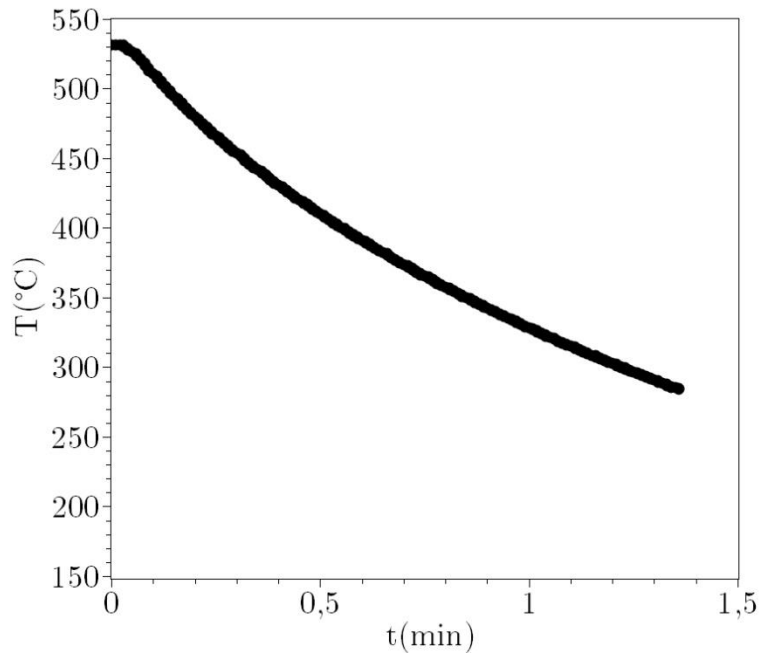


Figure 2 : Courbe du thermocouple de régulation de la chambre lors de la trempe à l'huile

La Figure 2 présente la courbe de refroidissement de la chambre de trempe du cube trempé huile. Obtenue auprès du prestataire ayant effectué la trempe, cette courbe ne donne qu'une estimation du refroidissement du cube puisque le thermocouple d'où sont issues les données n'est pas en contact avec le cube mais avec le fluide de trempe. Cependant, l'aspect linéaire très marqué de cette courbe de même que la valeur faible de vitesse de trempe extrapolée (Tableau 1), fait que cette courbe est assez peu représentative de la température dans le cube lors de la trempe à l'huile. En outre elle suppose une trempe homogène dans tout le cube.

Les vitesses de trempe ont été estimées selon la norme utilisée dans le cas des alliages d'aluminium de série 6000 et validée par le RJH. Ainsi, la vitesse de trempe, v_q est définie par le coefficient directeur de la régression linéaire de la courbe de refroidissement entre 400°C et 200°C, soit:

$$T = -v_q \cdot t + a$$

Le Tableau 1 présente les vitesses de trempe ainsi obtenues pour les 3 cubes et à différentes profondeurs pour les trempes à l'air et à l'eau: le cube trempé à l'eau présente, à première vue, une variation de la vitesse de trempe de près de $20^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ dans une épaisseur de 39 mm. En outre, cette vitesse de trempe est toujours supérieure à la vitesse critique de trempe ($v_c=10^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$). Cependant, la valeur du thermocouple ($z=49\text{mm}$) présentant une anomalie, cette valeur peut être biaisée. La trempe à l'air montre quant à elle une vitesse de trempe, $5,2^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, bien inférieure à v_c . Enfin, la valeur de trempe huile est donnée à

titre indicatif du fait de l'incertitude sur la courbe de refroidissement et qu'elle ne présente pas tous les points sur l'intervalle [400°C,200°C] d'autre part.

	Eau	Air	Huile
10 mm	40	9.10^{-2}	3*
25 mm	30	9.10^{-2}	
49 mm	23	9.10^{-2}	

**Tableau 1 : Vitesses de trempe déduites des profils de température en fonction de la profondeur ($^{\circ}\text{C}.\text{s}^{-1}$).
(*) : estimation de la vitesse de trempe par le thermocouple de régulation de la chambre**

2. Simulation numérique de la trempe

Les vitesses de trempe très différentes observées pour la trempe à l'eau laissent présager des différences de microstructure en fonction de la profondeur. Afin de mieux évaluer la vitesse de trempe en chaque point du cube, une simulation numérique par éléments finis usant le code CAST3M [1] a été entreprise. Un premier modèle a été envisagé, en tenant compte de facteurs et données invariants par rapport à la température et au temps.

Paramètres matériaux du 6061-T6

Masse volumique ($\text{kg}.\text{m}^{-3}$)	2700
Capacité calorifique ($\text{J}.\text{kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	896
Conductivité thermique ($\text{W}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	167
Coefficient de transfert convectif ($\text{W}.\text{m}^{-2}.\text{K}^{-1}$)	
Eau	$1.10^1 - 1.10^4$
Gaz	1 - 50
Huile	10 - 600

Tableau 2 : Résumé des caractéristiques physique de la trempe [2-4]

Le Tableau 2 résume les paramètres matériaux et fluide de trempe. L'élimination de chaleur liée aux matériaux (conduction) présente des valeur fixes, les valeurs liées à l'élimination de chaleur par le fluide de trempe et donc l'interface matériau-fluide sont extrêmement variables en fonction de la nature du fluide. De plus pour chaque fluide, le coefficient de convection thermique peut, suivant l'état du fluide (convection forcée, écoulement turbulent, laminaire) prendre des valeurs différentes et être influencé par la trempe elle-même. Dans cette optique, le choix d'un écoulement turbulent s'est dans un premier temps imposé.

Pour les simulations CAST3M, le cube a été discrétisé en 125 000 éléments cubiques de 1.96 mm de côté. Une première simulation de la trempe eau avec un coefficient convectif fixe de $3.10^3 \text{ W}.\text{m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ est présentée Figure 3.

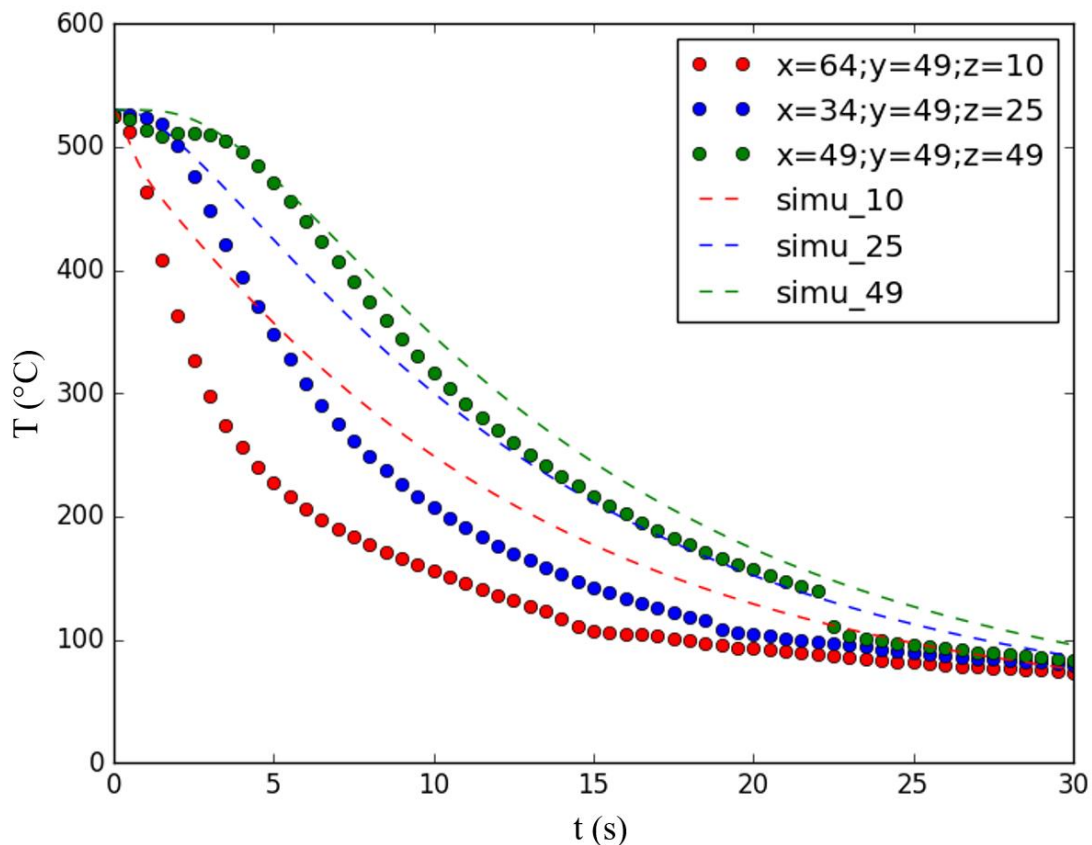


Figure 3 : Simulation numérique de la trempe pour un coefficient de transfert convectif constant

Outre la faible superposition aux temps courts des courbes expérimentales et simulées, on observe une grande similitude des pentes des courbes simulées en fonction de la profondeur contrairement aux données expérimentales qui présentent des comportements assez différents en fonction de la position du thermocouple. Cette différence notable sur le comportement global du refroidissement expérimental et simulé témoigne d'un comportement mal compris et mal pris en compte dans le modèle simulé : la convection thermique. L'étude des variations de coefficient convectif dans les aciers par Hasan [5] a montré qu'il est capital d'estimer correctement les variations temporelles de ce coefficient. Physiquement, le coefficient de transfert convectif s'exprime comme :

$$h(t) = \frac{\rho V C_p}{A(T_s - T_\infty)} \frac{\partial T}{\partial t}(t)$$

$$\rightarrow h(t) = k_0 \frac{\partial T}{\partial t}(t)$$

Avec ρ la masse volumique du matériau, V le volume de la pièce trempée, C_p la capacité calorifique du matériau, A la surface en contact avec le fluide, T_s la température du matériau avant sa trempe et T_∞ la

température d'équilibre. D'autre part, la variation temporelle $\frac{\partial T}{\partial t}(t)$ est définie comme le refroidissement instantané à l'interface matériau-fluide.

Dans le cas présenté ici, aucune instrumentation en surface des cubes n'avait été effectuée. Une méthode analytique d'estimation de $h(t)$ a donc été entreprise. La première étape consiste à considérer qu'il existe un coefficient de transfert convectif virtuel h_v à l'intérieur du matériau. Ce coefficient est dépendant de la profondeur z : $h_v(z,t)$. En utilisant les données des thermocouples et sachant que k_0 vaut, dans le cas des cubes étudiés, $77,5 \text{ W.s.m}^{-2}.\text{K}^{-2}$. On obtient alors les courbes h_v de chaque thermocouple présentées Figure 4.

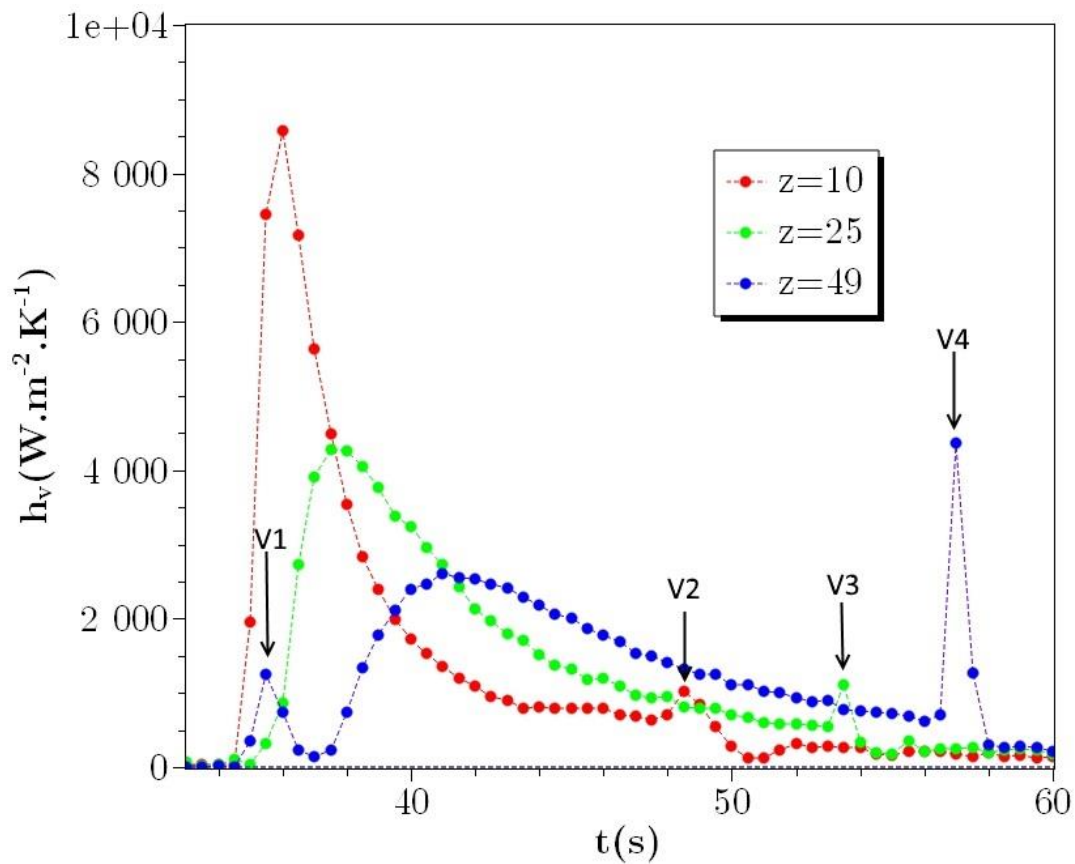


Figure 4 : Coefficient de convection thermique virtuel expérimental calculé pour chaque thermocouple

Les courbes de convection virtuelles construites à partir des profils thermiques expérimentaux exacerbent les sauts de linéarité de ces profils. Deux importantes variations sont observées dans le cas du thermocouple le plus profond (notées V1 et V4) : ces variations confirment la possibilité d'un défaut de contact du thermocouple en tout début et en fin de trempe. Les variations inhabituelles notées V2 et V3 pourraient également témoigner d'un retour du contact du thermocouple. Cependant ces évènements se produisant en dehors de l'intervalle servant à la lecture de la vitesse de trempe ($[400 \text{ }^\circ\text{C} ; 200 \text{ }^\circ\text{C}]$), ils ne modifient donc pas l'interprétation des données.

Les courbes de convection virtuelles étant obtenues, la seconde étape consiste à estimer la variation du maximum des coefficients virtuels de convection thermique selon une régression exponentielle de type :

$$\max(h_v(t))(z) = A \cdot e^{-k \cdot z} + B$$

Ce qui donne la relation suivante:

$$\max(h_v(t))(z) = 1.8 \cdot 10^4 e^{-z/10} + 3.10^3$$

Compte tenu des hypothèses formulées précédemment, le maximum du coefficient de convection thermique réel s'exprime comme :

$$\max(h_v(t))(z = 0) \sim \max(h(t)) = 21.10^3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$$

En s'appuyant sur la forme des courbes présentée par Hasan [5] et les résultats du thermocouple le plus proche de la surface, une variation simplifiée de h a été estimée et est présentée Figure 5. L'implantation dans CAST3M de ce modèle des variations du coefficient de transfert thermique aboutit aux résultats présentés Figure 6.

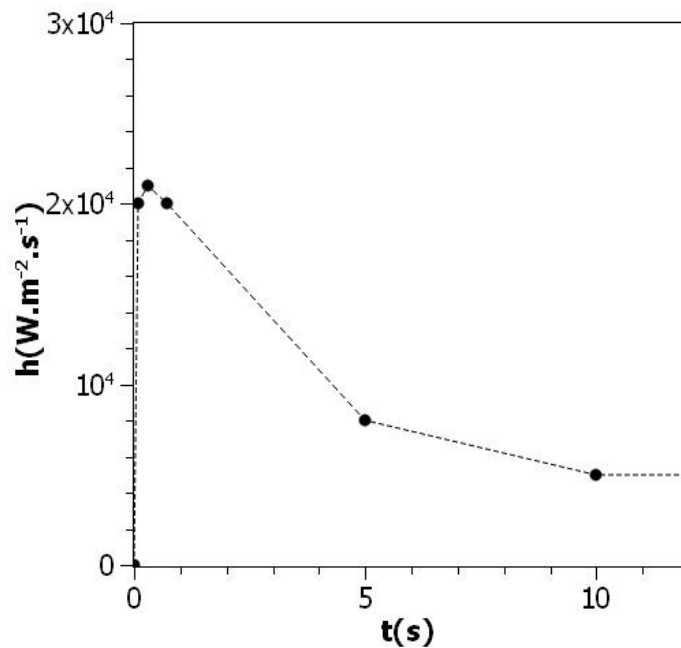


Figure 5 : Variations de h estimées de manière analytique

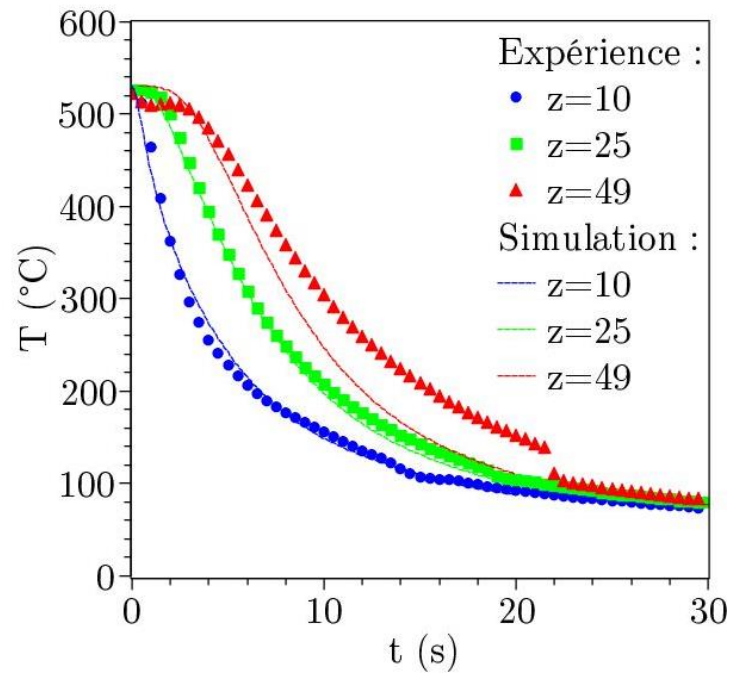


Figure 6 : Comparaison expérimental-simulation de la trempe à l'eau, en usant d'un coefficient h variable

Le profil de température en fonction du temps calculée avec un coefficient h variable représente mieux les variations observées expérimentalement. Les courbes $z=10$ et $z=25$ montrent un écart simulation-expérience négligeable tandis que la courbe du thermocouple le plus profond présente un écart plus important, probablement à cause d'un mauvais contact entre le cube et le thermocouple. Bien que cet écart puisse paraître négligeable, une modification importante de la pente, et donc de la vitesse de trempe, amène à une estimation erronée de cette dernière. La Figure 7 représente la variation de vitesse de trempe en fonction de la profondeur au centre d'une face du cube, à l'aplomb de ce dernier extraite à partir des résultats de la simulation.

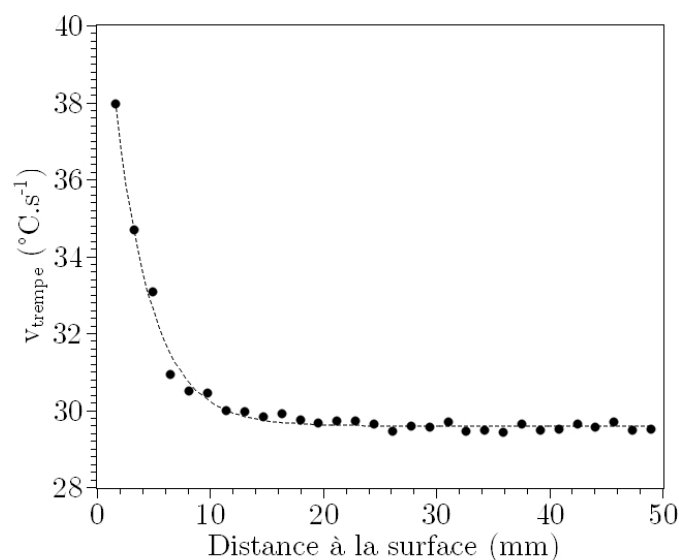


Figure 7 : Variation de la vitesse de trempe en fonction de la profondeur à l'aplomb d'une face du cube

La vitesse de trempe est très élevée en surface et supérieure à la vitesse critique de trempe. De plus, elle présente une importante variation dans une relativement faible épaisseur. Sur les quinze millimètres depuis la surface vers la profondeur la vitesse de trempe chute brutalement de plus de $38^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ à moins de $30^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$. Cet effet sera dénommé dans la suite de ce manuscrit comme *l'effet de peau* dû à la trempe. Au-delà de cette « peau », la vitesse de trempe semble se stabiliser en deçà de $30^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$.

Les vitesses de trempe observées dans cette partie montrent de grandes différences en fonction des fluides de trempe : la trempe eau présente des valeurs largement au-dessus de la vitesse critique de trempe alors que la trempe air est très en dessous de plusieurs ordres de grandeur. La trempe huile est quant à elle supposée proche de la vitesse critique de trempe. En outre, l'épaisseur de l'échantillon semble influencer notablement sur cette dernière, formant ainsi un gradient de vitesse de trempe dans l'épaisseur.

II. Etude de la microstructure

Comme expliqué dans le chapitre 1, la microstructure des alliages d'aluminium peut s'observer à trois échelles distinctes : l'échelle micronique observée au MEB, l'échelle submicronique et l'échelle nanométrique toutes deux observées au MET et à la SAT. Dans cette partie, une étude comparative de la microstructure aux trois échelles va être élaborée.

1. Echelle micronique

A l'échelle micronique, deux études ont été entreprises. Dans un premier temps, une caractérisation des phases intermétalliques au fer (IMF) en fonction de la vitesse de trempe a été entreprise. Dans un second temps, une analyse de la taille de grains a été conduite. Pour des raisons techniques, seules les trempes eau et huile, représentatives du caisson industriel, ont été observées à cette échelle.

1.1 Caractérisation des phases intermétalliques au fer

La répartition des IMF a été examinée pour les deux états de trempe : eau et huile. Pour chaque état de trempe, deux échantillons représentatifs de la trempe ont été prélevés à travers les cubes comme indiqué sur la Figure 8 : l'un proche du cœur, l'autre proche surface.

Préalablement aux quantifications, une analyse chimique EDS a été entreprise afin d'identifier les phases présentes dans les IMF avec pour base de comparaison les phases identifiées dans la littérature. La Figure 9 présente un cliché large d'analyse des IMF par EDS sur un échantillon trempé huile. L'image MEB en contraste des électrons rétrodiffusés révèle des gros grains séparés par des zones plus riches en éléments lourds dont la morphologie évoque des espaces interdendrites ayant évolué sous l'effet du forgeage (Figure 9.a).

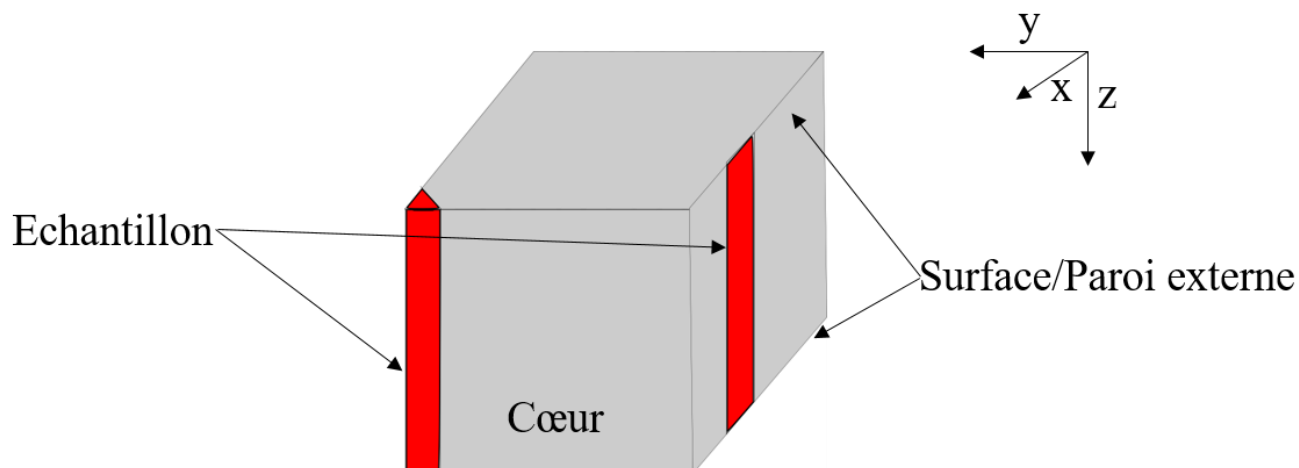


Figure 8 : Zones de prélèvement des échantillons dans 1/8^{ème} du cube pour les analyses IMF

Dans les espaces entre grains principalement, on observe des particules globulaires ayant un contraste très sombre et des particules alliages de contraste plus clair. Les cartographies EDS montrent la présence importante du fer dans les particules allongées. La présence du silicium dans ces derniers n'est pas systématique mais localisée.

Cependant, le silicium semble être présent dans les petites particules globulaires de contraste sombre et ce, de manière conjointe avec le magnésium. Ces phases sont cohérentes par leur chimie et leur morphologie avec des particules Mg_2Si grossières n'ayant pas été dissoutes/assimilés durant la forge et la mise en solution de l'alliage.

La répartition du manganèse et du chrome semble être homogène dans le matériau bien que leur possible faible concentration dans ces phases microniques puisse être en deçà du seuil de détection de l'EDS.

Compte tenu de la taille des particules et des limites de la détermination de composition en MEB EDS, nous chercherons seulement à reconnaître les particules sur la base de la bibliographie des phases rencontrées dans les alliages Al-Mg-Si. L'identification des particules IMF d'après les données de la littérature amène à exclure tout d'abord $\alpha-Al_{15}(FeMn)_3Si$ dû à la faible concentration de manganèse mesurée.

Les fortes concentrations de magnésium mesurées semblant être en dehors des IMF, $\pi-Al_8FeMg_3Si_6$ peut aussi être exclue. L'observation de la morphologie allongée de ces phases permet l'exclusion de $\beta-Al_3FeSi$ et l'identification de phases type $\alpha-Al_8Fe_2Si$.

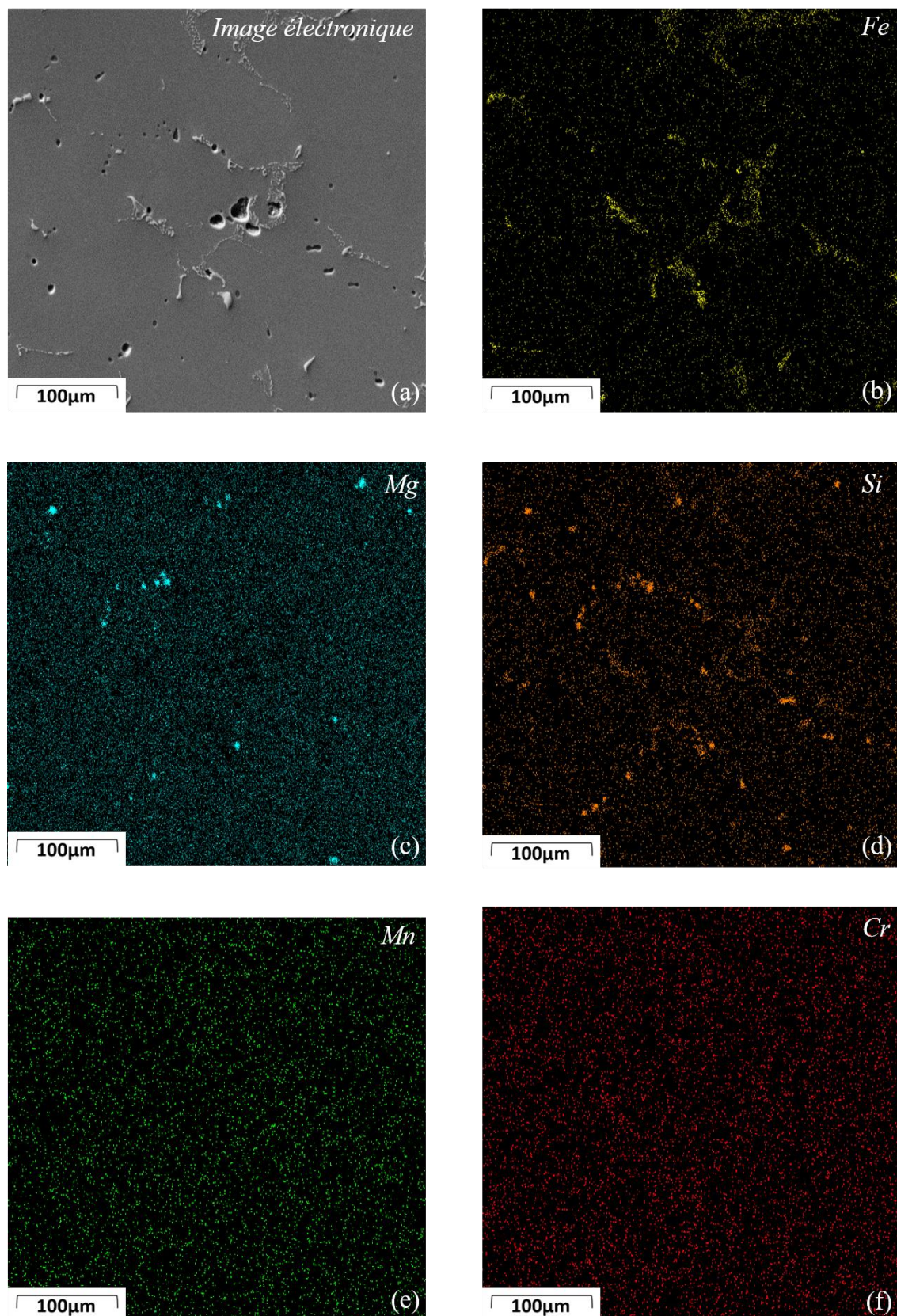


Figure 9 : Analyse EDS en surface sur un échantillon trempé huile : (a) image MEB, contraste SE, (b) : fer, (c) : magnésium, (d) : silicium, (e) : manganèse, (f) : chrome

Une comparaison plus fine des Figure 9.a, c et d montre la présence de détails de contraste noir où ni le silicium ni le magnésium ne sont présents. Il s'agit de porosités inhérentes au matériau qui apparaissent lors de la coulée². Mais certains trous s'avèrent être des cavités attestant de la présence de phases Mg_2Si grossières. En effet, ces phases très fragiles sont la plupart du temps arrachées par les étapes de polissage et de découpe. La concentration en magnésium et silicium locale révélée par EDS constitue donc un témoignage de la présence antérieure de ces phases.

Préalablement à la mesure de fraction surfacique à partir de l'imagerie MEB en elle-même, un choix de grandissement optimum doit être effectué pour deux raisons. Premièrement, les IMF ne sont pas les seuls précipités visibles à l'échelle micronique au MEB. Des particules grossières de Mg_2Si sont également présentes, toutefois l'analyse d'image au moyen d'Image J peut les différencier en fonction de leur taille/leur contraste. D'autre part, il est souhaitable de travailler à un grandissement suffisamment faible pour réduire le nombre d'images utilisées tout en garantissant une bonne précision sur les mesures.

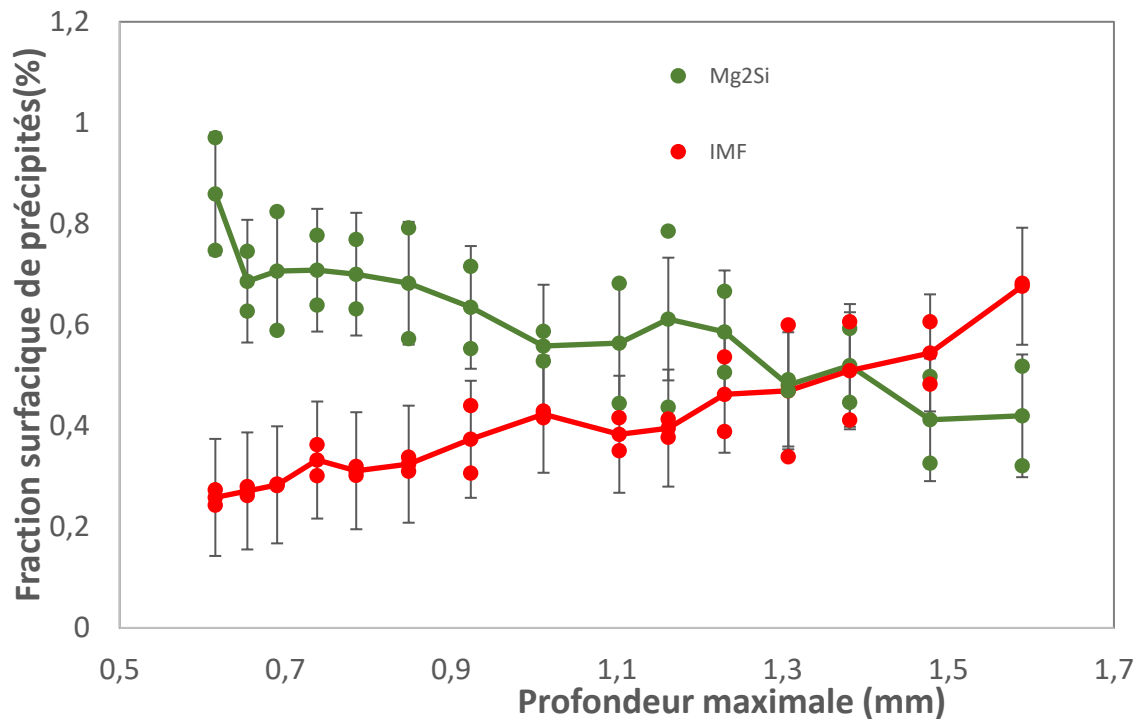


Figure 10: Fraction surfacique d'IMF et de Mg_2Si en fonction de la profondeur maximale analysée. Plusieurs points de la même série à une même abscisse représentent plusieurs mesures.

La Figure 10 représente la fraction d'IMF et de Mg_2Si en fonction de la surface de l'image (*i.e* du grandissement). Le champ imagé en MEB étant défini avec une longueur selon la direction z du prélèvement et sa largeur étant constante, cette surface évolue comme la profondeur z . Une image MEB présentant les différences morphologiques entre IMF et Mg_2Si est présentée Figure 11.

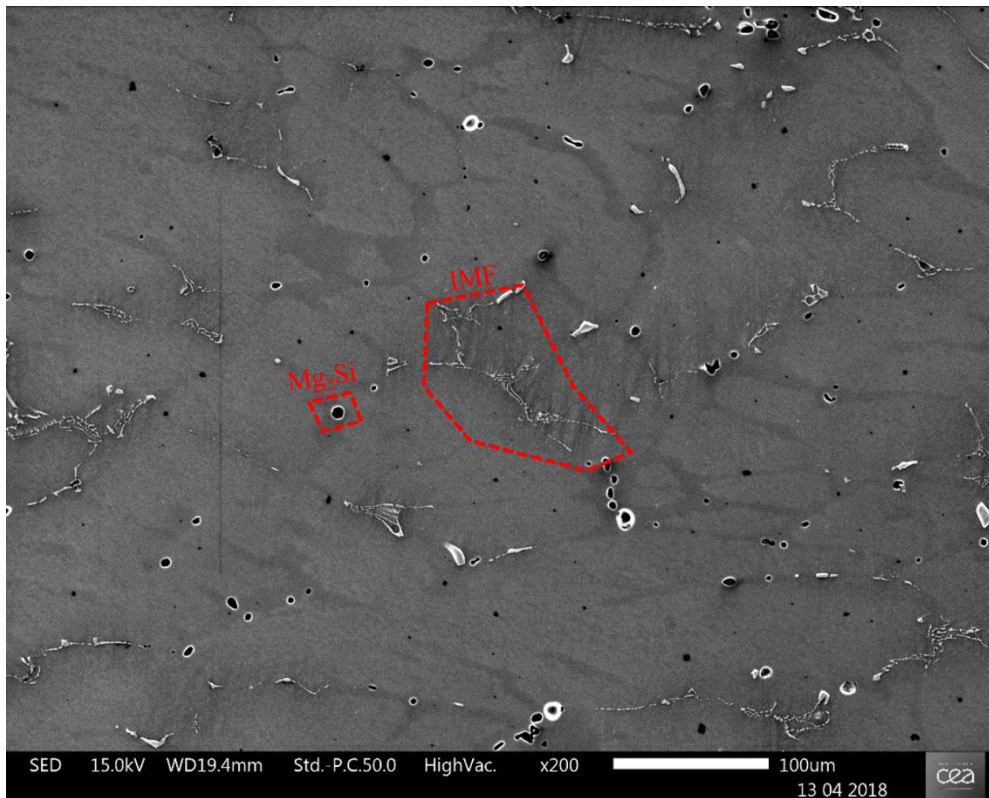


Figure 11 : Image MEB présentant les différences morphologiques entre IMF et Mg₂Si

Il est observé sur la Figure 10 une importante dispersion des résultats en fonction du grandissement choisi. Les particules Mg₂Si peuvent être assimilées à des sphères dont le diamètre moyen avoisine les 5 µm. Les IMF quant à eux se présentent sous la forme de regroupement de particules très allongées. Ces regroupements peuvent atteindre plusieurs centaines de microns pour une largeur comprise entre 2 et 5 microns. L'observation des valeurs de surface occupée en fonction du grandissement présenté Figure 10 montre une variation non négligeable en fonction du grandissement.

On note d'abord que, près de la surface, la fraction de particules Mg₂Si est supérieure aux IMF ; en progressant dans la profondeur, la fraction d'IMF croît et celle des particules Mg₂Si décroît. Il est observé que la variation du nombre de précipités entre les deux zones considérées est plus importante pour les Mg₂Si que pour les IMF. Cependant, l'étude ne portant que sur les précipités micrométriques visibles au MEB, c'est sur le niveau de dispersion de ces derniers que l'on va s'appuyer. On peut observer ainsi que, pour des images ayant une surface comprise entre 0 et 0,72 mm², la fraction surfacique des IMF ne varie que de 0,23 à 0,32 %, le tout avec une faible dispersion des valeurs. Au-delà de cette surface limite, la fraction surfacique devient supérieure à 0,4%, mais surtout, la dispersion est beaucoup plus importante, atteignant par endroits plus de 0,1% d'écart, au-delà des barres d'erreur. Une première mise en évidence de l'évolution de la densité de précipités à mesure que l'on va de la surface vers le cœur de l'échantillon est ainsi faite. En effet, tant que la surface considérée est en-dessous de 0,72 mm², l'étude du matériau se fait au niveau local, de sorte que la précipitation est globalement homogène. En revanche, pour de plus grandes surfaces, la différence de taux de précipitation entre les

deux zones choisies devient progressivement plus évidente jusqu'à ce que, la zone de l'échantillon considérée étant suffisamment importante, la densité semble à nouveau homogène. Pour cartographier l'échantillon, des images de 0,72 mm² seront donc choisies, soit un grossissement de x130. Les particules ayant une surface moyenne de 1 μm² et le nombre moyen de particules par image étant d'environ 4000.

Les Figure 12.a et b présentent les variations de densité d'IMF obtenues par analyse d'image sur les échantillons cœur et externe sur les trempes eau et huile en fonction de la profondeur. Le Tableau 3 représente la fraction surfacique moyenne d'IMF pour les quatre échantillons à deux profondeurs différentes.

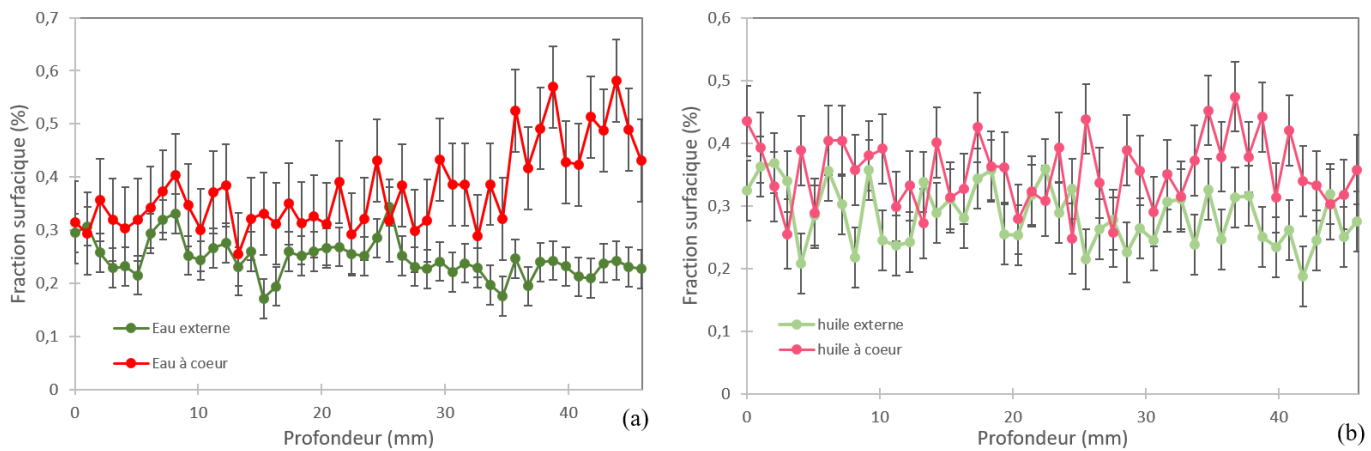


Figure 12: Densités d'IMF à cœur et en surface extérieure : (a) : trempé eau, (b) : trempé huile

	Huile		Eau	
	Externe	Cœur	Externe	Cœur
0 < x < 23,46	0,21	0,36	0,26	0,34
23,46 < x < 46	0,28	0,36	0,24	0,36

Tableau 3 : Fraction surfacique moyenne de précipités IMF (%) en fonction des types de fluide et de la zone du cube considérée

La Figure 12.a présente une variation erratique de la fraction surfacique d'IMF dans l'échantillon prélevé à cœur sur le cube trempé eau. On observe cependant une nette augmentation de la fraction surfacique moyenne d'IMF à partir de 30 mm de profondeur. Sur l'échantillon prélevé sur la paroi externe du cube, la fraction surfacique semble globalement constante. En outre, l'erreur moyenne sur l'échantillon prélevé à cœur montre une dispersion beaucoup plus importante que dans le cas de l'échantillon prélevé sur la partie externe du cube.

La Figure 12.b montre une fraction surfacique d'IMF relativement constante. Les deux échantillons, l'un prélevé sur la paroi externe et l'autre sur la paroi interne, présentent des variations similaires.

Le Tableau 3 répertorie les fractions de particules en surface et au milieu du cube. On constate que, pour une profondeur donnée, celle-ci est plus importante dans les zones à cœur que sur les parois mais reste sensiblement identique pour les deux traitements. On notera malgré tout un écart plus important entre les fractions externes.

De ces observations, on constate d'une part une influence modérée de la vitesse de trempe sur les IMF. En effet, bien que des différences de fraction de ces derniers aient été observés sur le trempé eau, les fractions obtenues restent dans une gamme identique située entre 0,2 % et 0,4 %. D'autre part les variations de fraction observées à cœur sur le cube trempé eau semblent indiquer une variation inattendue de la vitesse de trempe ou bien encore un changement de régime. Cette incidence pourrait avoir lieu sur la nature chimique et cristallographique de ces précipités. L'évolution de la fraction surfacique pourrait aussi être due à des évolutions de la composition des phases. Comme explicité précédemment, la faible variation de densité d'IMF ne permet pas de conclure quant à un effet important de la vitesse de trempe sur ces phases grossières. D'autre part, un effet sur la taille de grain pourrait être observé, ce qui est analysé plus en détail dans la partie suivante.

1.2 Taille de grains et orientation cristallographique

L'analyse EBSD effectuée dans le cadre de cette étude a pour but de mettre en lumière de possibles modifications de taille de grain et d'orientation ayant pu survenir du fait d'une variation de la vitesse de trempe. En effet, du fait de la température élevée lors de la mise en solution (530°C), une recristallisation partielle n'est pas exclue. Comme expliqué dans le chapitre 2 et dans le paragraphe précédent, les analyses microstructurales se sont concentrées sur les cubes trempés eau et huile. Pour chaque cube, un échantillon « extérieur » proche de la surface et un échantillon « intérieur » proche du cœur ont été prélevés. Pour chaque échantillon, deux moitiés « surface » et « cœur » ont été analysées séparément.

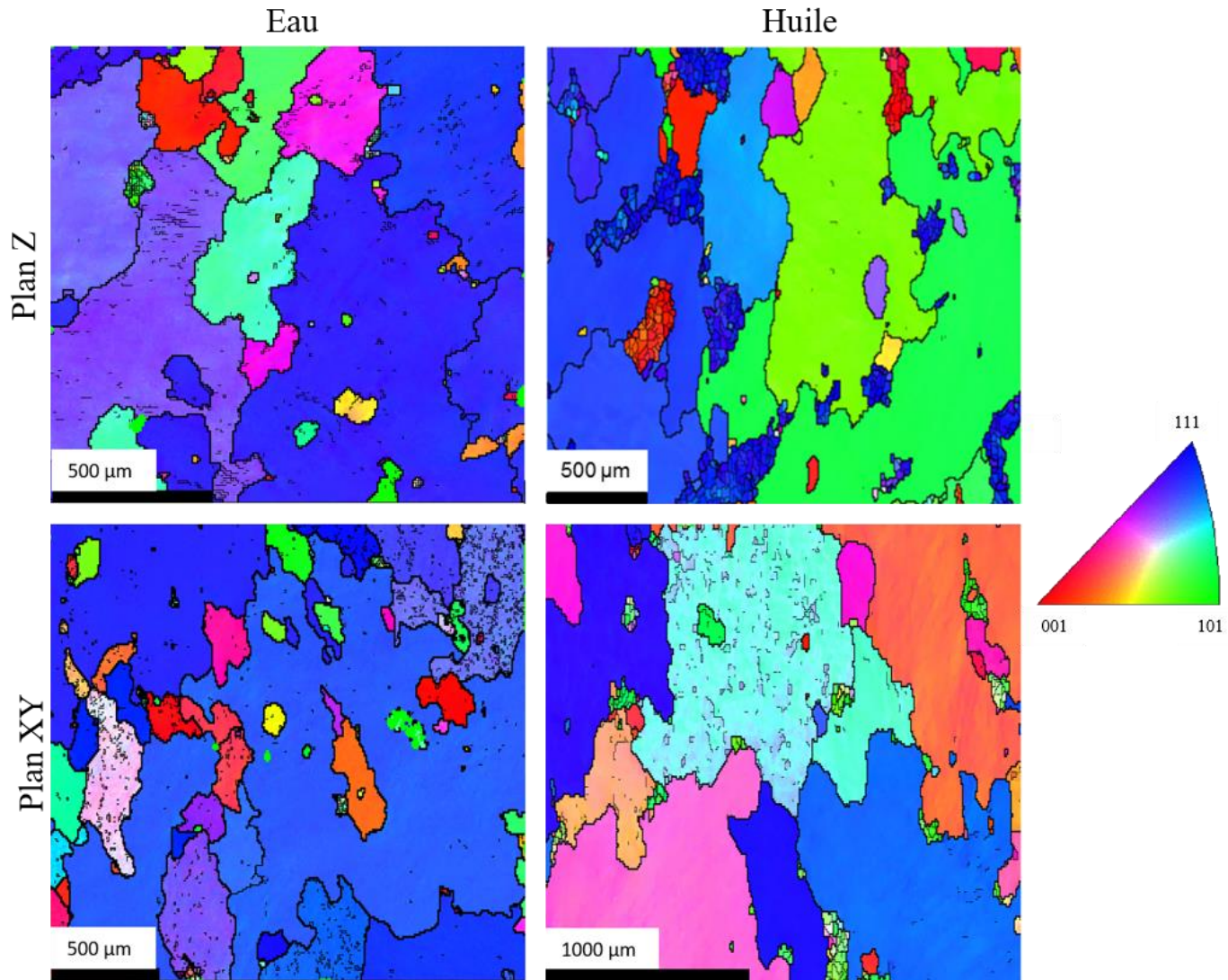


Figure 13 : Cartographies EBSD sur différents échantillons selon différents plans

La Figure 13 présente des cartographies d'orientation issues de l'EBS sur des échantillons choisis. Ces cartographies sont représentatives des observations effectuées. Un plus grand échantillon de cartographie est fourni en annexe F. On y observe que les échantillons trempés eau observés selon le plan Z présentent majoritairement des grains selon les plans de bas indice ([100], [110] et [111]). Cependant, les grains selon le plan Z montrent des morphologies très étirés, laissant penser à des colonnes tandis que les observations dans le plan XY présentent des formes de nappes étalées. Cette observation pourrait trouver son origine dans le forgeage libre du matériau. Ces observations laissent à penser à une forme de croissance colonnaire selon le plan Z. Les résultats de cette analyse présentés Figure 14 montrent que les tailles de grains peuvent être séparées en trois populations distinctes : les grains dont le diamètre équivalent est inférieur à 200 µm, ceux dont le diamètre équivalent est compris entre 200 µm et 600 µm et enfin ceux dont le diamètre équivalent est supérieur à 600 µm. Le diamètre équivalent étant défini comme le diamètre du cercle d'une surface équivalente à celle du grain.

Dans tous les échantillons présentés Figure 14, une distribution similaire des grains de diamètre inférieur à 200 μm est observée quelle que soit la zone de prélèvement de l'échantillon. Les échantillons trempés eau (Figure 14.a et b) ne présentent que très peu de grains de taille supérieure à 600 μm et aucun n'exécède 1500 μm de diamètre équivalent. Pour chaque échantillon, une centaine de grains ont été analysés. Dans le cas des échantillons trempés huile (Figure 14.c et d) leur nombre semble augmenter et de très gros grains ($d > 1500 \mu\text{m}$) apparaissent. Une observation plus fine de ce phénomène montre que les grains intermédiaires ($200 \mu\text{m} < d < 600 \mu\text{m}$) très présents dans le trempé eau (Figure 14 a et b) semblent avoir disparu dans cas du trempé huile (Figure 14 c et d) au profit de la population de grains très grossiers ($d > 600 \mu\text{m}$). En complément de ces observations effectuées dans le plan XY, une observation dans un plan perpendiculaire doit être effectuée. Pour ce faire, des échantillons ont été prélevés dans un plan perpendiculaire aux échantillons précédents. Les résultats de ces observations sont présentés Figure 15.

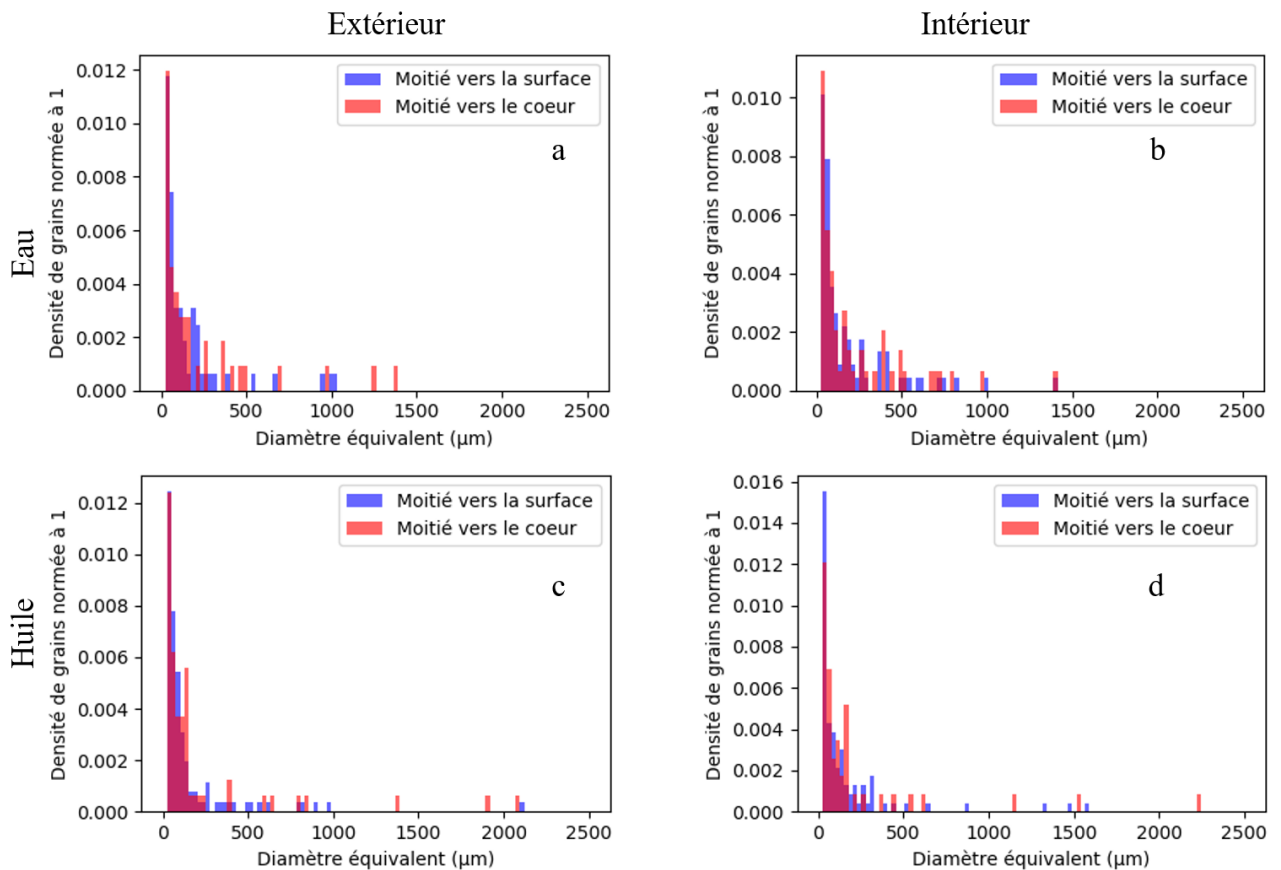


Figure 14 : Fréquence de la taille de grains analysée par EBSD en fonction de la position de l'échantillon et des conditions de trempes. (a) : trempé eau, échantillon extérieur (107 grains), (b) : trempé eau, échantillon intérieur (148 grains), (c) : trempé huile, échantillon extérieur (166 grains), (d) : trempé huile, échantillon intérieur (138 grains)

Orientation	Trempe	Prélèvement	Observation	$0 \mu\text{m} < d < 200 \mu\text{m}$	$200 \mu\text{m} < d < 600 \mu\text{m}$	$600 \mu\text{m} < d$
Z	Eau	Extérieur	Surface	8,4	20,9	70,7
			Cœur	3,9	17,7	78,4
		Intérieur	Surface	6,7	31,6	61,8
			Cœur	4,7	25,6	69,7
	Huile	Extérieur	Surface	4,7	18	77,3
			Cœur	3,2	5,9	90,8
		Intérieur	Surface	5,2	15,6	79,3
			Cœur	5,5	5	89,5
XY	Eau	Extérieur	Plan	9,3	31,7	59
		Intérieur		4,3	14,2	81
	Huile	Médian		2,3	4,9	92,8

Tableau 4 : Répartition en surface des grains analysés par EBSD en fonction de leur diamètre équivalent et des conditions de l'échantillon observé

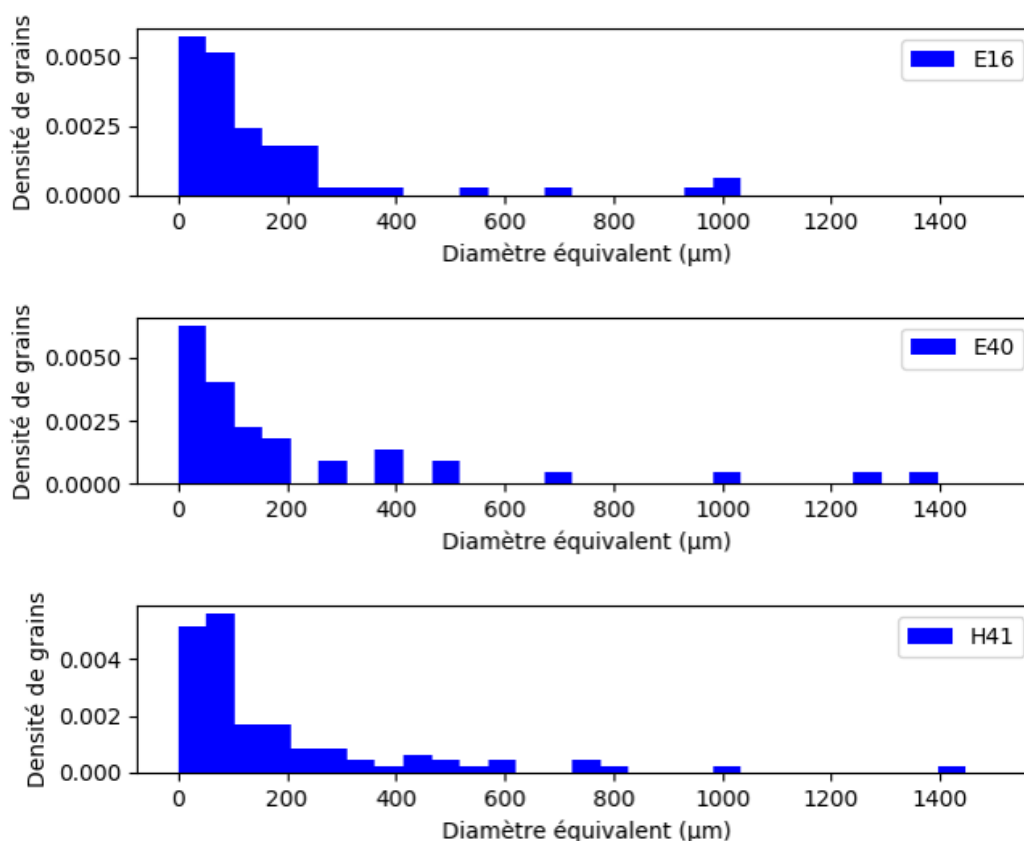


Figure 15: Fréquence de la taille de grains analysée par EBSD selon un plan perpendiculaire aux échantillons précédents : (a) : trempe eau proche surface (64 grains), (b) : trempe eau en profondeur (43 grains), (c) : huile à une profondeur intermédiaire (90 grains)

La Figure 15.a présente des résultats similaires à ceux observés Figure 14.a, à savoir une distribution prépondérante de petits grains avec très peu de gros grains dans les échantillons trempés eau proche

surface. De même, la Figure 15.c montre un phénomène équivalent aux Figure 14.c et d : une augmentation importante de la population de gros grains ($d > 600 \mu\text{m}$) dans les trempés huiles. La Figure 15.b cependant présente une forte population de gros grains dans le plan longitudinal alors qu'un échantillon équivalent dans le plan transversal (Figure 14.b) ne présente que peu de gros grains.

Afin de mieux comprendre la répartition de ces grains dans le matériau, le Tableau 4 présente les résultats en termes de répartition surfacique des grains pour chaque état considéré et pour chaque type de grain. Il y est observé que la surface occupée par les gros grains est d'autant plus grande que l'échantillon considéré est proche du cœur du cube trempé. D'autre part, pour une position identique, la surface occupée par ces gros grains est toujours plus importante dans le trempé huile que dans le trempé eau. Ces observations sont vérifiées tant dans le plan Z que le plan XY où elles semblent plus exacerbées. Bien que la fraction surfacique occupée par les gros grains augmente, c'est principalement la fraction surfacique des grains de taille intermédiaire ($200 \mu\text{m} < d < 600 \mu\text{m}$) qui tend à diminuer, les grains de petites tailles ($0 \mu\text{m} < d < 200 \mu\text{m}$) ne présentant que peu de variations.

Ces observations sur la taille de grain peuvent être interprétées comme un effet direct de la vitesse de trempé. En effet, la vitesse de trempé allant en diminuant à travers l'épaisseur, les grains présents dans la microstructure peuvent avoir le temps de croître. Ainsi, en trempant à l'huile plutôt qu'à l'eau et dans une certaine mesure en se rapprochant du cœur du matériau, la microstructure devient de plus en plus hétérogène avec un mélange de petits grains et de grains plus grossiers. Ceux-ci semblent en outre se développer préférentiellement selon le plan XY.

L'aspect général des cartographies montre une croissance colonnaire selon l'axe Z qui pourrait être expliquée par le passé thermomécanique du matériau lors de son forgeage libre. Différents mécanismes de recristallisation pendant le forgeage ou la mise en solution peuvent être responsables de la distribution hétérogène des tailles de grains. La présente étude se limitera à la caractérisation de la microstructure en lien avec la vitesse de trempé.

Les observations à cette échelle suggèrent une grande diversité de la taille de grains. Si certains effets comme l'allongement des grains semblent liés au forgeage du matériau, la présence de grains de plus grande taille, phénomène observé aux vitesses de trempé les plus faibles, indique un effet significatif de la vitesse de trempé.

3. Echelle submicronique

Les transformations de phase au cours de la fabrication du caisson conduisent à la formation dans les grains d'aluminium de particules de diverses phases appelées dispersoïdes qui ont une influence sur la recristallisation et le comportement mécanique. La caractérisation de ces dispersoïdes dans plusieurs

échantillons en fonction de la vitesse de trempe constitue une étape importante dans la compréhension de la réponse du matériau face à une sollicitation extérieure. Ces dispersoïdes étant d'échelle submicronique, leur caractérisation est réalisée par microscopie électronique à transmission.

2.1 Trempe eau

Concernant la trempe à l'eau, deux échantillons principaux ont été étudiés : E05, situé à 2,5 mm sous la surface du cube trempé eau (et donc dans la zone de forte vitesse de trempe) et E34 situé à 42 mm sous la surface (et donc très proche du cœur, dans la zone de linéarité de la vitesse de trempe). Les microstructures typiques des dispersoïdes à une échelle identique pour les deux échantillons sont données Figure 16.

Premièrement, les dispersoïdes ont dans les 2 cas des tailles et des morphologies assez variables. Ensuite les dispersoïdes dans l'échantillon proche de la surface (Figure 16.a) semblent moins nombreux que dans l'échantillon à cœur (Figure 16.b). Cette différence peut résulter de zones de déplétion à proximité de la surface faisant chuter localement le nombre de dispersoïdes. Pour compléter des informations de taille et morphologie des dispersoïdes dans les deux états de trempe, une caractérisation chimique plus fine de ces particules a été conduite.

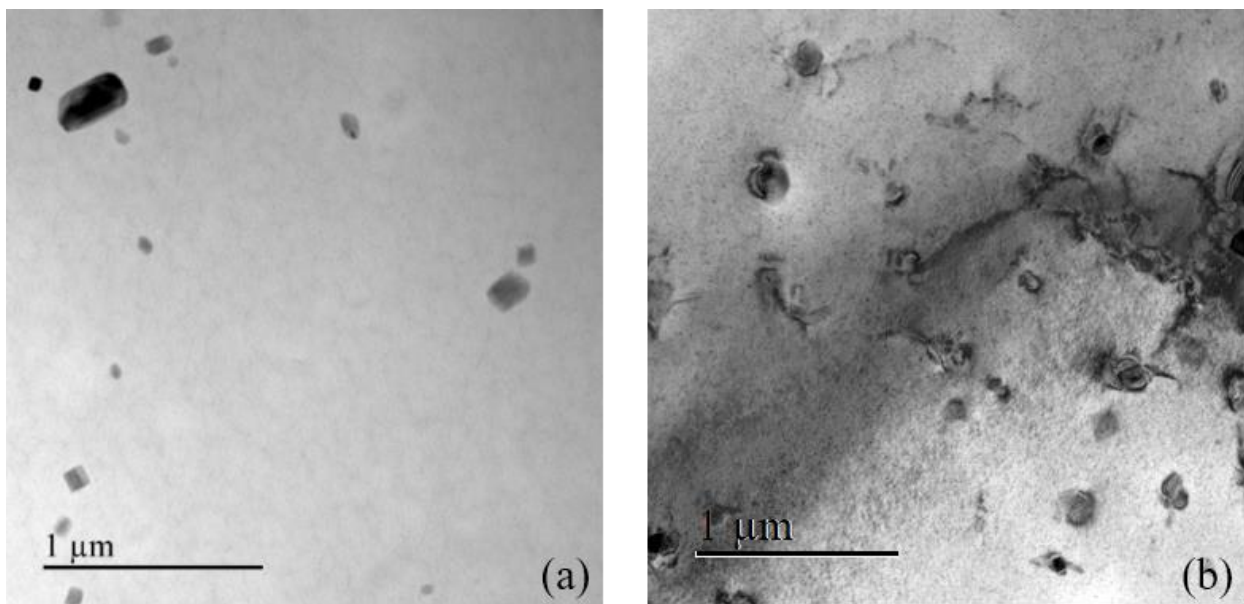


Figure 16 : Dispersoïdes observés au MET après trempe eau : (a) : proche de la surface du cube, (b) proche du cœur du cube

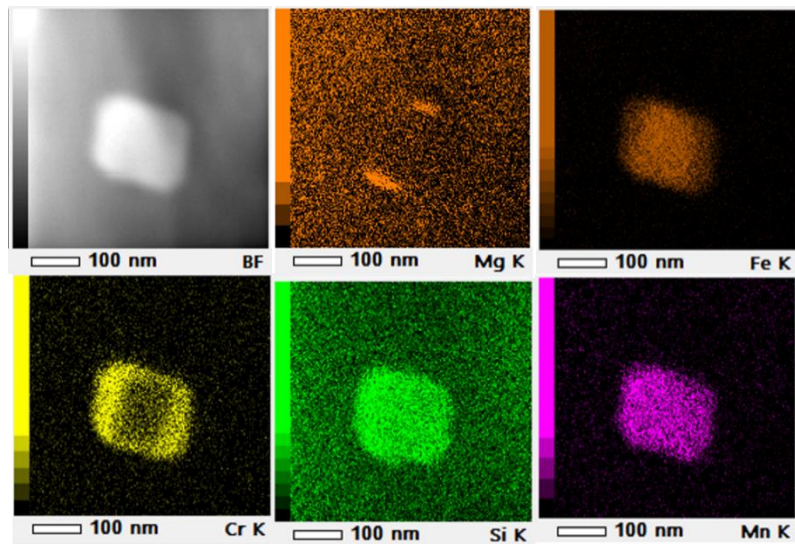


Figure 17 : Analyse EDX d'un dispersoïde sur un échantillon trempé eau proche de la surface (E05)

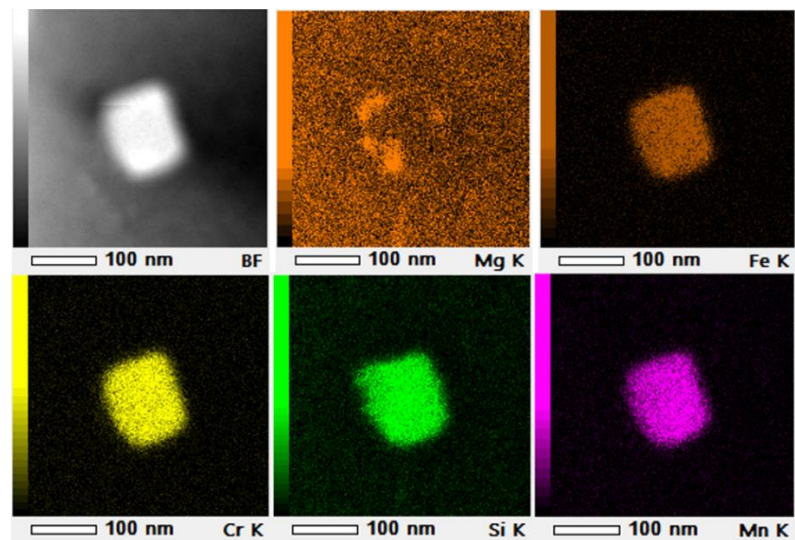


Figure 18 : Analyse EDX d'un dispersoïde sur un échantillon trempé eau proche du cœur (E34)

La Figure 17 et la Figure 18 présentent les analyses EDX sur deux dispersoïdes dans les deux états de trempe de référence sur le cube trempé eau : E05 et E34. L'analyse EDX de l'échantillon trempé eau proche surface, Figure 17, montre que ce dispersoïde est riche en Fe, Cr, Si et Mn. Il présente une importante ségrégation fer-chrome. En effet, on observe une coquille de chrome et un cœur de fer (Figure 17). Ce résultat rejoint de nombreuses observations faites dans la littérature [6–8]. De plus, la cartographie du magnésium indique une localisation à la périphérie du dispersoïde. Une analyse du même type de précipité dans l'échantillon plus profond (E34, Figure 18) indique elle aussi la présence des éléments Fe, Cr, Si, Mn dans le dispersoïde. La ségrégation Fe-Cr n'est pas observée. En revanche la localisation hétérogène de magnésium est plus nette que dans l'échantillon proche de la surface. Toutefois le nombre limité d'observations ne permet pas d'affirmer un lien entre la vitesse de trempe et l'effet cœur-coquille et une précipitation hétérogène de phase contenant du magnésium.

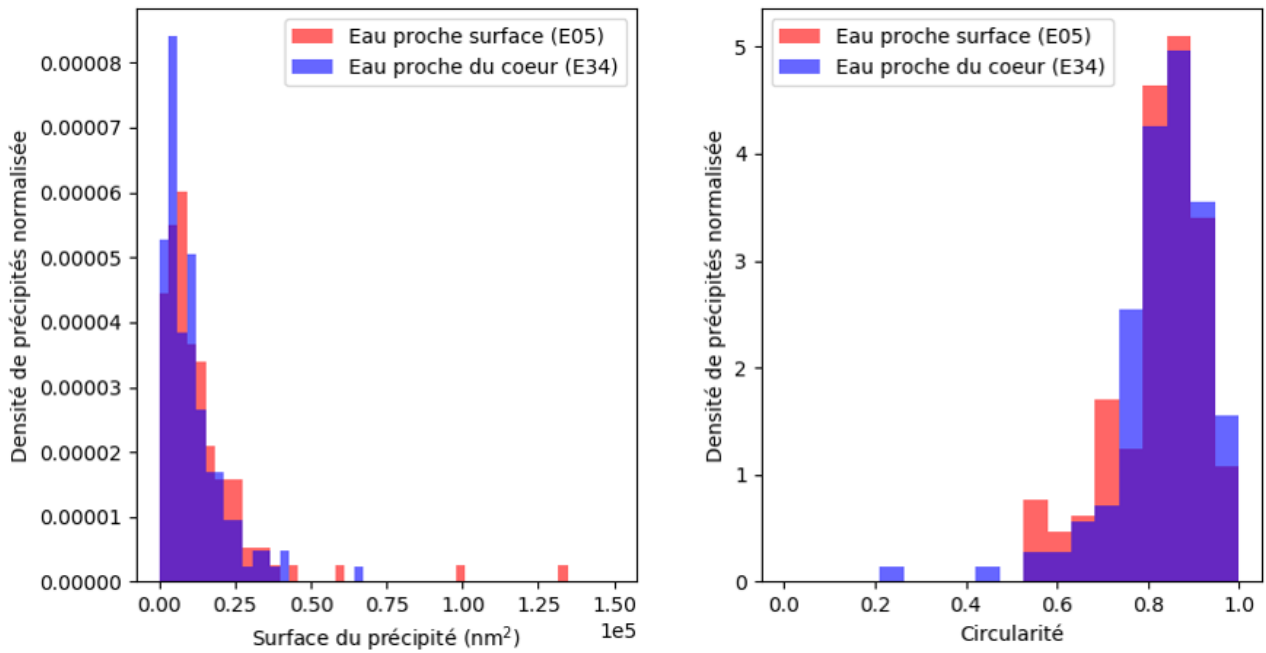


Figure 19 : Analyse des dispersoïdes dans deux échantillons trempés eau : (a) : distribution en taille, (b) : analyse de circularité (261 dispersoïdes analysés à la main)

La Figure 19 présente une analyse quantitative des dispersoïdes réalisée sur une dizaine d'images par état de trempe (241 précipités pour E05 et 224 pour E34). La Figure 19.a présente la distribution normalisée en surface dans les échantillons E05 et E34. Aucune différence particulière entre les deux échantillons n'est observée. La Figure 19.b quant à elle, représente la distribution de circularité des dispersoïdes pour ces mêmes échantillons. La circularité est une grandeur permettant de déterminer l'écart de forme à un cercle. Elle est définie comme suit [9]:

$$C = \frac{4\pi A}{P^2}$$

Avec A l'aire de la figure et P son périmètre. Ainsi on observe Figure 19.b une distribution homogène à première vue bien que des objets très rectangulaires ($C < 0,5$) soient observés dans le cas de l'échantillon situé très proche du cœur.

2.2 Trempe huile

Les observations au MET de multiples échantillons en trempe huile à différentes profondeurs ayant amené à l'observation d'une microstructure homogène, il sera présenté dans cette partie, un échantillon particulier mais représentatif de la trempe huile, noté HX. Le faciès de cet échantillon à l'échelle submicronique est donné Figure 20.

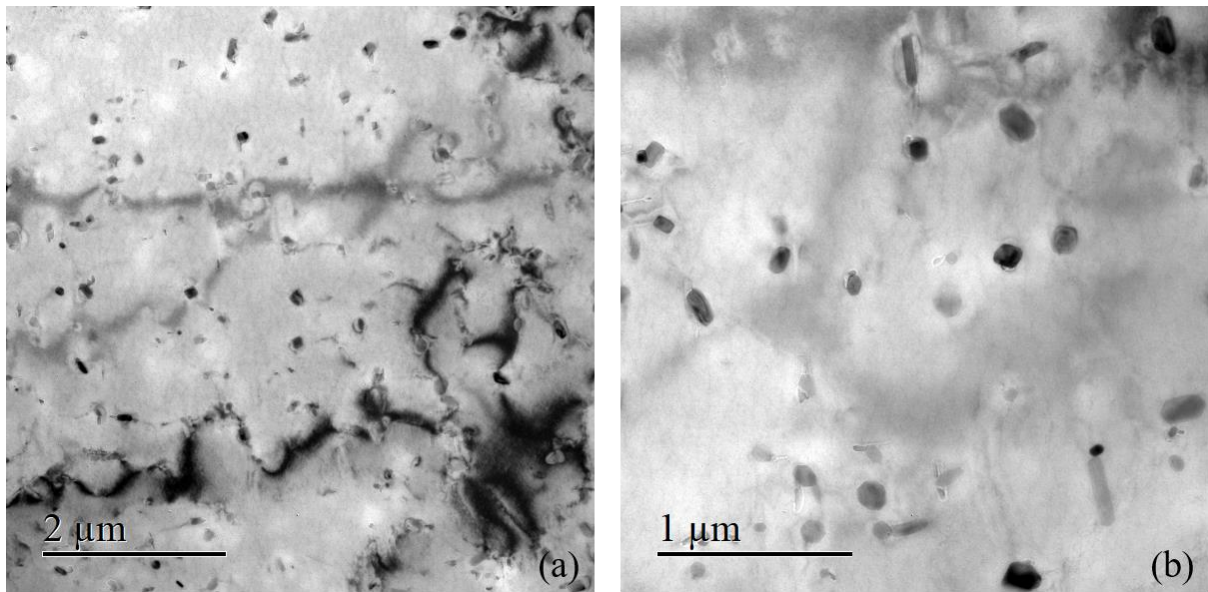


Figure 20 : Trempe huile à l'échelle submicronique à deux grandissements différents (a) (b)

Les Figure 20.a et b montrent des dispersoïdes répartis de manière assez homogène dans la matrice. Cette observation a été confirmée par d'autres échantillons. Une précipitation hétérogène sur les dispersoïdes est fréquemment observée (Figure 20.b). Comme dans le cas de la trempe à l'eau, de nombreux dispersoïdes présentent des morphologies assez globulaires. Des particules très allongées qui n'étaient pas présentes sur la trempe eau ont été observées. Une analyse EDX de deux particules, représentatives des observations faites dans cet échantillon est présentée Figure 21.

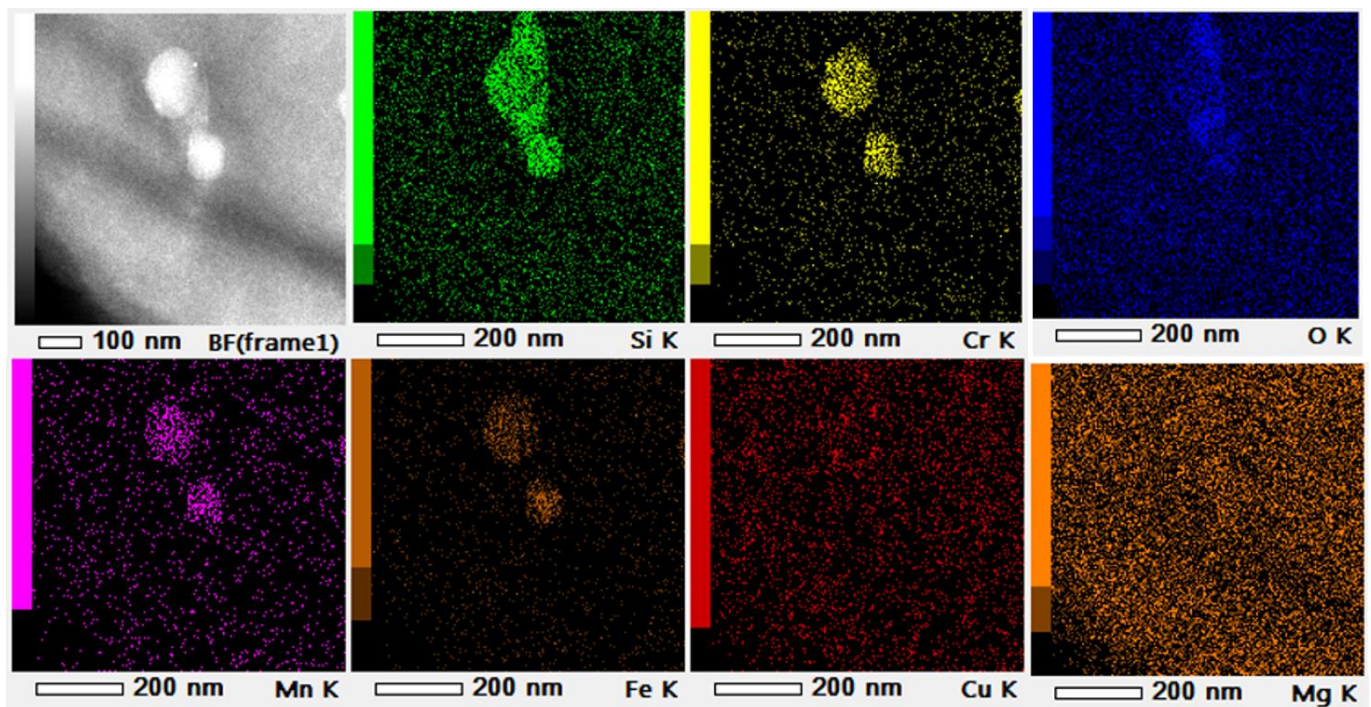


Figure 21 : Analyses EDX sur un ensemble de dispersoïdes dans le cadre de la trempe huile

On observe sur les cartographies EDX de la Figure 21 une précipitation hétérogène se produisant sur les dispersoïdes globulaires. On note que du silicium est contenu dans l'intégralité des particules. D'après l'analyse EDX, les dispersoïdes de forme rectangulaire contiennent du Fe, Mn en plus du Si, il est donc cohérent avec une phase α -Al(MnFe)Si classique. Cependant, les dispersoïdes globulaires ne présentent pas de ségrégation chimique cœur coquille, comme observé dans la trempe eau (Figure 18). Entre les deux dispersoïdes globulaires, une nouvelle phase riche en oxygène et en silicium semble avoir précipité. Cette phase apparaît comme ayant précipité de manière hétérogène sur les deux dispersoïdes globulaires. Cependant, une image MET étant une projection, il est probable qu'elle eut cru sur un seul des dispersoïdes. Si la répartition du silicium dans la particule semble homogène, l'oxygène est réparti de manière hétérogène avec des zones de forte et faible concentration. Ces analyses EDX montrent le caractère très hétérogène de la précipitation au cours de la trempe à l'huile.

Une identification des structures été conduite avec ASTAR (Figure 22.a) : elle indique que les particules de morphologie globulaire ont la structure cristallographique des dispersoïdes α -Al(MnFe)Si. Cependant, l'observation de la cartographie d'orientation (Figure 22.b) montre l'absence de relation d'orientation bien définie avec la matrice d'aluminium.

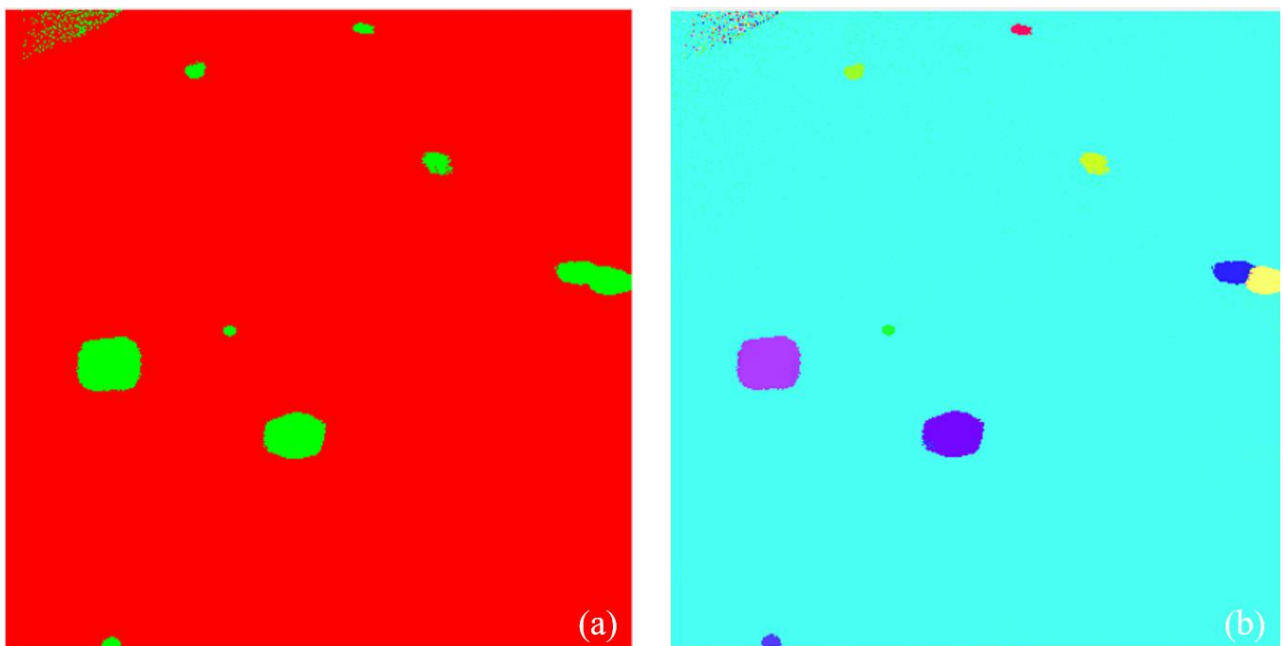


Figure 22 : Analyse ASTAR dans le cadre de la trempe huile : (a) : la matrice est en rouge et les phases de structure α -Al(MnFe)Si en vert, (b) : carte d'orientation

L'analyse quantitative de la taille et la morphologie des particules observées dans l'échantillon trempé à l'huile, Figure 23 présente un comportement différent de celui de la trempe eau (Figure 19). En effet, les dispersoïdes d'une surface supérieure à 50 nm^2 sont totalement absents de la trempe huile contrairement à la trempe eau. L'analyse de la circularité de ces phases montre une plus grande diversité de la population. En effet les particules allongées constituent ici une deuxième population Figure 23.b :

un nombre important de précipités de circularité inférieure à 0,6 est observé quand cette population était limitée dans le cas de la trempe eau (Figure 19.b).

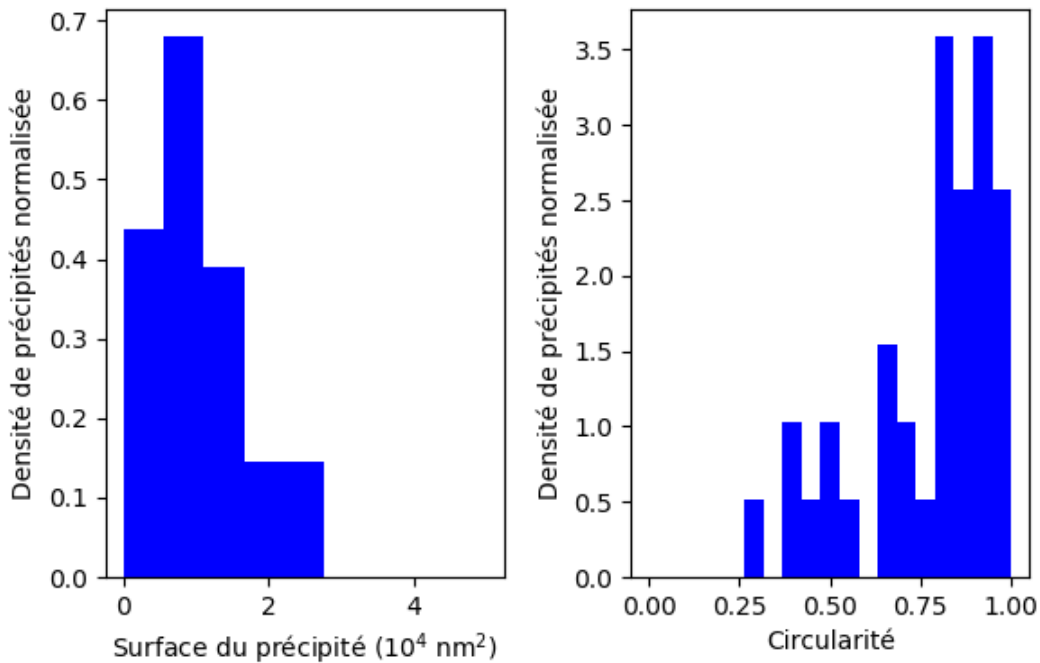


Figure 23 : Analyse des précipités dans l'échantillon trempé huile : (a) : distribution en taille, (b) : analyse de circularité (74 dispersoïdes analysés à la main)

2.3 Trempe air

La Figure 24 présente la microstructure observée dans le cas de la trempe air à deux grossissements. On note des particules d'échelle submicronique rappelant celles observées après la trempe à l'huile et des particules fines de morphologies allongées. Ces particules ont des morphologies pouvant correspondre à des aiguilles ou des plaquettes. Les configurations observées suggèrent que ces particules résultent de précipitation hétérogène sur les dispersoïdes $\alpha\text{-Al(MnFe)Si}$. Ce phénomène semble être similaire à celui observé dans le cas de la trempe huile mais est ici exacerbé du fait de la très faible vitesse de trempe. L'image à faible grossissement (Figure 24.a) montre un développement préférentiel de ces particules allongées dans les directions $\langle 100 \rangle$.

la Figure 25.a présente un diagramme de diffraction d'une zone contenant une plaque assez grande dans une zone fine proche du bord de la lame. Sur ce diagramme, on note des taches de faible intensité entre celles de la matrice d'Aluminium. Une image en champ sombre a été réalisée sur la tache faible entourée en bleu Figure 25.b. Les précipités du même type sont alors visibles ainsi que des dispersoïdes.

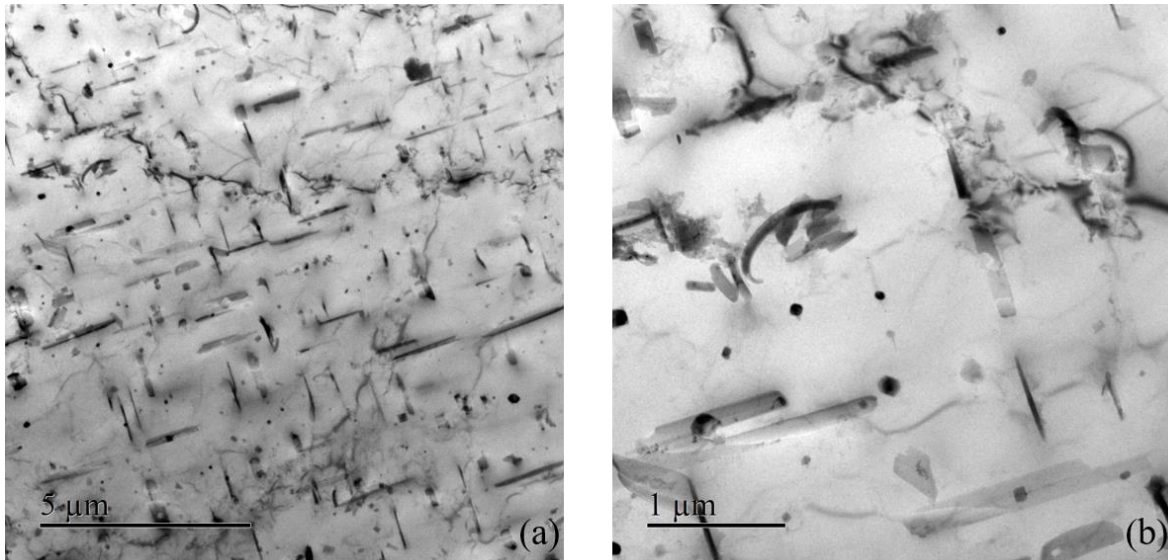


Figure 24 : Formation de nouvelles phases submicroniques observées dans le cas de la trempe air : (a) : à faible grandissement, (b) : à grandissement plus élevé.

La Figure 26 présente une cartographie EDX sur un ensemble de particules dans le cas de la trempe air. Comme dans le cas de la trempe huile, une forte hétérogénéité de la précipitation est observée. La cartographie chimique montre cependant plusieurs familles de particules submicroniques. En effet, les particules notées A sur l'image présentent une prédominance des éléments silicium, magnésium et cuivre avec une nette concentration d'oxygène. D'autre part, les particules notées B montrent une prédominance des éléments chrome et manganèse. La cartographie des éléments fer et manganèse montre qu'ils sont présents dans les petites particules de morphologie cubique précédemment identifiées comme des dispersoïdes α -Al(MnFe)Si. La cartographie EDX indique une croissance de diverses phases submicroniques autour des phases α .

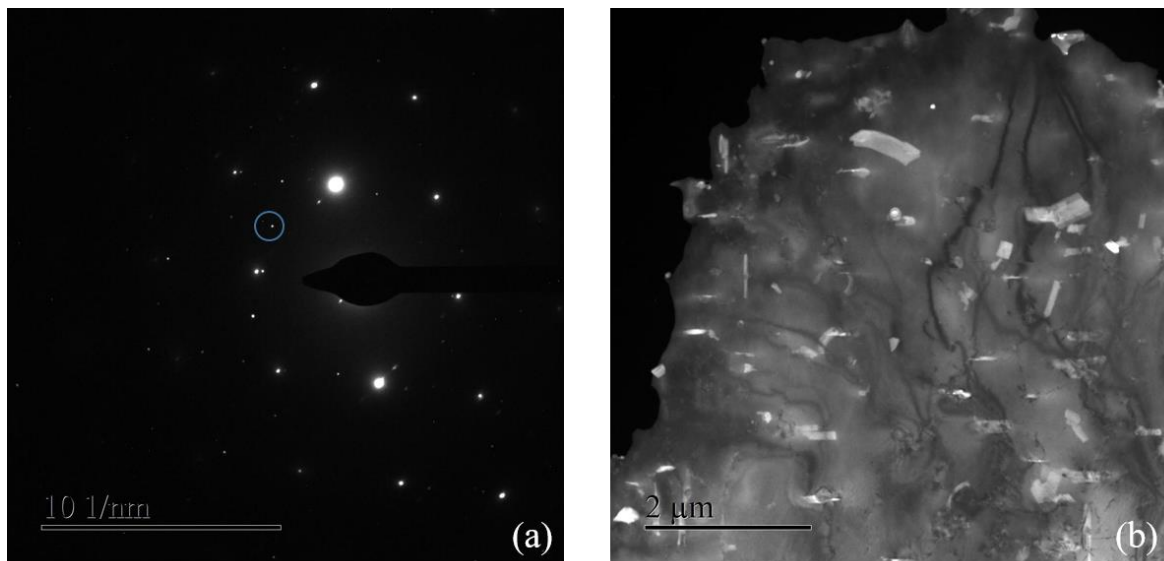


Figure 25 : Observations de particules submicroniques dans la trempe air : (a) : diagramme de diffraction autour d'une particule submicronique, (b) : champ sombre associé au spot entouré en bleu sur (a)

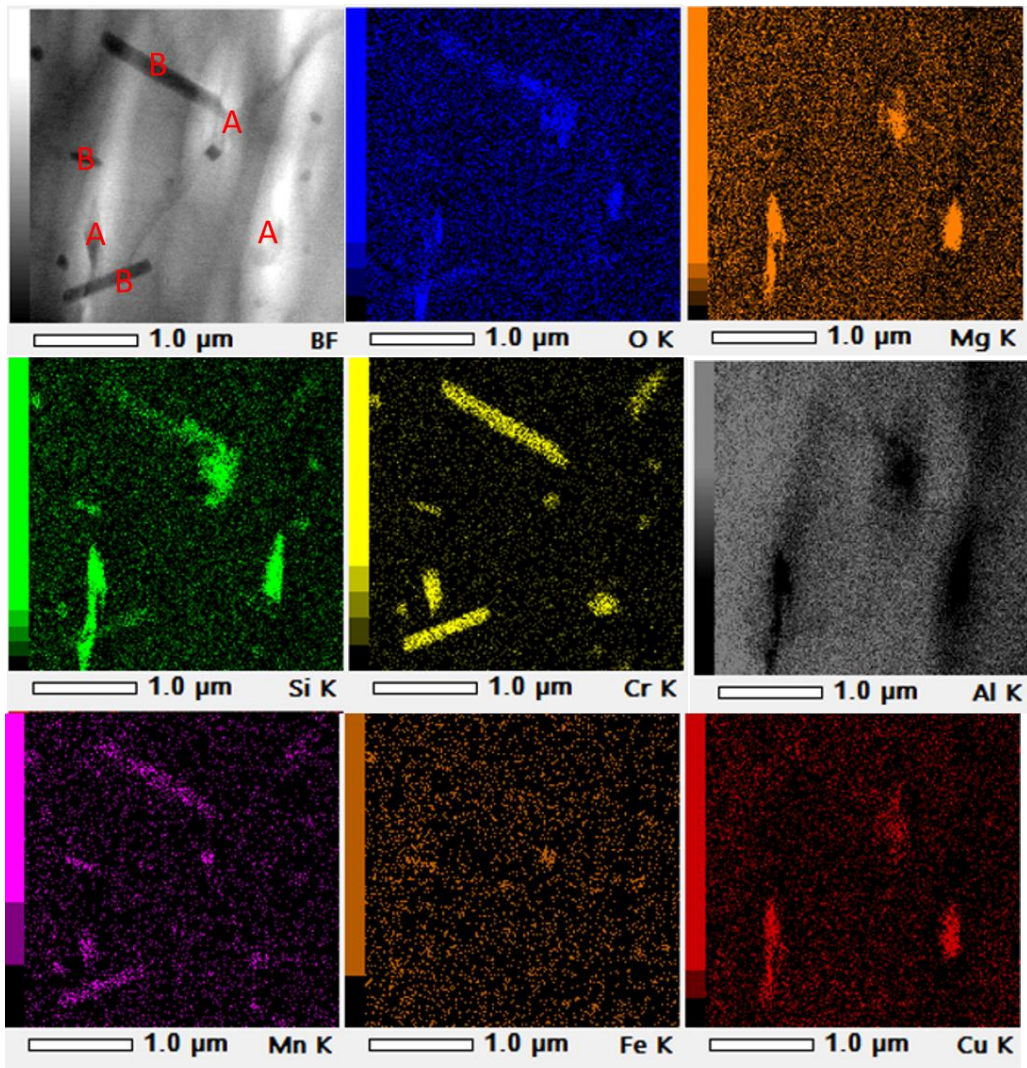


Figure 26 : Cartographie EDX dans le cas de la trempe air

Une analyse cristallographique avec la méthode ASTAR a été effectuée sur une aiguille présentant beaucoup d'oxygène en EDX. Les éléments identifiés de cette phase étaient le magnésium, manganèse, l'aluminium et l'oxygène. L'identification de phases avec ASTAR a été effectuée en proposant plusieurs structures, notamment la structure spinelle $MgAl_2O_4$ et celle de la phase $\alpha\text{-AlMnSi}$. L'analyse ASTAR (Figure 28) donne une meilleure indexation avec la structure de type spinelle. Cependant, sur la Figure 27, la partie en rouge indique une bonne indexation selon la structure spinelle alors que l'indexation échoue sur le reste de la particule. Les diagrammes de diffraction locaux montrent que cet échec est due à la présence d'une phase en épitaxie avec la matrice aluminium et avec la structure spinelle et pour laquelle aucune indexation satisfaisante n'a été trouvée. Ceci témoigne de la grande hétérogénéité et de l'aspect composite des particules qui se forment au cours de la trempe à l'air.

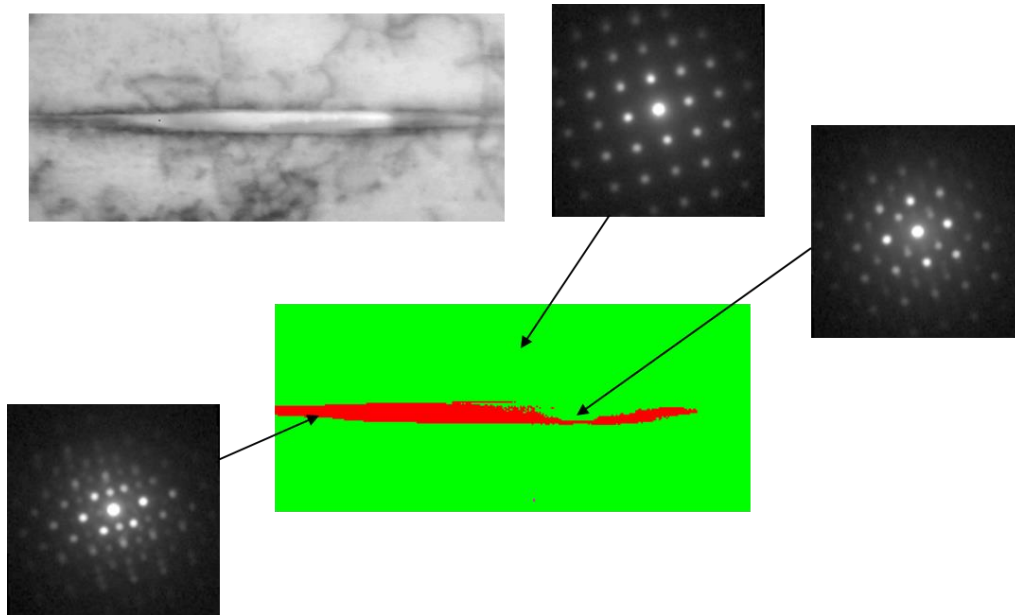


Figure 28 : Analyse ASTAR sur une phase submicronique dans le cas de la trempe air : les différents diagrammes de diffraction témoignent de l'hétérogénéité des particules formées

La Figure 29 présente une analyse statistique des phases submicroniques observées dans le trempé air sur une série d'images MET analogue à la Figure 23. La partie (a) est un histogramme des surfaces des précipités. On observe une plus grande population pour les petites surfaces et quelques grandes surfaces comme déjà constaté pour les trempes huiles et eau. Cependant, l'échelle de tailles des particules a été multipliée par trois avec l'apparition de précipités de très grande taille ($> 5 \cdot 10^4 \text{ nm}^2$). Concernant la circularité (Figure 29.b), on observe une plus grande dispersion de la population avec une importante concentration autour des très faibles et très grandes circularités. Cette observation est en corrélation avec l'apparition des nouvelles phases composites observées.

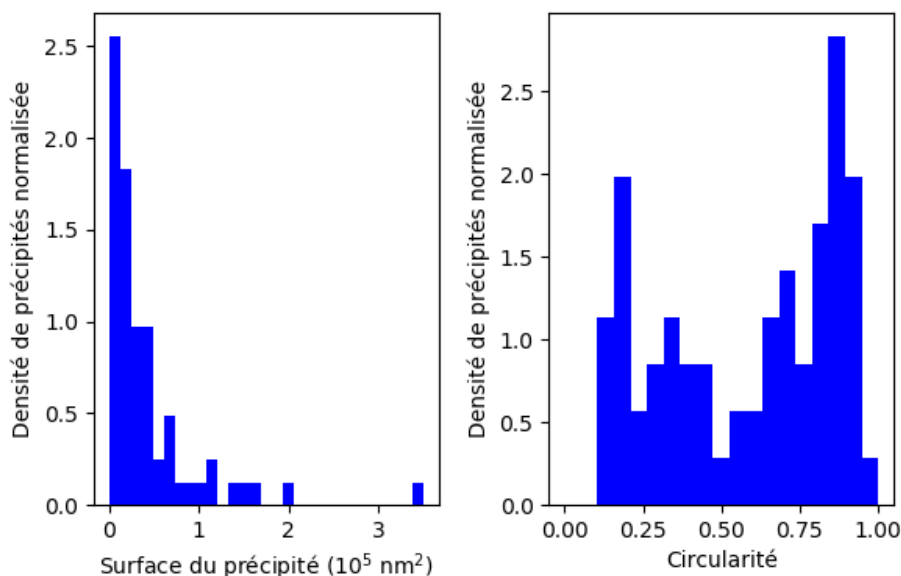


Figure 29 : Analyse des précipités dans l'échantillon trempé air : (a) : distribution en surface, (b) : analyse de circularité (68 dispersoïdes analysés)

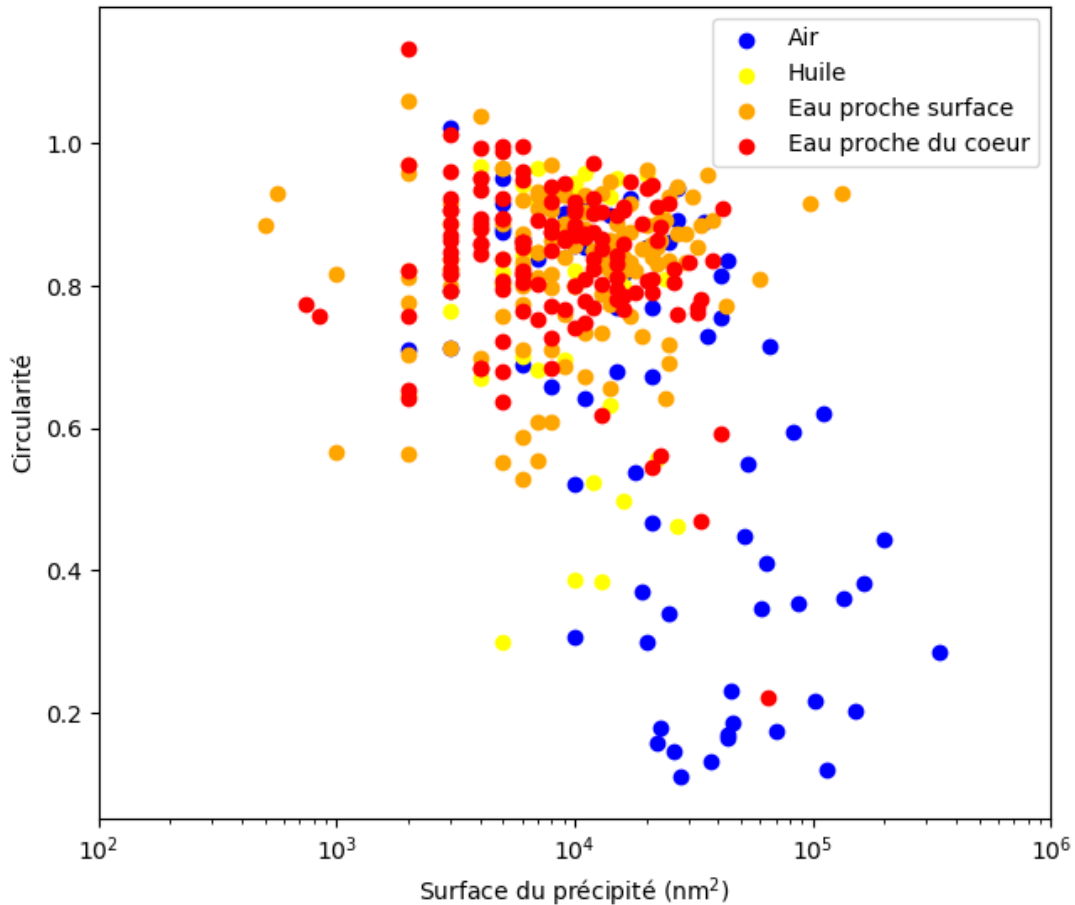


Figure 30 : Distribution des circularités en fonction de la surface du précipité pour les quatre états de références (eau proche surface, eau en profondeur, huile et air) (Total : 403 dispersoïdes)

L'analyse des phases submicroniques aux différentes échelles montre l'influence directe de la vitesse de trempe sur la précipitation à cette échelle : si le dénominateur commun de la microstructure est la présence des phases α du fait de leur évolution durant la mise en solution, l'influence de la vitesse de trempe sur la précipitation de nouvelles phases est visible. A vitesse de trempe faible, de nouvelles phases précipitent de façon hétérogène sur les phases α . La réduction de la vitesse de trempe amène alors la formation de phases de morphologie très allongée et une précipitation très dense et très hétérogène. Les phases submicroniques apparaissant à faible vitesse de trempe présentent une importante hétérogénéité chimique et une orientation préférentielle avec une morphologie en plaquette selon l'axe $\langle 100 \rangle$. Enfin, la réduction de la vitesse de trempe semble donner à cette précipitation des formes plus allongées et plus grandes tout en en modifiant la nature (apparition d'oxydes).

2. Echelle nanométrique

L'observation de la microstructure à l'échelle nanométrique consiste en l'étude des nanophases issues du revenu. Comme le paragraphe précédent, celui-ci s'efforcera de décrire la précipitation fine dans le cas des trois trempes et quatre états de références présentés. Sur la base de la littérature des alliages 6000

(cf chapitre 1, on cherchera à mettre en évidence la précipitation fine en réalisant les images en champ sombre caractéristiques de la précipitation fine dans ces alliages (i.e. axe de zone 100 et sélection des taches éteintes 001).

3.1 Trempe eau

La microstructure fine dans le cas de la trempe eau a été observée pour des échantillons correspondant à différentes profondeurs (E05 situé à 2,5 mm sous la surface et E34 situé à 42 mm sous la surface). La Figure 31 présente les clichés MET à un grandissement identique pour les deux échantillons. Sur ces clichés, les grains sont orientés selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$. Les champs clairs et les champs sombres sur les taches éteintes 100 y sont présentés.

Les clichés des Figure 31 a et c sont similaires avec une grande densité de nanoprécipités présentant un contraste de déformation à leur périphérie. Une observation rapide amène à un classement en plusieurs populations distinctes. Une première population de grandes plaquettes de 20 à 40 nm de long sur 2,5 nm d'épaisseur est identifiée. Des particules de 2,5 à 4,5 nm en projection constituent une deuxième population qui peut correspondre à une morphologie en aiguille. En utilisant les observations de la littérature [10,11], sur une image à plus fort grandissement (Figure 32) les différentes populations identifiées selon leur morphologie (i.e. plaquettes et aiguilles) correspondent aux phases L et β'' déjà identifiées dans les alliages de série 6000 à l'état T6. Les précipités se projetant selon des segments courts et de forme ovoïdale et arrondie pourraient correspondre à des plaquettes de phases dite Q' [10,11] observées dans les alliages de série 6000 à l'état T6.

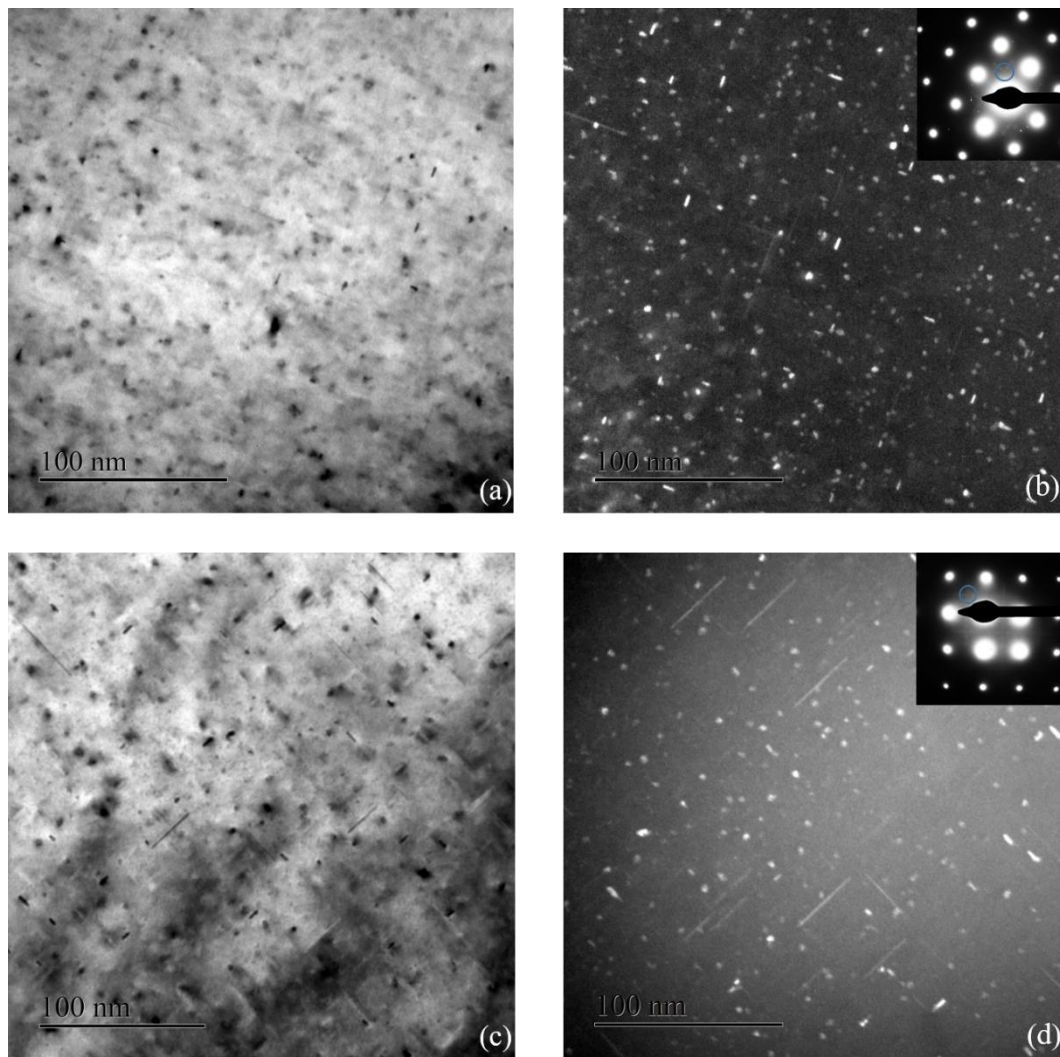


Figure 31 : Observation de nanoprecipités dans le cas de la trempe eau proche surface (E05) en champ clair (a) et sombre et son cliché de diffraction associé (b) et échantillon proche du cœur (E34) en champ clair (c) et sombre et son cliché de diffraction associé (d)

Cette identification montre plusieurs points importants. Comme décrit dans le chapitre 1, l'influence du cuivre présent dans l'alliage étudié a amené à la séquence de précipitation modifiée : les nanoprecipités sont donc constitués de plusieurs populations durcissantes et non simplement la famille des phases β .

L'observation de ces nanoprecipités en champ sombre, Figure 31 b et d, montrent deux microstructures différentes sur cette trempe eau. L'échantillon proche de la surface (b) semble présenter une densité de précipités très élevée alors que l'échantillon proche du cœur (d) présenterait moins de précipités.

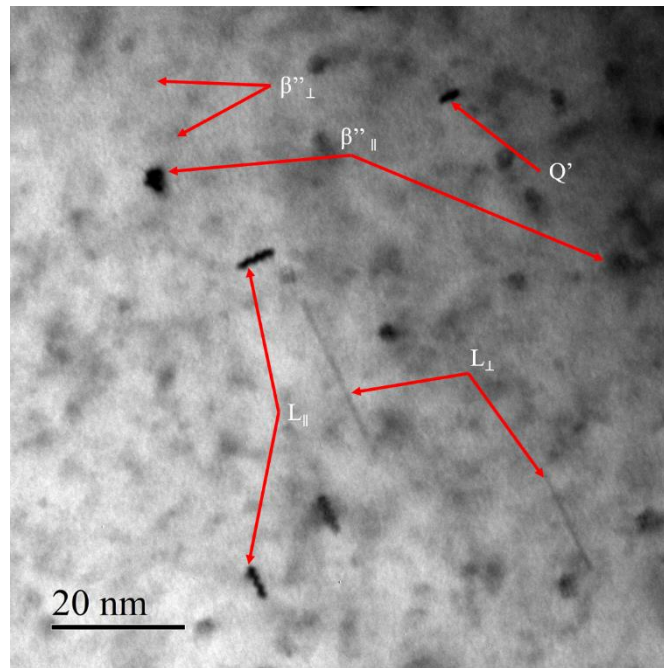


Figure 32 : Précipités nanométriques observées au MET à fort grandissement dans l'échantillon E05 et identifiées sur les critères morphologiques décrits dans la littérature

Une analyse statistique de ces précipités a été entreprise à partir de plusieurs dizaines d'images en champ sombre pour les deux types de trempe. A cet effet, un algorithme spécifique d'analyse d'images a été développé. Cet algorithme est basé sur la reconnaissance locale de zones d'intérêt et d'une reconstruction globale de l'image. Il a pour avantage majeur que les paramètres doivent être déterminés pour un type de précipités en particulier.¹

	$N_{\text{précipités}}$		Périmètre (nm)		Surface (nm ²)		Circularité		Fraction de précipités (%)	
	E05	E34	E05	E34	E05	E34	E05	E34	E05	E34
Moyenne	300	278	14,1	14,1	16,70	15,98	0,720	0,727	7,01	5,43
Ecart-type	26	17	0,63	0,96	4,92	3,23	0,018	0,011	0,81	0,71

Tableau 5 : Statistiques collectées sur les nanoprecipités dans le cadre de la trempe eau sur les échantillons proche surface (E05) et du cœur (E34) en supposant une épaisseur de lame identique : nombre de précipités, périmètre, surface et circularité moyenne et écart-type associé.

Le Tableau 5 présente les résultats statistiques obtenus par l'algorithme sur l'analyse de champ sombres issus des échantillons E05 et E34. Premièrement, le nombre de précipités observés dans l'échantillon proche surface (E05), est plus important que sur l'échantillon proche du cœur (E34). Cependant les écarts-types étant relativement élevés, les domaines de confiance de ces statistiques se recoupent ce qui ne permet pas de conclure. Pour autant, en estimant à 100 nm l'épaisseur moyenne de la zone observée ce qui semble raisonnable considérant une erreur de 20% environ, on obtient une fraction volumique de

¹ Brevet déposé.

3,5 % \pm 0,7 pour E05 et 2,5 % \pm 0,5 pour E34. Ces valeurs sont dans la moyennes des séries 6000 observées dans la littérature [12].

Concernant les périmètres et surfaces moyennes des nanoprécipités, il est remarqué que des valeurs sensiblement très proches ont été obtenues. De même, la circularité moyenne des précipités est sensiblement identique. La Figure 33 présente la distribution de surface et de circularité pour les deux populations : la coïncidence des résultats confirme la présence d'une précipitation identique dans les deux cas.

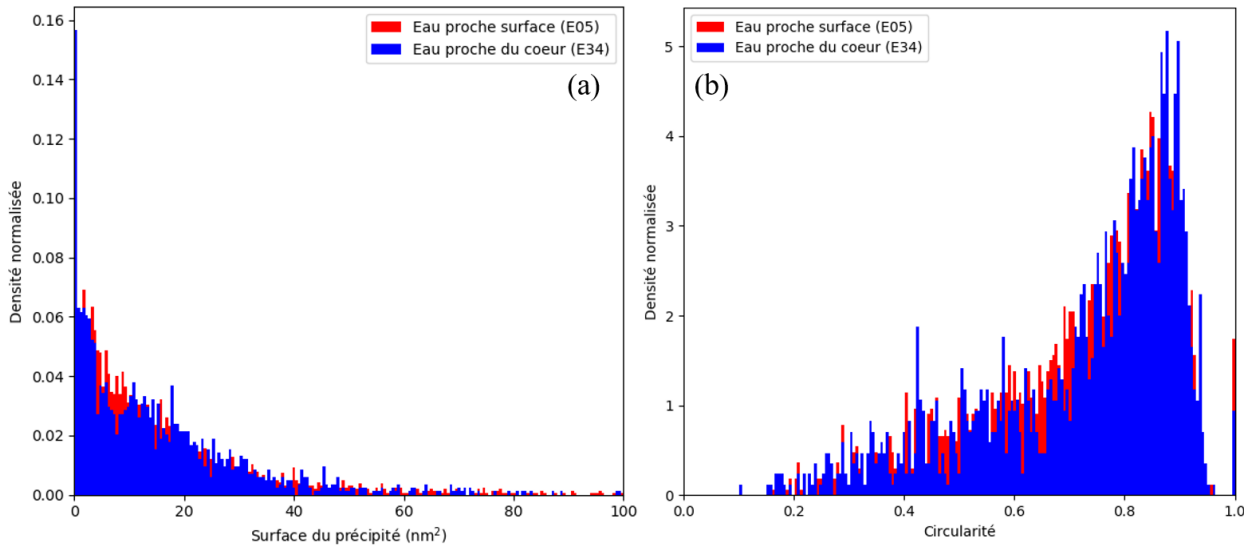


Figure 33 : Distribution statistiques surfaces (a) et circularités (b) des précipités analysés dans le cadre de la trempe eau sur les échantillons proche surface (E05) et du cœur (E34) (Total : 5001 précipités)

Enfin, les fractions surfaciques de précipités présentées dans le Tableau 5 présentent une différence nette entre l'échantillon E05, présentant une fraction de 7 % et l'échantillon E34 présentant une fraction de 5,4%. On a donc dans le cas de la trempe eau une baisse de la fraction surfacique de précipités nanométrique avec une baisse de la vitesse de trempe sans que cela ne s'accompagne d'une modification de la nature de la précipitation.

3.2 Trempe huile

La Figure 34 présente la microstructure de l'échantillon trempé huile observé selon l'axe de zone <100> en champ clair (a) et le champ sombre associé aux spots représentatifs de la précipitation des alliages 6XXX. Les familles de précipités observés dans ce cas (Figure 35) sont similaires à celles observées pour la trempe à l'eau. L' image en champ clair, Figure 34.a, présente des contrastes de déformation faiblement marqués autour des précipités. De plus, la taille des nanoprécipités observés semble être réduite comparativement à la trempe eau. L'analyse statistique de ces phases par le même algorithme que dans la trempe eau donne les résultats présentés Tableau 6. On observe ici une réduction de la surface moyenne des précipités passant de 16 nm² dans le cas de l'eau (cœur) à 11 nm² dans celui de l'huile. La circularité moyenne observée semble identique dans les deux cas (aux alentours de 0,7). Cette

réduction de la taille semble s'accompagner d'une réduction du nombre de précipités observés. Le calcul de la fraction volumique donne un résultat de $1,7\% \pm 0,3$. La fraction de précipités semble donc être relativement stable entre les deux états de trempe.

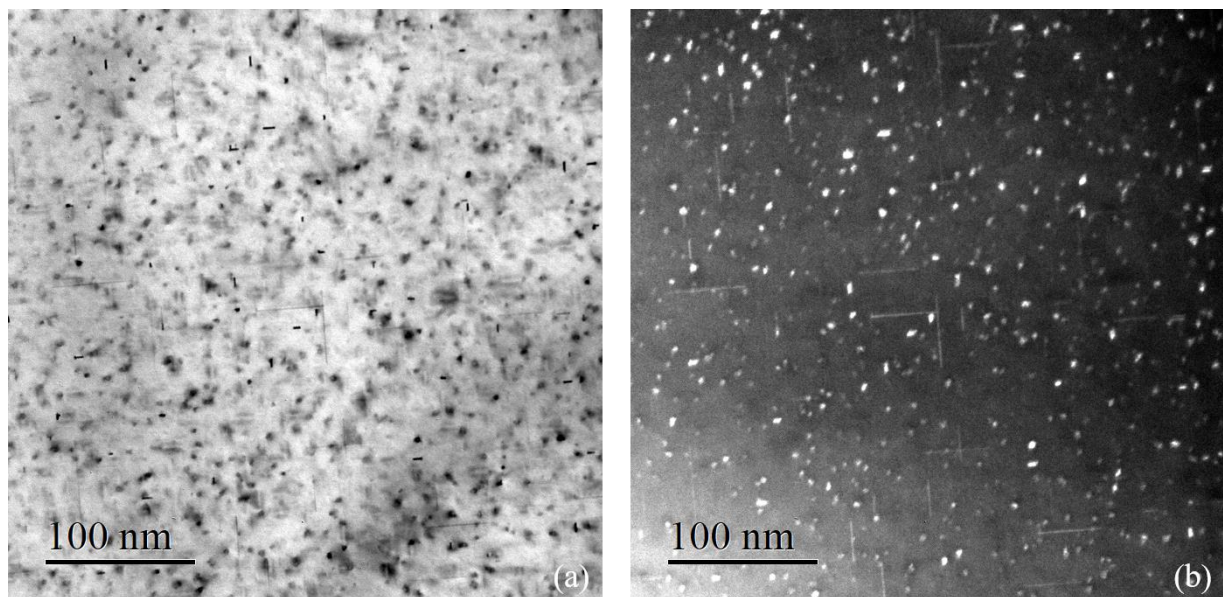


Figure 34 : Nanoprécipités observés dans un échantillon trempé huile selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ en champ clair (a) et sombre (b)

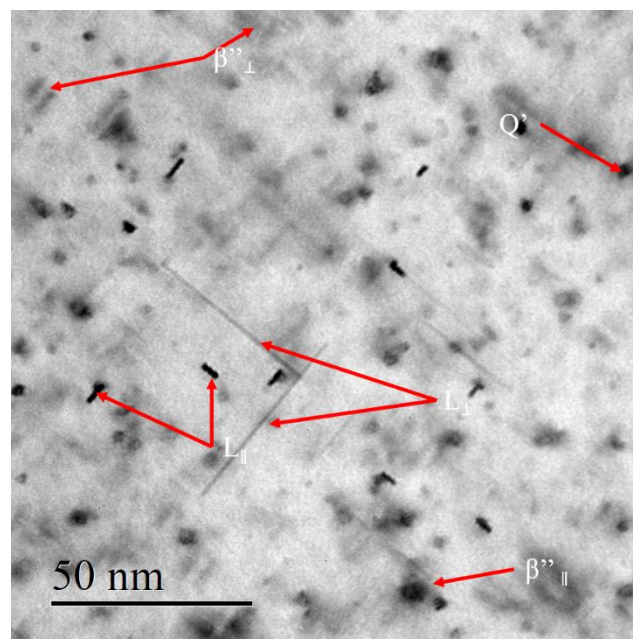


Figure 35 : Nanoprécipités observés au MET dans l'échantillon HX et identifiés en accord avec les morphologies décrites dans la littérature

Cette observation est appuyée par l'histogramme présenté Figure 36 : les surfaces de précipités occupées dans l'intervalle $[0 ; 20]$ sont similaires. Cependant, pour les surfaces de précipités supérieures à 20 nm^2 , les images observées en trempe eau présentent une population plus importante que la trempe huile.

	$N_{\text{précipités}}$	Surface (nm^2)	Circularité	Fraction de précipités (%)
Moyenne	77	11,04	0,70	7,29
Ecart-type	18	0,518	0.19	0,7

Tableau 6 : Statistiques collectées sur les nanoprecipités en trempe huile compilées à partir d'images à un grandissement identique

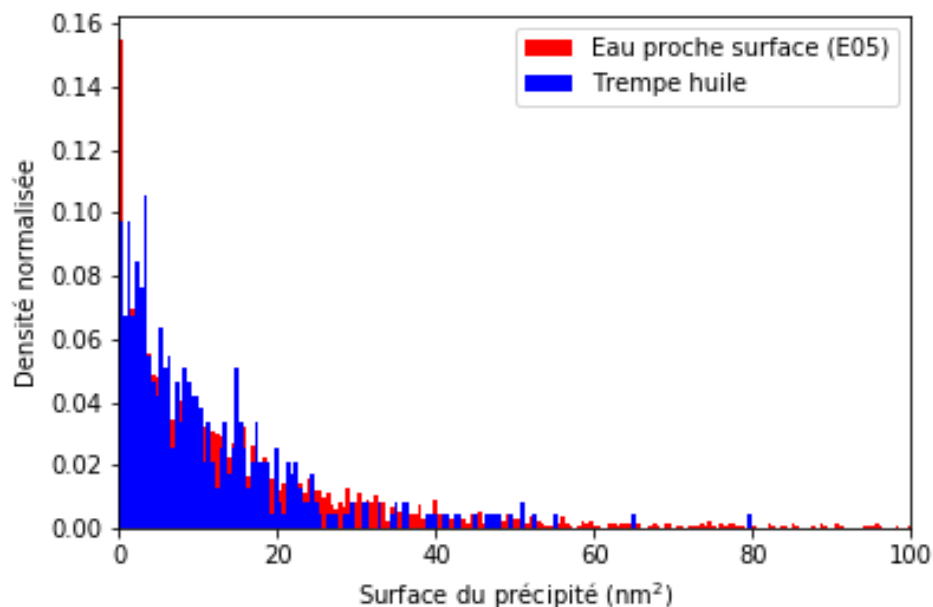


Figure 36 : Comparaison des surfaces des précipités : comparaison entre trempe eau et huile

Malgré des microstructures globalement très proches, les états trempés eau diffèrent des trempés huile par des particules de grande taille plus nombreuses. Il reste maintenant à déterminer l'état de la nanoprecipitation en trempe air.

3.3 Trempe air

Des clichés MET selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ réalisés dans le cadre de la trempe air sont présentés Figure 37. La Figure 37.a présente un cliché de diffraction présentant l'axe de zone $\langle 100 \rangle$. Contrairement aux clichés observés en trempe eau et huile, les taches de diffraction associées à la précipitation nanométrique ne sont pas présentes. En outre, aucune autre tâche particulière n'est observée. La Figure 37.b montre la microstructure selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ en champ clair. Les phases submicroniques présentées précédemment y sont observées, mais aucun contraste de déformation locale témoignant d'une précipitation nanométrique n'est détecté. La Figure 37.c montre en champ clair à plus fort grandissement une zone sans précipitation submicronique présentant des alignements plus ou moins continus (fléchées en rouge sur l'image). Un champ sombre sur le spot caractéristique de la nanoprecipitation a été effectué et est présenté Figure 37.d. Cette image champ sombre, notamment le zoom en insert, met en évidence un alignement de précipités d'échelle nanométrique qui ont dû se former sur une dislocation présente

dans le matériau. Des cartographies EDX ont été effectuées sur des configurations similaires (Figure 38).

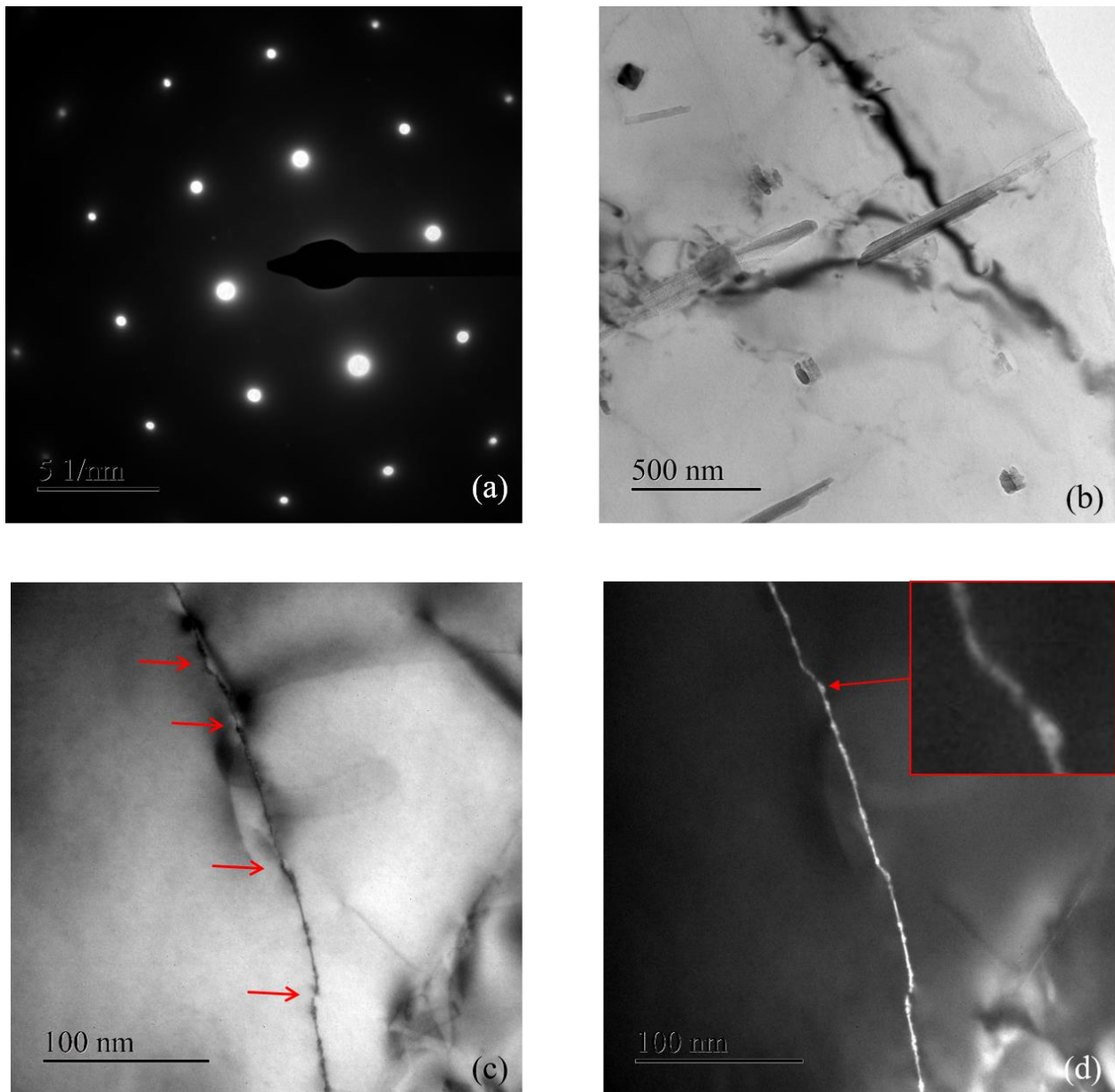


Figure 37 : Etude de la nanopréciipitation dans le cadre de la trempe air : (a) : diagramme de diffraction selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$, (b) et (c) : clichés en champ clair selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ dans une zone (b) une précipitation sub-micronique et (c) une zone dénuée de précipitation submicronique, (d) : champ sombre du cliché (c) sur les spots associés aux nanopréciipités

La Figure 38 présente les cartographies EDX des éléments silicium et magnésium observées dans le cadre de la trempe air. On y observe une forte concentration des éléments silicium et magnésium tout le long d'un zone linéaire au centre de la cartographie. Cette observation est cohérente avec une précipitation hétérogène de plaquettes riches en Mg et Si en l'absence d'une précipitation homogène durcissante. En outre, l'analyse n'a révélé aucune concentration particulière en autres éléments (la cartographie complète est disponible en annexe G) si ce n'est une légère concentration en cuivre. Enfin, la Figure 39 présente une analyse SAT dans un échantillon trempé air : les distributions de magnésium,

silicium et cuivre ne présentent aucune surconcentration. Des analyses statistiques de cluster dans la pointe indiquent une absence de regroupement d'atomes dans les gammes de distances caractéristiques des nanoprécipités. Ce résultat appuie les observations MET indiquant l'absence de nanoprécipitation dans la matrice.

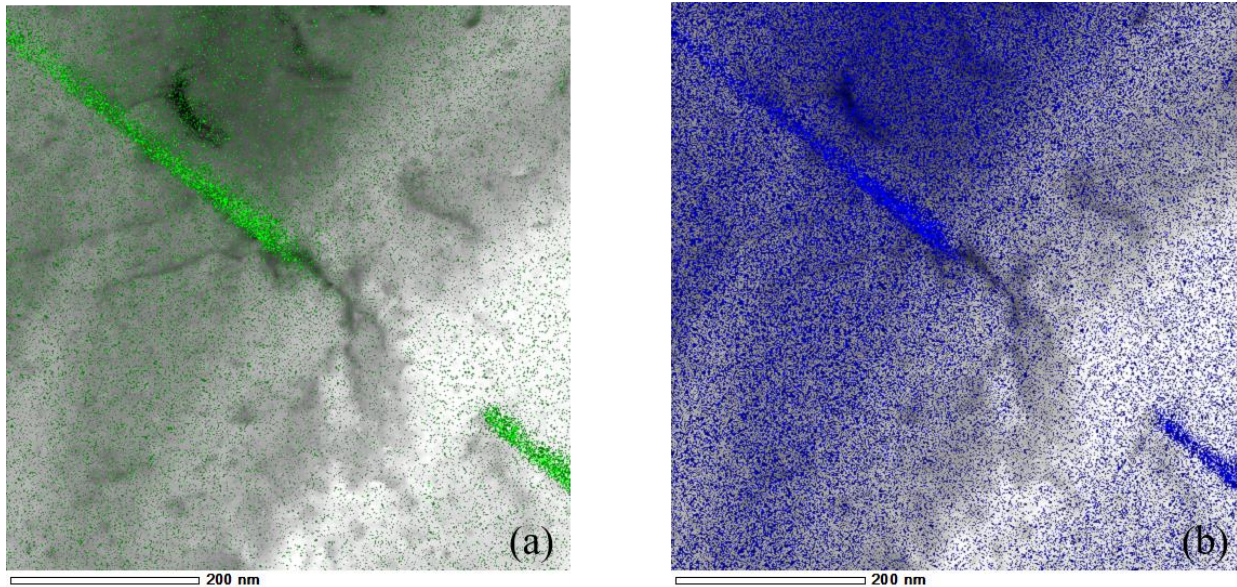


Figure 38 : Cartographie EDX dans le cas de la trempe air : cartographies des éléments silicium (a) et magnésium (b)

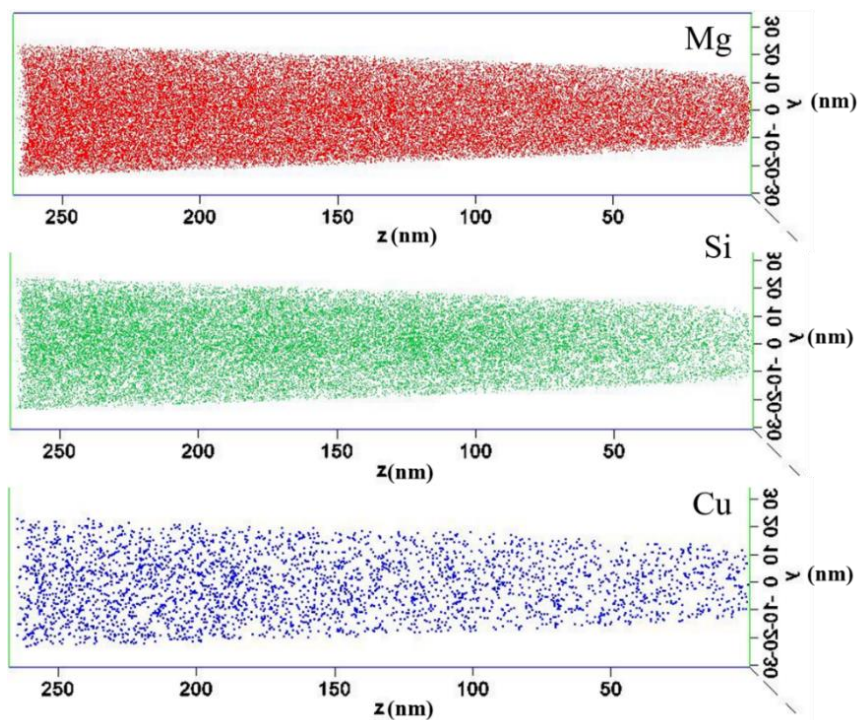


Figure 39 : Analyse SAT sur un échantillon trempé air : les distributions de magnésium, silicium et cuivre ne montrent aucune zone de surconcentration : ce résultat est confirmé par des analyses de cluster

Echantillon	Surface (nm ²)	Circularité	Fraction surfacique de précipités (%)	Fraction volumique estimée (%)	Vitesse de trempe équivalente estimée (°C.s ⁻¹)
Eau proche surface	16,70	0,72	7,01	3,5	> 40
Eau à cœur	15,98	0,73	5,43	2,5	28
Huile	11,04	0,70	7,29	1,7	10
Air	/	/	/	/	< 0,1

Tableau 7 : Tableau récapitulatif des statistiques observées pour les 4 états de trempe de référence et vitesse de trempe estimée

Les observations de la microstructure à l'échelle nanométrique ont montré une grande diversité de la nanopréciptation en fonction de la vitesse de trempe. Dans le cas de la trempe eau, les deux échantillons, proches de la surface et du cœur ont présenté une différence de densité de nanopréciptés bien que, dans les deux cas, la vitesse de trempe associée était bien supérieure à la vitesse critique de trempe (10°C.s⁻¹). La trempe huile a montré une densité moins importante de nanopréciptés. Cependant, le fait qu'une précipitation dense et homogène ait été observée semble indiquer que la vitesse critique de trempe a au moins été atteinte. En outre, les mêmes nanopréciptés ont été observés dans les trempes eau et huile. Enfin, la trempe air n'ayant pas atteint la vitesse critique de trempe, aucune précipitation nanométrique n'a été observée tant par microscopie en transmission que par des analyses SAT. La mise en regard de ces données à la vitesse de trempe estimée (voir Tableau 7) montre que, à mesure que la vitesse de trempe diminue, la fraction volumique de ces derniers dans le matériau diminue, ce qui va dans le sens d'une augmentation des propriétés mécaniques. Dans le cas du trempé air, les analyses MET ont montré une précipitation hétérogène de plaquettes riches en magnésium et silicium. Les effets de la nanopréciptation étant directement liés aux propriétés mécaniques du matériau, une étude de ces dernières va être présentée.

III. Caractérisations mécaniques

Du fait du lien entre plasticité et glissement des dislocations, des modifications dans la microstructure des matériaux métalliques impactent directement les propriétés mécaniques de ces derniers. Ce comportement est exacerbé dans le cas des alliages à durcissement structural comme le 6061-T6. Les observations présentées dans la partie précédente amènent à s'interroger sur le lien entre ces propriétés et les différentes échelles de précipitation. Dans ce cadre, trois axes d'études seront développés : les essais de traction, les cartographies de nanodureté ainsi que les essais de ténacité.

1. Essais de traction

Les essais de traction ont été effectués sur des échantillons ayant subi une trempe à l'eau et une trempe à l'huile dans le cadre d'une première campagne : plusieurs températures entre 20°C et 150°C ont été

testées. La trempe air ne présentant pas de nanoprecipités, une campagne à part à température ambiante uniquement a été considérée.

La Figure 40 présente un résumé des propriétés mécaniques obtenues en traction pendant ces deux campagnes. Le détail des courbes de traction est présenté en annexe H et un résumé statistique des données en traction est présenté Tableau 8.

Les données issues de l'extensomètre ont permis une estimation du module d'Young (Figure 40.a). Les données montrent une grande disparité des valeurs en fonction de la trempe et de la température. Aussi, aucune tendance significative sur cette valeur ne peut être obtenue. De plus, il a été expérimentalement observé un glissement des couteaux de l'extensomètre ce qui aurait potentiellement induit une importante erreur dans ces résultats.

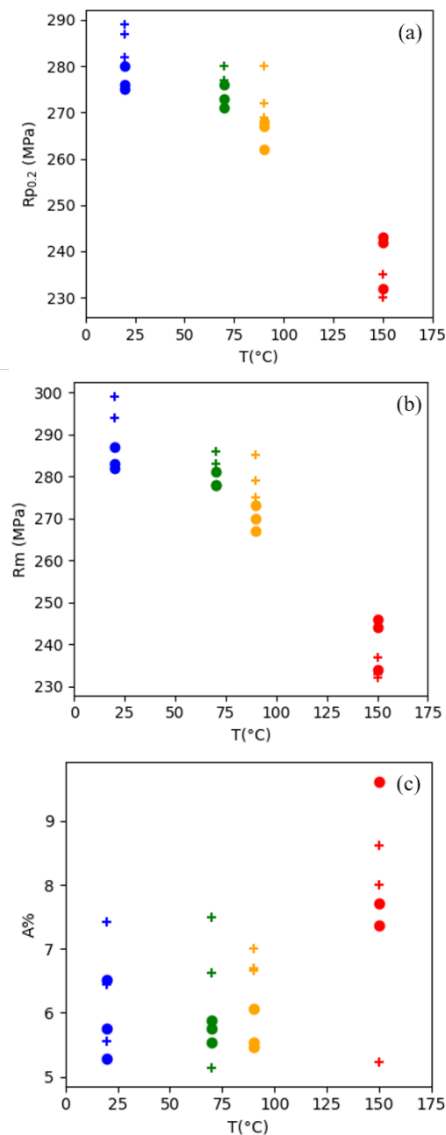


Figure 40 : Propriétés mécaniques en traction des éprouvettes testées sur les nuances trempé eau(+) et huile (●) à différentes températures, (a) limite d'élasticité, (b) résistance maximale et (c) allongement total à rupture

Température (°C)	Trempe	Rp _{0.2} (MPa)	Rm (MPa)	A(%)
Ambiante	6061-T6 : Référence	240	290	6
20	Eau	285	294	6
	Huile	277	284	5,9
70	Eau	278	284	6,4
	Huile	273	279	5,7
90	Eau	274	280	6,8
	Huile	266	270	5,7
150	Eau	232	234	7,3
	Huile	239	241	8,2

Tableau 8 : Valeurs moyennes obtenues des propriétés en traction des trempes eau et huile

Les Figure 40 b et c présentent les valeurs de Rp_{0.2} et Rm. Pour ces deux grandeurs, une tendance similaire est observée : aux températures inférieures à 100°C, les échantillons trempés eau présentent une résistance mécanique plus élevée que les échantillons trempés huile. Les valeurs moyennes des essais présentés dans le Tableau 8 vont également dans ce sens. Cependant, sur les essais à plus haute température (150°C) le phénomène semble inversé : les propriétés en traction de l'alliage trempé huile semblent supérieures à celles du trempé eau. Ces écarts ne sont cependant pas extrêmement marqués : ils ne dépassent pas 15 MPa dans le cas où la température est inférieure à 100°C et moins de 10 MPa pour les températures excédant 100°C. Concernant les allongements à rupture, Figure 40.d, une grande disparité des résultats est observée. Si l'on note effectivement une augmentation de l'allongement avec la température, ce qui est en accord avec les lois usuelles de déformation des métaux, aucune influence significative de la trempe n'a été observée.

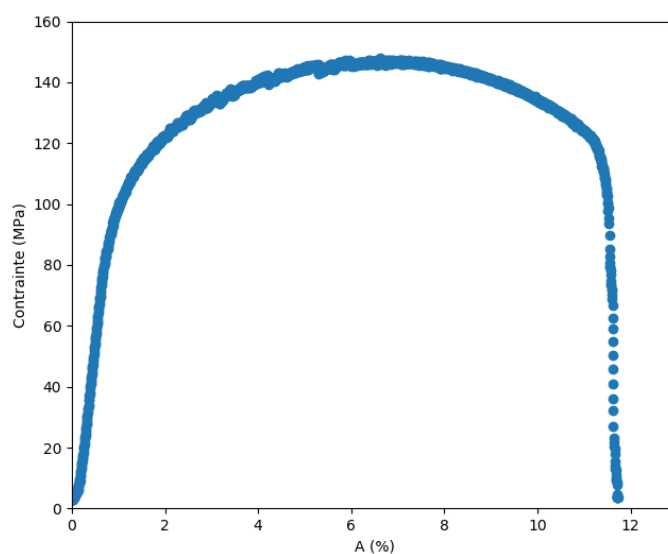


Figure 41 : Courbe de traction dans un échantillon trempé air à température ambiante

La Figure 41 présente la courbe de traction d'un échantillon trempé air. Les propriétés mécaniques en traction de cet échantillon sont inférieures à celles des échantillons trempés eau et huile. En effet, on observe ici un $R_{p0.2}$ de 100 MPa et un R_m de 145 MPa contre respectivement 280 MPa et 290 MPa en moyenne pour les autres états de trempé. Cependant, cette perte de résistance s'accompagne d'une augmentation significative de l'allongement à rupture, passant de 6 % à 11 %.

Afin de mieux comprendre les effets précédemment rapportés, des fractographies des éprouvettes de traction ont été réalisées au MEB. Les Figure 42 a et c montrent les faciès de rupture dans le cas de la trempe huile à 20°C et 150°C. Il est observé que ces faciès sont très similaires, ce qui indique un mode de rupture identique aux deux températures. De même, les Figure 42 c et d montrent, dans le cas de la trempe eau, des faciès de rupture similaires à 20°C et 150°C. Cependant, la comparaison des faciès eau et huile met en évidence des différences notables. En effet, si les deux modes de rupture sont ductiles (l'aluminium cristallisant dans le réseau cfc, il y a absence de transition ductile fragile), la fractographie de l'échantillon trempé eau présente de grandes zones plates où la taille des cupules diminue.

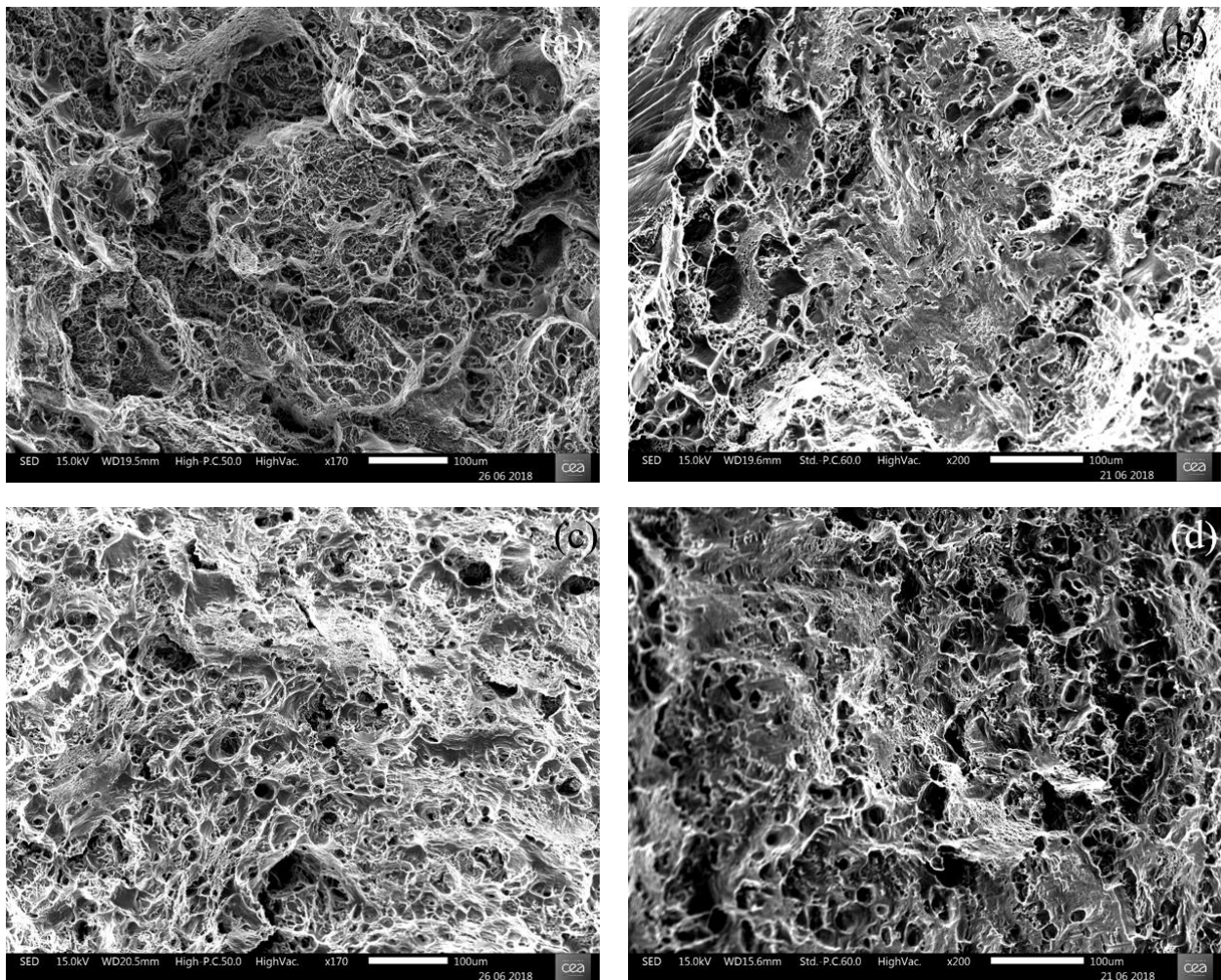


Figure 42 : Fractographies d'éprouvettes de traction observées au MEB : (a) : huile 20 °C, (b) : eau 20°C, (c) : huile 150 °C, (d) : eau 150°C

Le faciès de rupture de la trempe air (Figure 43) présente lui aussi une rupture ductile avec de nombreuses cupules et, comme dans le cas de la trempe eau, des zones plates.

Les essais de traction réalisés sur les trois états de trempes montrent des différences significatives. Pour rappel, les spécifications de l'état T6 sont : $R_{p0,2} = 240$ MPa, $R_m = 290$ MPa, $A\% = 6\%$ [2]. Si comme attendu la trempe air montre une grande ductilité et un comportement loin des spécifications attendues pour un alliage d'aluminium 6061 dans un état T6, les trempes eau et huile conduisent à des comportements similaires, la trempe eau présentant une meilleure résistance que la trempe huile et un allongement à rupture plus important. Cette étude mécanique étant conduite à l'échelle macroscopique, l'effet de gradient de vitesse de trempe existant dans le cas de la trempe eau (rappel Figure 7) n'a pas été mis en évidence. Aussi une caractérisation mécanique à l'échelle micronique doit être mise en œuvre.

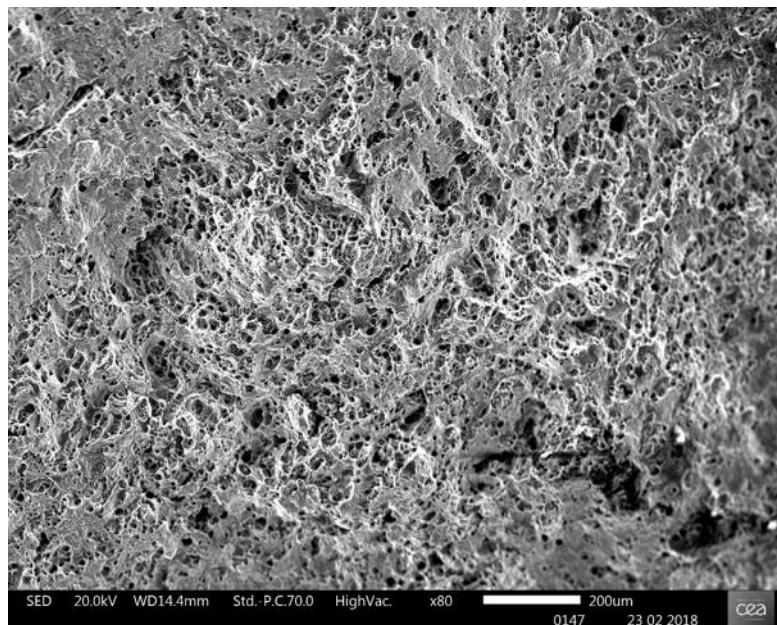


Figure 43 : Fractographie d'une éprouvette de traction dans le cadre de la trempe air

2. Microdureté Vickers

Des cartographies de microdureté Vickers ont été réalisées sur les échantillons trempés eau et huile. Dans les deux cas, les échantillons sélectionnés étaient d'un quart longueur du cube ($0,25 \times 98 = 24,5$ mm) et situés vers le centre d'une face, représentant ainsi l'état de trempe en surface et à cœur.

La distribution des valeurs de microdureté pour les deux états de trempe est donnée Figure 44. Les moyennes de ces distributions et l'écart-type sont respectivement de $107,3 \text{ HV}_{0,05} \pm 5,0$ et de $107,6 \text{ HV}_{0,05} \pm 5,3$ pour les trempes huile et eau. Cette simple analyse statistique ne permet donc pas de conclure quant à une différence de dureté. Cependant, l'observation des distributions Figure 44 a et b montre que si les deux histogrammes sont centrés sur les mêmes valeurs, l'histogramme de la trempe eau

présente une queue de distribution beaucoup plus importante sur les hautes valeurs de dureté ($HV_{0,05} > 120$).

La Figure 45 présente les mêmes données que les histogrammes de la Figure 44 à la différence que l'espace analysé a été ici découpé en trois domaines d'analyse : 0-5mm, 0-12,5mm, 0-25 mm. Il est ici observé que, dans le cas de la trempe eau (Figure 45.a), les valeurs de grande dureté sont principalement localisées sur la partie externe de l'échantillon (0-5 mm) et que les distributions des parties plus internes (0-12,5 mm et 0-25 mm) sont très proches. Dans le cas de l'huile, Figure 45.b, les distributions sont superposées quelle que soit la zone considérée.

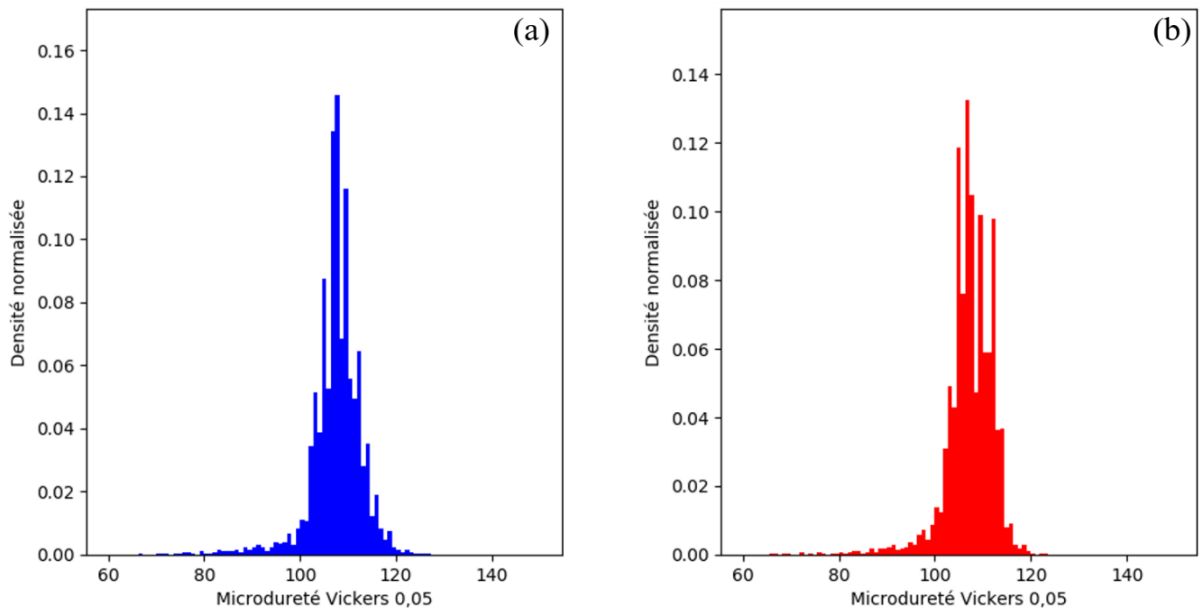


Figure 44 : Distribution des valeurs de dureté mesurée sur la totalité des échantillons dans le cadre de la trempe eau (a) et huile (b)

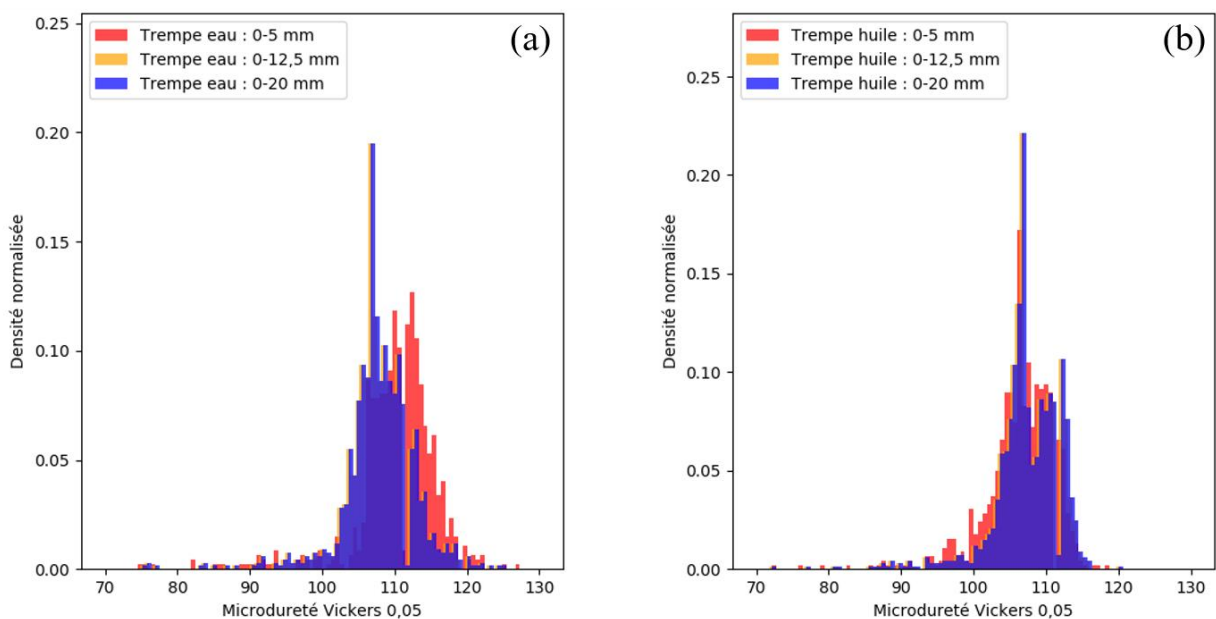


Figure 45 : Histogrammes de distribution des valeurs de dureté mesurées pour la trempe eau (a) et huile (b)

La Figure 47 présente une cartographie reconstituée de la dureté locale des échantillons, la dureté locale est obtenue en faisant la moyenne des valeurs de dureté de l'indent et de ses huit premiers voisins comme explicité Figure 46. Il est observé que, dans le cas de la trempe eau, une zone de dureté accrue est présente très proche de la surface sur une zone d'environ 12 mm alors que le reste de l'échantillon montre une homogénéité de la dureté. Concernant la trempe huile, une homogénéité globale de la dureté de l'échantillon est observée. Ces considérations sont en accord avec la Figure 45 montrant une zone de dureté exacerbée autour de la zone extérieure dans le cadre de la trempe eau.

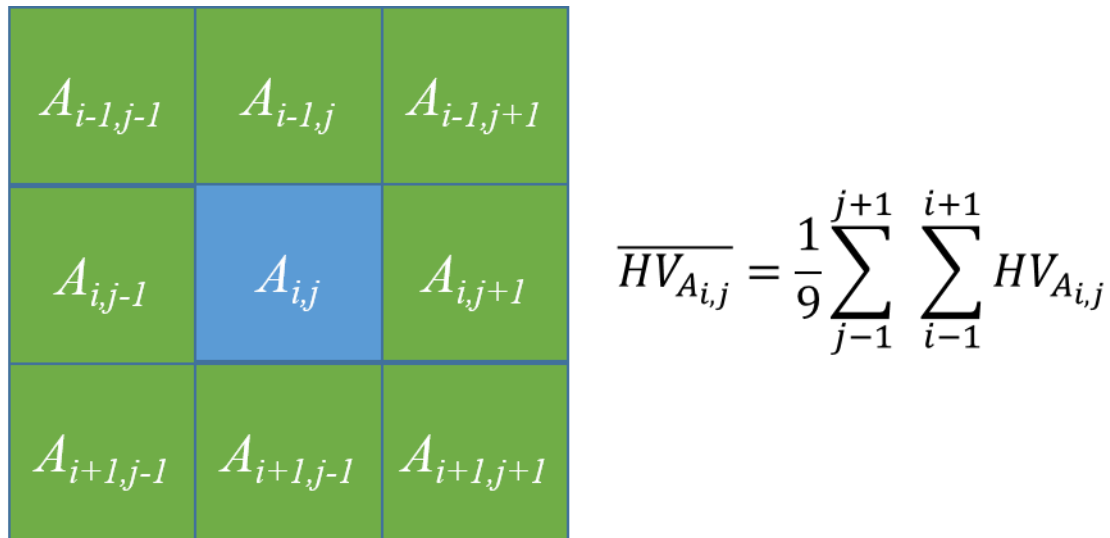


Figure 46 : Schéma des moyennes des pixels

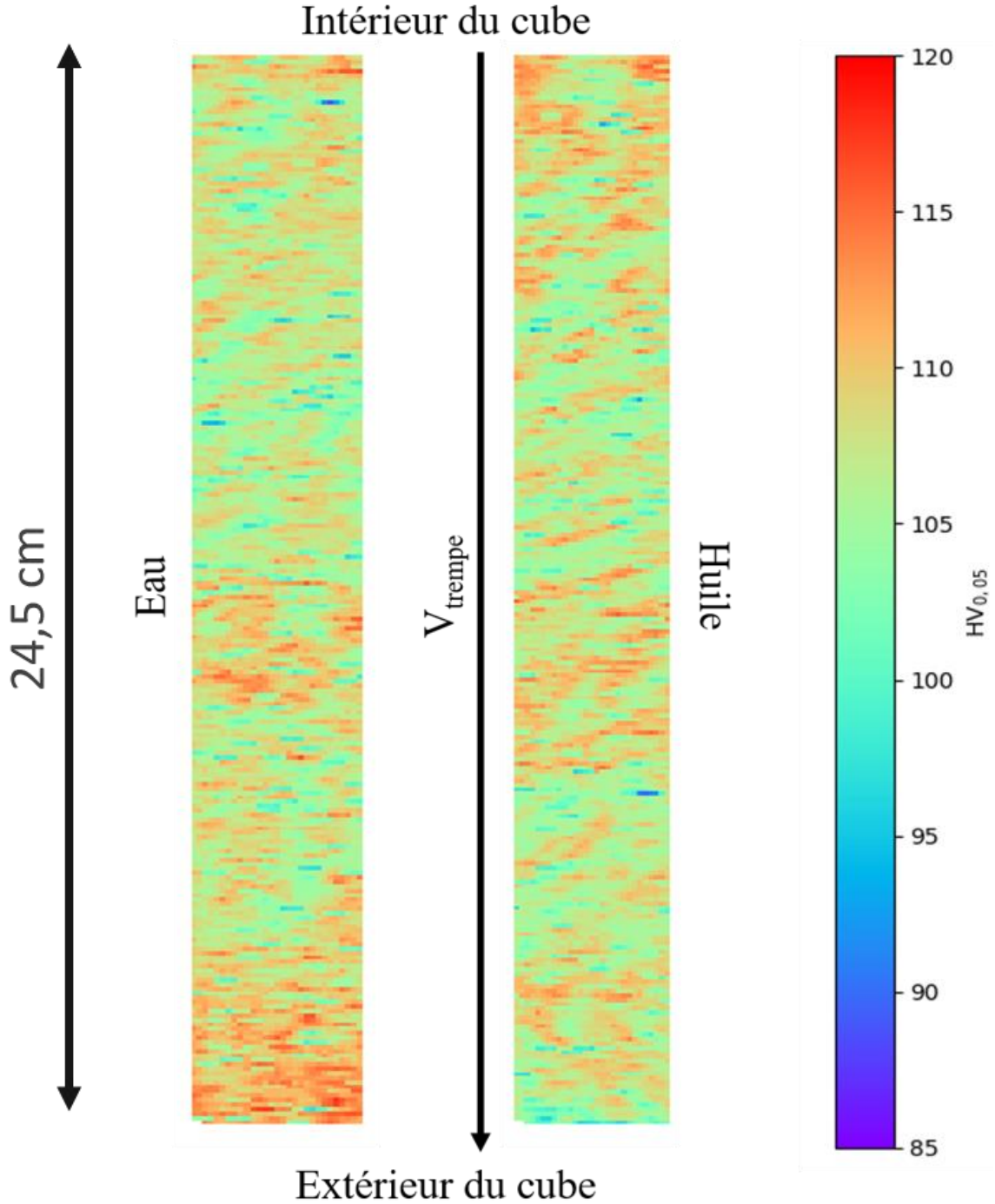


Figure 47 : Cartographie de microdureté Vickers ($HV_{0,05}$) sur les trempes huile et eau. Expérience réalisée sur une distance parcourant le cube de l'extérieur vers l'intérieur.

Les cartographies de microdureté effectuées sur les trempes eau et huile montrent une différence de comportement entre les deux états. Si la trempe huile présente une grande homogénéité des valeurs de dureté, la présence d'un ensemble de valeurs élevées dans la distribution de la dureté du trempé eau indique un comportement différent. La localisation de ces valeurs élevées sur la partie extérieure de l'échantillon sur une longueur d'environ 12 mm apparait en étroite corrélation avec la zone de haute vitesse de trempe (Figure 7). Il est donc observé ici une modification des propriétés mécaniques locales malgré une vitesse de trempe supérieure à la vitesse critique ($10^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$). D'autre part, l'absence de variation de la dureté de l'échantillon trempé huile indique, par raisonnement inverse, une certaine homogénéité dans la vitesse de trempe observée par l'échantillon.

Conclusions et proposition d'un schéma de précipitation

Dans ce chapitre, plusieurs états de trempe ont été explorés à travers des moyens de caractérisations représentatifs de différentes échelles. Dans un premier temps, des traitements thermiques ont été appliqués pour réaliser des échantillons ayant différents états de trempe. L'instrumentation et la modélisation de ces trempes a montré la variété des trempes obtenues et, dans le cas de la trempe à l'eau, l'inhomogénéité de la vitesse de trempe dans une pièce massive.

Les caractérisations mécaniques à l'échelle macroscopique ont montré de très légères différences entre trempe eau et huile ($v_{\text{trempe}} > v_{\text{crit}}$) et mis en évidence de très faibles propriétés mécaniques pour la trempe air.

Les observations microstructurales à l'échelle micronique ont montré que les vitesses de trempe plus faibles avaient tendance à favoriser la croissance des grains de taille moyenne en grains de grande taille. A la même échelle, la microdureté a montré une différence de comportement corrélé à un gradient de vitesse de trempe malgré une vitesse de trempe toujours supérieure à la vitesse critique.

A l'échelle submicronique, les faciès microstructuraux ont montré une évolution importante des particules se formant dans le matériau avec la croissance hétérogène de nouvelles phases même dans des gammes de vitesse de trempe supérieure à la vitesse critique de trempe.

Enfin, l'observation des nanoprécipités tend à montrer que les vitesses de trempe sur des tôles épaisses permettent d'atteindre la vitesse critique de trempe, seuil nécessaire à la nanoprécipitation. Cependant, des différences de taille et de densité observées dans le cas de la trempe huile et des différentes vitesses de trempes dans la trempe eau montrent des modifications microstructurales non négligeables essentiellement dues à de la précipitation hétérogène à fine échelle et à une plus grande dispersion en taille des particules submicroniques.

Ces différentes considérations à de multiples échelles mettent en évidence le caractère relatif de la valeur de $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ comme valeur critique de trempe : une variation de la vitesse critique selon l'échelle paraît raisonnable. Si cette valeur semble nécessaire à la nanoprécipitation, les modifications de microstructure et de propriétés mécaniques locales au-delà de cette valeur tendent à reconsidérer sa pertinence, notamment pour des applications technologiques spécifiques.

D'autre part, ces observations amènent à la proposition d'un schéma global de précipitation aux différentes échelles mettant en parallèle les effets sur les propriétés mécaniques. En outre, la dépendance de cette précipitation par le silicium, élément le moins soluble dans la matrice d'aluminium, est une clé pour construire le schéma le plus probable. La Figure 48 présente une proposition de réaction basée sur la disponibilité du silicium.

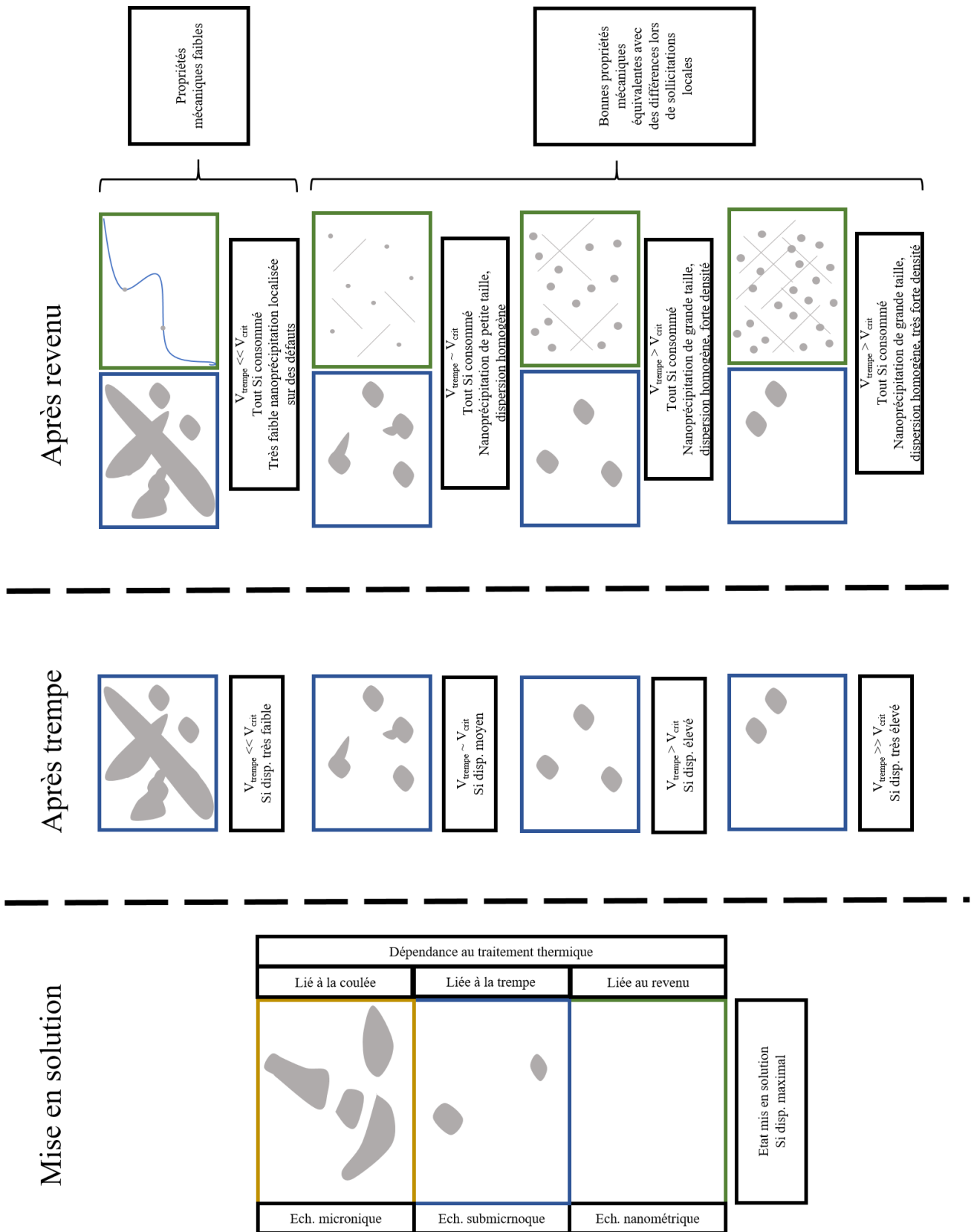


Figure 48 : Schéma réactionnel proposé suite aux observations réalisées dans ce chapitre

Bibliographie

- [1] CEA. *CAST3M*. (DEN/DM2S/SEMT).
- [2] Kapusta B. *Catalogue de propriétés thermiques et mécaniques des alliages d'aluminium (série 5000 et 6000) neufs et irradiés*. Rapport, SEMI/LEMO/RT/98-021/A, CEA-Saclay, 1998.
- [3] Holman J. P. *Heat Transfers, 10th Edition*. 756 p.
- [4] Totten G. E., MacKenzie D. S. *Handbook of Aluminum: Vol. 1: Physical Metallurgy and Processes*. CRC Press, 2003. 1314 p. ISBN : 978-0-203-91259-1.
- [5] Hasan H. S. et al. « Heat transfer coefficients during quenching of steels ». *Heat Mass Transf.* mars 2011. Vol. 47, n°3, p. 315-321.
- [6] Flament C. et al. « Electron irradiation-enhanced core/shell organization of Al(Cr, Fe, Mn)Si dispersoids in Al–Mg–Si alloys ». *Philos. Mag.* 2015. Vol. 95, n°8, p. 906-917.
- [7] Clouet E. et al. « Complex precipitation pathways in multicomponent alloys ». *Nat. Mater.* juin 2006. Vol. 5, n°6, p. 482.
- [8] Monachon C. et al. « Chemistry and structure of core/double-shell nanoscale precipitates in Al-6.5Li-0.07Sc-0.02Yb (at.%) ». *Acta Mater.* 1 mai 2011. Vol. 59, n°9, p. 3398-3409.
- [9] Vander Voort G. F. *Metallography, Principles and Practice*. ASM International. ASM International, 1999. 752 p. (ASM International).
- [10] Marioara C. D. et al. « Improving Thermal Stability in Cu-Containing Al-Mg-Si Alloys by Precipitate Optimization ». *Metall. Mater. Trans. A.* juin 2014. Vol. 45, n°7, p. 2938–2949.
- [11] Marioara C. D. et al. « The effect of Cu on precipitation in Al–Mg–Si alloys ». *Philos. Mag.* 2007. Vol. 87, n°23, p. 3385-3413.
- [12] Maisonnette D. et al. « Effects of heat treatments on the microstructure and mechanical properties of a 6061 aluminium alloy ». *Mater. Sci. Eng. A.* 2011. Vol. 528, n°6, p. 2718-2724.

CHAPITRE 4 : EFFETS DE L'IRRADIATION SUR LA MICROSTRUCTURE

Dans ce chapitre, une description de chaque expérience d'irradiation pour chaque état de trempe sera effectuée. Il a été choisi de présenter les expériences simple faisceau (2017) puis triple faisceau ensuite (2018) afin de comprendre les effets les plus simples puis les effets d'interactions avec He et Si. Les irradiations à fluence différentielles (2019) ayant un but quantitatif seront développées dans le chapitre suivant de même que la quantification et la modélisation à partir des observations présentées dans ce chapitre.

Dans la suite du chapitre, on nommera « cavité » tout amas de lacunes sous pressurisé par rapport à la pression d'équilibre de l'hélium et « bulle » tout amas sur pressurisé (dans notre cas par de l'hélium). Cette dénomination se base sur le modèle d'évolution de la bulle critique tel que décrit par Dai [1].

I. Irradiation simple faisceau à fort dpa (2017).....	134
1. Trempe eau	134
2. Trempe huile.....	142
3. Trempe air	146
4. Synthèse et interprétation	149
II. Irradiations triple faisceau (2018)	151
1. Trempe eau	151
2. Trempe huile.....	157
3. Trempe air	161
4. Synthèse et interprétation	163
Conclusions	166
Bibliographie.....	167

I. Irradiation simple faisceau à fort dpa (2017)

La campagne d'irradiation simple faisceau effectuée en 2017, a pour objectif d'observer de très forts dpa et d'évaluer l'impact microstructural. Ainsi, deux séries de 19 lames MET polies miroir et non percées ont été bombardées par des ions Au^{4+} à un flux de 2.10^{11} ions. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et une énergie de 3,5 MeV. La première série a été irradiée pendant 52h permettant d'obtenir un taux de dommage entre 100 et 150 dpa sur une épaisseur de 100 nm en surface. La deuxième série a elle été irradiée pendant 36h, obtenant ainsi un taux de dommage entre 60 et 90 dpa. Une description plus exhaustive des conditions est disponible dans le chapitre 2.

Par souci de simplicité, on se référera, dans la suite de cette partie à ces niveaux d'endommagement par leur minimum estimé, à savoir 100 dpa et 60 dpa.

1. Trempe eau

Les échantillons trempés eau ont été observés au MET après irradiation. La Figure 1.a représente un cliché MET en champ clair à faible grandissement d'un échantillon trempé eau. La microstructure observée est caractérisée par la présence de champs de déformation assez élevés et des particules (indiquées par les flèches rouges sur la Figure 1.a) dont la morphologie rappelle celle des dispersoïdes.

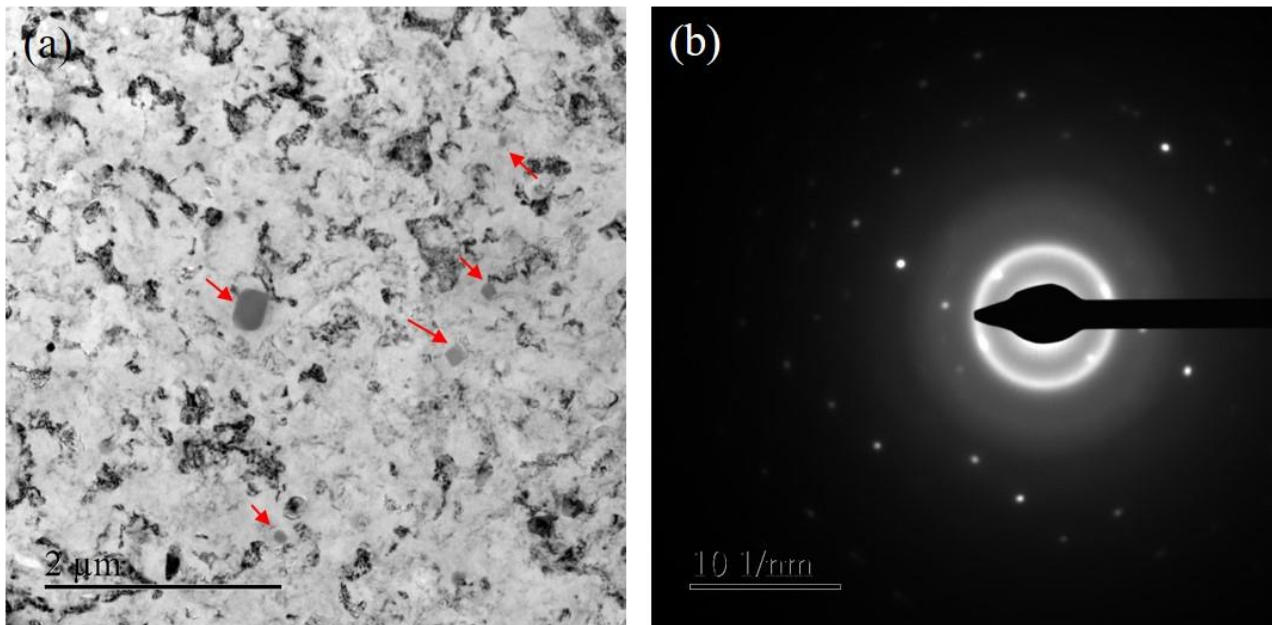


Figure 1 : Microstructure trempé eau (E14) après irradiation à 100-150 dpa : image champ clair en plan large (a) et diffraction associée (b)

Ces particules présentent un contraste gris homogène. On observe aussi de nombreux petits grains présentant des contrastes de déformation qui indique un état écroui. Cet état écroui n'est pas attendu pour ces expériences d'irradiation. En revanche il peut résulter de la préparation des lames spécifiques

aux échantillons irradiés. Comme présenté dans le chapitre 2, en raison des contraintes expérimentales, à la différence des lames minces classiques (cf chapitre 3), le polissage électrochimique n'a pas été réalisé sur les 2 faces mais sur une seule face. La zone écrouie en surface par le polissage mécanique est donc présente dans les lames minces amincies sur une seule face. Il est à noter qu'elle était aussi présente lors des irradiations.

La diffraction associée, Figure 1.b, présente des tâches de diffraction et des anneaux qui peuvent correspondre à un ensemble de grains d'échelle ultrafine (< 3 nm) et sans texture particulière ou bien à la présence d'une ou plusieurs particules amorphes.

La Figure 2 présente une sélection issue d'une série de clichés où l'angle α de tilt du porte objet varie entre 0° et 20° avec un pas de 5° . Quel que soit l'angle de tilt, comme l'illustre la figure 2a, les particules fléchées en figure 1a ne présentent aucun changement de contraste, ce dernier restant gris. Ce comportement est en accord avec une amorphisation de la particule comme suggéré par le diagramme de diffraction.

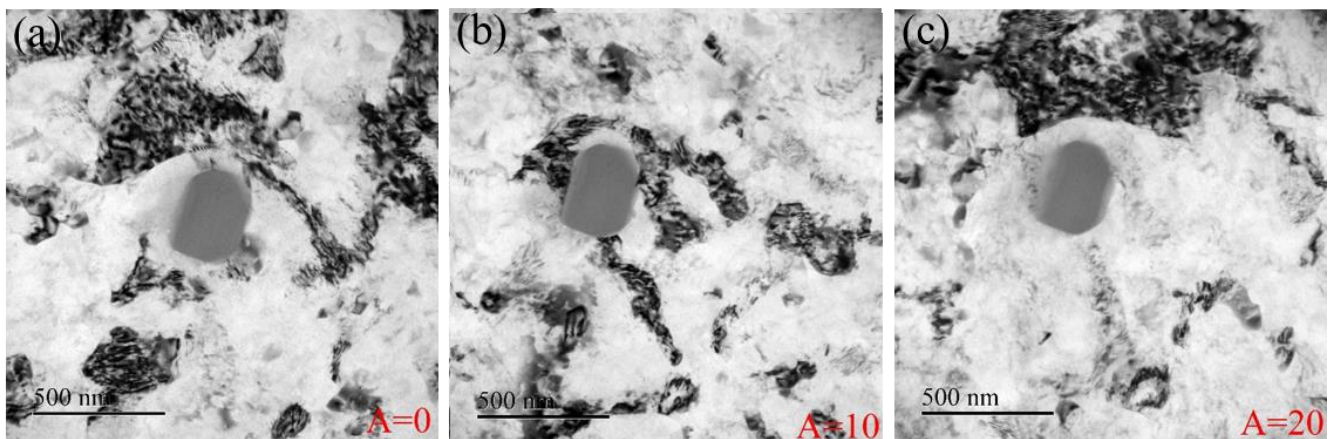


Figure 2 : Observation de la microstructure sur un échantillon trempé eau après irradiation 100-150 dpa : série d'images en fonction de l'angle de tilt

La particule observée au centre de la Figure 1.a a été analysée en EDX. Les résultats de cette analyse sont présentés Figure 3. La composition semble majoritairement dominée par les éléments fer, chrome, silicium et manganèse. Il s'agit donc bien d'une particule dispersoïde de phase α qui a été amorphisée par l'irradiation d'après les résultats précédents. Cependant, il est observé que l'extrémité du dispersoïde, $x > 0,35 \mu\text{m}$, présente une concentration en chrome plus élevée que le reste du dispersoïde. Cet effet cœur coquille était déjà rapporté dans les travaux de Flament et al [2,3]. Cependant, les travaux de Flament montraient une conservation du caractère cristallin des dispersoïdes à 100 dpa, ce qui ne semble pas être le cas ici.

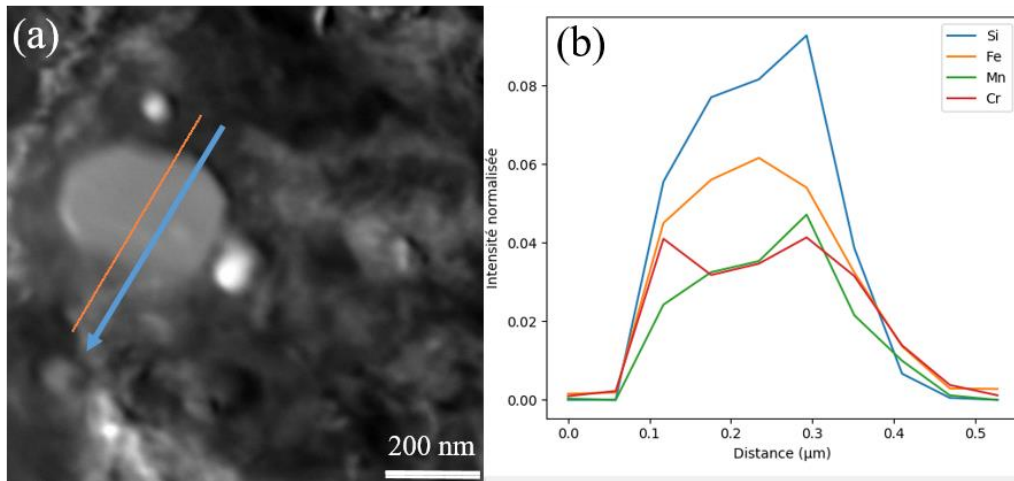


Figure 3 : Analyse EDX du précipité amorphisé sous irradiation dans la trempe eau : (a) Image STEM , (b) : profil de concentration chimique

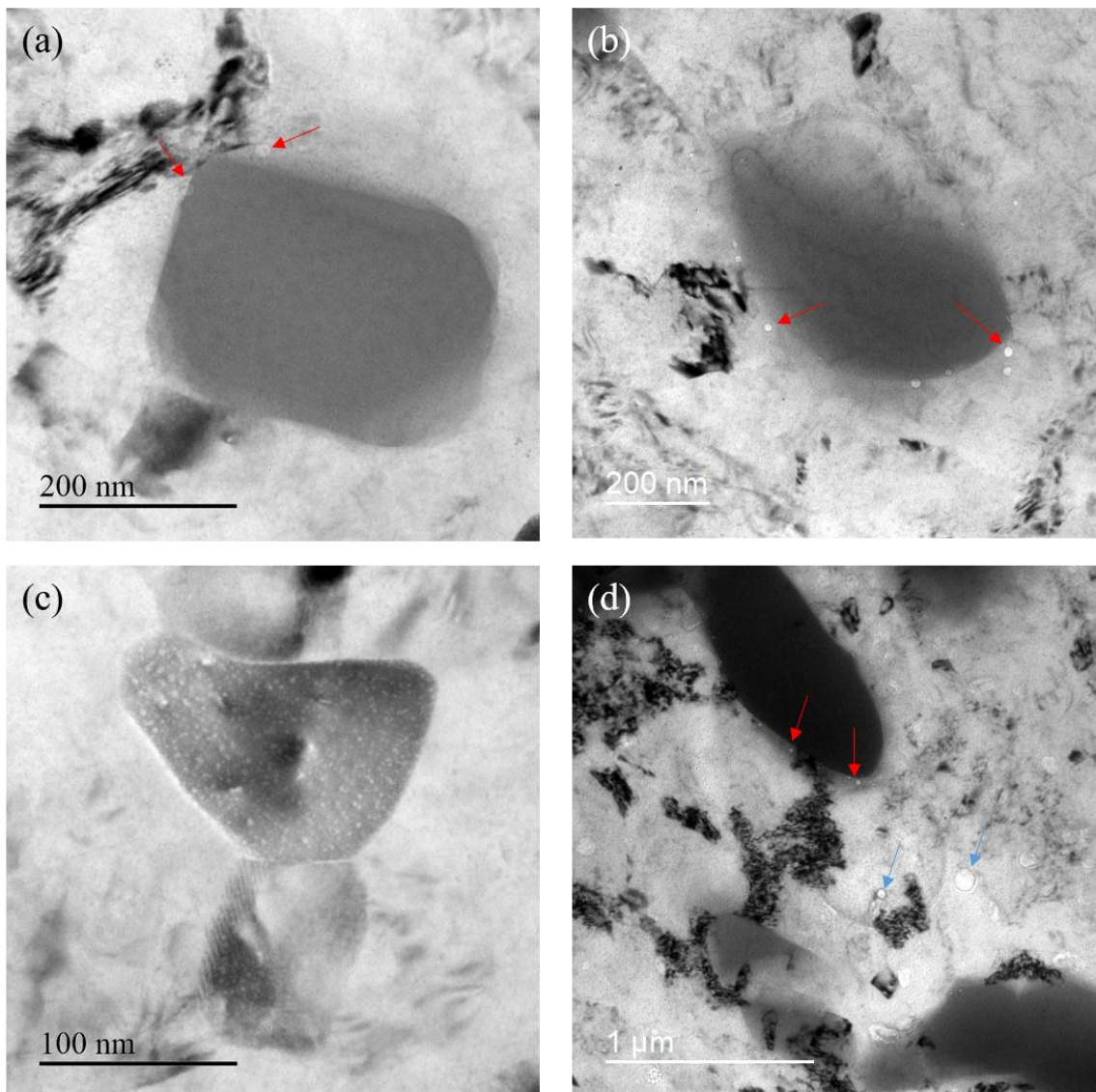


Figure 4 : Observation à proximité des dispersoïdes dans un alliage trempé eau irradié aux ions en monofaisceau : cavités autour d'un dispersoïde à 100 dpa (a) et 60 dpa (b), dans une particule à 100 dpa (c) et proche d'une phase micronique et dans la matrice (d)

L'observation de l'environnement proche des dispersoïdes présenté Figure 4 montre une importante densité de cavités. Les Figure 4a 4b montrent deux dispersoïdes à deux niveaux d'endommagement différent (100 dpa et 60 dpa). Par des séries tiltées, il a été montré que ces dispersoïdes présentaient tous deux un caractère amorphe. Dans les deux cas, de petites cavités de forme sphérique sont observées autour du dispersoïde dans la zone à l'interface entre la matrice et le dispersoïde (ces cavités sont fléchées en rouge). Ces cavités, toujours présentes autour des dispersoïdes, peuvent constituer une première source du gonflement. Dans de très rares cas, des particules présentant des cavités qui semblent être localisées à l'intérieur ont été observées (Figure 4.c). Cette observation est cohérente avec une particule de morphologie plaquette dont les cavités à l'interface entre la matrice et la particule semblent être à l'intérieur en projection. La Figure 4.d, présente un plan large sur un échantillon irradié à 60 dpa. Il est observé autour d'une phase micronique de nombreuses cavités de petite taille fléchées en rouge. La décoration de la particule par ces cavités rappelle celle observée pour les particules submicroniques et suggère l'interface phase-matrice comme un lieu préférentiel de nucléation de ces cavités tout comme dans le cas des dispersoïdes observés précédemment. Cependant, les phases microniques étant de grande taille ($> 10 \mu\text{m}$), le MET n'est pas adapté pour leur étude. Aussi, il n'est pas possible d'affirmer avec certitude que les mécanismes mis en jeu de la formation de cavités à cette interface soient les mêmes que dans le cas des dispersoïdes. Dans la matrice d'aluminium présentée sur la Figure 4.d, des cavités particulièrement alignées et fléchées en bleu sont observées. Cette observation conduit à s'intéresser de plus près à la nucléation de cavités dans la matrice.

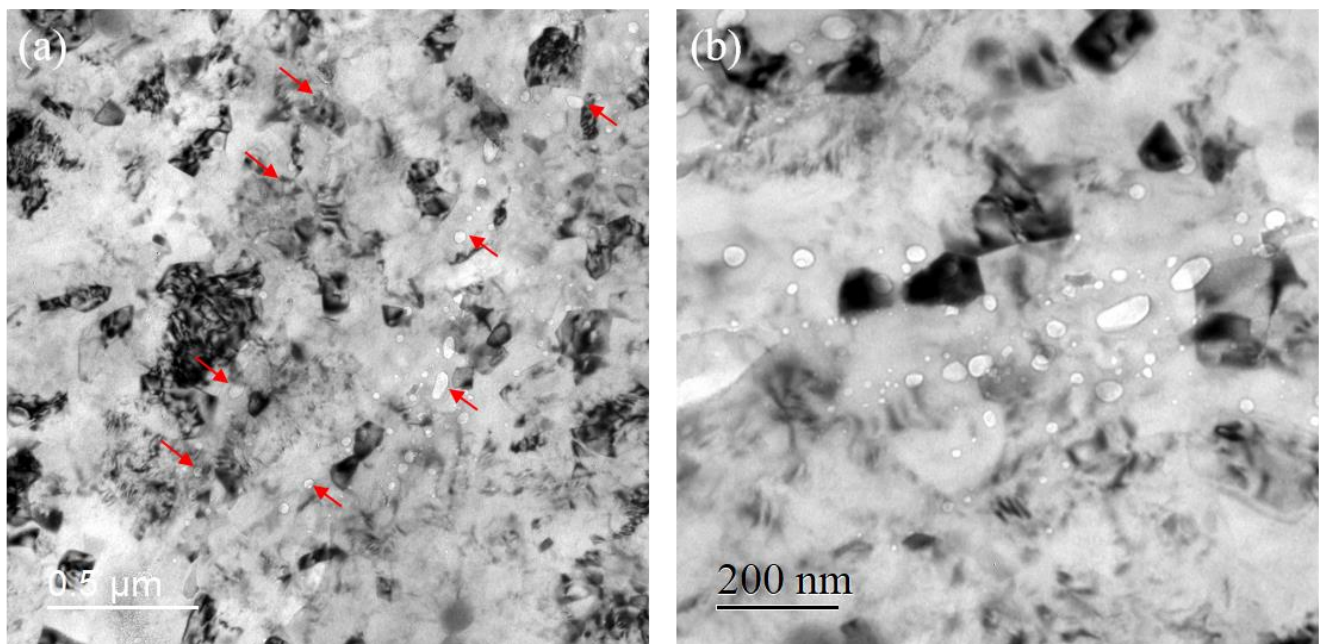


Figure 5 : Cavités observées dans la matrice d'aluminium d'un échantillon irradié 50h : observation à faible (a) et fort (b) grandissement

La Figure 5 présente des clichés MET de cavités observées dans la matrice. Sur la Figure 5.a, les cavités ont tendance à former des alignements (par exemple les cavités fléchées en rouge). Au centre du cliché,

est observée une zone entre ces deux rangées où aucune cavité n'a nucléé. La Figure 5.b est une observation à plus fort grandissement de la Figure 5.a. Les cavités semblent être de forme arrondie, ce qui correspond à une morphologie sphérique. Cependant, de bien plus longues cavités sont observées, avec parfois des côtés facettés. Ces cavités pourraient potentiellement être le témoignage d'un regroupement de cavités de plus petites tailles le long de défaut linéaire (ligne de dislocations) ou plans (interfaces, joints, sous-joint). En effet, les interstitiels plus mobiles restent piégés dans les défauts jouant le rôle de puits d'interstitiels (dislocations, joints de grain, interfaces) tandis que les lacunes, moins mobiles, resteraient piégées à proximités du défaut et formeraient alors des cavités.

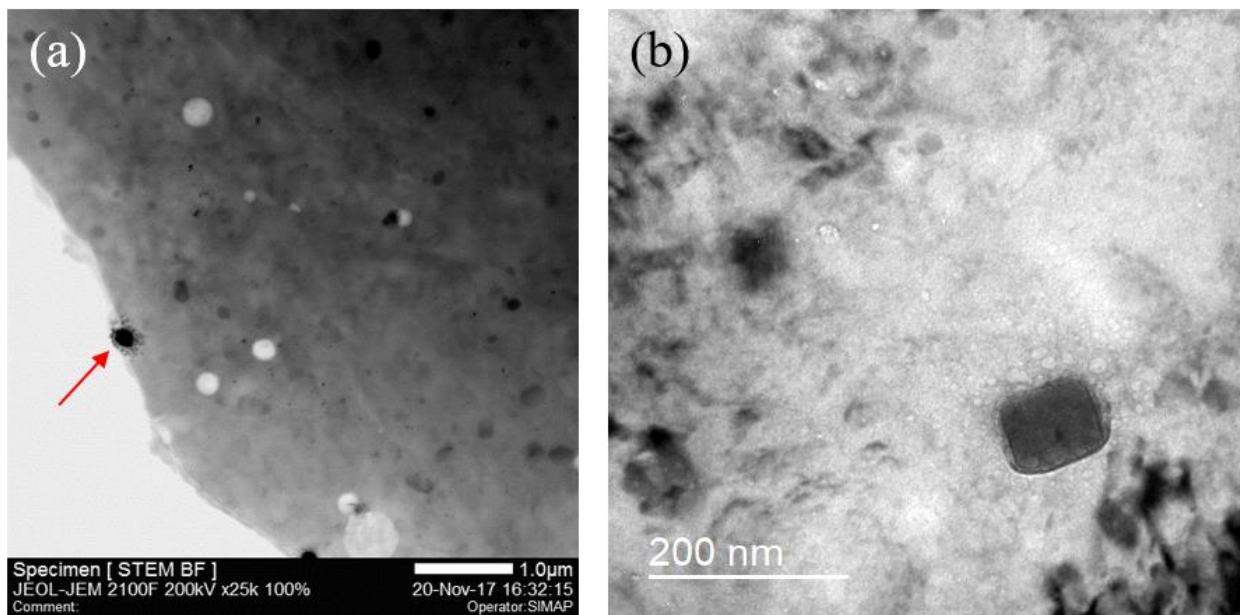


Figure 6 : Observation de grandes cavités issues de la préparation des échantillons : (a) en STEM sur un plan large, (b) en TEM sur un plan rapproché

La Figure 6 présente de grandes cavités observées au MET. Ces cavités de grandes tailles débouchant sur une des faces, notamment celles de la Figure 6.a sont probablement issues d'un amincissement préférentiel. La présence de trous de plus petite taille autour de certains dispersoïdes (Figure 6.b) indique que ces dispersoïdes seraient les zones faibles attaquées par l'acide. Ces artefacts sont facilement identifiables et peuvent être distingués des cavités: ils ne présentent pas de problème majeur pour l'observation. D'autre part, des agglomérats de particules comme celui fléché en rouge Figure 6.a ont été observés.

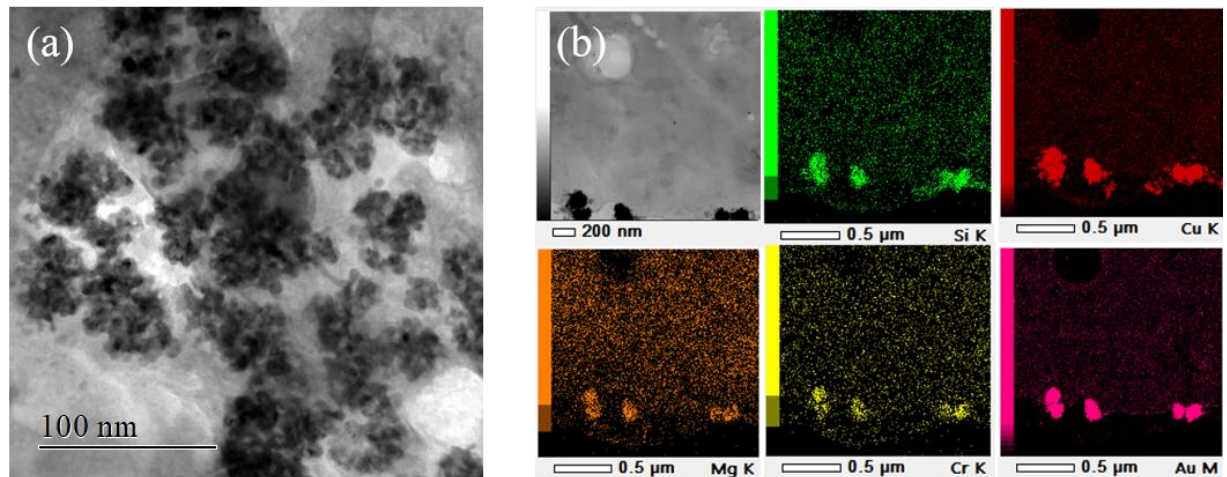


Figure 7 : Amas de particules (a) et analyse EDS dans une zone similaire (b)

La Figure 7.a présente un plan plus large de tels amas : il est observé un important contraste de l'image ainsi qu'une disposition en amas de sphérules. L'analyse EDS d'une zone plus large contenant le même type d'amas est présentée Figure 7.b. Dans ces amas il est observé une forte concentration en silicium, magnésium mais aussi cuivre, chrome et or. L'analyse EDS complète, disponible en annexe I, montre également la présence de cobalt, calcium et soufre : éléments étrangers à l'alliage. Ces éléments parasites en quantité sont toujours présents avec l'or, il semble donc raisonnable de les attribuer à une pollution du faisceau ou de la chambre d'irradiation. Cette présence d'or dans les particules est liée à l'irradiation. Elle témoigne d'un pouvoir d'arrêt important puisque ces particules ont stoppé la progression des ions Au^{4+} dans le matériau. En effet, le pouvoir d'arrêt des atomes est directement lié à leur masse. Pour un ion incident d'une masse supérieure à celle impactée dans le matériau (ce qui est toujours notre cas avec Au), l'énergie transférée augmente avec la masse de la particule incidente. Ainsi, la matrice d'aluminium présentant une plus faible masse atomique que les éléments présents dans les amas en moyenne, les ions Au^{4+} leur transféreront plus d'énergie. Ces amas semblent se comporter comme des pièges à ions. Enfin il est également à noter la présence d'oxygène dans ces amas.

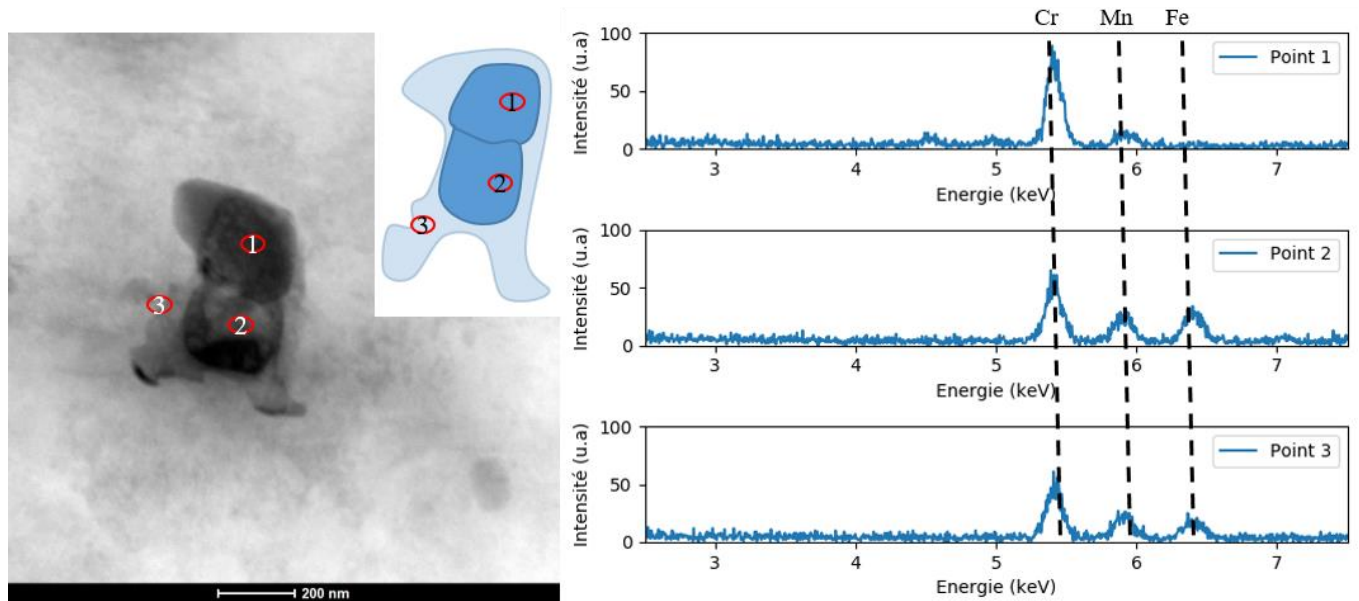


Figure 8 : Particule de type α observée après irradiation au MET en mode STEM. Spectre EDS associé pour chaque pointé autour des éléments caractéristiques (Fe, Mn, Cr)

La Figure 8 présente deux particules observées après irradiation en STEM. Les 2 particules présentées ici semblent accolées et entourées d'une zone d'aspect diffus. Le pointé EDS numéro 1 montre une prédominance du chrome et du manganèse dans la particule sans aucune trace de fer. Le pointé numéro 2 montre une coexistence des éléments fer, chrome et manganèse. Enfin, le troisième pointé, dans la partie diffuse montre également une coexistence des trois éléments. Cette observation témoigne d'une dissolution partielle des éléments autour de la zone d'intérêt. Cette observation a été répétée dans d'autres cas.

Sur les échantillons irradiés, les nanoprecipités n'ont pas pu être mis en évidence en raison de la présence des petits grains formés par écrouissage, aussi des pointes SAT prélevées en surface d'une lame MET non percée ont été usinées. La Figure 9 donne une représentation d'une pointe : il y est observé des précipités riches en Mg-Si-Cu similaires à ceux identifiés sur les pointes non irradiées observées dans le chapitre 3. Ces clusters indiquent que les nanoprecipités n'ont pas ou peu été dissous, durant l'irradiation.

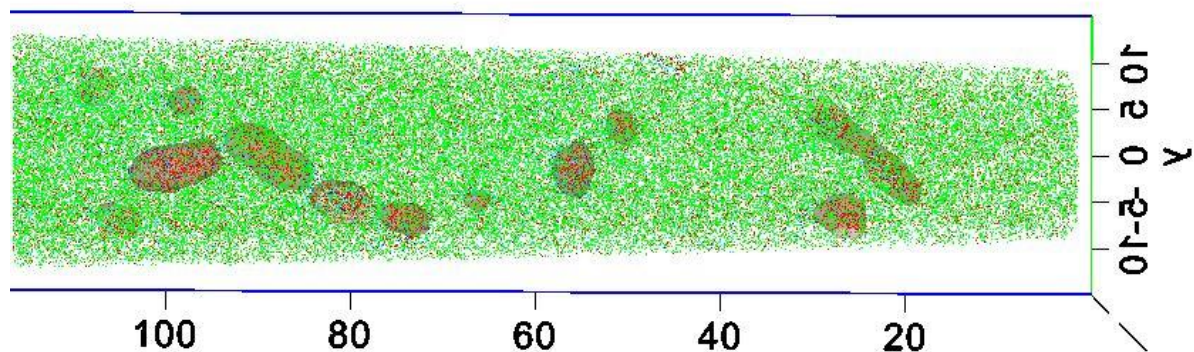


Figure 9 : Point SAT dans un échantillon trempé eau irradié triple faisceau : les isosurfaces rouges indiquent la présence de précipités MgSiCu

Les observations sur l'alliage trempé eau montrent plusieurs effets notables de l'irradiation sur la microstructure du matériau. Concernant les cavités, deux lieux préférentiels de formation sont identifiés. Premièrement, à l'interface dispersoïde-matrice, une population de cavités a été observée. Deuxièmement, une autre population de cavités, dans la matrice, très souvent alignées et localisées a été observée. Cette formation de cavités alignées a été attribuée à la présence de défauts (dislocations, joints, sous joints) et constitue le deuxième mode de formation des cavités.

L'observation des phases submicroniques montre une amorphisation de ces dernières aux deux niveaux d'endommagement : 100 dpa et 60 dpa. Cette observation indique que ce phénomène a lieu à plus faible dpa. D'autre part, les dispersoïdes ont parfois montré une dissolution partielle face à l'irradiation. Le comportement inhomogène des dispersoïdes constitue une difficulté quant à la caractérisation du comportement de l'alliage sous irradiation. Une conséquence majeure de l'irradiation non explorée dans cette thèse pourrait être des ségrégations chimiques cœur-coquille exacerbées [3].

En outre, des particules piégeant les ions ont été observés dans le matériau. Leur présence amène à s'interroger quant à la pollution liée à l'irradiation mais aussi, plus généralement, sur l'origine de ce comportement et son impact sur la représentativité des irradiations ioniques.

De même, la forte densité de petits grains dus à l'écroutissage, pourrait avoir une incidence sur les estimations du gonflement faites ultérieurement sur la base des cavités observées [4]. De plus, ces petits grains n'ont pas permis de caractériser la présence de nanoprecipités par MET, les analyses SAT ont cependant révélé leur présence.

2. Trempe huile

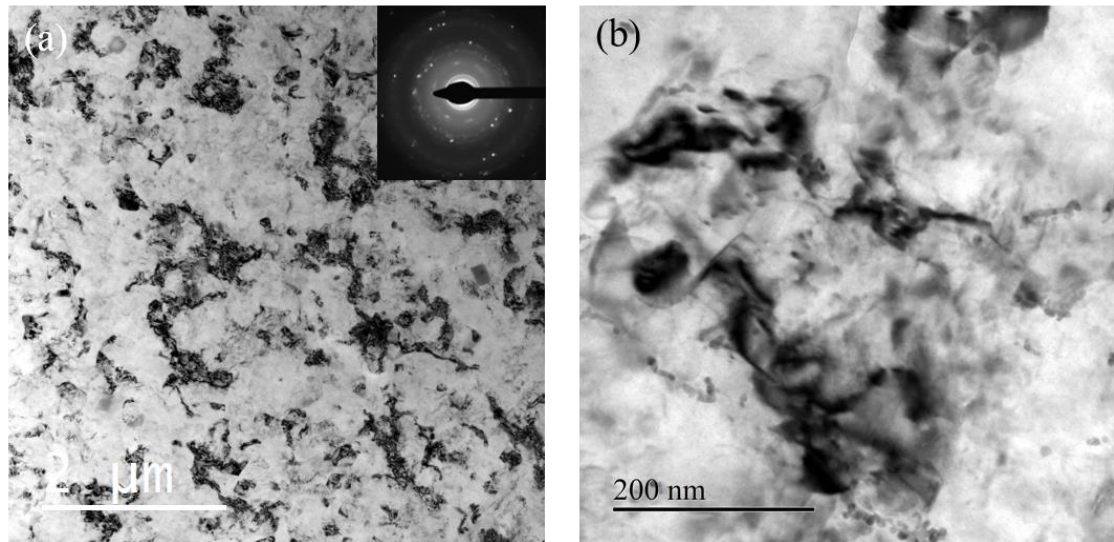


Figure 10 : Microstructure d'un échantillon trempé huile irradié aux ions à 60 dpa en plan large avec la figure de diffraction associée (a) et en plan resserré (b)

La Figure 10 présente la microstructure de l'alliage trempé huile après irradiation à 60 dpa. La Figure 10.a montre une forte densité de nanograins, tout comme dans le cas de la trempe eau. Cette observation est confirmée par le diagramme de diffraction associé. La Figure 10.b, présente la même microstructure à plus fort grandissement. Comparativement à la trempe eau, l'évolution des particules sous irradiation semble différente. En effet, comme explicité dans le chapitre 3, la trempe huile avant irradiation se caractérise par une double population de particules submicroniques : les particules de phases α , dispersoïdes classiques des alliages de série 6000 à l'état T6, mais aussi des dispersoïdes de plus grande taille, en forme de baguette, ayant précipité de manière hétérogène avec les phases α . Ces dispersoïdes hétérogènes n'ont pas été observés après irradiation. Il semblerait donc qu'ils aient été totalement dissous.

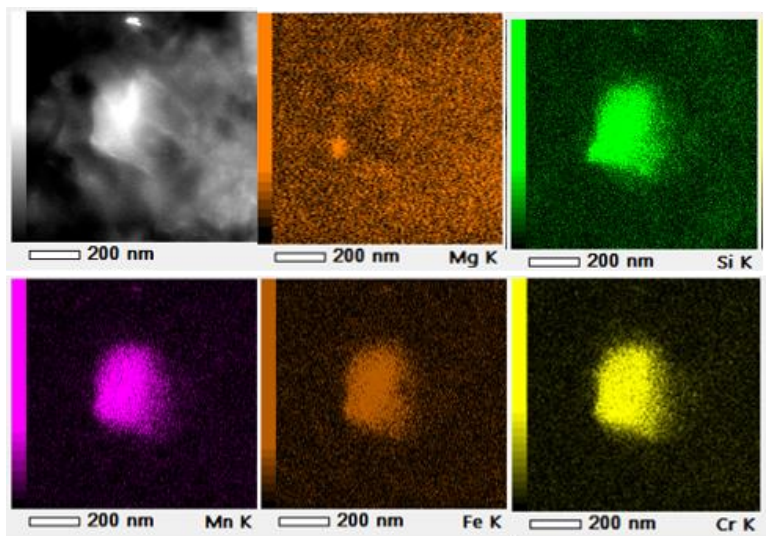


Figure 11 : Analyse EDS sur une phase α après irradiation sur un échantillon trempé huile (60 dpa)

La Figure 11 présente une analyse EDS sur une phase α après irradiation à 60 dpa dans le cadre de la trempe huile. L'image en STEM HAADF (Figure 11 a) suggère comme dans le cas de la trempe eau une dissolution partielle des éléments à proximité de l'interface entre la particule et la matrice. Les restes d'une précipitation hétérogène semblent toujours présents sur le bas de la particule qui présente une forte concentration en magnésium et silicium, effet déjà observé avant irradiation. Comme indiqué précédemment, aucune phase hétérogène, habituellement observée en trempe huile, n'est détectée. L'analyse d'autres particules de phases α post-irradiation (Figure 12) montre le même phénomène : la précipitation hétérogène semble fortement atténuée et n'est observée qu'une surconcentration de silicium. En effet, les analyses des deux particules Figure 12 présentent toutes deux une zone de forte concentration en silicium dans des zones, a priori, hors du dispersoïde d'après les clichés STEM. Le magnésium quant à lui semble précipiter uniquement dans certaines zones non conjointes au silicium (voir annexe J).

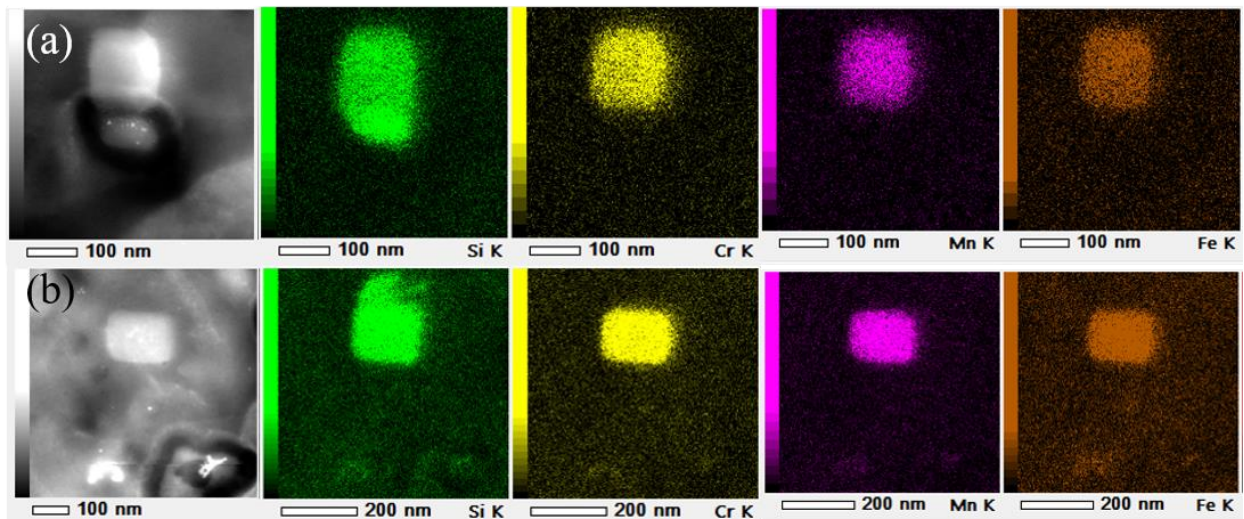


Figure 12 : Analyse EDS proche de différentes particules α dans le cadre de la trempe huile post irradiation (60 dpa)

D'autre part, des zones de forte concentration en éléments chimiques, jouant le rôle de pièges à ions, ont également été observés dans le cadre de la trempe huile. Ces zones, dont l'analyse est présentée Figure 13, montrent la présence de divers éléments chimiques, comme observé en trempe eau. En effet, il est tout d'abord à noter la présence importante d'or en forte concentration de même que de l'oxygène. Le silicium est présent en forte concentration dans la particule et ses abords. En outre, il semble associé au fer et au chrome. Le magnésium est présent majoritairement dans le cœur de la particule. L'absence d'une telle formation avant irradiation semble indiquer une évolution durant l'irradiation. De plus la présence d'anneaux en diffraction des électrons comme montré Figure 14.b indique un caractère partiellement amorphe de la particule.

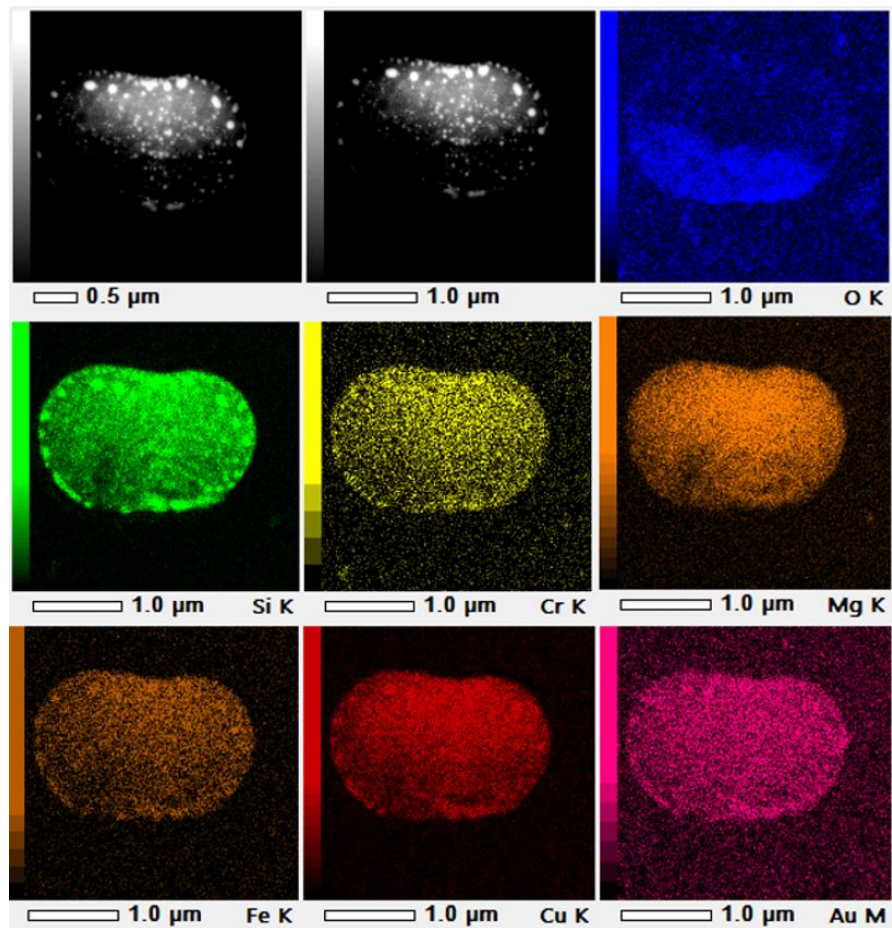


Figure 13 : Analyse d'une particule observé dans le cadre de la trempe huile (60 dpa)

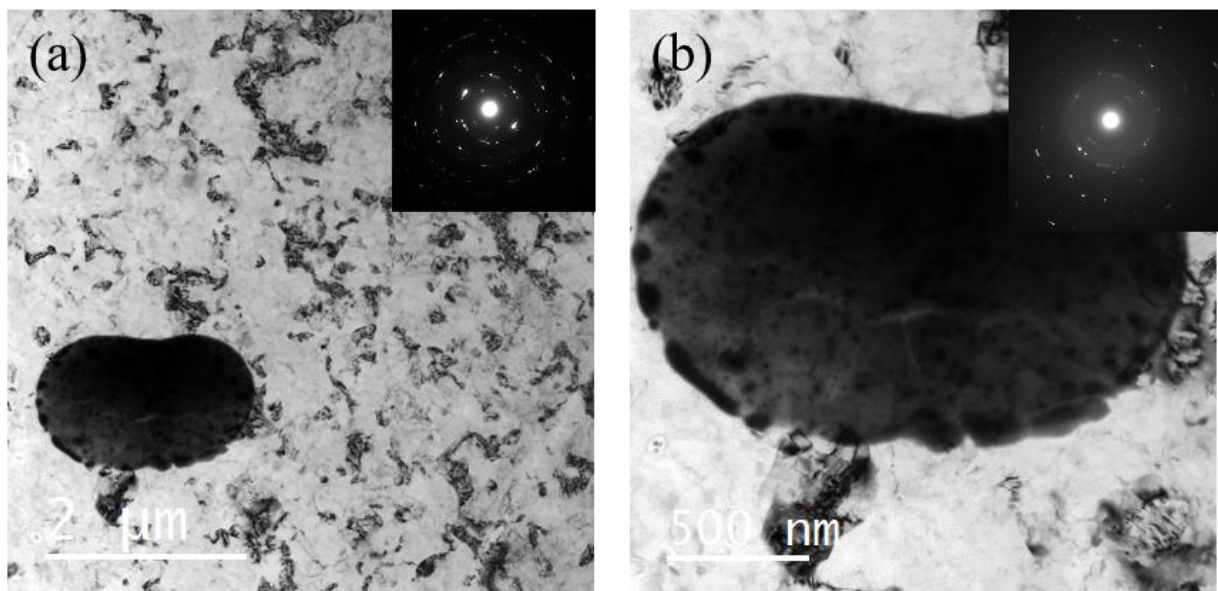


Figure 14 : Observation d'une particule et diffraction associée : vue large (a) et rapprochée (b)

Les cavités observées dans le cadre de la trempe huile présentent des alignements moins évidents que dans le cas de la trempe eau. Comme présenté Figure 15.a, des cavités dispersées dans la matrice sont

observées. Ces dernières semblent très proches de particules de phases α ici cerclées en rouge, elles sont de petites tailles (environ 10 nm) et difficiles à imager. De plus, la forme de ces cavités qui ne semble pas sphérique est assez mal définie. En outre, loin des phases α , ces cavités ne semblent pas présentes. D'autre part, des cavités alignées peuvent être observées comme le montre la Figure 15.b. Ces cavités, contrairement à celles de la Figure 15.a sont assez bien définies et de formes sphériques ou parfois résultant d'une agglomération. Les alignements de cavités rappellent ceux observés dans les échantillons trempés eau et paraissent suivre les contours d'un défaut linéaire.

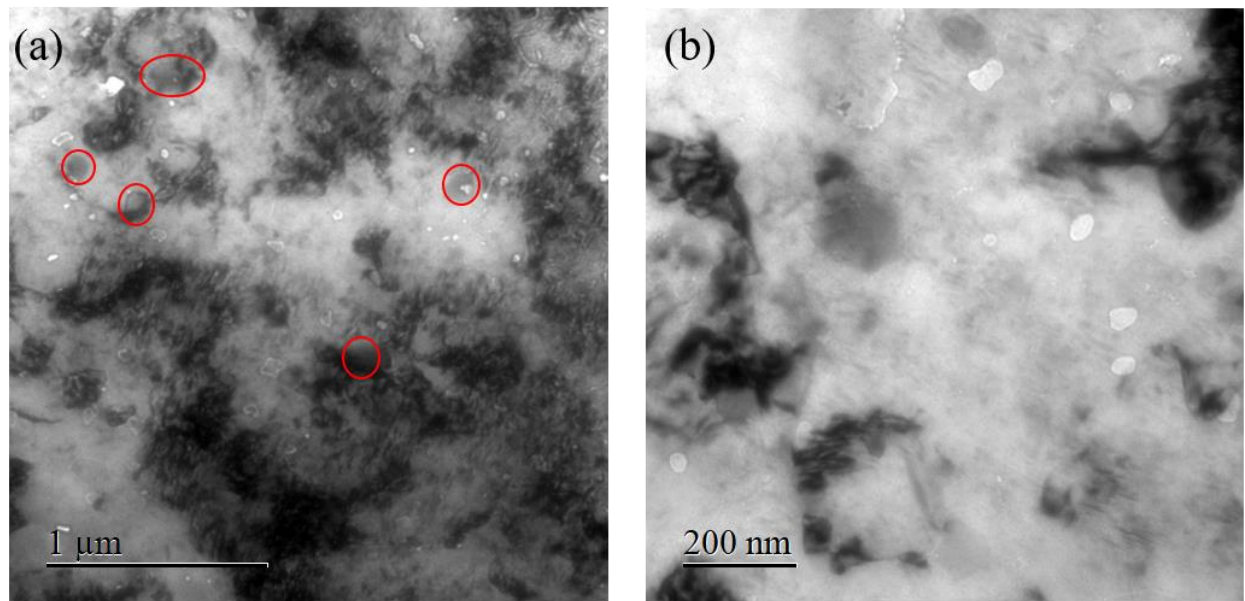


Figure 15 : Observations de cavités dans la trempe huile : (a) : cavités non alignées et de forme mal définie proches des phases α (cerclées en rouge), (b) cavités alignées

Les effets d'irradiation dans l'alliage trempé huile semblent similaires à ceux observés dans le trempé eau : Les deux modes de formation des cavités observés précédemment, à savoir la formation à l'interface dispersoïde-matrice et le long de défauts linéaires, ont été observés. De plus, les grosses particules amorphes semblent se comporter comme des pièges à ions tout comme dans le cas de la trempe eau. De même, des zones écrouies à petits grains attribuées à la préparation des lames ont été observées.

Cependant, la trempe huile présente une réponse spécifique à l'irradiation. En effet, les dispersoïdes hétérogènes présents avant irradiation semblent avoir été totalement dissous. Si les deux familles de cavités observées dans le cas de la trempe eau, à savoir les cavités alignées sur les défauts linéaires et à l'interface dispersoïde-matrice, sont ici présentes, une nouvelle famille est apparue proche des anciennes phases submicroniques hétérogènes présente avant irradiation.

Cette famille de cavités se distingue par une morphologie mal définie et par une germination au voisinage des phases α et à distance de l'interface dispersoïde-matrice. La disparition des dispersoïdes hétérogènes, la formation de particules chimiquement hétérogène ainsi que

l'apparition de cette nouvelle famille de cavités peuvent être interprété comme étant liés : la dissolution des phases α hétérogènes libère des éléments chimiques dans la solution solide qui vont alors précipiter différemment. D'autre part, la dissolution de ces phases laissant place à de nombreux défauts (notamment des lacunes), ces lieux deviennent des zones privilégiées de formation de cavités.

3. Trempe air

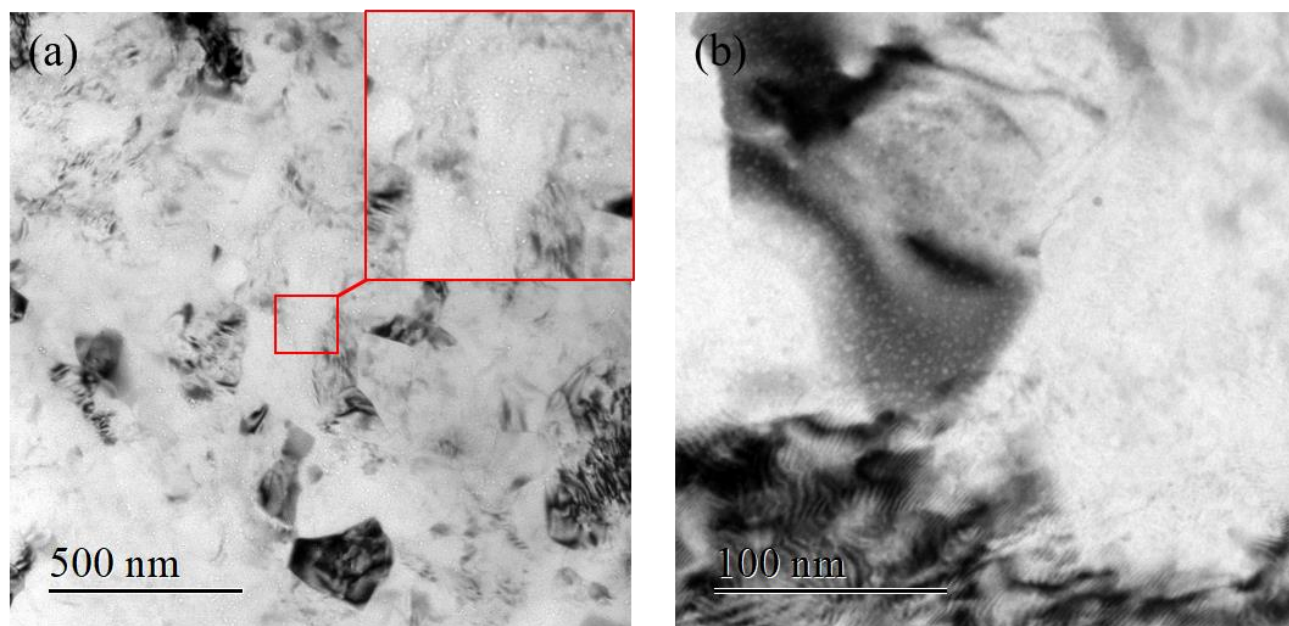


Figure 16 : Aspect général de la microstructure d'un échantillon trempé air irradié en simple faisceau (100 dpa) en plan large avec un zoom sur la zone centrale (a) et rapproché (b)

La Figure 16 présente la microstructure de l'alliage trempé air après irradiation aux ions Au^{4+} en monofaisceau à 100 dpa. La Figure 16.a présente une microstructure de nanograins écrouis similaires aux observations faites dans les trempes eau et huile. Cependant, contrairement aux observations précédentes, une importante densité de cavités de taille nanométrique est observée sur toute la microstructure, indépendamment de la présence de défauts linéaires ou non. Ces cavités de très petite taille (< 5 nm) sont réparties de manière homogène dans toute la microstructure et ont été observées sur tous les échantillons.

D'autre part, la précipitation sub-micronique hétérogène, observée dans le cas de la trempe à l'air avant irradiation, a totalement disparue. L'observation à plus fort grossissement, Figure 16.b, montre la présence de zones particulièrement denses en nanocavités

La Figure 17 présente un échantillon MET ayant subi un traitement particulier. Cette lame irradiée aux ions Au^{4+} à 100 dpa a ensuite été amincie au PIPS afin de se placer dans une zone à très faible dpa (~ 10 dpa). Il est ainsi observé des particules α , ici entourées en vert. Une particule α est observée au voisinage d'une zone allongée (entourée en rouge) présentant une forte densité de cavités et dont la forme rappelle

les précipités d'oxyde en forme de baguettes de grande taille présents avant irradiation. Cette observation a été répétée sur de nombreux précipités de cet échantillon. Ces zones pourraient être les traces des particules submicroniques de grande taille dissoutes sous l'effet de l'irradiation qui formeraient a posteriori les nanocavités observées dans la Figure 16.

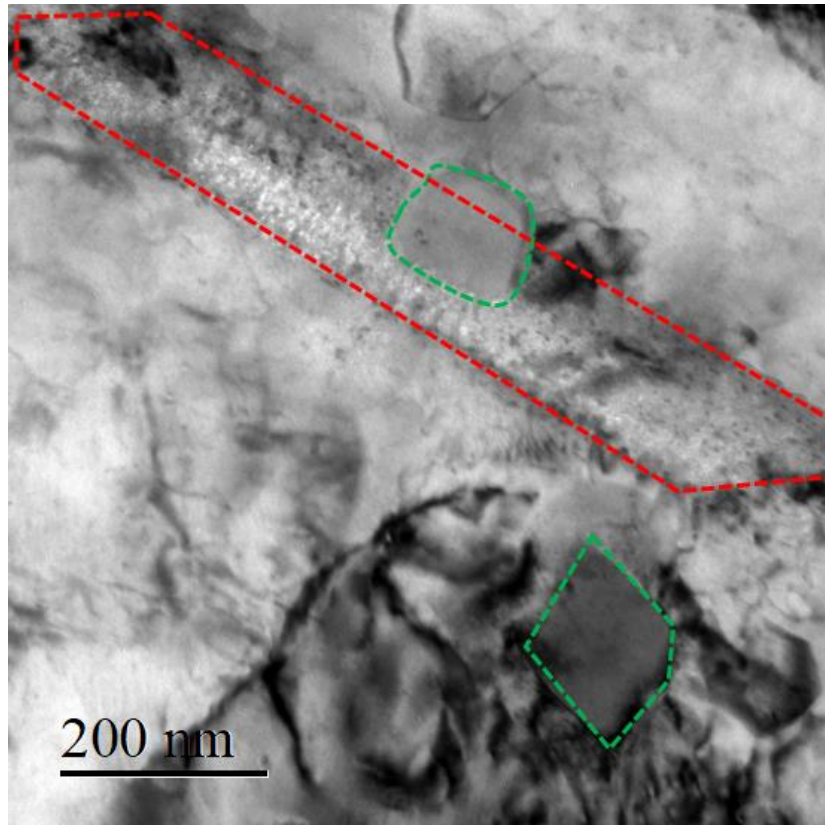


Figure 17 : Observation autour d'une phase submicronique dans une zone à faible dpa (~10 dpa)

Suite à ces observations, une cartographie EDS a été effectuée et est présentée Figure 18. Il est observé, une forte prépondérance du silicium ainsi qu'une importante concentration d'oxygène dans les zones rappelant les précipités en forme de baguettes ce qui est cohérent avec l'interprétation précédente. Les éléments fer et chrome sont absents des baguettes et présents dans les dispersoïdes. Ces observations sont cohérentes avec celles effectuées hors irradiation sur la trempe air. Cependant, une concentration élevée d'or est observée comme lors des analyses EDS effectuées dans le cas des trempes eau et huile, à savoir que les phases submicroniques ralentissent et captent les ions. Cependant, l'analyse de la cartographie montre une concentration en or prépondérante dans les baguettes et non dans les phases α . Ce type d'observation, répété sur d'autres phases submicroniques en baguettes (voir annexe K) témoigne d'un piégeage plus efficace des ions par les oxydes.

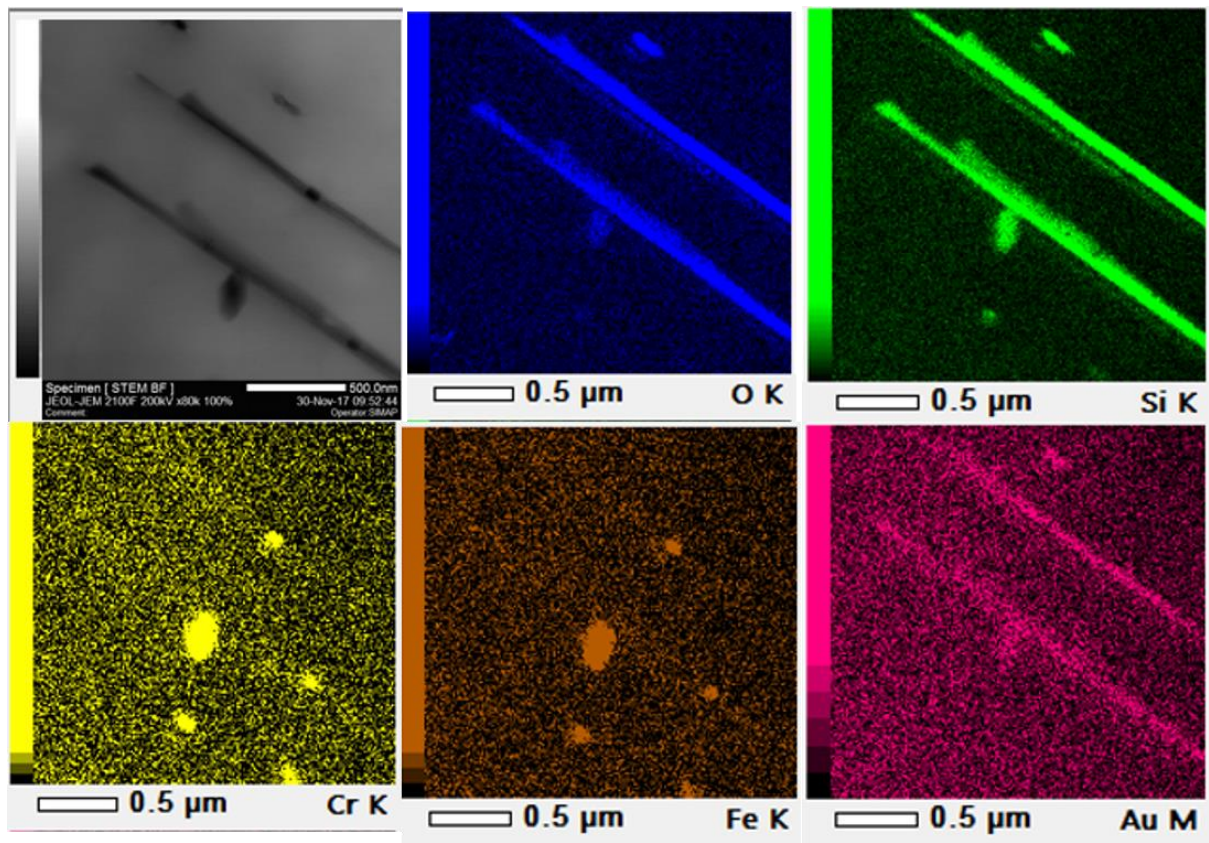


Figure 18 : Cartographie EDS de phases submicroniques sur une zone à faible dpa dans le cadre de la trempe à l'air

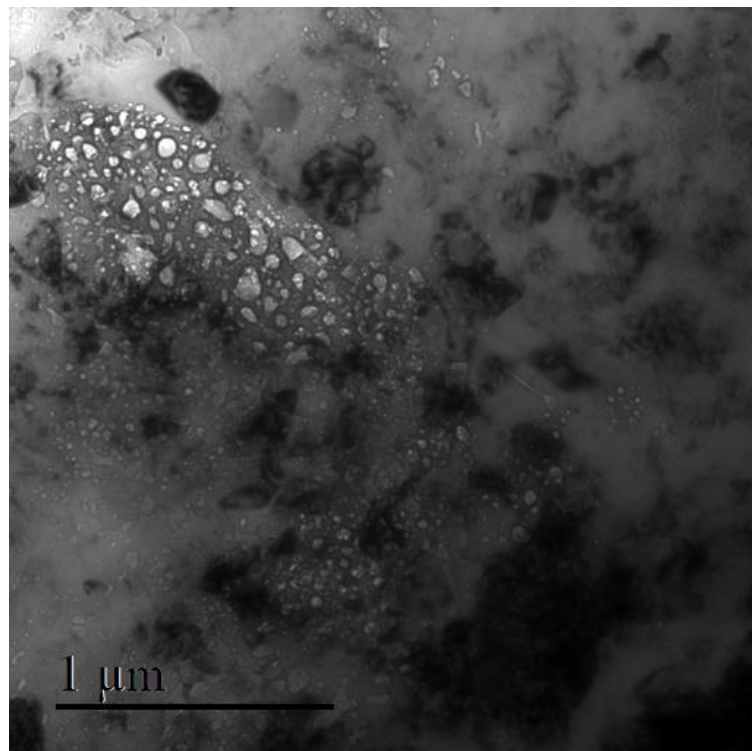


Figure 19 : Zone présentant une forte densité de cavités avec une grande dispersion en taille dans un alliage trempé air irradié aux ions Au⁴⁺ (60 dpa)

Sur certaines zones isolées d'échelle micrométrique, une très importante densité de cavités a été observée, comme présenté Figure 19. Il apparaît tout d'abord que ces cavités présentent une forte dispersion en terme de taille. Ces zones isolées de morphologie globale assez mal définie présentent des cavités de plus grande taille au centre qu'en périphérie. De ce fait, il est possible que le centre de ces zones soient à l'origine du gonflement anormalement élevé.

La microstructure de la trempe air présente certaines similitudes avec les modes de formation des cavités que ceux observés dans les trempes eau et huile. De même, des amas piégeant les ions ont aussi été observés.

Cependant, contrairement aux états de trempe précédemment observés, une importante population de cavités a été observée dans tout le grain et non uniquement aux interfaces, suggérant d'autres modes de formation. Cette formation de cavités semble être accompagnée d'une disparition totale des phases submicroniques grossières. En outre, la disparition de ces phases a été observée dès les faibles doses ce qui indiquerait un lien potentiel entre une nucléation de cavités homogènes dans le matériau et la disparition de ces phases.

Enfin, des zones de fortes densités de cavités ont été détectées. Ces zones d'échelle micrométrique, présentent des cavités de taille très dispersée, les plus grandes cavités sont situées au centre alors qu'en périphérie les cavités ont la taille et la densité observée dans le reste de l'échantillon. L'origine de ces zones n'a pas été déterminée mais il semble vraisemblable qu'elle soit liée à la présence des grosses phases submicroniques présentes avant irradiation de même que l'absence de nanopréciipitation qui constituent tous deux la signature de la trempe air.

4. Synthèse et interprétation

Les irradiations simple faisceau à fort dpa ont montré tant des différences que des points communs dans le comportement des différents états métallurgiques et par extension les effets de trempes. La nucléation de cavités au voisinage des défauts linéaires et des dispersoïdes par dissolution et amorphisation de ces dernières semble être le dénominateur commun de toutes les trempes, les phases submicroniques différentes des phases α sont sources de comportement spécifique à chaque trempe. Les observations présentées dans cette partie montrent qu'une plus grande densité et diversité des phases submicroniques est un élément favorisant la formation de cavités. En effet, plus ces particules sont nombreuses (*i.e plus la vitesse de trempe diminue*) plus la probabilité d'obtenir une importante densité de cavités en dehors des interfaces augmente. En outre sur de très faibles vitesses de trempe, il semble que des zones très étendues puissent jouer le rôle de puits de lacunes amenant une forte densité locale de cavités. Enfin, les phases α et autres objets submicroniques contenus dans le matériau semblent constituer des pièges de particules irradiantes ce qui constitue un questionnement important quant à la représentativité de ces irradiations.

Un schéma simplifié des effets observés durant les irradiations aux ions, en fonction de l'état de trempé est présenté Figure 20.

Une analyse quantitative des cavités a été effectuée et sera présentée dans le chapitre suivant dédié à la modélisation et la quantification du gonflement. Il faut souligner que d'après les études de Risbet [4], l'écroutissage de l'aluminium a tendance à augmenter la densité de cavités jusqu'à un certain seuil. Cet effet devra donc être pris en compte dans l'analyse critique des résultats et leur utilisation dans un modèle de gonflement.

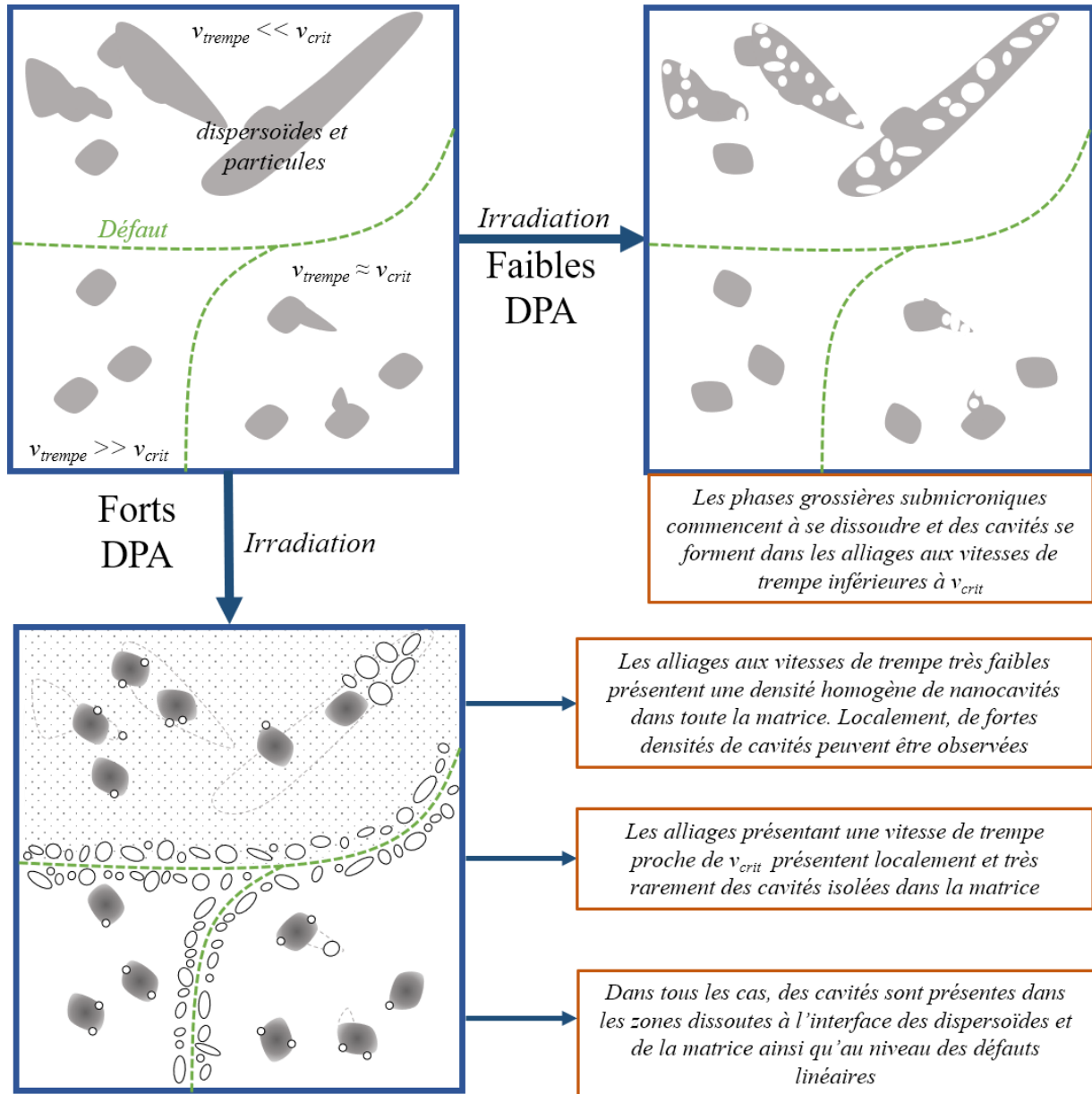


Figure 20 : Schéma global des modes de formation des cavités pour un échantillon irradié aux ions simple faisceau en fonction de l'état de trempé

II. Irradiations triple faisceau (2018)

La campagne d'irradiation triple faisceau effectuée en 2018 a pour but de reproduire et d'observer les effets de l'hélium et du silicium produits en réacteur par transmutation sur la microstructure et le gonflement de l'alliage ainsi que les effets de synergie associés. Pour ce faire un faisceau d'ions W^{9+} 13 MeV a irradié l'échantillon tandis que des faisceaux He et Si ont été utilisés pour obtenir une implantation concomitante dans la zone d'intérêt. Ainsi, la zone d'intérêt présentait un dommage d'environ 35 dpa. Suite à ces observations, une irradiation similaire avec un flux W^{9+} diminué de moitié a été effectuée afin de comparer l'effet des dommages à implantation constante. Enfin, il est à noter que les doses implantées en termes d'hélium et de silicium ne sont pas représentatives d'une durée de vie normale en réacteur et surestiment de plusieurs ordres de grandeurs cet effet. Aussi, cette partie s'attachera à une description qualitative de ces effets.

1. Trempe eau

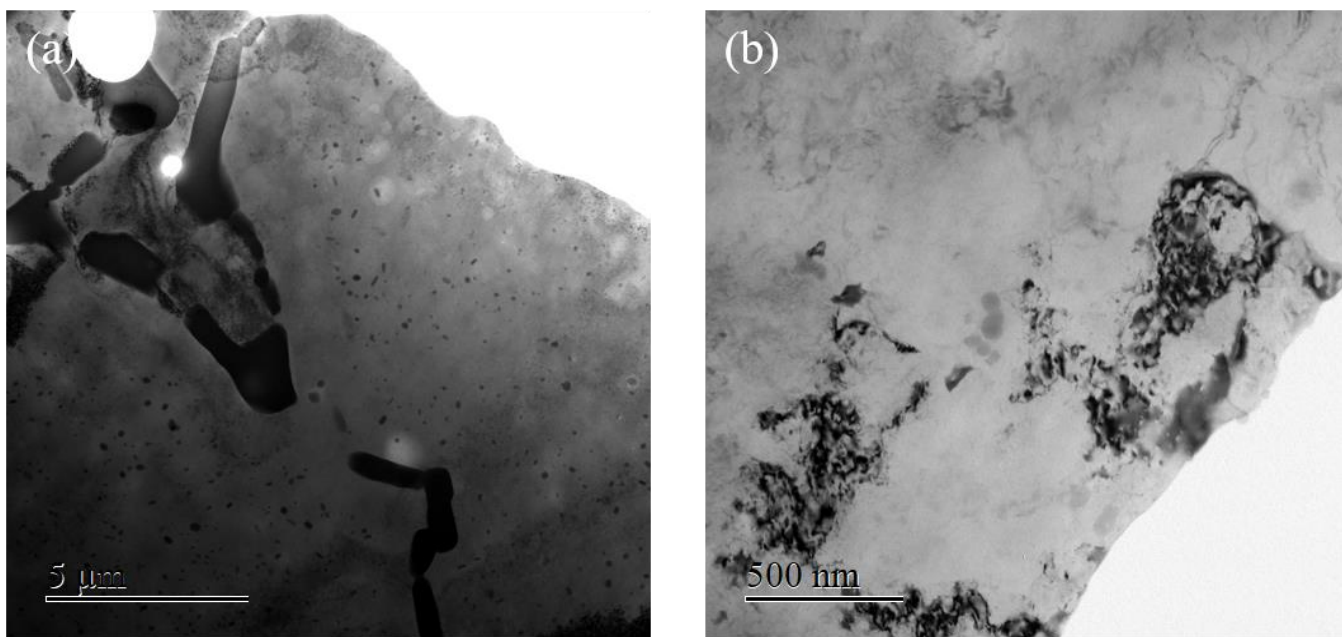


Figure 21 : Images MET en plan large d'un échantillon irradié aux ions triple faisceau dans un plan large à deux grossissements différents ((a) et (b))

La Figure 21 présente deux images MET en plan large d'un échantillon irradié triple faisceau. Sur la Figure 21.a les particules α typiques des séries 6000 sont observées ainsi que des phases microniques. Sur la Figure 21.b, présentant le même échantillon à plus fort grossissement, des particules α amorphisées sont observées de même que des zones présentant de forts contrastes de diffraction.

D'une manière générale, la microstructure de l'état irradié triple faisceau se distingue du simple faisceau par l'absence de nanograins dans les zones observées, sans que cela ne remette en cause leur présence à

la surface des échantillons, le polissage mécanique doux (silice colloïdale) pour atteindre la zone d'intérêt ayant totalement supprimé la zone écrouie par le polissage.

En orientant l'échantillon en conditions deux ondes et selon un axe de zone proche de $\langle 100 \rangle$, des clichés sur les zones de fort contraste ont été effectués et sont présentés Figure 22. Il y est observé une importante densité de nanoprecipités. Ces nanoprecipités ne présentent pas le même aspect que ceux avant irradiation : ils sont ici plus larges et plus difficiles à observer du fait du fort contraste présent dans la matrice.

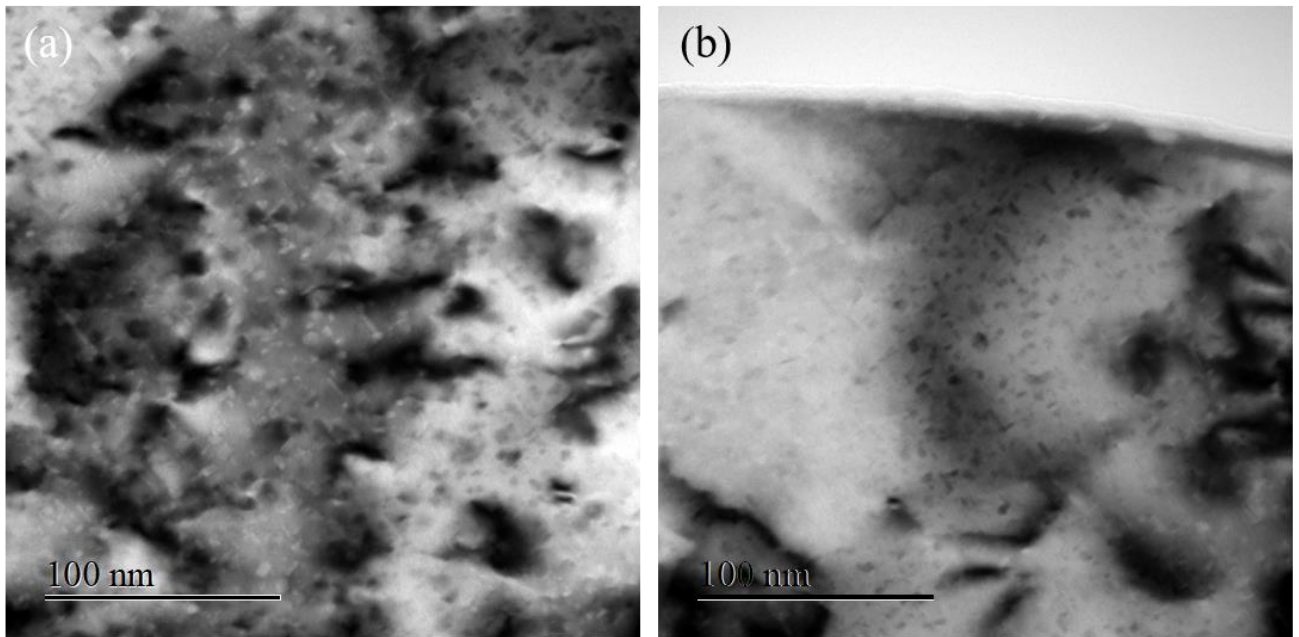


Figure 22 : Précipitation fine observée en axe deux ondes (a) proche du bord et selon un autre axe deux ondes (b) sur une trempe eau

Dans une orientation proche d'un axe de zone $\langle 100 \rangle$ des images en champ clair et en champ sombre caractéristiques des nanoprecipités des alliages Al-Mg Si ont été réalisées. La Figure 23.a présente le champ clair sur l'axe $\langle 100 \rangle$. La densité de nanoprecipités semble plus faible par rapport à l'état pré-irradiation.

D'autre part, il a été remarqué que des zones apparaissant denses en précipités sur une image champ clair selon un axe de zone 001 (région entourée en rouge sur la Figure 23.a) montrent peu de précipités lorsqu'on fait une image en champ sombre sur la tache éteinte de type 100. Ces précipités doivent donc correspondre à des phases différentes des phases β' ou β'' classiques de cet alliage. Cette précipitation n'ayant été observée que sur les zones d'implantation de l'hélium et du silicium, il est raisonnable d'affirmer qu'elle a été induite par l'implantation de ces éléments.

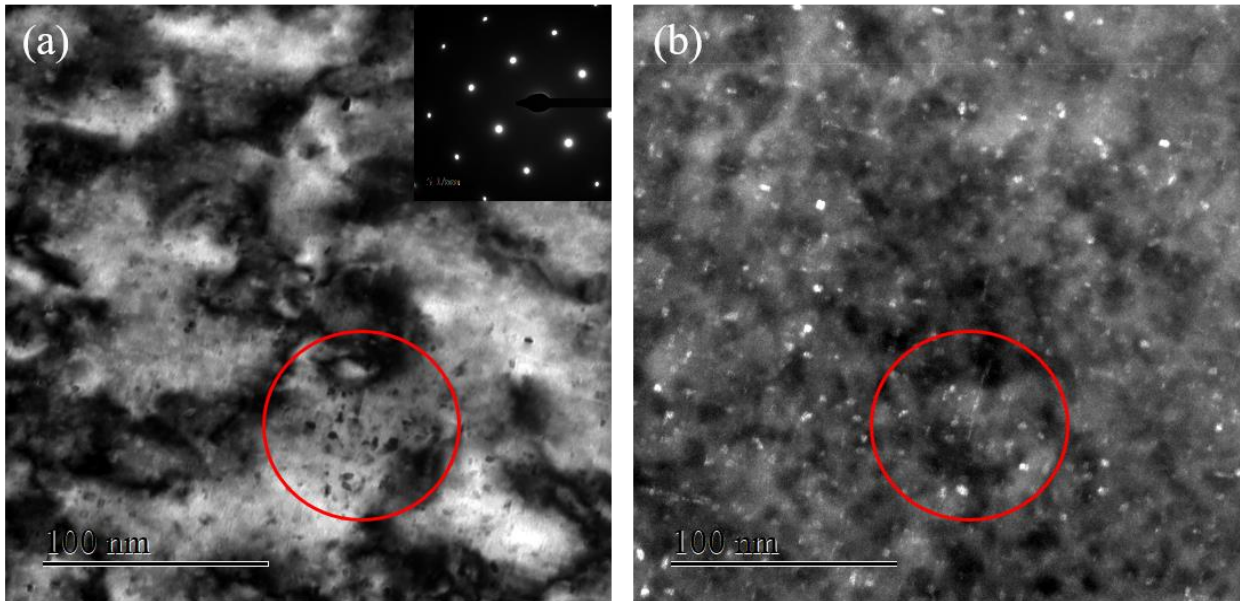


Figure 23 : Observation de la nanopréciipitation sur un échantillon irradié triple faisceau, trempé eau : (a) champ clair, (b) champ sombre

La Figure 24 présente plusieurs micrographies d'une zone d'implantation de l'hélium dans le cadre de l'irradiation effectuée à flux de tungstène diminué de moitié. La Figure 24.a montre la matrice d'aluminium avec une phase α la mise au point étant réalisée sur la matrice. La Figure 24.b a été surfocalisée et révèle ainsi une densité importante de cavités probablement remplies d'hélium dû à l'implantation. La microstructure des alliages d'aluminium après implantation d'hélium, mise en évidence précédemment par Soria et al. [6] présente un aspect identique. De plus, la présence d'hélium dans les cavités a été vérifié par EELS comme présenté Figure 25. Le spectre EELS de la zone avec les bulles (Figure 25a) présente un pic important dans les plasmons aux alentours de 22 eV d'énergie. Ce pic est connu pour être un témoin de la présence d'hélium. Dans les zones sans bulles (b), le pic des plasmons ne présente aucune intensité particulière aux alentours de 22 eV.

La Figure 24.c montre la même image en sous focalisation, le contraste est alors inversé. Sur les images b et c, il est observé une forte et homogène répartition des bulles d'hélium dans toute la matrice. Afin de quantifier la densité et la répartition de ces bulles, une analyse par seuillage a été entreprise. Cette analyse se base sur les images en surfocalisation comme celle présentées Figure 24.b. Les images MET ne présentant pas de fond homogène, un seuillage global ne peut pas être entrepris. Aussi, un seuillage adaptatif tel que le propose l'algorithme de Phansalkar [6] (qui constitue une amélioration direct de l'algorithme de seuillage global d'Otsu [7]) a été utilisé. Le résultat de ce seuillage est présenté Figure 24.d. Il est observé que les bulles sont ainsi correctement seuillées. D'autre part, les particules α et les impuretés le sont également. Cependant, vu la différence de taille entre les différents objets, une séparation par la surface des objets peut être entreprise.

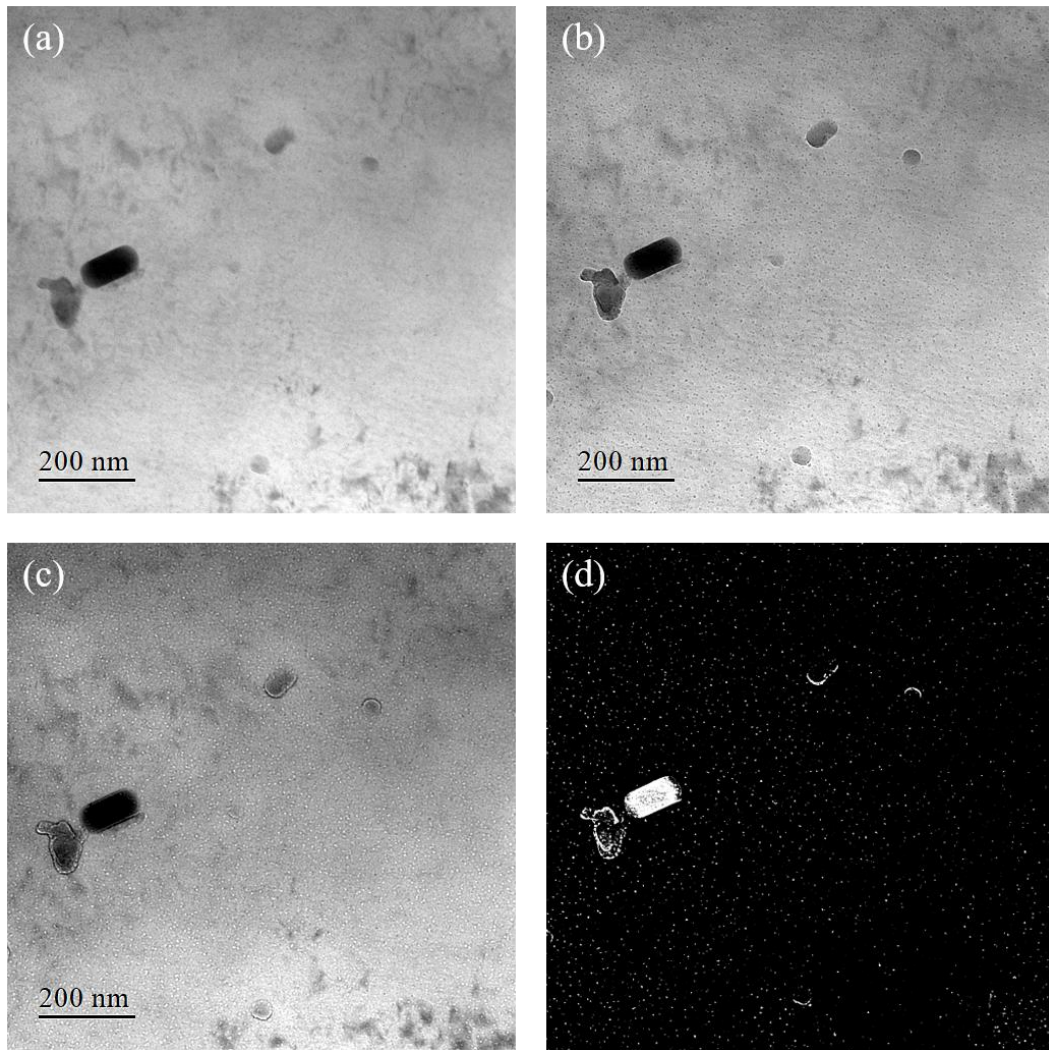


Figure 24 : Observations des bulles d'hélium dans la matrice d'aluminium dans le cadre de l'irradiation à flux diminué : (a) focalisation sur la matrice, révélation des bulles dans deux conditions de focalisation : surfocalisé (b) et sousfocalisé (c). (d) : seuillage des bulles pour analyse par la méthode de Phansalkar [6]

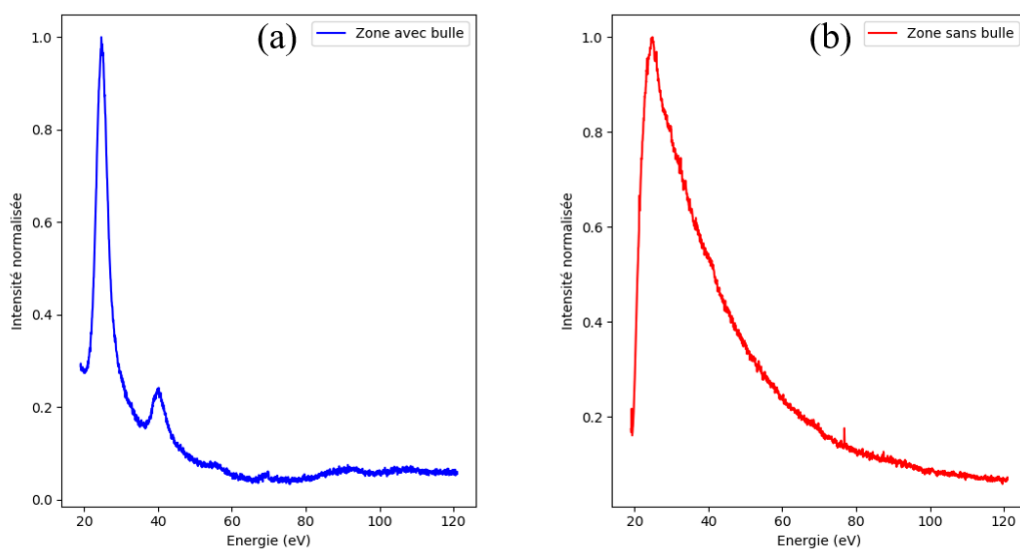


Figure 25 : Analyse EELS d'une zone (a) proche des bulles et (b) d'une zone sans bulle

La Figure 26 présente une image d'une zone présentant des amas de bulles ayant coalescé. Ces amas fléchés en rouge ont également été pris en compte lors de l'analyse statistique par la méthode de Phansalkar.

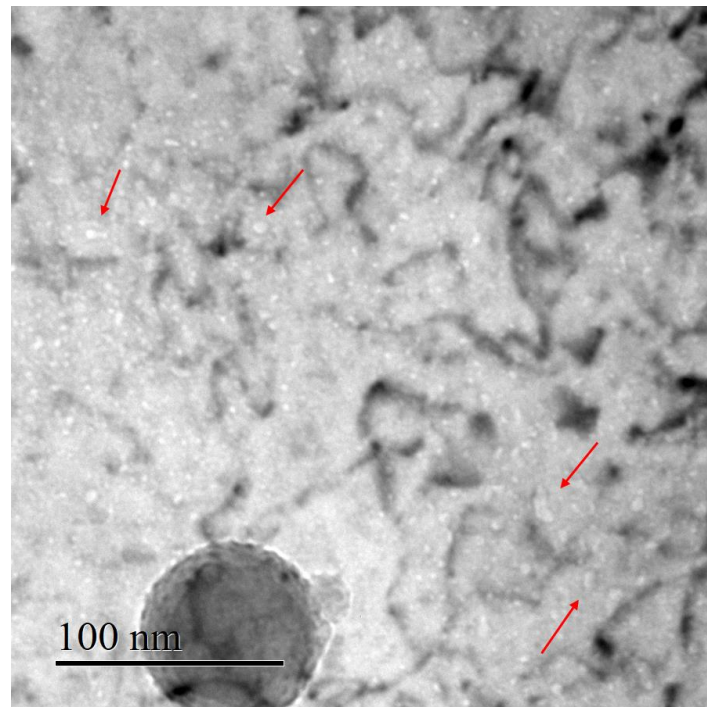


Figure 26 : Coalescence locale de bulles observée dans la trempe eau à forte fluence. Des amas de bulles fléchés en rouge sont observés

La Figure 27 présente les résultats de l'analyse quantitative de la dispersion des bulles d'hélium pour un matériau irradié à 35 dpa (flux total, Φ) et à 17 dpa (flux réduit de moitié, $\Phi/2$). Le Tableau 1 présente une sommaire analyse statistique de ces données.

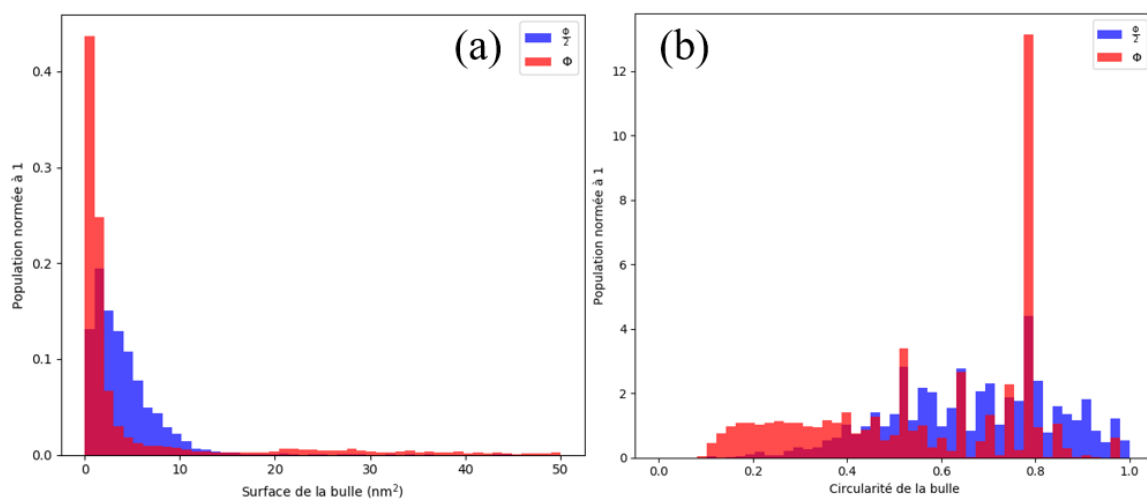


Figure 27 : Dispersion des tailles de bulles (a) et des circularités associées (b) pour des échantillons à 35 dpa (Φ , 2474 bulles analysées) et 17 dpa ($\Phi/2$, 2562 bulles analysées). Seuillage par la méthode de Phansalkar.

	$\Phi/2$		Φ	
	Moyenne	Ecart-type	Moyenne	Ecart-type
Surface (nm²)	4,2	3,6	7,0	14,8
Circularité	0,67	0,17	0,55	0,23

Tableau 1 : Données statistiques associées à la Figure 27

Il est observé, qu'à une fluence faible ($\Phi/2 \equiv 17$ dpa), la distribution des surfaces des bulles est dans un intervalle situé entre 0 et 15 nm². Ces bulles présentent alors en moyenne, une surface de 4,2 nm² et une circularité moyenne de 0,67. Ces valeurs correspondent à des bulles de morphologie quasi-sphérique assez bien définie. L'augmentation de la fluence ($\Phi \equiv 35$ dpa) pour une quantité d'hélium implantée identique modifie la distribution des surfaces et circularités. En effet, une séparation de la population est observée (Figure 27) : si les bulles de petite taille sont toujours majoritaires, de grosses bulles, d'une surface supérieure à 20 nm² sont observées comme présenté et fléché en rouge Figure 26. La lecture des données de circularité montre alors une plus grande dispersion des bulles avec une importante population de circularités inférieures à 0,4. En traçant les circularités en fonction de la surface pour les deux populations, Figure 28, il est observé que la diminution de la circularité coïncide avec l'apparition des bulles de grande taille ainsi qu'une importante dispersion de la population pour Φ .

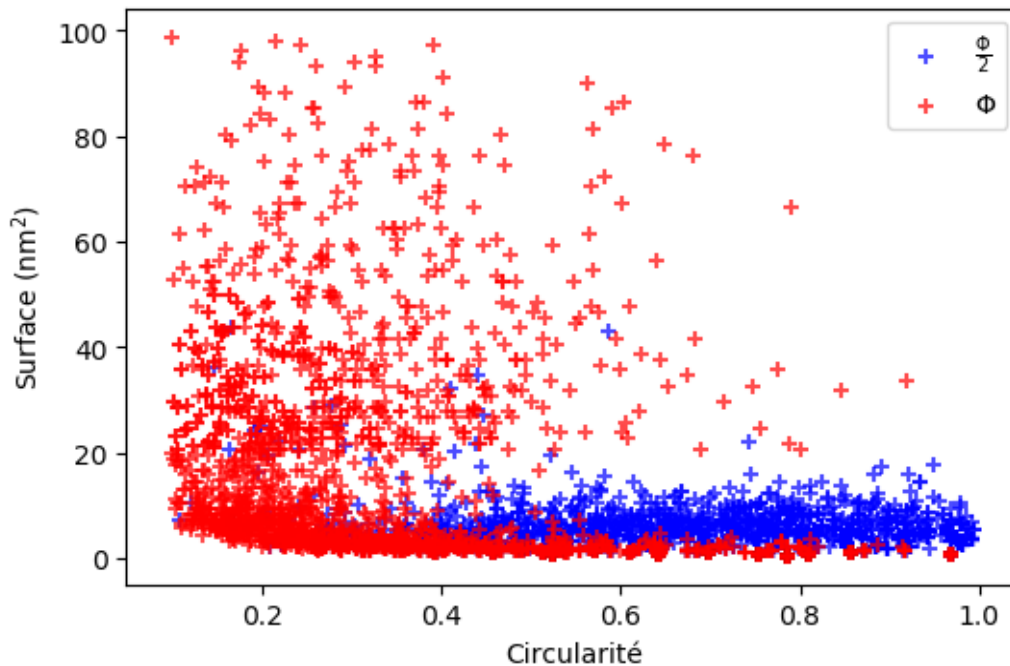


Figure 28 : Distribution des surfaces des bulles en fonction de la circularité pour différentes fluences

Les observations effectuées dans le cadre de la trempe eau sur les échantillons irradiés en triple faisceau ont montré des modifications structurales remarquables et différentes de celles effectuées en simple faisceau. L'analyse microstructurale révèle deux faits importants : les nanoprécipités présents avant irradiation semblent avoir été partiellement dissous, leur fraction surfacique ayant

diminué d'une part. D'autre part, de nouvelles phases nanométriques différentes de celles présentes avant irradiation ont été observées. Ces résultats corroborent les observations de la littérature quant à l'apparition de nouvelles phases sous irradiation [8,9]. Les nouvelles phases peuvent avoir pour origine l'implantation de silicium durant ces irradiations triple faisceau. En effet, les travaux de Flament et al. [9] montrent l'apparition d'une nouvelle nanopréciipitation riche en silicium sous irradiation, de même que ceux de Weeks [10] indiquent la précipitation de silicium pur sous irradiation neutronique.

L'implantation d'hélium a quant à elle amené à l'observation d'une densité de bulles dans toute la matrice. La caractérisation de la taille des bulles et de leur forme a montré un effet important de la dose (dpa). Il a été observé qu'une plus forte dose a tendance à former localement des regroupements de bulles plus dispersées prenant des formes plus allongées pour une même dose d'hélium implantée.

2. Trempe huile

Afin d'observer de manière plus détaillée les effets d'irradiation et de confirmer le profil d'endommagement de triple faisceau, il a été choisi d'observer l'échantillon trempé huile par le biais d'une lame FIB orientée dans le sens transversal. Le matériau source a été irradié au maximum de dommages soit 35 dpa. Comme présenté Figure 29.a, la zone d'intérêt d'après le profil SRIM [11] (Figure 29.b) où le silicium et l'hélium ont été implantés se caractérise par une bande située entre 1400 nm et 2000 nm. La Figure 29.b présente une vue rapprochée de la lame sur laquelle a été reporté le profil d'endommagement et d'implantation calculé par SRIM. Il est observé sur la partie droite de la photo la zone des petits grains, ici contenue entre les traits pleins en bleu et rouge. La zone à droite du trait rouge constitue le dépôt platine protecteur.

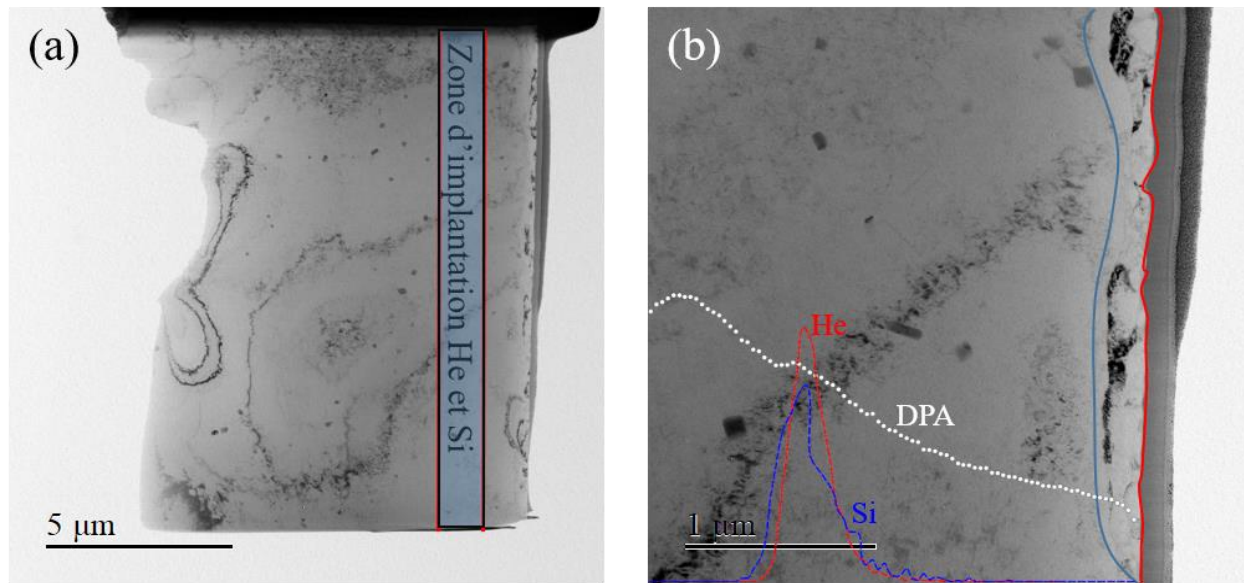


Figure 29 : Vue large d'une lame FIB trempée huile irradiée triple faisceau : (a) : observation de la lame entière, (b) : vue rapprochées de la surface

L'observation des bulles dans la zone d'intérêt est présentée Figure 30. Tout comme dans le cadre de la trempe eau, un réseau dense à l'apparence homogène de bulles est observé. La quantification de ce réseau de bulles est présentée Figure 31. Contrairement à la trempe eau dans les mêmes conditions, la distribution est très homogène. Cette observation pourrait remettre en cause les données des grosses bulles observées en trempe eau qui seraient alors liées à un état de surface différent entre une lame FIB et électroplie.

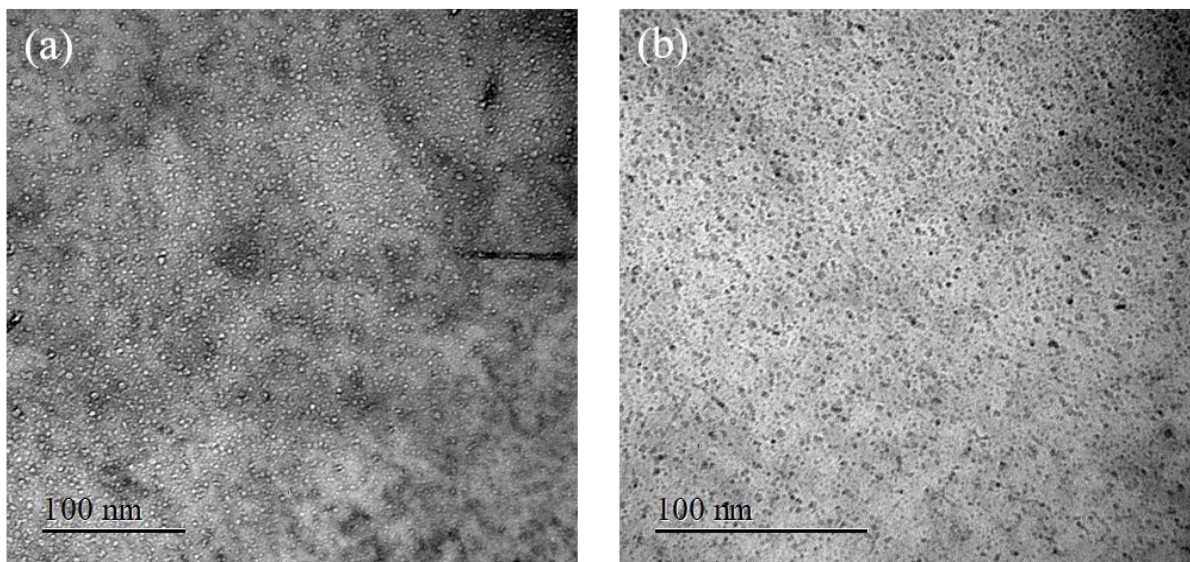


Figure 30 : Observation de bulles d'hélium dans le cadre de l'irradiation triple faisceau : condition sous focalisée (a) et sur focalisée (b)

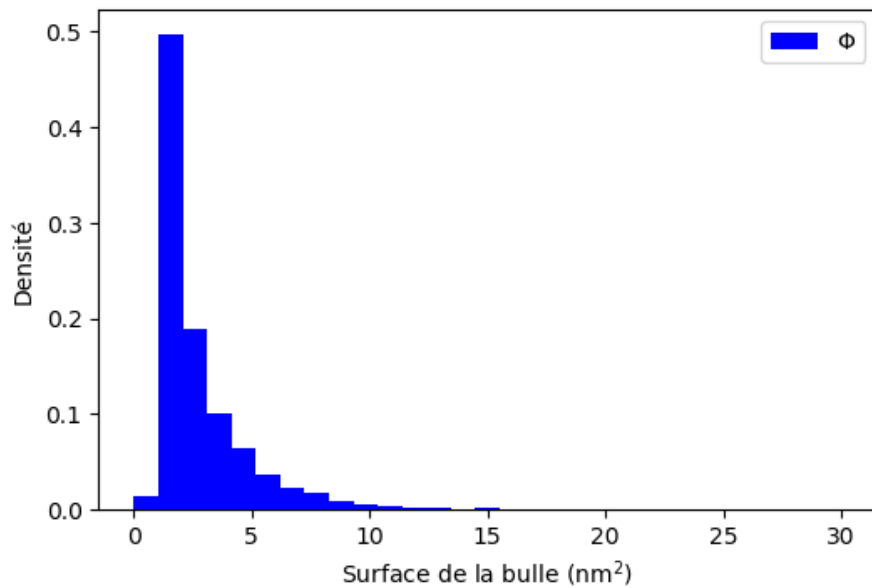


Figure 31 : Distribution des surfaces de bulles (statistique réalisée sur un échantillon de 2235 bulles)

La Figure 32 présente un dispersoïde dans le champ d'implantation de l'hélium et du silicium. Des bulles de grande taille (diamètre supérieur à 3 nm) localisées à proximité du dispersoïde comme précédemment sont observées. Quelques unes sont fléchées en rouge. Autour du dispersoïde dans la zone tracée entre les traits pointillés bleu et rouge, très peu de cavités de petite taille (diamètre inférieur à 3 nm) sont observées et les cavités de grande taille dominent. Au-delà du trait pointillé bleu, en s'éloignant de la particule, la répartition observée précédemment des cavités de faible diamètre (<3 nm) redevient majoritaire. Ces observations, effectuées en plusieurs points, semblent indiquer un effet important des dispersoïdes dans le comportement et la formation des bulles.

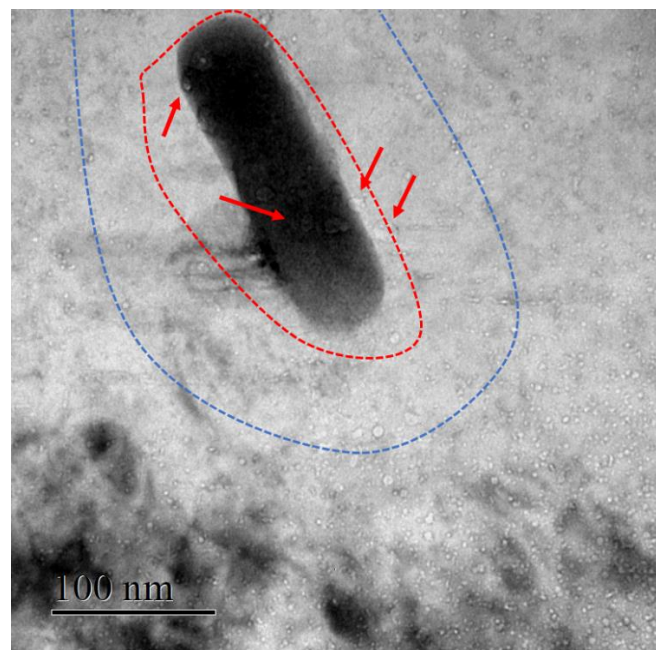


Figure 32 : Dispersoïde observé dans la zone d'implantation de l'hélium et du silicium

La Figure 33.a présente un champ sombre selon l'axe de zone $\langle 100 \rangle$ et le diagramme de diffraction associé. Le trait plein en rouge représente la limite externe de la zone d'implantation conjointe de l'hélium et du silicium. Il est observé que, hors de la zone d'implantation, une densité importante de nanoprécipités est présente. Cependant, plus la zone observée se trouve proche de la zone d'implantation, plus la densité semble faible. La Figure 33.b est un champ sombre observé pris uniquement dans la zone d'implantation He/Si. Le phénomène décrit précédemment et observé en plan large est ici confirmé : une plus faible densité de nanoprécipités avec des tailles apparemment plus faibles et une apparence morcelée est observée.

D'autre part, en condition deux ondes proche $\langle 100 \rangle$ dans la zone d'implantation, il a été vérifié que les nouveaux nanoprécipités, précédemment détectés dans le cadre de la trempe eau, sont apparus. Cette précipitation n'est observée que dans la zone d'implantation conjointe du silicium et de l'hélium.

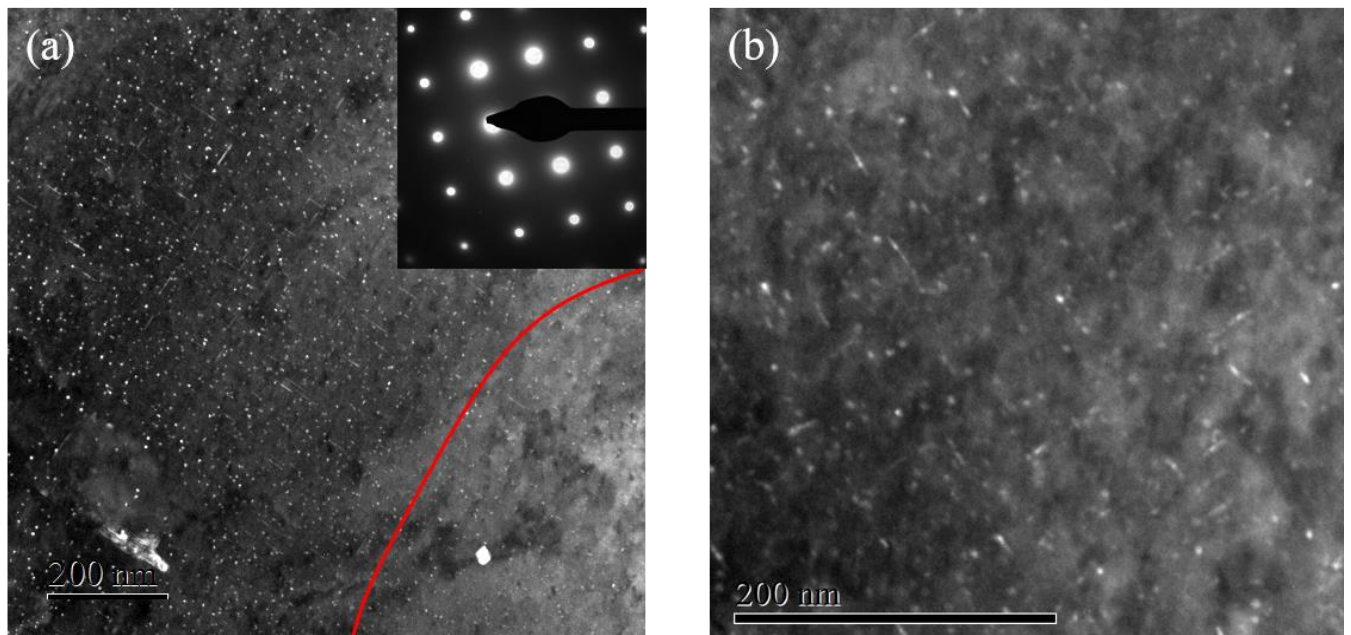


Figure 33 : Observation de la nanoprécipitation dans le cadre de la trempe huile : (a) : champ sombre, (b) champ sombre dans la zone d'implantation He/Si

Les observations effectuées dans le cadre de la trempe huile en coupe transverse ont permis d'identifier et de confirmer les phénomènes observés dans le cadre de la trempe eau en coupe longitudinale. Premièrement, la zone d'implantation de l'hélium a clairement été identifiée et confirme le profil simulé par SRIM [11,12]. La mesure de la taille des bulles indique une population homogène en termes de répartition et de taille. Cette observation interroge sur les bulles de grande taille observées dans le cadre de la trempe eau et indiquerait, considérant la faible taille des bulles, un effet dû à l'électropolissage, biaisant l'analyse. D'autre part, les phases submicroniques hétérogènes observées avant irradiation dans la trempe huile ont, sous triple faisceau et tout comme en simple faisceau, totalement disparu. Autour des dispersoïdes restant, et dans la zone d'implantation de l'hélium, il a été observé une réduction de la densité des bulles au

profit d'une augmentation de leur taille. Les bulles d'hélium étant surpressurisées, elles constituent des puits de lacunes qu'elles attirent afin de réduire leur surpression interne. Cet effet a donc pu se produire autour des dispersoïdes. Enfin, la diminution de la population des nanoprecipités habituels avec l'apparition de nouvelles phases, observées dans le cadre de la trempe eau, sont également confirmées dans la trempe huile. En outre, l'usage de la coupe transversale a permis d'identifier la zone d'implantation de l'hélium et du silicium comme la zone de formation de ces nouvelles phases.

3. Trempe air

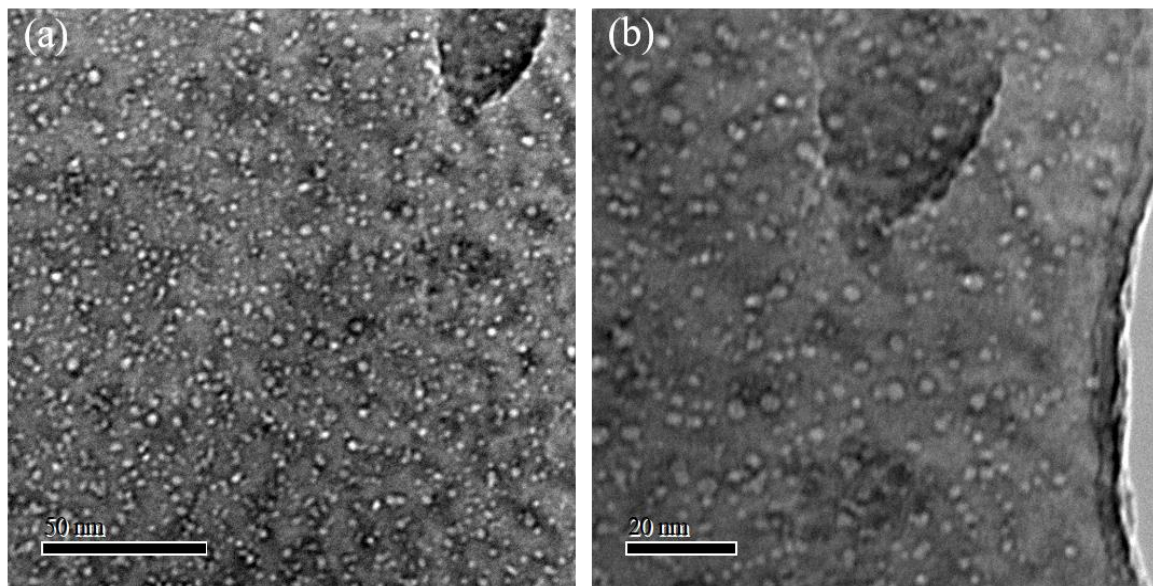


Figure 34 : Alliage trempé air observé après irradiation triple faisceau : observation des bulles d'hélium par imagerie filtrée autour du zero-loss

La microstructure de l'alliage trempé air irradié en triple faisceau à 35 dpa a été observée dans la zone d'implantation de l'hélium et du silicium. La Figure 34 présente les bulles d'hélium mises en évidence par imagerie filtrée. Une population dense, similaire à celle observée dans les trempes eau et huile est détectée. La Figure 35 présente la distribution de la taille moyenne des bulles obtenues par la méthode de Phansalkar. La distribution du trempé air est très similaire à celle du trempé huile (Figure 31), cependant les amas de bulles de la trempe eau (Figure 28) ne sont pas observés.

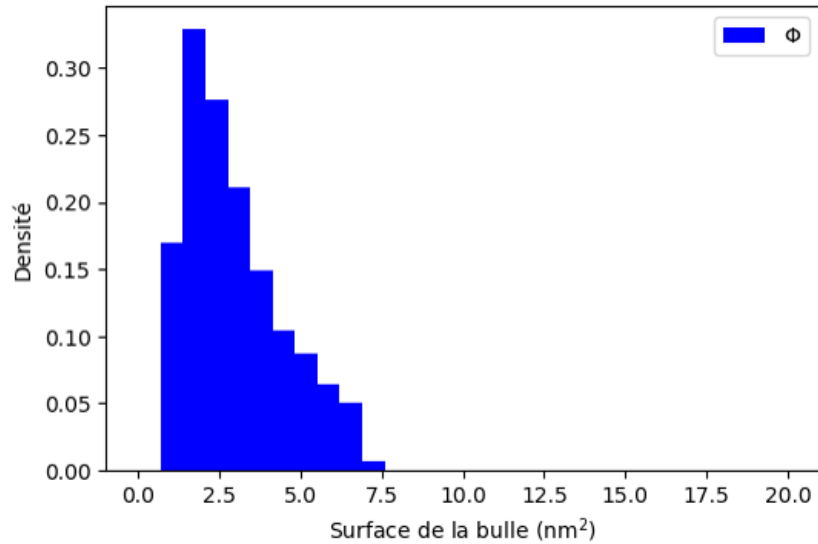


Figure 35 : Distribution des tailles de bulle dans le cadre de l'alliage trempé air après irradiation triple faisceau (35 dpa)

D'autre part, l'aspect général de la microstructure a montré une disparition totale des phases submicroniques de grande taille (particules en forme de baguette) présentes avant irradiation. Ces résultats corroborent les observations faites lors des irradiations simple faisceau. Observant un comportement très différent pour la trempe air, une lame a été percée à plus grande profondeur afin d'observer la microstructure dans une zone après irradiation triple faisceau.

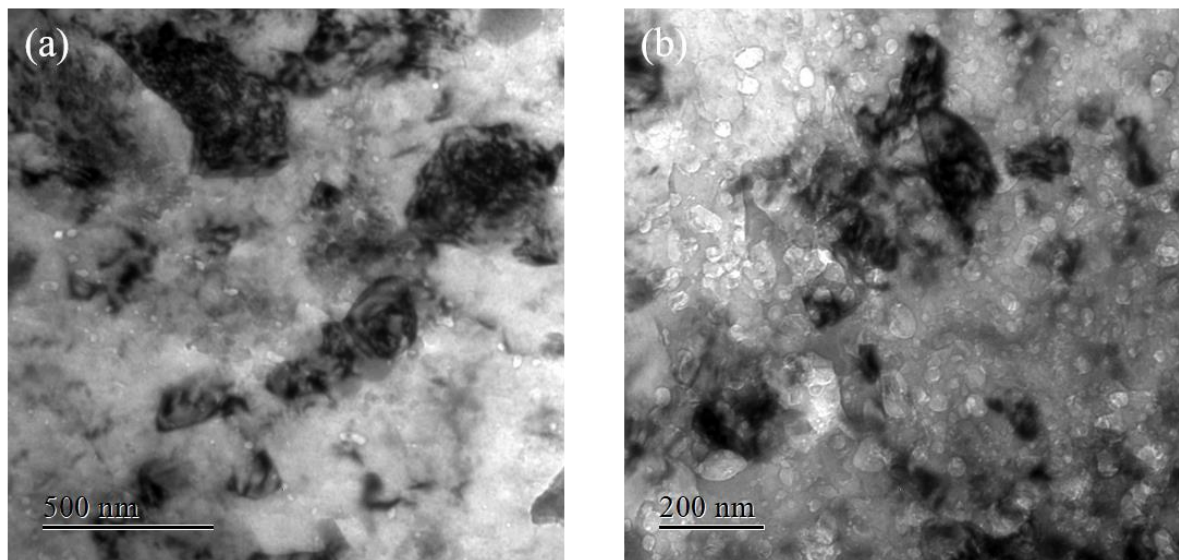


Figure 36 : Alliage trempé air observé après irradiation triple faisceau dans une zone située après la zone d'implantation : (a) : zone à densité de cavités normale, (b) zone de forte concentration de cavités (35 dpa)

La Figure 36 présente la microstructure d'un alliage trempé air après la zone d'implantation (2500 nm de profondeur soit 45 dpa équivalent). Il est observé Figure 36.a une dispersion de cavités dans tout l'alliage, ainsi que localement des zones de forte concentration de cavités comme présenté Figure 36.b. Ces observations correspondent avec celles observées dans le cas d'une irradiation simple faisceau.

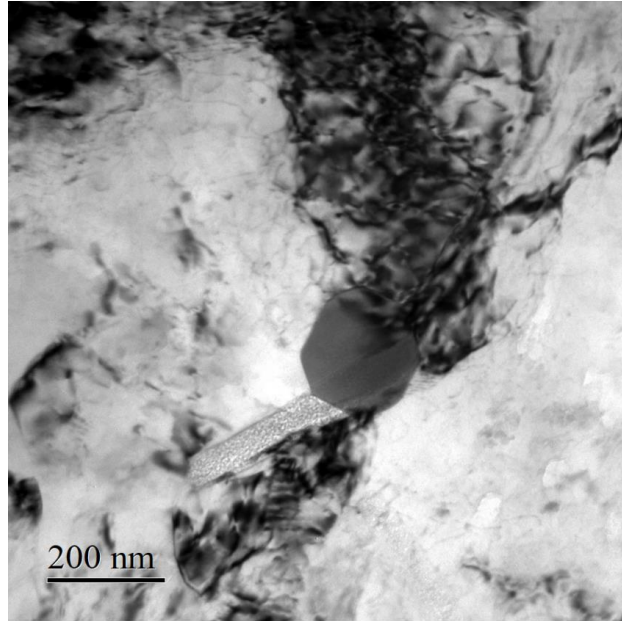


Figure 37 : Microstructure d'un alliage trempé air irradié triple faisceau, proche surface (10 dpa)

D'autre part, une lame mince réalisée à proximité de la surface, (Figure 37) montre une microstructure très similaire à celle observée dans le cadre d'irradiations simple faisceau dans les mêmes conditions d'observation : les phases submicroniques grossières en forme de lattes commencent à se dissoudre dans la matrice et présenter une forte densité de cavités.

La microstructure de l'alliage trempé air irradié en triple faisceau présente des caractéristiques similaires aux trempes eau et huile : une distribution homogène de bulles est détectée dans la matrice. Cependant, comparativement au comportement en irradiation simple faisceau où d'importants amas de bulles étaient détectés, l'implantation de silicium et d'hélium semble rendre plus homogène la distribution des bulles dans le matériau. En outre, en dehors de la zone d'implantation des éléments, la microstructure redevient similaire à celle observée précédemment en irradiation simple faisceau.

4. Synthèse et interprétation

Les irradiations en triple faisceau effectuées sur les matériaux trempés air, huile et eau ont présenté un comportement très différent de celui observé en irradiation simple faisceau. En effet, l'adjonction d'hélium et de silicium modifie la microstructure à plusieurs niveaux et semble notamment influencer sur le gonflement.

Premièrement, de nouveaux nanoprecipités dans la matrice ont été observés. Cette observation ayant été faite uniquement dans la zone d'implantation de l'hélium et du silicium, il peut être déduit qu'ils résultent de cet effet. Cependant, ces nanoprecipités ne semblent pas cohérents avec la matrice. L'observation des nanoprecipités présents avant irradiation a montré une diminution significative de leur taille et de leur distribution. L'observation dans le plan transverse d'une lame trempée huile montre

que cet effet est conjointement localisé avec la zone d'implantation de l'hélium et du silicium : ces deux effets semblent donc corrélés.

Deuxièmement, l'adjonction d'hélium a amené à la formation d'un réseau dense et homogène de bulles dans la totalité du grain, d'une manière similaire à ce qui avait été observé dans le cadre de la trempe air en irradiation simple faisceau. Cependant, au voisinage des dispersoïdes, la microstructure semble modifiée : on note une plus faible densité de bulles ainsi qu'une augmentation de leur taille. D'autre part, l'implantation d'hélium semble rendre plus homogène la population de bulles dans le grain. En effet, si dans le cas de la trempe eau, présentant une densité de cavités plus faible que dans la trempe air, l'adjonction d'hélium tend à augmenter la densité de cavités, dans le cas de la trempe air, la formation des zones de forte densité de cavités n'est plus observée.

Un schéma simplifié de ces effets est présenté Figure 38.

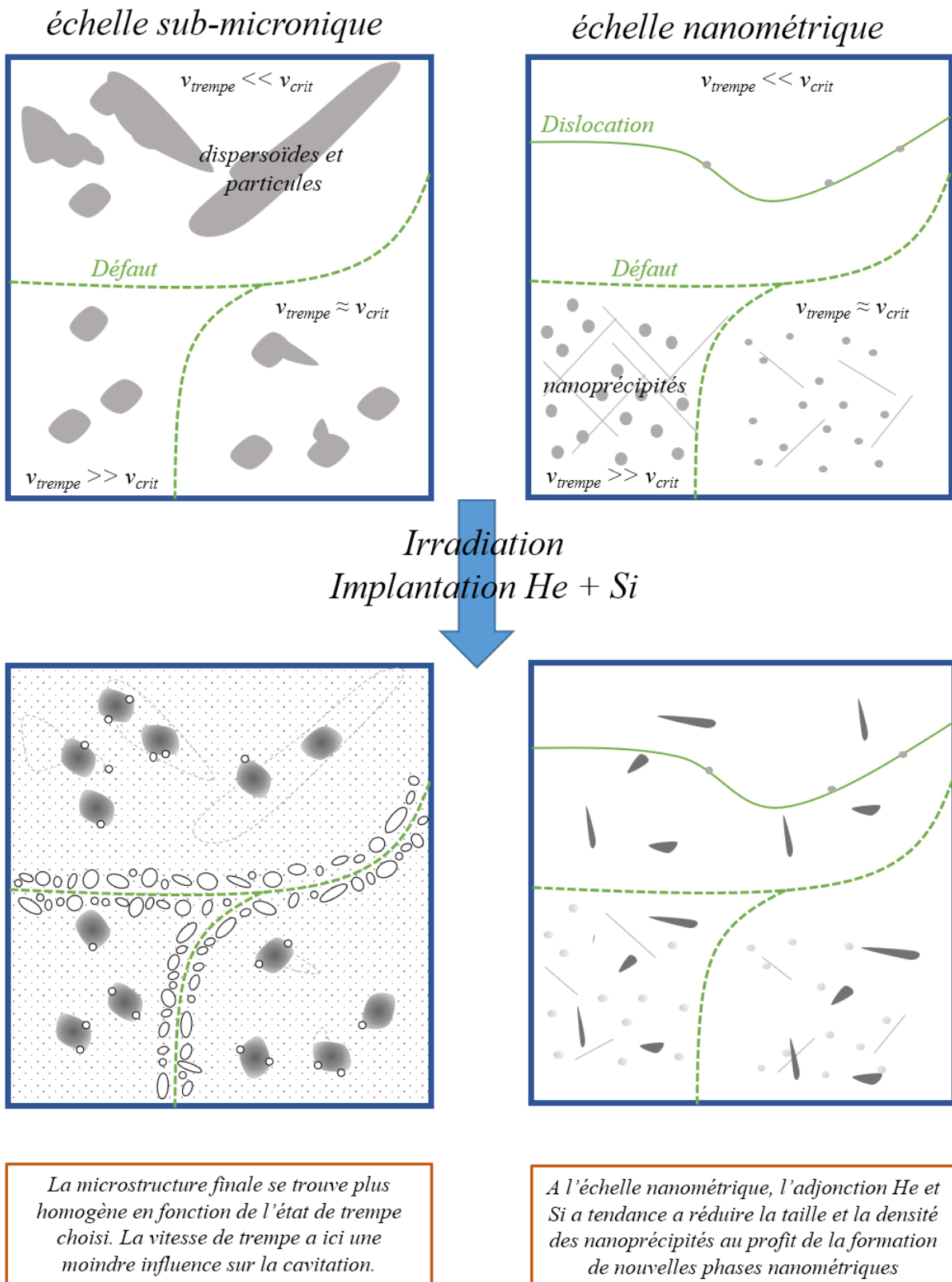


Figure 38 : Schéma simplifié des effets d'une irradiation triple faisceau pour les différentes microstructures étudiées

Conclusions

Dans ce chapitre, les effets d'irradiations sur la microstructure, et plus particulièrement ceux liés au gonflement, ont été caractérisés. Les différentes microstructures (trempe eau, huile et air) ont présenté des comportements variés face aux différentes conditions d'irradiation.

Il a été globalement observé trois modes de formation des cavités :

- La formation de cavités autour des défauts linéaires : dénominateur commun de toutes les microstructures observées dans cette étude, ces populations de cavités semblent homogènes et indépendantes de la vitesse de trempe
- La formation de cavités autour des dispersoïdes : très variable selon la microstructure et dépendante des phases submicroniques présentes avant irradiation. Les dispersoïdes ayant précipité de manière hétérogène semblent fortement affectés par l'irradiation et tendent à se dissoudre et former des cavités très facilement. Dans le cas des alliages à très faible vitesse de trempe, localement, il a été observé de fortes densités de cavités sans pouvoir identifier clairement leur origine bien qu'elle semble liée à la dissolution des phases submicroniques hétérogènes.
- La formation de cavités sous forme de bulle par l'hélium. Observé en irradiation triple faisceau, ce troisième mode de formation des cavités a lieu dans toute la matrice. Si sans implantation d'hélium les cavités semblent se former à des zones privilégiées, l'implantation d'hélium tend à délocaliser le phénomène. Cependant, les doses d'hélium implantées étant plusieurs ordres de grandeur supérieures aux doses présentes en réacteur, il est probable que les lacunes sont préférentiellement captées par ces puits, en surconcentration dans ces conditions.

D'autre part, l'injection de silicium semble avoir un effet significatif sur les nanoprecipités : de nouveaux précipités se forment alors que ceux présents avant irradiation semblent diminuer en taille et en densité.

Les différents modes de formation de cavités mis en évidence à travers ce chapitre indiquent une forte influence de la microstructure sur la formation de cavités et donc du gonflement. La présence éventuelle de plusieurs microstructures dues à un fort gradient de vitesse de trempe, pourrait induire un gradient de gonflement *a posteriori*.

Le chapitre suivant s'efforcera, sur les bases de ces observations, de développer les bases d'un modèle de gonflement adapté à ce type de matériau.

Bibliographie

- [1] Dai Y., Odette G. R., Yamamoto T. « 1.06 - The Effects of Helium in Irradiated Structural Alloys ». In : Konings RJM (éd.). *Compr. Nucl. Mater.* Oxford : Elsevier, 2012. p. 141-193. ISBN : 978-0-08-056033-5.
- [2] Camille Flament. *Etude des évolutions microstructurales sous irradiation de l'alliage 6061-T6*. Thèse de Doctorat. Grenoble : Université Grenoble-Alpes, 2015.
- [3] Flament C. et al. « Electron irradiation-enhanced core/shell organization of Al(Cr, Fe, Mn)Si dispersoids in Al–Mg–Si alloys ». *Philos. Mag.* 2015. Vol. 95, n°8, p. 906-917.
- [4] Risbet A., Levy V. « Influence de l'écrouissage sur la formation des cavités d'irradiation dans l'aluminium ». *J. Nucl. Mater.* 1 avril 1973. Vol. 46, n°3, p. 341-352.
- [5] Soria S. R., Tolley A. J., Sanchez E. A. « Defects induced by helium ion irradiation in aluminum alloys ». *Procedia Mater. Sci.* 2015. Vol. 8, p. 486-493.
- [6] Neerad Phansalkar et al. « Adaptive local thresholding for detection of nuclei in diversity stained cytology images ». In : *2011 Int. Conf. Commun. Signal Process. 2011 International Conference on Communications and Signal Processing*. 2011. p. 218-220.
- [7] Vala M. H. J., Baxi A. « A Review on Otsu Image Segmentation Algorithm ». Vol. 2, n°2, p. 3.
- [8] Farrell K. *Effects of structural imperfections on voids in aluminium – Microstructure impurity effects on void formation characteristics in neutron irradiated aluminium*. Rapport, ORNL-TM-3493, Oak Ridge National Lab., 1971.
- [9] Flament C. et al. « Stability of β'' nano-phases in Al-Mg-Si(-Cu) alloy under high dose ion irradiation ». *Acta Mater.* 2017. Vol. 128, p. 64-76.
- [10] Weeks J. R., Czajkowski C. J., Farrell K. *Effects of high thermal neutron fluence on type 6061 aluminum*. Rapport, BNL-46330; CONF-9206282-1, Brookhaven National Lab., 1993.
- [11] Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. « SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010) ». *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*. juin 2010. Vol. 268, p. 1818-1823.
- [12] Garric V. *A python alternative to SRIM*. 2018.

CHAPITRE 5 : QUANTIFICATION ET MODELISATION DU GONFLEMENT

Les données qualitatives issues des précédents chapitres ont permis de proposer des mécanismes de formation des cavités présentés précédemment. A ce sujet, il a été mis en évidence la formation de cavités réparties de façon homogène ainsi qu'une influence de la microstructure pré-irradiation, notamment à l'échelle sub-micronique (dispersoïdes et précipitation hétérogène), qui conduit à une localisation des cavités. Dans ce chapitre, une première partie s'attachera à la description physique du gonflement puis à une brève étude bibliographique de deux modèles particuliers, suivie d'un choix justifié par les observations faites dans cette étude. Dans un deuxième temps, les données issues des observations des lames irradiées aux ions seront analysées au regard des données des irradiations neutron de la littérature. Une troisième partie conclura sur la représentativité de nos études en termes de quantification du gonflement et proposera un modèle quantitatif.

I.	Revue bibliographique contextuelle	169
1.	Considérations générales	169
2.	Modèle de Brailsford et Bullough	170
3.	Modèle de la bulle critique (CBM).....	173
4.	Discussion	174
II.	Quantification expérimentale du gonflement	174
1.	Trempe eau	175
2.	Trempe huile.....	177
3.	Trempe air	178
4.	Discussion	179
III.	Modélisation du gonflement.....	180
	Conclusion.....	188
	Bibliographie.....	189

I. Revue bibliographique contextuelle

1. Considérations générales

L'observation, l'analyse et la quantification de la formation de cavités dans les métaux n'est pas un phénomène propre au milieu du nucléaire et des irradiations. En effet, des traitements thermiques de trempe par exemple peuvent créer de tels défauts de même que des dislocations [1]. Le modèle physique permettant de modéliser le gonflement est un modèle de germination croissance des cavités. Il est considéré que dans le cas de cavités formées en réacteur, il doit exister des puits, amenant à la création d'amas de lacunes. D'autre part, lors de la formation de paires lacunes-interstitiels, ces derniers ne doivent pas se recombinaison pour que les cavités puissent se former. En effet, la densité de puits de lacunes est directement liée à l'état de la microstructure (précipités, joints de grains). A cet égard certains précipités semblent, selon la nature de leur interface avec la matrice, réduire grandement la formation de cavités alors que d'autres favorisent leur formation [2]. Ainsi, un précipité incohérent jouera le rôle d'un puit de lacune et aura tendance à former des cavités alors qu'un précipité cohérent cherchera à accommoder son environnement, augmentant ainsi le taux de recombinaison local.

Ces faits généraux énoncés, une approche usuelle de la modélisation du gonflement consiste à considérer une distribution homogène de puits dans la matrice. Ces puits peuvent avoir des propriétés, notamment leur force d'attraction des lacunes, différentes. Un puits sera donc majoritairement défini par le type de défaut qu'il attire et son rayon d'interaction. Ce faisant, des simples équations de diffusion décrivent son comportement [3]:

$$\frac{D}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dc}{dr} \right) + K = 0 \quad 1$$

$$D \frac{dc}{dr} = \frac{D}{a} c \quad 2$$

Avec D le coefficient de diffusion, r la distance radiale (l'origine étant située au centre puits), c la concentration de défauts considérés, K le taux de génération de défauts (dpa.s^{-1}) et a le paramètre de maille.

L'équation (1) est valable hors de l'interface du puits jusqu'à la limite de sa zone d'influence. A l'interface, l'équation (2) devient valable. Cette description suppose que le puits considéré est « neutre ». C'est-à-dire qu'il n'a aucune préférence entre des lacunes ou des interstitiels. Il doit cependant être considéré deux autres types de puits : les puits à biais fixe, présentant une préférence pour un type de défaut particulier, et les puits à biais variable, présentant une préférence pour un type de défaut changeant la nature des puits qui l'entourent. Le Tableau 1 présente une correspondance entre la dénomination des puits et les défauts réellement observés.

Type de puits	Défaut correspondant
Neutre	Murs de dislocations, macles
Biais variable	Précipités cohérents avec la matrice
Biais fixe	Boucles de dislocations

Tableau 1 : Origine physique des trois différents types de puits [4]

2. Modèle de Brailsford et Bullough

Le premier modèle prenant en compte ces trois types de défaut est le modèle de Brailsford et Bullough (B&B) [3]. Moyennant diverses approximations qui ne seront pas détaillées ici, le gonflement du matériau peut s'exprimer comme :

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) = SF(\eta)K(t - t_0), \quad t > t_0 \quad 3$$

$$\eta = 400 \exp \left[-\frac{E_m^v}{k} \left(\frac{1}{T_s} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad 4$$

$$F(\eta) = \frac{2}{\eta} \left[\sqrt{1 + \eta} - 1 - \frac{\eta}{2} \exp \left[-\frac{Q}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_t} \right) \right] \right] \quad 5$$

L'équation (3) exprime le gonflement directement comme le produit du taux de dommage par seconde, K en dpa.s⁻¹, du temps, (t-t₀) en s, ainsi que d'un paramètre matériau, F(η) et d'un seul paramètre ajustable, S. Les paramètres dont dépend le modèle sont décrits dans le Tableau 2.

Symbole	Sens physique	Unité	Type
S	Paramètre ajustable	Sans	Constante à déterminer empiriquement
K	Flux de dpa	dpa.s ⁻¹	Paramètre de l'irradiation
t	temps	S	Paramètre de l'irradiation
E _m ^v	Energie d'activation de diffusion des lacunes	J	Constante du matériau
T _s	Température d'activation du gonflement dans le matériau	K	Constante du matériau
T _t	Température de fin de gonflement dans le matériau	K	Constante du matériau

Q	Energie d'activation d'autodiffusion des lacunes	J	Constante du matériau
T	Température d'irradiation	K	Paramètre de l'irradiation

Tableau 2 : Paramètres du modèle de Brailsford et Bullough

D'après le Tableau 2, les données propres au matériau sont les températures de début et de fin du gonflement ainsi que les énergies d'activation de migration des lacunes et d'autodiffusion. D'après la littérature [5–8], les valeurs de ces énergies dépendent fortement de la température. Des confrontations à la littérature ont été effectuées afin de les déterminer. Pour les alliages d'aluminium dans les gammes moyennes de température d'intérêt pour notre étude (55°C), il semble raisonnable de prendre $E_m^V=0,65$ eV [8,9] et $Q=1.31$ eV [5].

Les valeurs de T_i et T_s ne sont pas directement données dans la littérature : elles doivent donc être déterminées soit par une compilation de données de la littérature, soit par des expériences propres. Physiquement, la température T_s correspond à la température en deçà de laquelle la mobilité des lacunes est si faible que les cavités ne peuvent pas se former. Inversement la température T_i correspond à la température au-delà de laquelle, la mobilité des lacunes est telle que la recombinaison avec les interstitiels est systématique.

Si ces températures sont en grande partie dépendantes du matériau, les particules incidentes et le flux de dommages associé rentrent également en jeu. Cependant, pour les besoins de l'étude présentée ici, il sera approximé que seul le matériau entre en jeu. Si les valeurs de Q et E_m^V semblent varier relativement faiblement avec les éléments d'alliages et l'état métallurgique [9], les valeurs de T_i et T_s sont dépendantes de ces paramètres comme montré par les études de Jahnke [9], présentées dans le Chapitre 1. La Figure 1 présente des courbes de gonflement pour différents alliages d'aluminium en fonction de la température.

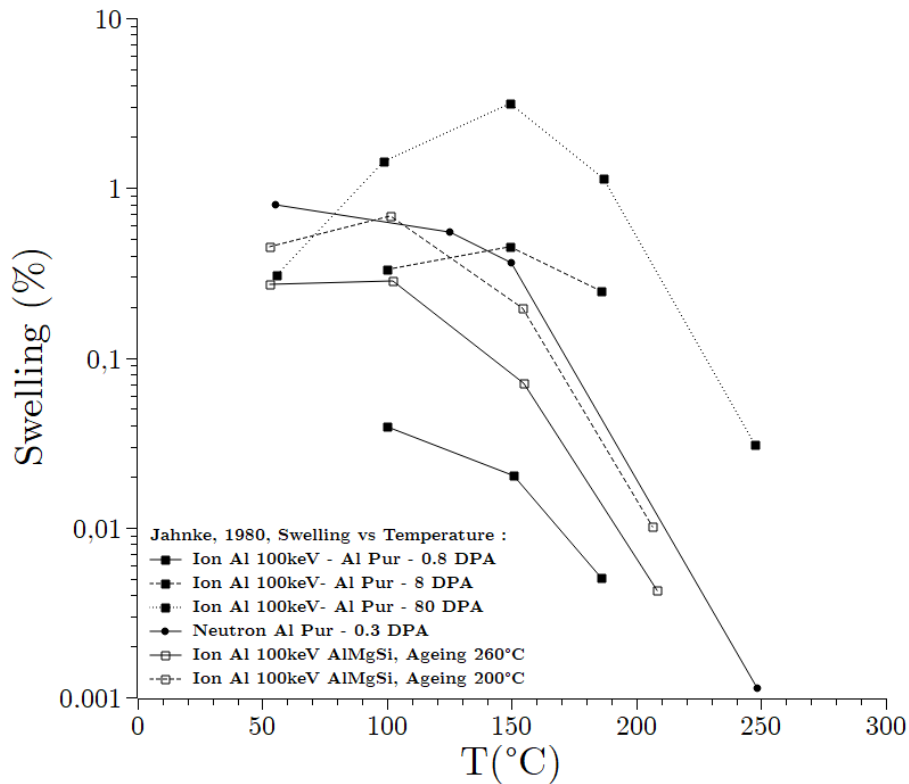


Figure 1 : Gonflement mesuré en fonction de la température d'irradiation et de l'alliage [9]

Il est observé sur la Figure 1 que, pour les alliages Al-Mg-Si-Cu, les courbes de gonflement, et notamment les valeurs asymptotiques de T_t et T_s sont bien différentes. A ce sujet, le Tableau 3 présente les valeurs relevées par approximation parabolique des courbes pour les températures de début et fin de gonflement estimées à partir des données de Jahnke.

Type d'alliage	Condition d'irradiation	T_s (°C)	T_t (°C)
Al pur	Ions – 0.8 dpa	?	190
	Ions – 8 dpa	?	?
	Ions – 80 dpa	25	250
	Neutrons	?	250
6xxx – 260 °C revenu	Ions – 80 dpa	?	210
6xxx – 200 °C revenu	Ions – 80 dpa	?	205

Tableau 3 : Estimations des valeurs de T_s et T_t d'après les données de Jahnke. Estimation effectuées par approximation parabolique des courbes. Les valeurs « ? » correspondent à une trop grande incertitude pour pouvoir affirmer une estimation correcte.

Il est observé une variation importante pour l'aluminium pur en fonction de la dose totale. Il paraît probable que le taux de dommages par seconde ($\text{dpa}\cdot\text{s}^{-1}$) est à l'origine de cette observation puisque les différents dommages ont été obtenus en faisant varier le taux de dommages. D'autre part, les temps de revenu montrent des différences légères sur T_t . Cependant, la température T_s n'a quasiment jamais pu être correctement estimée du fait du manque de données sur ces courbes de température. Il est à noter

que les irradiation d'alliage Al-Mg-Si au-delà de 150°C sont délicates dans la mesure où les transformations se produisant lors du revenu sont thermiquement activées et que la nanopréciipitation peut ainsi évoluer.. L'effet de la nanopréciipitation sur le gonflement est dans ce cas complexe à déterminer puisqu'il y a une modification de la microstructure concomitante à l'irradiation. A ce sujet, Victoria *et. al* ont déjà montré des effets remarquables sur la microstructure des alliages 6000 irradiés à hautes températures [10] avec des effets de précipitation sous faisceau neutronique.

Le modèle de B&B présenté ici succinctement a l'avantage de ne demander que très peu de paramètres matériaux. L'utilisation d'un nombre restreint de données et d'un seul coefficient S permettant d'adapter les données physiques aux mesures effectuées expérimentalement est avantageux. Cependant, ce modèle est basé uniquement sur la présence de puits, permettant la formation de cavités. En outre, il ne prend pas en compte la présence d'hélium formé sous irradiation. A ce sujet, un autre modèle permet de prendre en compte ce phénomène : le modèle de la bulle critique.

3. Modèle de la bulle critique (CBM)

Le modèle de la bulle critique, est un modèle permettant de prendre en compte les effets des gaz, notamment l'hélium, produit par irradiation [11–14]. Il diffère également du modèle de B&B par la différenciation des cavités, sous-pressurisées, et bulles, sur-pressurisées. Ainsi, la bulle est considérée comme un puits de lacunes. Le nom de « modèle de la bulle critique » vient du fait que le modèle tient compte de la cinétique de croissance des cavités en fonction de leur rayon, et donc des effets de taille. D'autre part, le modèle fait état des transformations de bulles en cavités en fonction de la pression d'hélium. Ces considérations amènent à l'expression de la dérivée du gonflement total comme :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\Delta V}{V} \right) = \frac{\eta B Z_d Z_v}{(Z_b + Z_v + Z_d) \cdot (Z_d (1 + B) + Z_v + Z_b)} \quad 6$$

Avec B un paramètre ajustable, η le rapport de production des lacunes ramené au dpa, et Z_d , Z_v , et Z_b , respectivement les forces de puits des dislocations, cavités et bulles. Ces forces de puits peuvent, pour les bulles et cavités s'exprimer comme $Z_d = 4\pi r N$, avec r le rayon du défaut et N la densité de défauts. La force de puits des dislocations est assimilable à ρ la densité de dislocations dans la matrice. Contrairement au modèle de B&B, considérant la seule croissance de cavités sur des puits à biais fixe, le modèle CBM, prend en compte la croissance de cavités à partir de bulles se formant dans la matrice. Cependant, les estimations des évolutions des forces de puits au cours de l'irradiation, $r=f(t)$, $N=f(t)$, $\rho=f(t)$, sont un travail complexe et nécessitant de nombreuses expérimentations et simulation. Il est à noter toutefois qu'une représentation de la dérivée temporelle du gonflement (\dot{S}) en fonction du rapport Z_v/Z_d pour différentes valeurs Z_b/Z_v , comme présenté Figure 2 permet de comprendre la variation de gonflement proposée par ce modèle.

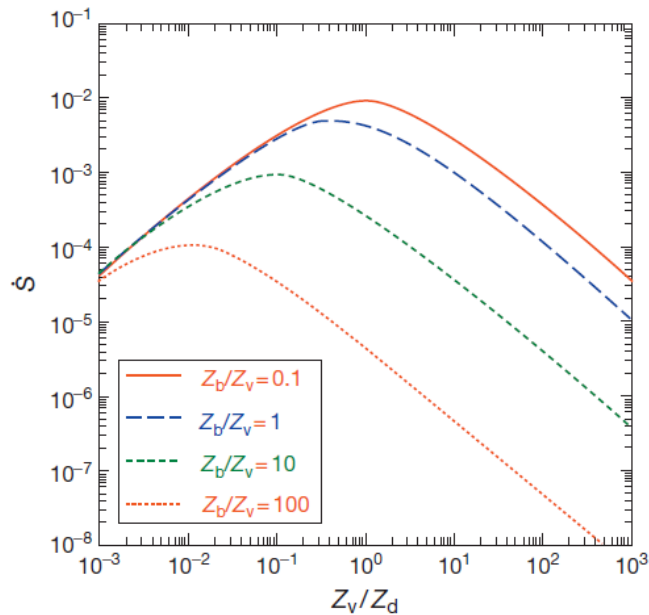


Figure 2 : Variation du gonflement en fonction du rapport Z_v/Z_d pour différentes valeurs Z_b/Z_v [11]

Plus le rapport Z_b/Z_v , augmente, plus la formation de bulles à partir des cavités devient difficile, ce qui va dans le sens d'une diminution de la dérivée. D'autre part, plus le rapport Z_v/Z_d augmente, plus la formation des cavités devient difficile au niveau des dislocations et plus la dérivée du gonflement baisse en conséquence.

4. Discussion

Les deux modèles présentés ici ont tous deux des avantages et des inconvénients quant à leur utilisation. D'ordre général, le modèle B&B reste suffisamment simple pour obtenir des valeurs de gonflement en régime permanent avec peu de données. Il ne prend cependant pas en compte l'existence d'un transitoire ainsi que la possibilité d'une modification du régime de gonflement dû à une modification des forces de puits, contrairement au modèle CBM, lequel nécessite une estimation réaliste de ces forces et de leur évolution. Au vu des évolutions des régimes de gonflement observées dans les alliages d'aluminium [9,15–17], il peut être considéré qu'une irradiation à une température constante amène, pour une microstructure homogène, à un gonflement linéaire avec le dpa. Dans la suite, une modélisation de type B&B sera considérée. Cependant, les résultats présentés dans les chapitres précédents, notamment le chapitre 4, ont montré une réponse variable due à une microstructure inhomogène à l'échelle submicronique dans les pièces épaisses, effet non pris en compte dans ces modèles.

II. Quantification expérimentale du gonflement

La quantification expérimentale du gonflement a été effectuée pour des couples état de trempé – irradiation simple faisceau. Comme indiqué dans le chapitre précédent, les irradiations triple faisceau

ne feront pas l'objet d'une étude quantitative des cavités dans la mesure où la quantité d'hélium injectée était volontairement supérieure aux valeurs obtenues sous irradiation neutronique. La quantification a été calculée à partir des observations selon la formule explicitée par Jahnke dans sa thèse [18] :

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) = 100 \frac{\sum V_c}{V_z}$$

Avec V_c le volume des cavités et V_z le volume de la zone observée. Les résultats des mesures d'épaisseur par EFTEM n'étant pas probantes, l'épaisseur a été estimée à 100 nm. De même que le volume des cavités a été estimé dans l'approximation sphérique. On a alors :

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) = 100 \frac{4}{3} \pi \frac{\sum R_c^3}{S_z * 100}$$

Avec R_c le rayon des cavités en nm et S_z la surface de la zone observée en nm².

Grâce aux clichés de microscopie tels que ceux présentés dans le chapitre 4, des évaluations des rayons des cavités ont été effectuées pour chaque état de trempé à des niveaux d'endommagement différents. En conséquence, tenant compte d'une épaisseur de 100 nm sur la zone observée, une évaluation du gonflement a été entreprise. Pour chaque état de trempé plusieurs lames MET ont été observées, desquelles une dizaine de clichés en sous-focalisation ont été analysés et moyennés en pour obtenir un gonflement moyen correspondant à l'état de trempé et d'endommagement.

1. Trempé eau

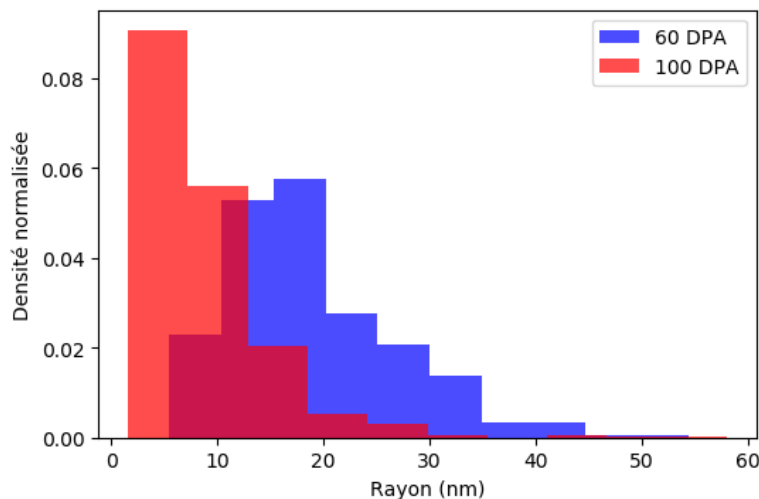


Figure 3 : Distribution des rayons des cavités dans le cadre de la trempé eau pour deux états d'endommagement (60 dpa et 100 dpa) d'après les clichés irradiations aux ions Au⁴⁺ tels que présentés dans le chapitre 4.

La Figure 3 présente la distribution des rayons des cavités dans le cadre de la trempe eau, à des niveaux d'endommagement différents, obtenue d'après des clichés présentés dans le Chapitre 4. Il est observé une grande dispersion déjà visible sur les clichés MET présentés dans le chapitre 4. Un autre effet cependant est observé : le rayon moyen des cavités semble plus faible à 100 dpa qu'à 60 dpa.

Conditions	N_0 (10^{20} cavités. m^{-3})	$\frac{\Delta V}{V}$ (%)
100 dpa 5.10^{-4} dpa.s⁻¹ Ions Au⁴⁺	5,20	0,33
	7,40	0,94
	6,00	0,31
	4,60	0,25
	4,80	0,12
	5,80	0,53
	2,20	0,35
	6,50	0,84
60 dpa 5.10^{-4} dpa.s⁻¹ Ions Au⁴⁺	0,90	0,48
	1,80	1,50
	0,78	0,31
	0,71	0,66
	1,30	0,40
10 – 30 dpa $2,5.10^{-3}$ dpa.s⁻¹ Ions W⁹⁺	<i>Pas de cavités observées</i>	

Tableau 4 : Densités de cavités et gonflement associé calculé dans le cadre de la trempe eau. Chaque ligne correspond à une lame MET

Conditions	N_0 Moyen	Ecart-type	$\frac{\Delta V}{V}$ (%) Moyen	Ecart-type
60 dpa	1,09	0,45	0,67	0,48
100 dpa	5,31	1,56	0,46	0,29

Tableau 5 : Statistiques associées aux données du Tableau 4

Le Tableau 4 présente le gonflement estimé pour différentes conditions dans le cadre de la trempe eau et en plusieurs zones différentes des lames. Ces résultats sont obtenus en utilisant la distribution des rayons des cavités dans la lame, compte tenu d'une approximation sphérique ainsi que d'une épaisseur de 100 nm. Une grande disparité des résultats est observée. La fabrication d'une lame FIB sur une plage d'endommagement comprise entre 10 dpa et 30 dpa dans le cadre des irradiations à faible dpa (2019) n'a révélé aucune cavité, indiquant un seuil de gonflement compris entre 30 dpa et 60 dpa. Le Tableau 5 présente une succincte analyse statistique des données du Tableau 4.

D'ordre général, on observe que sur le nombre moyen de cavités, une nette différence est observée entre les données à 60 dpa et 100 dpa. Concernant le gonflement moyen, en tenant compte des écarts-type associés, la différence entre les deux niveaux d'endommagement n'est pas aussi flagrante que pour la concentration des cavités. Cette observation indique un changement de tailles de cavités. Il est cependant à noter que le gonflement moyen calculé à 100 dpa est plus faible qu'à 60 dpa.

D'un point de vue strictement théorique, il peut y avoir un gonflement plus faible à 100 dpa avec 5 fois plus de cavités et un rayon de cavité 2 fois plus petit. Cependant, ce type d'observation n'est pas compatible avec les phénomènes de germination-croissance de cavités utilisés qui impliquent une germination et une croissance continue.

Il y a donc ici un biais de mesure qui peut être dû soit à la préparation soit à l'irradiation en elle-même. Quoiqu'il en soit, il demeure cependant que les ordres de grandeur mesurés restent cohérents avec les valeurs de la littérature.

2. Trempe huile

La Figure 4 présente la distribution des rayons des cavités mesurées dans le cadre de la trempe huile. Il est observé une distribution similaire à celle observée dans le cadre de la trempe eau à 60 dpa (Figure 3). A ce sujet, il est rappelé que, pour des raisons techniques, les échantillons trempés huile n'avaient pas pu être irradiés à 100 dpa. Le Tableau 6 présente les valeurs de gonflement obtenues de la même manière que pour la trempe eau. Premièrement, aucune cavité n'est observée à 15 dpa. Le gonflement moyen à 60 dpa présente un écart-type bien plus faible que dans le cas de la trempe eau. Les valeurs de gonflement restent cependant dans les mêmes ordres de grandeur que pour la trempe eau.

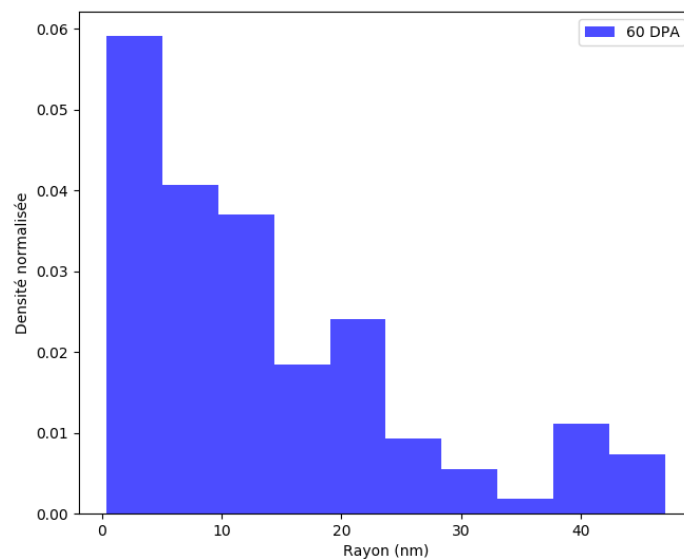


Figure 4 : Distribution des rayons des cavités dans le cadre de la trempe huile à 60 dpa suite à des irradiations aux ions Au⁴⁺

Conditions	N_0 (10^{20} cavités.m ⁻³)	$\frac{\Delta V}{V}$ (%)
60 dpa 5.10^{-4} dpa.s⁻¹ Ions Au⁴⁺	2,06	0,38
	3,04	0,24
	1,17	0,44
	2,45	0,32
	5,17	0,57
	4,21	0,47
<i>Moyenne</i>	3,02	0,40
<i>Ecart-type</i>	1,46	0,17
15 dpa $2,5.10^{-3}$ dpa.s⁻¹ Ions W⁹⁺	<i>Pas de cavités observées</i>	

Tableau 6 : : Densités de cavités et gonflement associé calculé dans le cadre de la trempe huile. Chaque ligne correspond à une lame MET

3. Trempe air

La Figure 5 présente la distribution des tailles de cavités dans le cadre de la trempe air à 60 dpa et 100 dpa. Chaque histogramme, amas, défauts et background présente la distribution des rayons en fonction de la source des cavités. Il est observé que les rayons des cavités en amas sont centrées sur une valeur d'environ 30 nm. A 100 dpa, des cavités de rayon supérieur à 50 dpa semblent apparaitre. La distribution des cavités sur les défauts linéiques est centrée sur la valeur de 20 nm, tout comme dans les trempes eau et huile. Enfin, la distribution des nanocavités est homogène et centrée sur 3 nm environ.

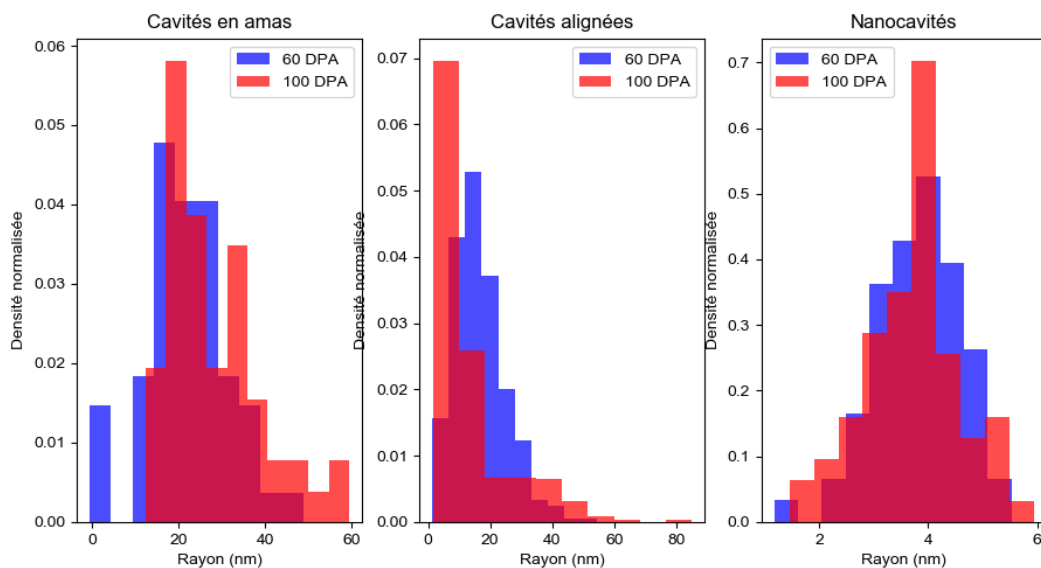


Figure 5 : Distribution des tailles de cavités dans le cadre de la trempe air selon leur localisation. Résultats obtenus pour des irradiations à 60 dpa et 100 dpa avec des ions Au⁴⁺ tel que décrit dans le chapitre 4

D'après ces données, tout comme dans les trempes eau et huile, les valeurs de gonflement ont été calculées et différenciées selon les zones. Il est observé dans le Tableau 7, des valeurs très disparates de gonflement. Premièrement, aux niveaux d'endommagement de 60 dpa et 100 dpa, les amas montrent un gonflement très élevé de l'ordre de 5%. La contribution venant du gonflement lié aux défauts est quant à elle de l'ordre de grandeur de ce qui a été observé dans le cadre de la trempe eau et huile, c'est-à-dire autour de 0,2 %.

Conditions	Origine de la contribution	N_0 (10^{20} cavités.m ⁻³)	$\frac{\Delta V}{V}$ (%)
100 dpa 5.10^{-4} dpa.s⁻¹ Ions Au⁴⁺	<i>Défauts</i>	1,05	0,14
	<i>Défauts</i>	1,34	0,18
	<i>Amas</i>	21,5	5,67
	<i>Amas</i>	11,1	12,9
	<i>Amas</i>	25,3	4,48
	<i>Nanocavités</i>	190	0,57
60 dpa 5.10^{-4} dpa.s⁻¹ Ions Au⁴⁺	<i>Défauts</i>	1,21	0,17
	<i>Défauts</i>	2,09	0,24
	<i>Amas</i>	15,6	6,24
	<i>Nanocavités</i>	186	0,44
15 dpa $3,8.10^{11}$ dpa.s⁻¹ Ions W⁹⁺	<i>Défauts</i>	<i>Pas de cavités observées</i>	
	<i>Amas</i>	<i>Pas de cavités observées</i>	
	<i>Nanocavités</i>	112	0,41

Tableau 7 : Densités de cavités et gonflement associé calculé dans le cadre de la trempe air.

Cependant, le gonflement dans la matrice par les nanocavités présente un gonflement homogène dans la matrice d'environ 0,5%, ce qui donne un total d'environ 0,7% sur le gonflement global. Les observations à 15 dpa ont montré une absence de cavités sur les défauts et l'absence d'amas. Cependant, le gonflement dans la matrice présente déjà 0,4% de taux de gonflement.

4. Discussion

Le gonflement mesuré dans le cadre d'irradiations aux ions à différents niveaux d'endommagement sur différents états de trempe a été effectué. D'une manière générale, l'ordre de grandeur mesuré est cohérent avec celui observé lors d'irradiations aux neutrons (Farrell [19]). A titre indicatif, la contribution au gonflement par les cavités d'un alliage 6061-T6 irradié en réacteur est de l'ordre de 0,25% à 100 dpa et de 0,07% à 60 dpa. Cette observation mise en perspective de nos données montre une bonne homogénéité des irradiations aux ions, particulièrement dans le cadre de la trempe huile à 60 dpa.

Les résultats obtenus dans le cadre des trempes air et eau questionnent cependant sur la représentativité des irradiations aux ions. Il est à rappeler que la trempe air présentait une microstructure et des propriétés mécaniques très éloignées d'un alliage 6061-T6 et représente donc plutôt ce qui correspondrait à un échec de fabrication industrielle. Si on retire le gonflement provenant des amas, la somme des gonflements par cavités provenant des défauts linéaires et de la matrice donnent un total d'environ 0,8 % à 100 dpa. Cette valeur de gonflement par cavités constitue un intermédiaire entre le faible gonflement du 6061-T6 (0,25%) et celui des alliages de série 1000 (aluminium faiblement allié, 5,5 %). D'une manière générale, les irradiations aux ions présentent des taux de dommages de plusieurs centaines de fois supérieurs à ceux observés aux neutrons dans la littérature ($1,4 \cdot 10^{-6}$ dpa.s⁻¹ pour le réacteur HFIR contre $5 \cdot 10^{-4}$ dpa.s⁻¹ en moyenne dans notre cas). De ce fait, ce très fort taux de dommage semble créer une saturation des valeurs de gonflement, ce qui pourrait être à l'origine de la très faible différence de mesures observées entre 60 dpa et 100 dpa. A ce sujet, Gary Was [20] montre que pour obtenir un taux de recombinaison équivalent en réacteur à une température donnée lors d'irradiation ioniques, la température doit être augmentée d'un facteur propre au matériau. D'autre part, Was montre que selon le mode de recombinaison principal (paires de Frenkel ou recombinaison sur puits) le décalage en température est différent. Ainsi, il doit être considéré d'irradier à plus haute température pour se rapprocher des conditions réacteur par des irradiations ioniques.

La mise en perspective de ces résultats met en avant la difficulté de représentativité des irradiations neutrons par les ions. Cependant, il est à mettre en avant le fait que la microstructure et le passé thermique de l'alliage 6061-T6 étudié par Farrell [19] n'est pas spécifié. Aussi, le chapitre 4 ayant montré la très grande influence de la microstructure sur le gonflement, un recul nécessaire doit être pris sur la différence entre ions et neutrons.

Pour la modélisation qui suit, les données de la littérature et de cette étude seront prises en compte séparément afin d'obtenir deux courbes de gonflement prenant en compte chaque jeu de données.

III. Modélisation du gonflement

Comme expliqué dans la première partie du chapitre, la modélisation du gonflement se fera en utilisant un modèle de Brailsford et Bullough (B&B). Afin de travailler facilement en termes de dpa, une modification des paramètres va être effectuée. Pour rappel le modèle B&B s'écrit :

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) (t) = SF(\eta)K(t - t_0)$$

Afin de prendre une valeur seuil de gonflement en dpa, la formule devient :

$$\frac{\Delta V}{V}(\%) = SF(\eta)(Kt - \Phi_0)$$

Avec Φ_0 le seuil de gonflement en dpa. Les données issues des irradiations neutron sur du 6061-T6 de la littérature [19] et de nos irradiations ont été représentées graphiquement Figure 6.

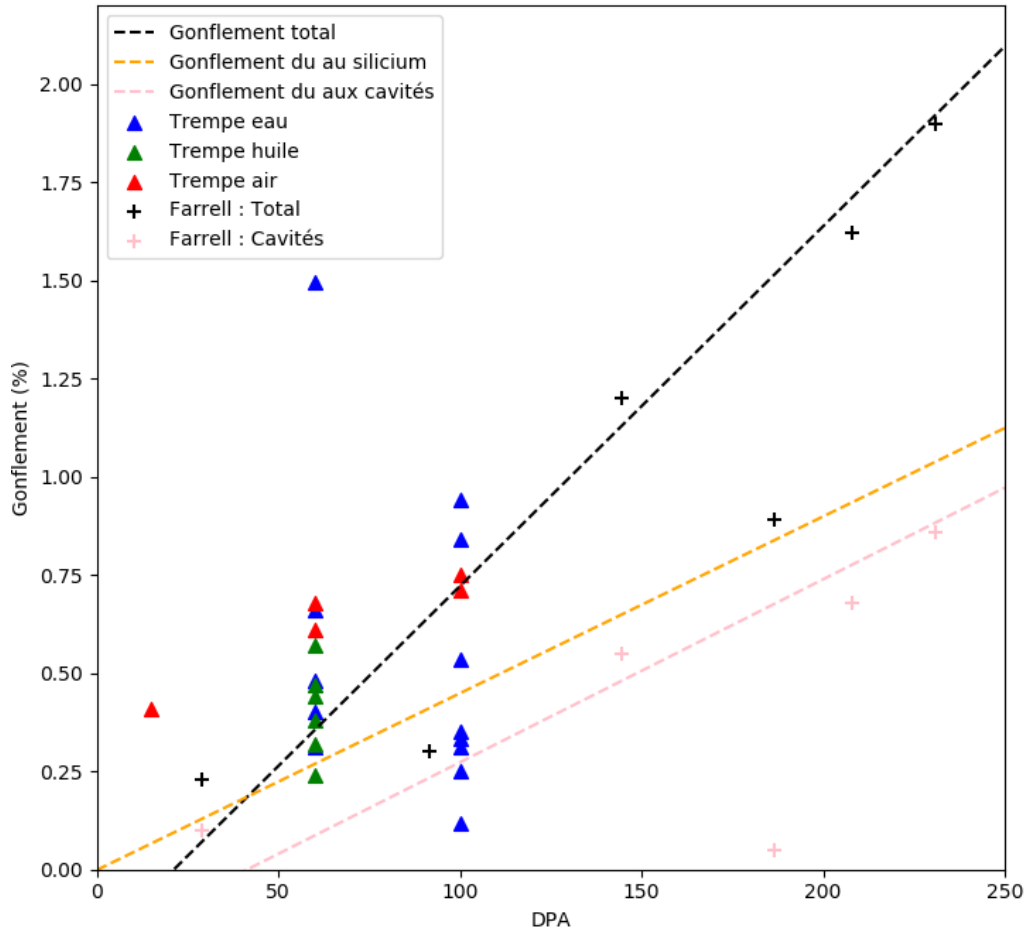


Figure 6 : Gonflement par cavités dans le 6061-T6 : compilation des données issues de la présente étude et de la littérature. Courbes proposées par Kapusta [15] pour la quantification du gonflement.

Les croix en noir représentent le gonflement total estimé par Farrell. Celles en rose représentent le gonflement par cavités estimé par Kapusta en retranchant celui produit par le silicium d'après le spectre neutronique du réacteur d'où sont issues les données. Les droites en pointillés noires et roses sont les estimations d'évolution du gonflement associé à ces résultats, en orange la droite calculée du gonflement par le silicium. Les triangles bleus, verts et rouges représentent nos données de gonflement respectivement pour les trempes eau, huile et air. Dans le cadre de la trempe air, les données de gonflement issues des zones de gonflement extrêmes n'ont pas été prises en compte dans la mesure où ce comportement n'est observé que dans un état métallurgique critique qui ne devrait jamais être atteint au niveau industriel.

La modélisation de Kapusta étant directement basée sur les données de Farrell, elles vont être utilisées afin de déterminer le paramètre S dans le modèle de B&B. D'après les données du Tableau 3, T_i peut

être estimée à 210°C. La valeur de T_s étant inconnue, une bonne estimation semble être autour de -20°C d'après les données de Jahnke et Ehrlich [9]. La valeur de T est fixée à 65°C d'après les informations fournies par Farrell. Comme expliqué dans la première partie les valeurs des énergies de déplacement sont fixées à 0,65 eV et 1,31 eV. L'intersection à $x=0$ du modèle de gonflement par cavités proposé par Kapusta donne une valeur seuil de 41,5 dpa. Les résultats de l'interpolation des données sont présentés dans la Figure 7. Il est observé que la valeur de S permettant au mieux d'estimer le gonflement, comme le propose Kapusta, est de 0,005. D'autre part, une autre estimation avec $S=0,01$ est proposée. Cette valeur, surestimée par rapport aux données de la littérature, semble mieux correspondre aux données obtenues lors des irradiations pendant la thèse. Le paramètre S fixé, le gonflement total dans le cadre du RJH en début de vie va être estimé pour ces deux valeurs différentes. Le spectre neutronique du casier du RJH est présenté Figure 8. On note qu'à la cote -5, le maximum de flux rapide (responsable du gonflement par cavités) est observé. Une estimation de la valeur maximale du flux dans le casier (dans les mandrins inter-éléments) est de $3,2 \cdot 10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹ pour une énergie supérieure 0,9 MeV. Dans notre cas, le seuil d'énergie pour les neutrons rapides est fixé à 0,1 MeV. En intégrant le spectre sur l'intervalle $[0,1 ; +\infty[$ la valeur du flux rapide est de $6,3 \cdot 10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹. Sachant que le taux de conversion en dpa est de $1,8 \cdot 10^{23}$ neutrons.cm⁻² à $E > 0,1$ MeV pour 260 dpa, le flux maximal en terme de dpa est $K=9,1 \cdot 10^{-7}$ dpa.s⁻¹. En ce même point, le flux thermique ($E < 0,625$ eV) avoisine les $2,62 \cdot 10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹. Afin de l'intégrer dans la formule de Kapusta, il est converti en flux thermique conventionnel en le multipliant par 0,8. On a alors un flux de neutrons thermiques conventionnel ($E < 0,0254$ eV) de $2,1 \cdot 10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹. Le gonflement par le silicium sera ajouté à celui par cavités en reprenant la formule générale proposée par Kapusta [15] soit :

$$G_{Si}(\%) = 100 * 4,2714 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{F_{th}}{1.10^{22}}$$

Avec F_{th} la fluence de neutrons thermiques en neutrons.cm⁻². On se ramène à un flux rapide en introduisant r , le rapport du flux thermique sur le flux rapide :

$$G_{Si}(\%) = 100 * 4,2714 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{F_r}{1.10^{22}} r$$

En utilisant la conversion du flux rapide en dpa ($1,8 \cdot 10^{23}$ n_r/cm² d'énergie $E > 0,1$ MeV correspondent à 260 dpa), on a alors :

$$G_{Si}(\%) = 100 * 4,2714 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{DPA}{1.10^{22}} r \frac{1,8 \cdot 10^{23}}{260}$$

Enfin on se ramène à un gonflement instantané en introduisant le flux de dommages K , en dpa.s⁻¹ et le temps, t :

$$G_{Si}(\%) = 100 * 4,2714 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{K \cdot t}{1.10^{22}} r \frac{1,8 \cdot 10^{23}}{260}$$

$$\rightarrow G_{Si}(\%) = 2,9571.10^{-3}.K.t.r$$

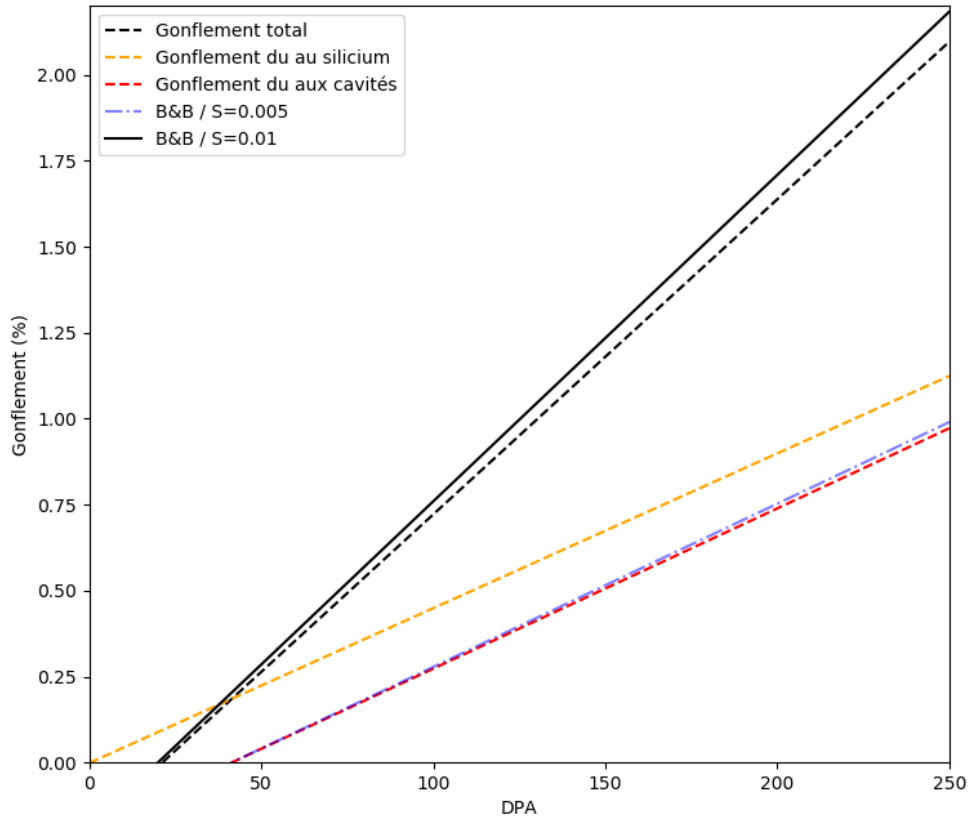


Figure 7 : Modélisation du gonflement par cavités par un modèle de B&B : ajustement du paramètre S d'après le modèle de Kapusta

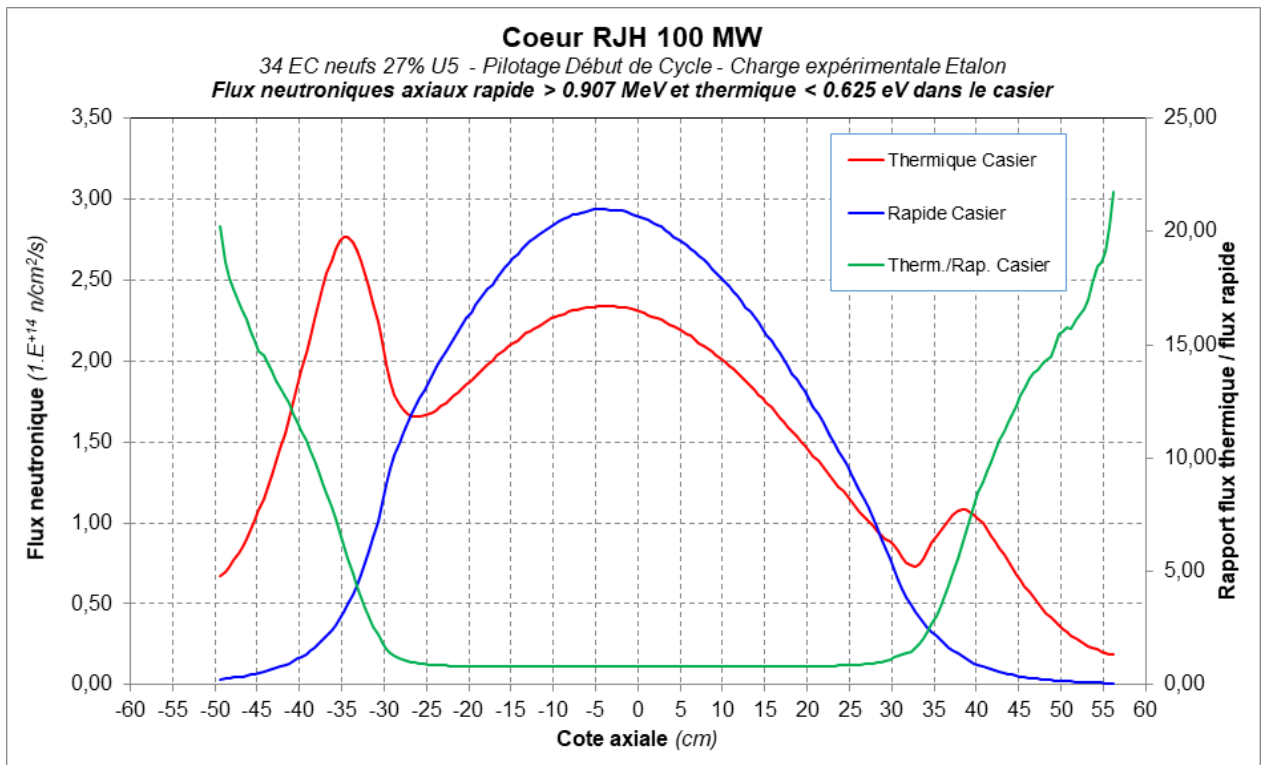


Figure 8 : Estimation du spectre neutronique dans le casier du RJH

Les données calculées par le modèle établi sur la Figure 9 présentent le gonflement total en fonction de la température et du temps en réacteur pour un flux de dommages de $9,1.10^{-7}$ dpa.s⁻¹ équivalent à un flux neutronique rapide ($E > 0,1$ MeV) de $6,3.10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹ et un flux de neutrons thermiques conventionnels de $2,1.10^{14}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹.

A titre indicatif, le temps est converti en dpa sur l'axe supérieur. Les courbes d'iso-gonflement à 0,1%, 0,5% et 1% sont données pour la modélisation avec $S=0,005$ et les courbes iso-gonflement à 0,1%, 1% et 2% pour $S=0,01$. La variation du gonflement à un niveau d'endommagement donné semble bien suivre les données du modèle avec un gonflement maximal aux alentours de 150°C et un gonflement diminuant de chaque côté de cette valeur. L'affichage selon une nappe 3D comme présenté Figure 10 confirme cette observation.

La valeur du pic à 150°C, contredit les valeurs observées par Jahnke [9] dans les alliages de série 6000 irradiés aux ions Al⁺ à 100 keV. En effet, le pic de gonflement était plutôt observable aux alentours de 90°C. Cette variation peut être expliquée par la différence importante de masse de l'ion incident entre Al²⁷ et Au⁷⁹ : en effet une irradiation aux ions lourds conduit à un décalage du pic vers les hautes températures. De plus, une augmentation du taux de dommages conduit également à décaler le pic de gonflement vers les hautes températures, comme constaté dans l'aluminium pur par Jahnke [9]. En considérant l'important taux de dommage observé dans les irradiations ioniques, comparativement aux irradiations neutroniques, il n'est pas surprenant d'obtenir un pic de gonflement décalé vers les hautes températures. D'autre part, les mêmes valeurs de température de début et de fin gonflement (déduites d'irradiations aux ions Al⁺) ayant été utilisées pour les deux simulations, le pic est également aux alentours de 150°C. Pour obtenir des résultats probants, il conviendrait d'évaluer les températures de début et fin de gonflement en fonction du taux de dommage, de même que d'évaluer l'influence de la masse de la particule sur ces températures.

A la température du casier (environ 90°C), le gonflement peut atteindre des valeurs élevées. A ce sujet la Figure 11 présente les courbes de gonflement à 90°C. Le gonflement total à 10 ans est estimé à 1,50 % selon les données de Farrell et à 2,71 % selon les données obtenues dans cette étude.

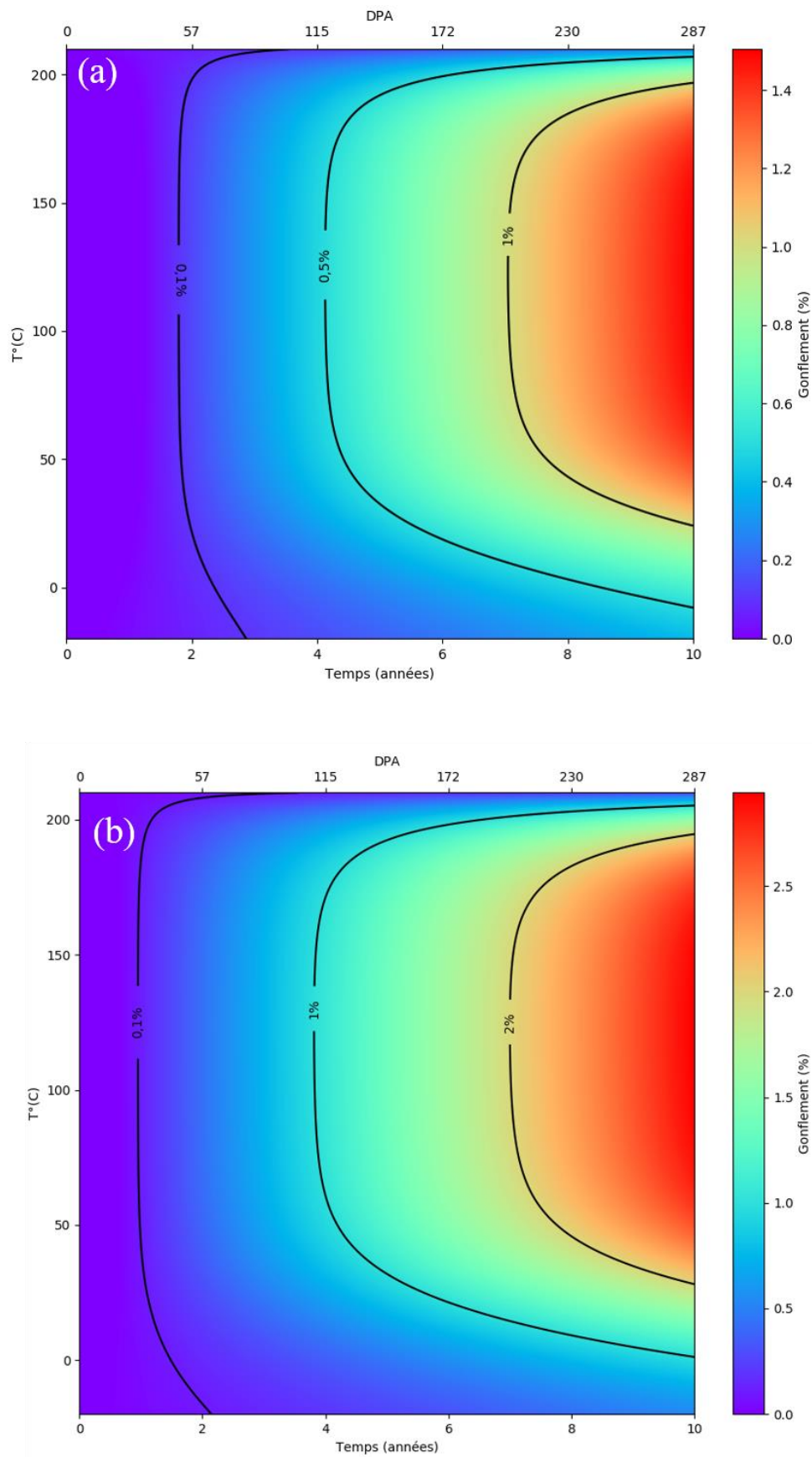


Figure 9 : Gonflement total estimé par le modèle de B&B et Kapusta pour deux valeurs de S différentes :
 (a): $S = 0,005$, (b) : $S=0,01$. Estimation sur 10 ans avec $9,1.10^{-7} \text{ dpa.s}^{-1}$

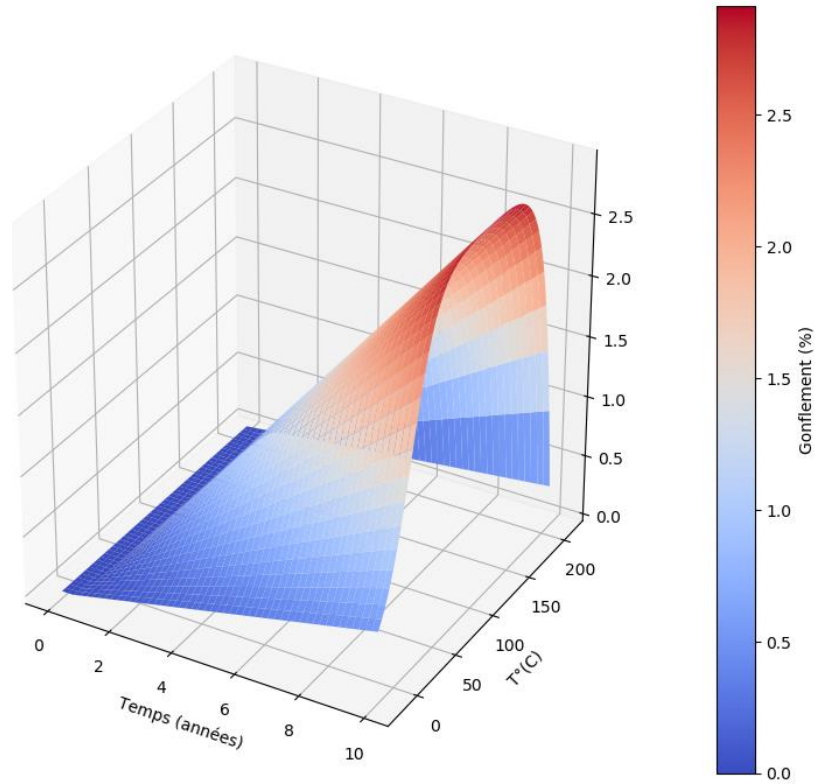


Figure 10 : Représentation en 3D des données de gonflement selon des paramètres identiques à la Figure 9.b

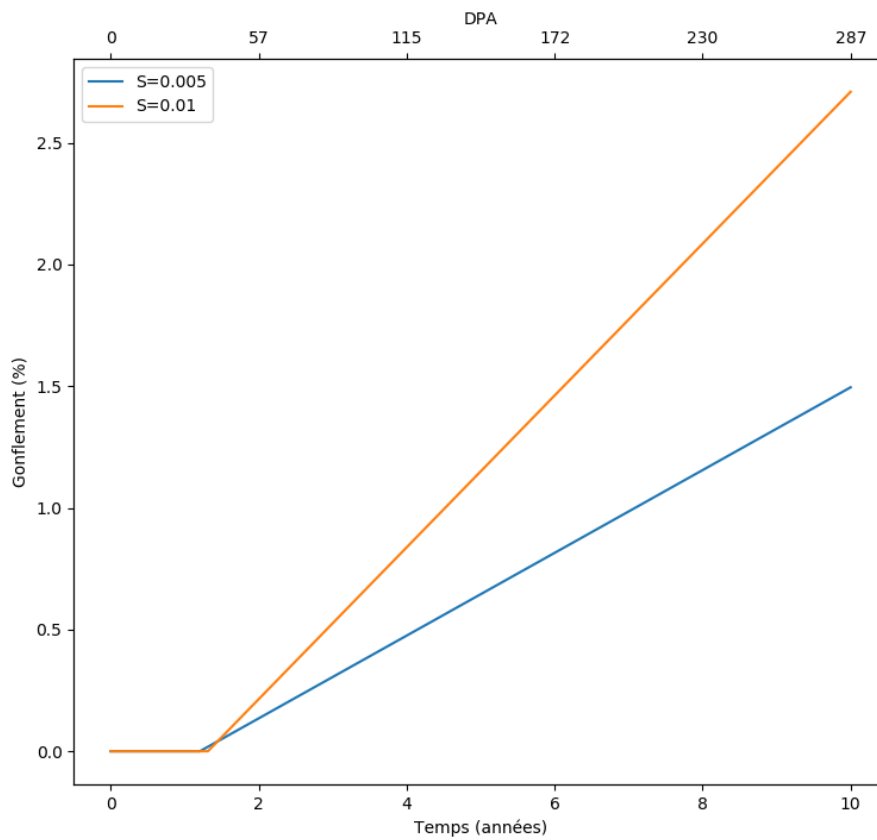


Figure 11 : Gonflement selon les paramètres de la simulation présentée Figure 9 pour une température de 90°C.

Le gonflement estimé à partir du modèle de B&B (inférieures à 3 % pour des durées de 10 ans) sont proches de celles de la littérature et d'un ordre de grandeur cohérent. Les valeurs obtenues à partir des données d'irradiation aux ions semblent surévaluer d'un facteur 2 le gonflement par rapport aux données de la littérature. Cependant, il doit encore une fois être rappelé que l'état métallurgique de l'alliage étudié par Farrell n'est pas bien connu et que cette donnée est primordiale pour l'étude du gonflement. D'autre part il ne doit pas être oublié que le flux en $\text{dpa}\cdot\text{s}^{-1}$ des irradiations ioniques surestime de plusieurs ordres de grandeurs celui des neutrons et que des effets de recombinaison lacune-interstitiel pouvant avoir lieu en réacteur ne sont pas toujours observés dans le cadre des irradiations aux ions. Les valeurs obtenues ici dans le cadre d'irradiations aux ions peuvent être considérées comme un majorant en première approche mais ne doivent pas dispenser d'effectuer de nouvelles irradiations aux ions afin de confirmer ces résultats.

Enfin, les valeurs des paramètres S , T_s , T_t et P ont un effet important sur la modélisation. La valeur de S est à déterminer par les données expérimentales. Une diminution de T_s aura tendance à diminuer la valeur globale du gonflement avec la température pour des températures inférieures à la température du maximum de gonflement. De même qu'une augmentation de T_t a tendance à diminuer le gonflement après la température du gonflement maximum. Cette température maximum est elle-même déterminée via T_s et T_t . Enfin le seuil de gonflement P , conditionne toutes les estimations. Il est donc primordial de déterminer expérimentalement ces paramètres pour l'alliage considéré puisque Jahnke [9] a déjà démontré sa forte dépendance à l'état métallurgique.

Conclusion

Le gonflement est un phénomène complexe dont la modélisation est fortement dépendante de nombreux paramètres parfois difficilement accessibles à l'expérimentateur. La description des modèles B&B et CBM ont montré des approches tout à fait différentes pour l'appréhender : le modèle B&B s'attache à des paramètres microscopiques pour évaluer un gonflement global alors que le modèle CBM offre une description plus fine et décrit des modifications plus locales.

Le manque d'études sur la formation des puits dans l'alliage 6061-T6 et leur densité a amené au choix du modèle de B&B qui, dans l'optique de l'évaluation du gonflement global du casier et caisson en réacteur, semblait plus adapté.

L'évaluation dans un premier temps des valeurs de gonflement d'après les différentes campagnes d'irradiation a montré une grande disparité de ces valeurs malgré un ordre de grandeur globalement homogène de ces dernières. La comparaison aux données de Farrell dans la littérature a mis en évidence des valeurs de gonflement plus élevées pour les irradiations aux ions comparativement aux données obtenues après irradiation en réacteur. Cette tendance semble due aux taux de dommages beaucoup plus élevés lors des irradiations ioniques. De plus, la masse des ions étant bien supérieures à celle du neutron, un dpa neutron n'est pas nécessairement équivalent à un dpa ion.

Cependant l'état métallurgique des alliages irradiés en réacteur n'étant pas connu, ces différences de gonflement pourraient aussi résulter de microstructures différentes.

La modélisation selon le modèle B&B a présenté des valeurs de gonflement à 10 ans dans l'ordre de grandeur attendu (3% maximum). La valeur de 2,7 % selon nos données expérimentales sont cependant soumises au cautionnement de la représentativité des irradiations ioniques, de même que les valeurs de Farrell soulèvent le questionnement de l'état métallurgique de l'alliage étudié.

Si cette étude fournit les bases nécessaires à l'établissement d'un modèle de gonflement cohérent, il reste à évaluer de manière plus fine certaines valeurs proposées ici : seuil de gonflement, température de début et fin de gonflement. D'autre part, des études en amont sur les densités de défauts créés par irradiation et leur intégration dans un modèle CBM afin d'obtenir une estimation de l'évolution du gonflement semblerait être une bonne base afin de valider les données obtenues par le modèle de B&B.

Bibliographie

- [1] Shimomura Y., Yoshida S. « Heterogeneous Nucleation of Voids in Quenched Aluminum ». *J. Phys. Soc. Jpn.* 5 janvier 1967. Vol. 22, n°1, p. 319-331.
- [2] Nelson R. S., Hudson J. A., Mazey D. J. « The stability of precipitates in an irradiation environment ». *J. Nucl. Mater.* 1 septembre 1972. Vol. 44, n°3, p. 318-330.
- [3] Brailsford A. D., Bullough R. « The rate theory of swelling due to void growth in irradiated metals ». *J. Nucl. Mater.* 1 août 1972. Vol. 44, n°2, p. 121-135.
- [4] Garner F. A., Perrin J. S. *Effects of Radiation on Materials: Twelfth International Symposium : a Symposium*. ASTM International, 1985. 537 p. ISBN : 978-0-8031-0450-1.
- [5] Volin T. E., Balluffi R. W. « Annealing kinetics of voids and the Self-diffusion coefficient in aluminum ». *Phys. Status Solidi B.* 1968. Vol. 25, n°1, p. 163-173.
- [6] Fisher D. J. « Determination of the Activation Energy for Formation and Migration of Thermal Vacancies in 401.0 Casting Aluminum Alloy ».
- [7] DeSorbo W., Turnbull D. « Quenching of imperfections in aluminum ». *Acta Metall.* 1 février 1959. Vol. 7, n°2, p. 83-85.
- [8] Ho G. et al. « Energetics and kinetics of vacancy diffusion and aggregation in shocked aluminium via orbital-free density functional theory ». *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2007. Vol. 9, n°36, p. 4951.
- [9] B. Jahnke, K. Ehrlich. « Void formation in an Al-Mg-Si alloy under different precipitation conditions after irradiation with 100keV Al ions ». *J. Mater. Sci.* 1980. Vol. 15, p. 831-838.
- [10] Victoria M. et al. « Nucleation and growth of precipitates and helium bubbles in a high-purity AlMgSi alloy irradiated with 600 MeV protons ». *J. Nucl. Mater.* 1988. Vol. 155-157, Part 2, p. 1075-1078.
- [11] Dai Y., Odette G. R., Yamamoto T. « 1.06 - The Effects of Helium in Irradiated Structural Alloys ». In : Konings RJM (éd.). *Compr. Nucl. Mater.* Oxford : Elsevier, 2012. p. 141-193. ISBN : 978-0-08-056033-5.
- [12] Odette G. R., Stoller R. E. « A theoretical assessment of the effect of microchemical, microstructural and environmental mechanisms on swelling incubation in austenitic stainless steels ». *J. Nucl. Mater.* 2 mai 1984. Vol. 122, n°1, p. 514-519.
- [13] Stoller R. E., Odette G. R. « Analytical solutions for helium bubble and critical radius parameters using a hard sphere equation of state ». *J. Nucl. Mater.* 1 avril 1985. Vol. 131, n°2, p. 118-125.
- [14] Odette G. R. « Modeling of microstructural evolution under irradiation ». *J. Nucl. Mater.* 2 décembre 1979. Vol. 85-86, p. 533-545.
- [15] Bénédicte Kapusta. *Estimation du gonflement du 6061-T6*. Rapport, SEMI/LCMI/NE/2008/003/A, CEA-Saclay, 2008.
- [16] Farrell K. *Effects of structural imperfections on voids in aluminium – Microstructure impurity effects on void formation characteristics in neutron irradiated aluminium*. Rapport, ORNL-TM-3493, Oak Ridge National Lab., 1971.
- [17] Farrell K., Wolfenden A., King R. T. « The effects of irradiation temperature and preinjected gases on voids in aluminium ». *Irradiat. Eff.* 1971. Vol. 8, p. 107-114.

- [18]Jahnke B. *Porenbildung in einer Al-Mg-Si-Legierung mit unterschiedlichen Ausscheidungszuständen und in Reinstaluminium nach Bestrahlung mit 100 keV Al-Ionen*. Thèse de Doctorat. 1978.
- [19]Farrell K. *Assessment of aluminum structural materials for service within the ANS reflector vessel*. Rapport, ORNL/TM-13049, Oak Ridge National Lab., 1995.
- [20]Was G. S. *Fundamentals of Radiation Materials Science - Metals and Alloys*.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La conception du cœur du réacteur Jules Horowitz a amené à de nombreuses interrogations quant au choix de l'alliage utilisé [1]. Le choix de l'alliage 6061-T6 s'est imposé de par ses propriétés mécaniques issues des nanoprécipités produits lors du revenu. Cependant, trois aspects restaient à examiner :

- ➔ Premièrement, l'épaisseur du caisson a amené à une trempe inhomogène sur l'ensemble de la pièce. La trempe étant le garant de la nanoprécipitation après revenu et donc des propriétés mécaniques, l'étude de la trempe était indispensable. De plus les alliages de série 6000 ayant été majoritairement utilisés dans l'industrie automobile usant de fines tôles, les effets de trempe n'ont été que très peu étudiés. Il était donc nécessaire d'observer les microstructures et propriétés pour différentes vitesses de trempe (*c-à-d* différentes positions dans une pièce épaisse).
- ➔ Deuxièmement, il a été observé un gonflement de l'aluminium sous flux neutronique. Ce gonflement, s'il est dû à la formation de cavités, est sensible à la microstructure de l'alliage. Il est donc indispensable d'étudier le gonflement pour plusieurs états de trempe.
- ➔ Troisièmement, pour garantir un fonctionnement sûr et efficace du RJH, il est nécessaire d'établir un modèle de gonflement prédictif prenant en compte les deux points explicités précédemment.

En conséquence, les trois axes développés dans cette thèse reposent sur l'étude de microstructures à plusieurs vitesses de trempe, l'observation et la quantification du gonflement pour ces différentes nuances microstructurales et enfin une modélisation associée.

Il a été montré que l'application d'un traitement T6 avec différents fluides de trempe sur des échantillons épais a conduit à des états microstructuraux et des comportements mécaniques différents. La trempe eau a présenté une hétérogénéité de vitesse de trempe avec un fort gradient de vitesse de trempe en surface tout en étant supérieure à la vitesse critique. La trempe air a montré une vitesse de trempe homogène mais très inférieure à la vitesse critique. Pour la trempe eau, d'un point de vue mécanique, si aucune modification n'était observable dans le cas d'essais macroscopiques (traction, ténacité), des essais de microdureté ont montré une augmentation non négligeable de la dureté dans les zones ayant subi une vitesse de trempe plus élevée. Ces observations mettent en avant un lien direct entre inhomogénéité de trempe et inhomogénéité de microstructure et propriétés mécaniques locales.

Comparativement aux données de la littérature, les trempes air et huile se distinguent par des microstructures et comportement mécaniques inattendus. D'un point de vue mécanique, la trempe huile a des propriétés similaires à la trempe eau à l'échelle macroscopique mais il n'a pas été observé d'inhomogénéité lors des examens de microdureté contrairement à la trempe eau. A l'échelle sub-micronique, de nouvelles phases ont germé de façon hétérogène sur les dispersoïdes et une plus faible densité de précipités nanométriques a été mesurée. Enfin, la trempe air a montré une précipitation hétérogène de grandes particules à l'échelle sub-micronique et une absence totale de nanoprecipités. Les caractérisations mécaniques ont mis en évidence de faibles propriétés comparable à un état brut de forgeage.

Ces observations ont mis en évidence l'importance du traitement thermique et l'importance de l'étape de trempe dans le cas de pièces épaisses. Il a été démontré ainsi que les meilleures propriétés mécaniques s'obtiennent dans le cas de la trempe eau. Cependant, cette trempe induit une hétérogénéité de microstructure ainsi qu'une inhomogénéité locale des propriétés mécaniques.

L'irradiation d'échantillons aux ions à de forts niveaux de dommage (60 dpa et 100 dpa) a révélé une importante dépendance de la microstructure à la formation de cavités. Premièrement, tous les états de trempe ont présenté une première population de cavités autour de défauts linéaires. Une autre population de cavités, à l'interface dispersoïdes-matrice a également été observée dans tous les états de trempe. Dans le cadre de la trempe huile, de nouvelles cavités, proches des dispersoïdes mais relativement éloignées de l'interface dispersoïde-matrice ont été observées. D'autre part, les phases submicroniques hétérogènes ayant disparues dans la trempe huile, cette nouvelle population a été attribuée à des cavités s'étant formées à partir de ces phases disparues. Le même phénomène a été observé dans la trempe air. Des lames de microscopie à faibles dpa ont montré une dissolution très rapide de ces phases hétérogènes, confirmant cette hypothèse.

Il a été ainsi démontré une forte influence de la vitesse de trempe sur les lieux de formation des cavités. Enfin, l'observation de nanocavités dans l'intégralité de la matrice pour les matériaux trempés air témoigne de l'effet des nanoprecipités, tendant à réduire la formation de cavités.

La mesure par images MET des densités de cavités et par extension des valeurs de gonflement issues de irradiations ioniques a montré une importante diversité des résultats au sein d'un même état de trempe. Cette observation a été interprétée comme étant un possible effet des irradiations ioniques présentant un taux de dommage par seconde (10^{-5} dpa.s⁻¹) bien plus conséquent que lors d'irradiation neutroniques (10^{-8} dpa.s⁻¹). Les valeurs de gonflement à 60 dpa et 100 dpa pour la trempe air ont présenté des valeurs

de près de deux fois supérieures à celle de la trempe eau et huile. Cette observation peut être directement attribuée à la population de nanocavités observées uniquement dans cet état de trempe.

La confrontation des données de gonflement issues des irradiations ioniques effectuées pendant la thèse aux valeurs de la littérature a indiqué que les irradiations ioniques surestimaient d'un facteur deux le gonflement. Cependant, les observations microscopiques ayant révélé une forte dépendance de la microstructure initiale, il a été choisi de considérer les deux jeux de données pour la modélisation.

La modélisation du gonflement a été effectuée dans un modèle de type Brailsford et Bullough (B&B). Ce modèle a l'avantage de ne proposer qu'un seul paramètre d'ajustement. Les autres paramètres relèvent du domaine de la physique du matériau étudié. D'après les données de la littérature, les valeurs des températures de début et fin de gonflement ainsi que le seuil de gonflement ont été estimées. L'introduction des deux jeux de données dans le modèle a amené à des valeurs différentes concernant le gonflement au bout de 10 ans en réacteur. Le gonflement total à 10 ans d'après les données de la littérature au point présentant le plus fort flux rapide a été estimé à 1,50 %. Pour les données issues des irradiations ioniques, il se situe à 2,7%. Dans les deux cas, ces valeurs sont inférieures au 3%, limite maximum réglementaire pour le RJH.

Les résultats de cette thèse contribuent à renforcer la compréhension du comportement de l'alliage 6061-T6 sous irradiation. Ils mettent aussi en évidence des informations manquantes pour améliorer la modélisation du gonflement. Premièrement, les valeurs des températures maximales et minimales de gonflement ainsi que le dommage seuil à partir duquel apparaissent les premières cavités doivent être déterminées expérimentalement. Le dommage seuil pourrait être déterminé par des irradiations in-situ. Les températures minimum et maximum de gonflement par des irradiations aux électrons sur un microscope électronique à très haute tension muni d'un porte échantillon chauffant/refroidissant.

Ensuite les mécanismes de formation et de localisation des cavités doivent être confirmés. Pour ce faire, il est proposé d'effectuer des irradiations in-situ sur plusieurs états de trempe en observant les zones de nucléation des défauts.

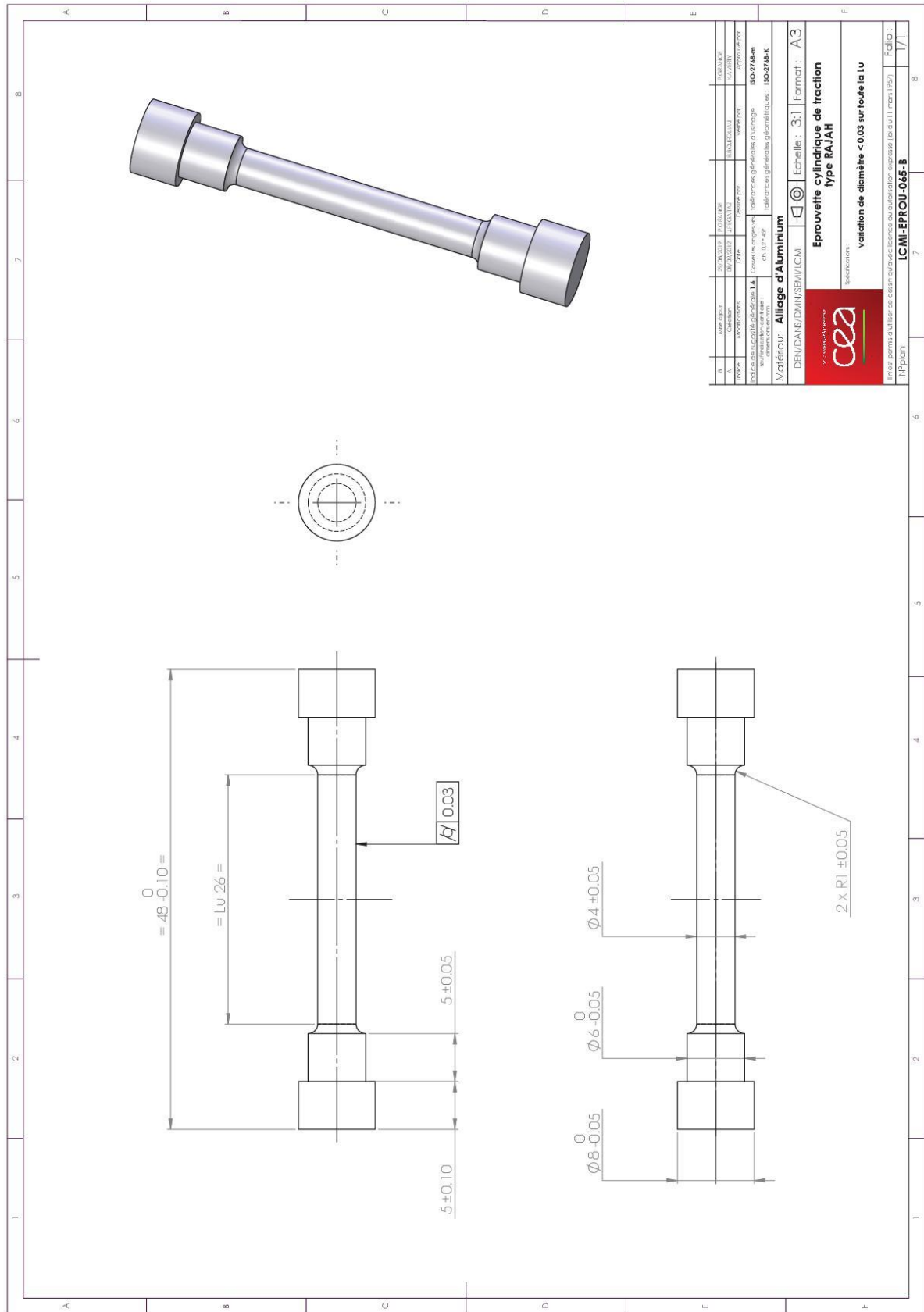
Enfin, pour obtenir des valeurs homogènes de gonflement sur une lame MET, il est proposé d'effectuer des irradiations aux ions H^+ à forte énergie afin d'irradier de plus grands volumes de matière et de pouvoir mesurer le gonflement par variation de densité.

Ainsi dans la perspective de ces travaux de thèse, il est possible que de nouvelles études soient lancées pour apporter ces informations manquantes et poursuivre le travail de modélisation du gonflement.

ANNEXES

Annexe A : Eprouvette de traction RAJAH	195
Annexe B : Eprouvette de ténacité CTJ 12.5	196
Annexe C : Plans d’usinage des cubes	197
Annexe D : Plans d’extraction d’un quart de cube après traitement thermique	200
Annexe E : Macro Python d’extraction des données et conversion en vitesse de trempe	202
Annexe F : Analyses EBSD	204
Annexe G : Analyse EDS dans la trempe air	205
Annexe H : Courbes de traction	206
Annexe I : Spectre EDS sur des amas en trempe eau	208
Annexe J : Spectre EDS sur des amas en trempe huile	209
Annexe K : Spectre EDS sur la trempe air	210

Annexe A : Eprouvette de traction RAJAH

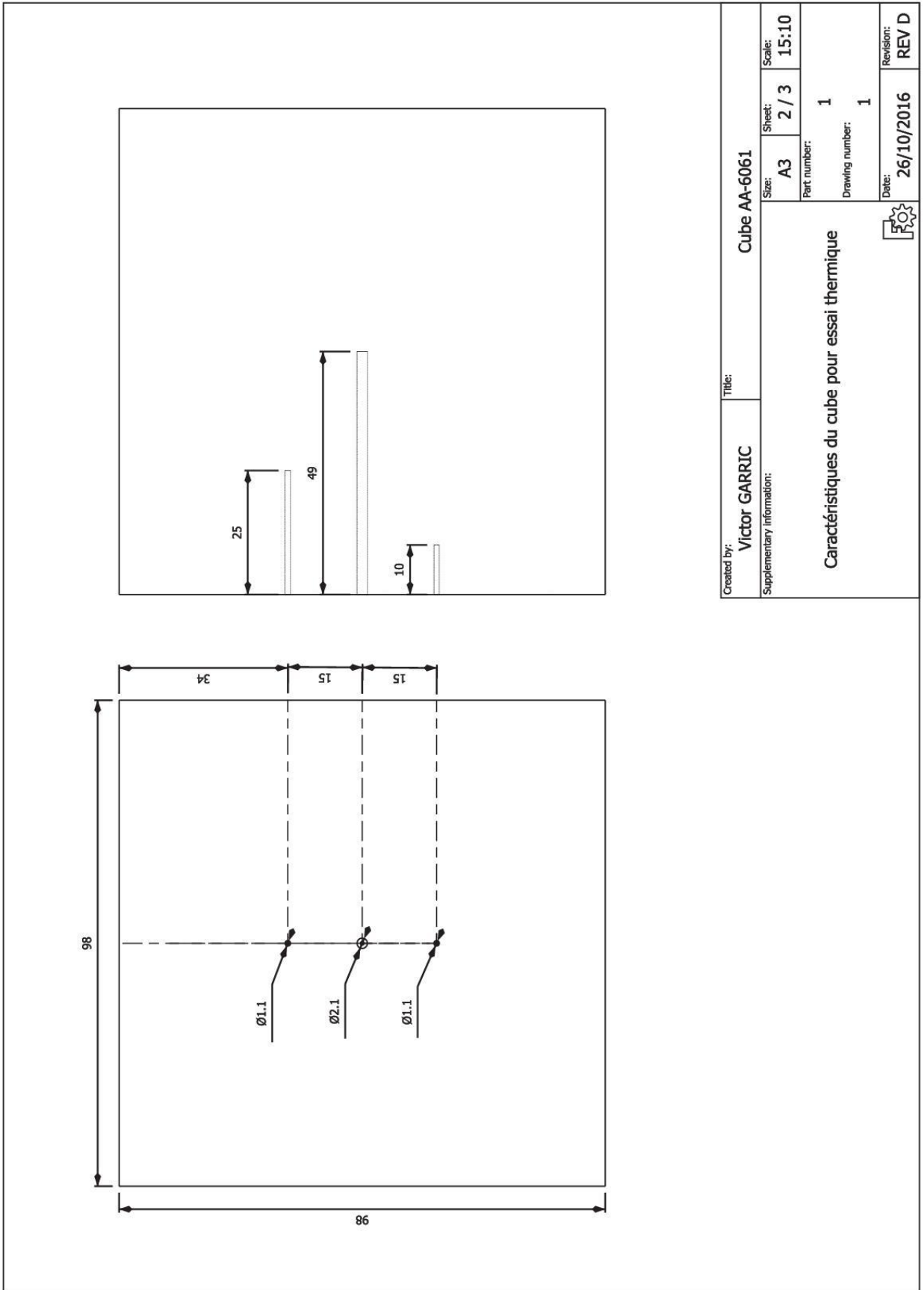


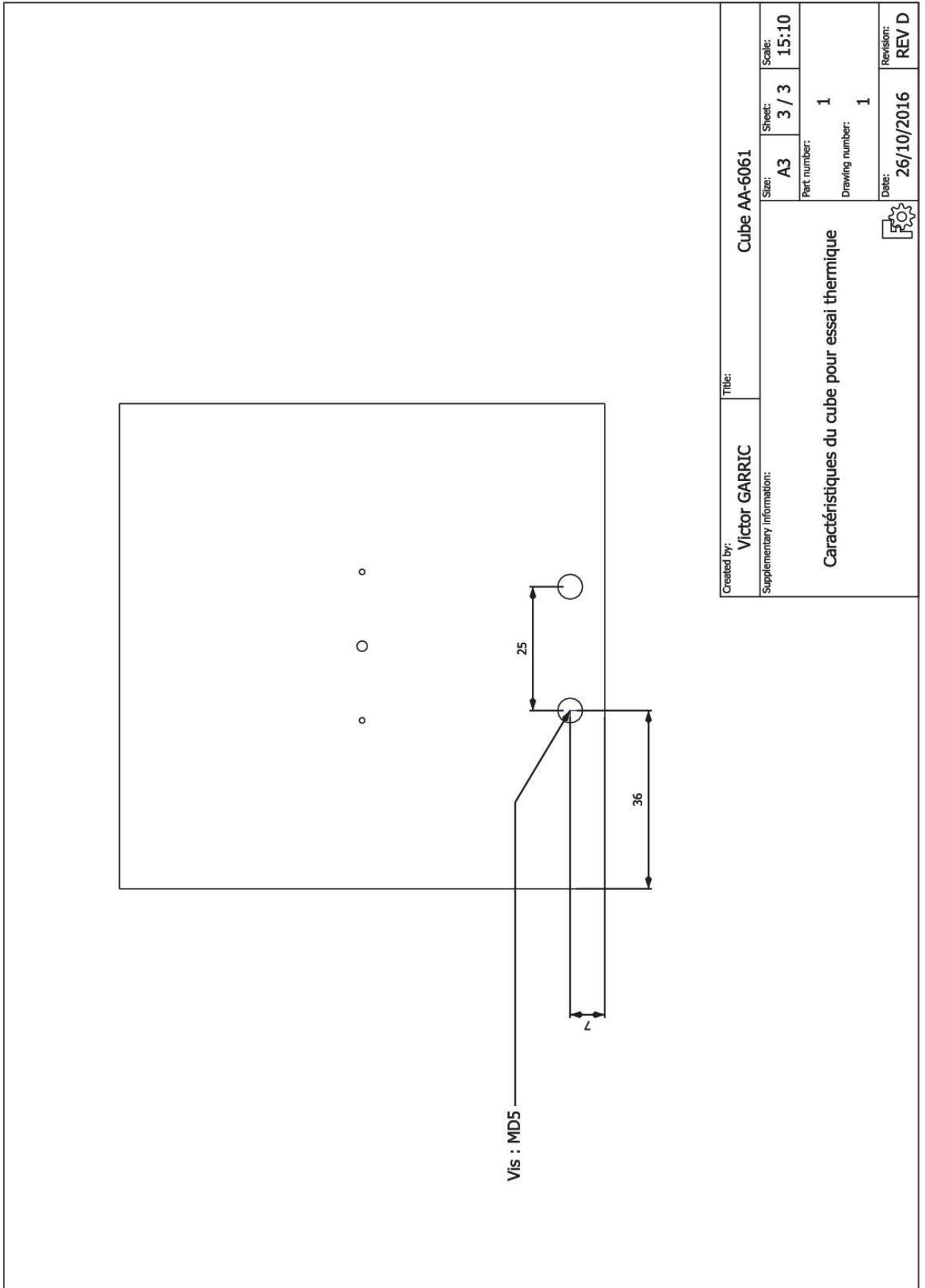
Annexe B : Eprouvette de ténacité CTJ 12.5

A	18/02/08	COFFRE	MONGABURE	AVERTY
Indice	Modifications	Date	Designe par	verifie par
Specifications particulieres <ul style="list-style-type: none"> - Tolérance générale : ±0.1 mm. - Rainures latérales profondes de 0.625 mm pour la préfissuration, puis 1.25 mm pour l'essai. 				
N° affaire		N° plan		
H11- 31- Tolérance		indice de rugosité général 0.8 Tol. ang. : ±15 L.C.A. C.E.A. Ra 0.050 ± 0.2 0.4 0.8 1.6 3.2 6.3 12.5		
Matière ALU 6061-T6 J47		Protection		
Traitement thermique		Echelle 2:1		
		Poids		
		Niveau qualité		
CTJ 12,5				
Il n'est permis d'utiliser ce dessin qu'avec l'accord ou l'autorisation expresse (à dater du 11 mars 1957)				
Service DEN / DANS / DMN / SEMI / LCM1		COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE		
Sous-traitant		1/1		

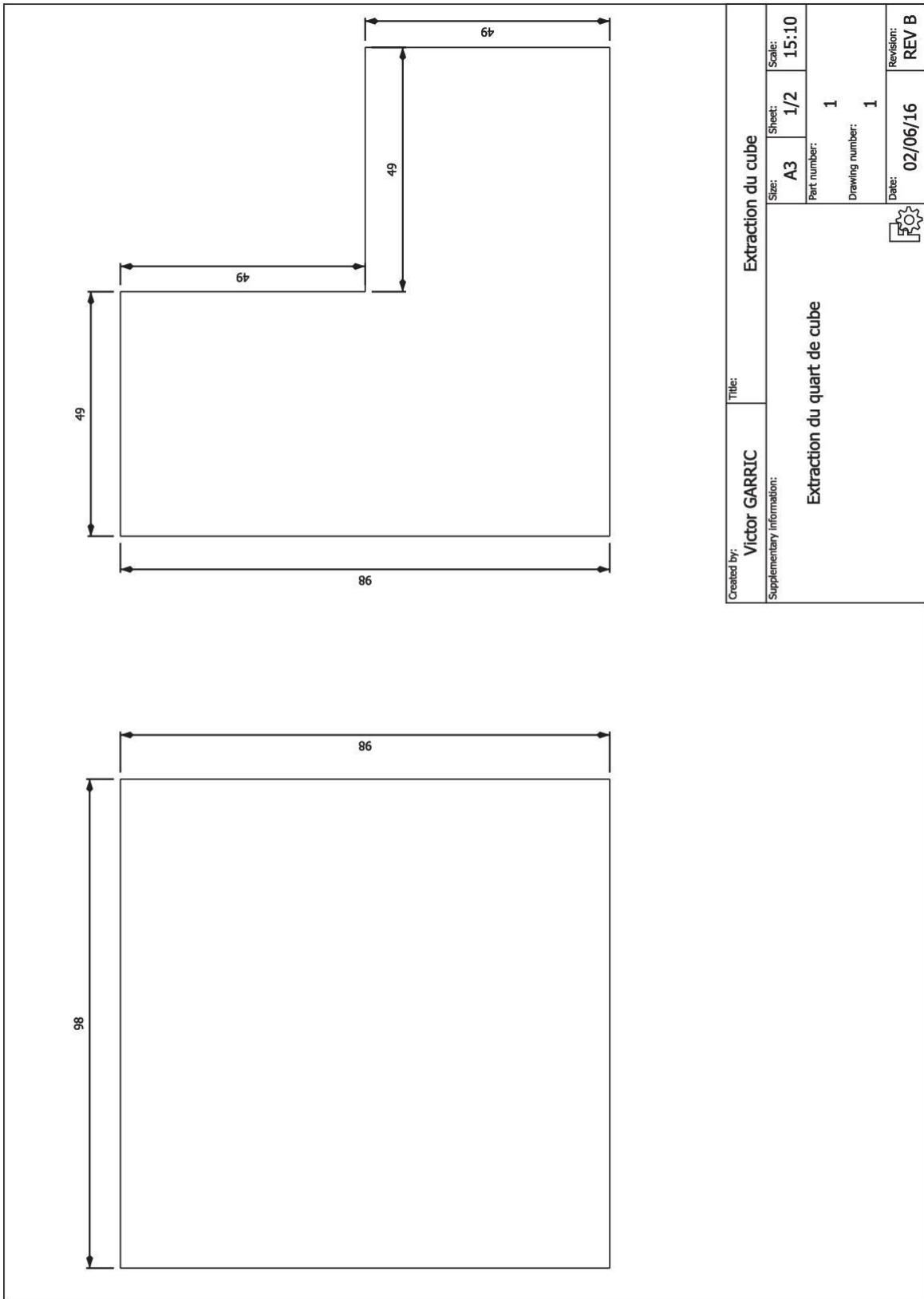
Annexe C : Plans d'usinage des cubes

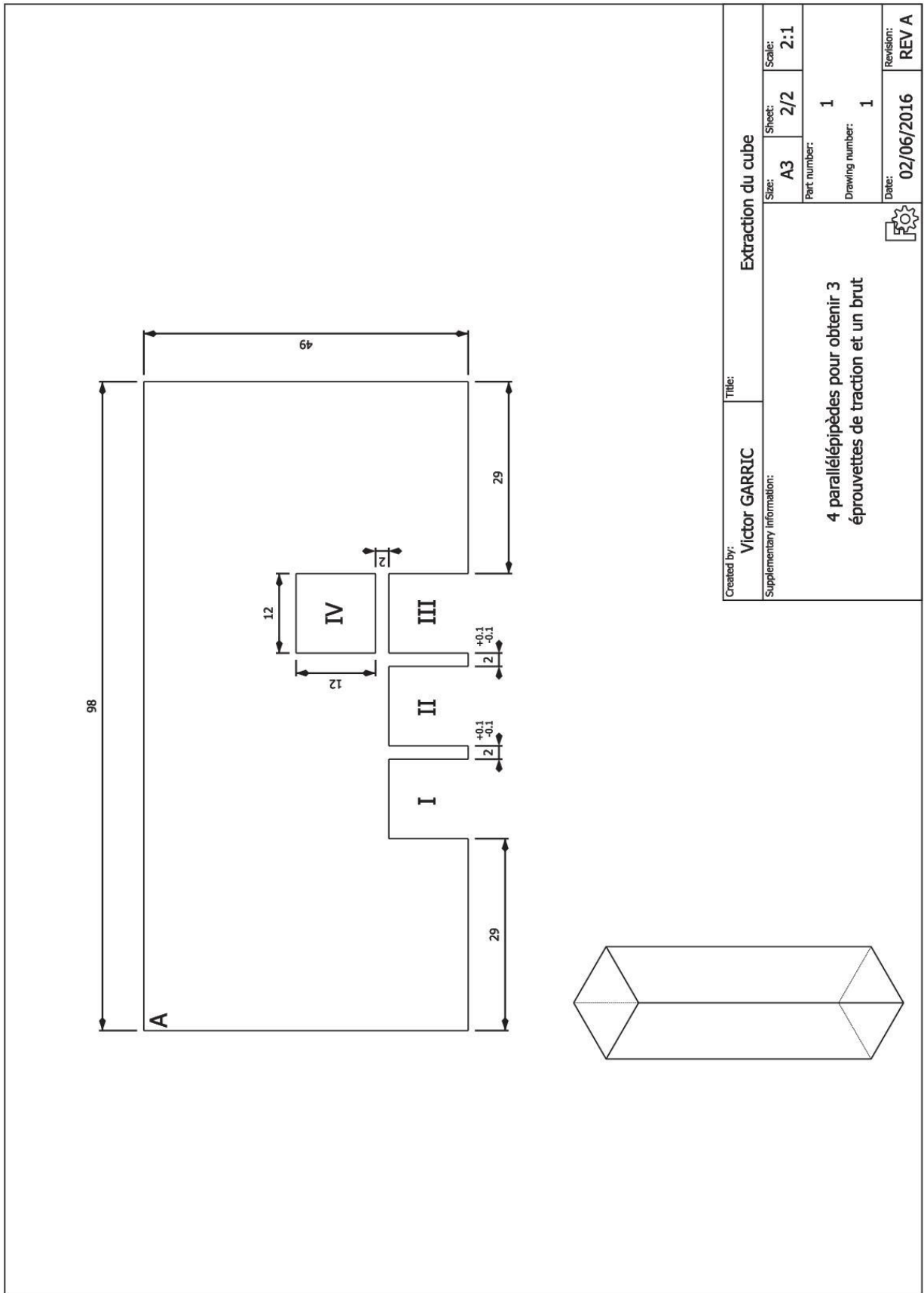
Created by: Victor GARRIC	Title: Cube AA-6061	Sheet: 1 / 3	Scale: 15:10
Supplementary information: Caractéristiques du cube pour essai thermique		Part number: 1	Drawing number: 1
		Date: 26/10/2016	Revision: REV D





Annexe D : Plans d'extraction d'un quart de cube après traitement thermique





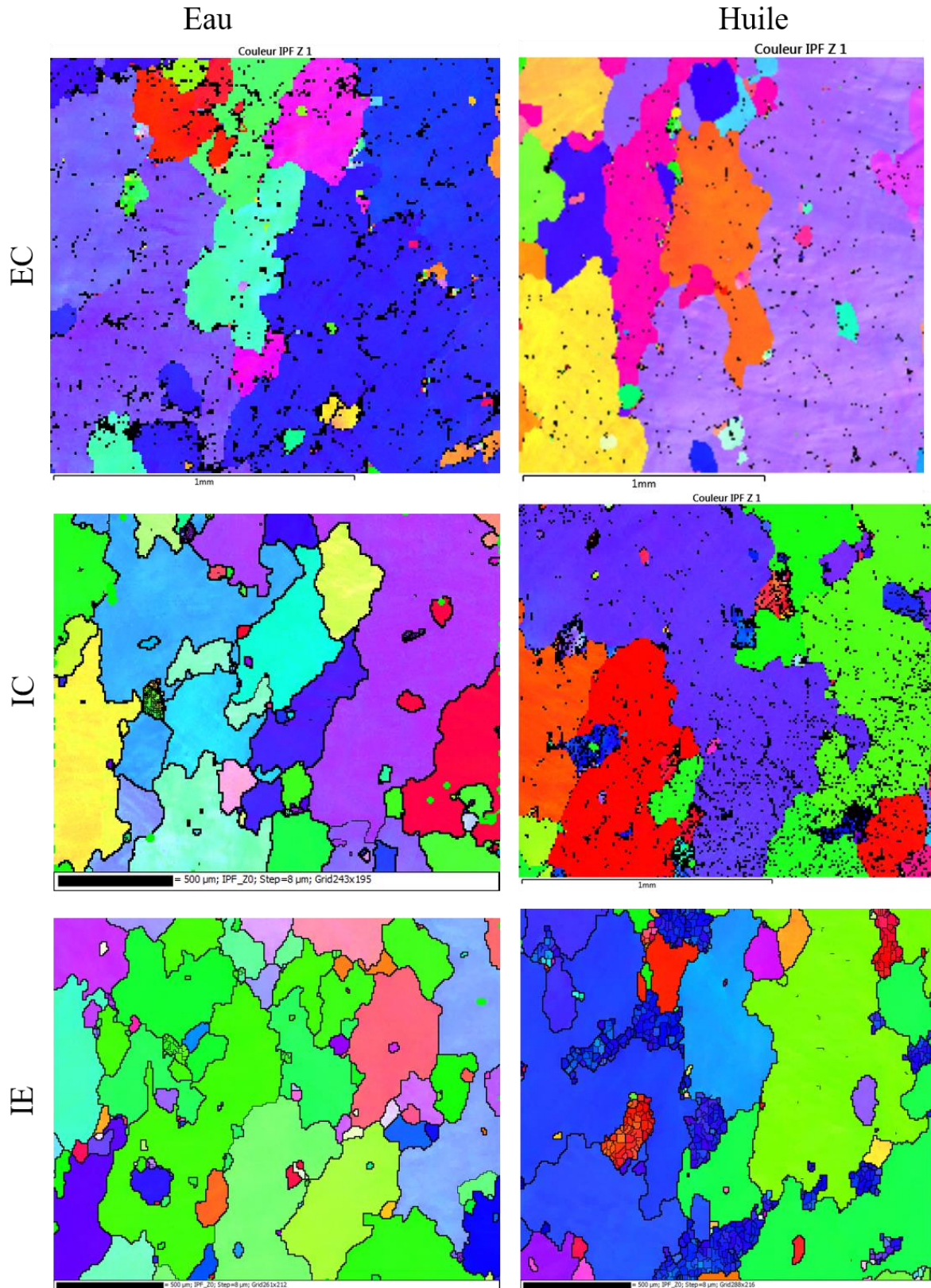
Annexe E : Macro Python d'extraction des données et conversion en vitesse de trempe

```
1. import csv
2. import numpy as np
3. from scipy import stats
4. import matplotlib.pyplot as plt
5. from scipy.optimize import curve_fit
6. len_fit=30
7. print(''''*** Traitement issu de CAST3M : Calcul de vitesses de trempe ***
8. *** Nombre de fichiers fixés par l'utilisateur : %s
9. *** Début du calcul ***
10. ''' % (len_fit))
11. def recall_temp (temp_read) :
12.     for item in range(len(temp_read[1])) :
13.         if temp_read[1][item] > 405. :
14.             temp_read[0].pop(item)
15.             temp_read[1].pop(item)
16.             return None
17.         if temp_read[1][item] < 195. :
18.             temp_read[0].pop(item)
19.             temp_read[1].pop(item)
20.             return None
21.
22.
23. print(''''*** Lecture des fichiers ***''')
24. L=[]
25. for i in range(len_fit) :
26.     L.append('PNM_'+str(i+1)+'.csv')
27. total_num=[]
28. print(''''*** Extraction des données ***''')
29. for i in L :
30.     temp_read=[[],[ ]]
31.     with open(i,'r') as csvfile :
32.         reader=csv.reader(csvfile, delimiter=';')
33.         for row in reader :
34.             try:
35.                 (float(row[0]))
36.                 temp_read[0].append((float(row[0])))
37.                 temp_read[1].append((float(row[1])))
38.             except :
39.                 None
40.             restart_crit = [ ]
41.             restart_crit.append(0)
42.             restart_crit.append(len(temp_read[1]))
43.             print('Avant : %s' % temp_read)
44.             while restart_crit[-1] != restart_crit[-2] :
45.                 recall_temp (temp_read)
46.                 restart_crit.append(len(temp_read[1]))
47.             print ('Après : %s' % temp_read)
48.             total_num.append(temp_read)
49.             csvfile.close()
50. total_stat=[]
51. print(''''*** Calculs Statistiques ***''')
52. for i in range(len(total_num)) :
53.     arr_x=[]
54.     arr_y=[]
55.     arr_x=np.asarray(total_num[i][0])
56.     arr_y=np.asarray(total_num[i][1])
57.     try :
58.         slope, intercept, r_value, p_value, std_err = stats.linregress(arr_x,arr_y)
```

```
59.     inter=[]
60.     inter.append(slope)
61.     inter.append(intercept)
62.     inter.append(r_value**2)
63.     inter.append(len(arr_x))
64.     if np.isnan(inter[0]) == True :
65.         total_stat.append([0,0,0,0])
66.     else :
67.         total_stat.append(inter)
68.     except :
69.         total_stat.append([0,0,0,0])
70. i=0
71. total_x=[]
72. total_y=[]
73.
74. print('''*** Mise en forme des données ***''')
75. for item in total_stat :
76.     i+=1
77.     if item==[0,0,0,0] :
78.         break
79.     total_y.append(-item[0])
80.     total_x.append(0.049-(i*0.049/len_fit))
81.     print('''Pour le point situé à z=%s Nombre de points : %s\n Coefficient de R
egression : %s \n Ordonnée à l'origine : %s \n Coefficient de Cohérence : %s''
% ( '%.3f'%(0.049+(float(i)-1)*0.049/float(len_fit)), item[-1], '%.3f'%-
item[0], '%.3f'%item[1], '%.4f'%item[2]))
82. plt.plot(total_x, total_y, 'ro', label="Points Simulés")
83. total_x.reverse()
84. total_y.reverse()
85. def func(x, a, b, c):
86.     return a*np.exp(x/b)+c
87. popt, pcov = curve_fit(func, total_x, total_y, check_finite=True, method='lm', maxfe
v=15000)
88. X = np.linspace(0, 0.049, 256, endpoint=True)
89. f = popt[0]*np.exp(X/popt[1])+popt[2]
90. plt.plot(X,f,label="Fiting y=%s*exp(x/%s)+%s" % ( '%.3f'%popt[0], '%.3f'%popt[1], '%.3f
'%popt[2]))
91. plt.legend(loc='upper right')
92. plt.xlim(0, 0.049)
93. plt.show()
```

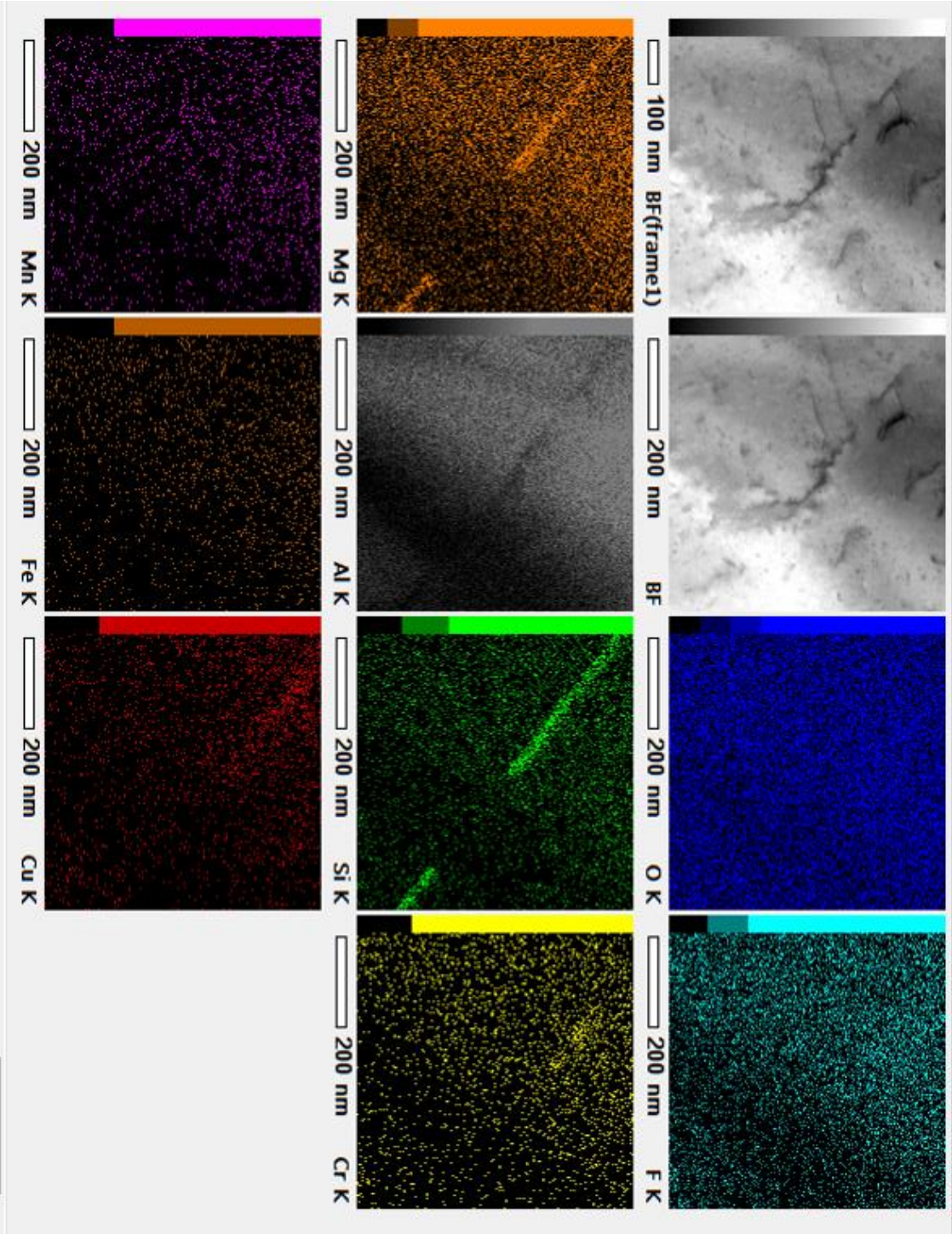
Annexe F : Analyses EBSD

Coloration en fonction de l'orientation cristalline de la zone indexée en fonction de la trempe et de la zone du prélèvement. E : Extérieur, I : Intérieur, C : Cœur, S : Surface



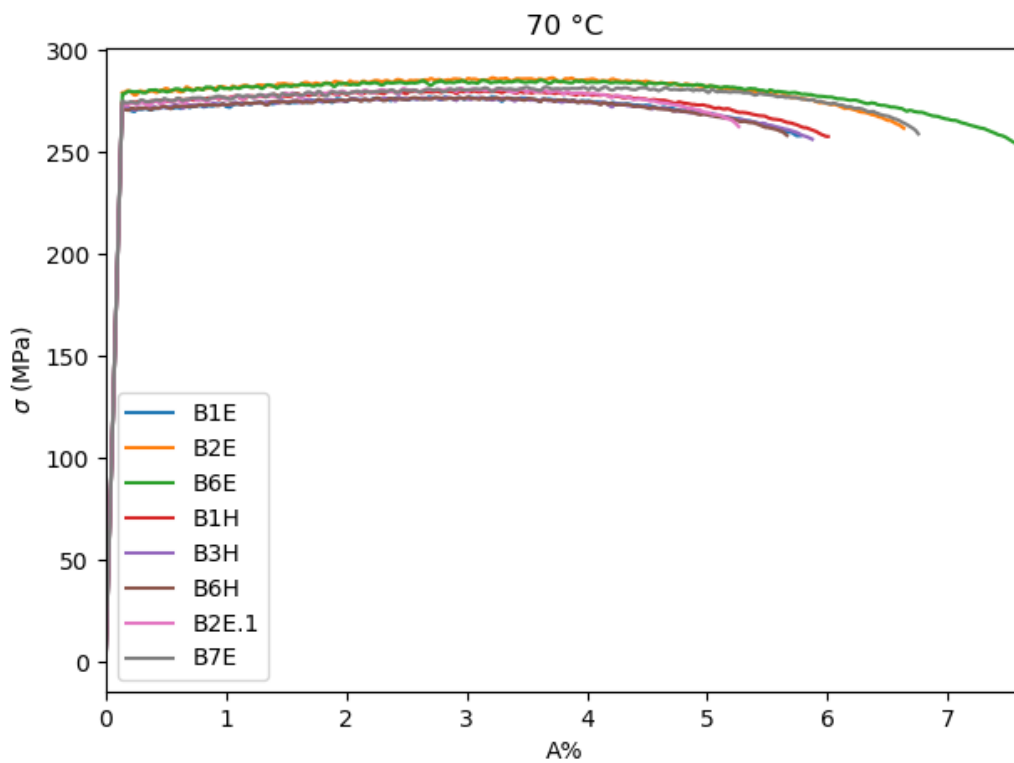
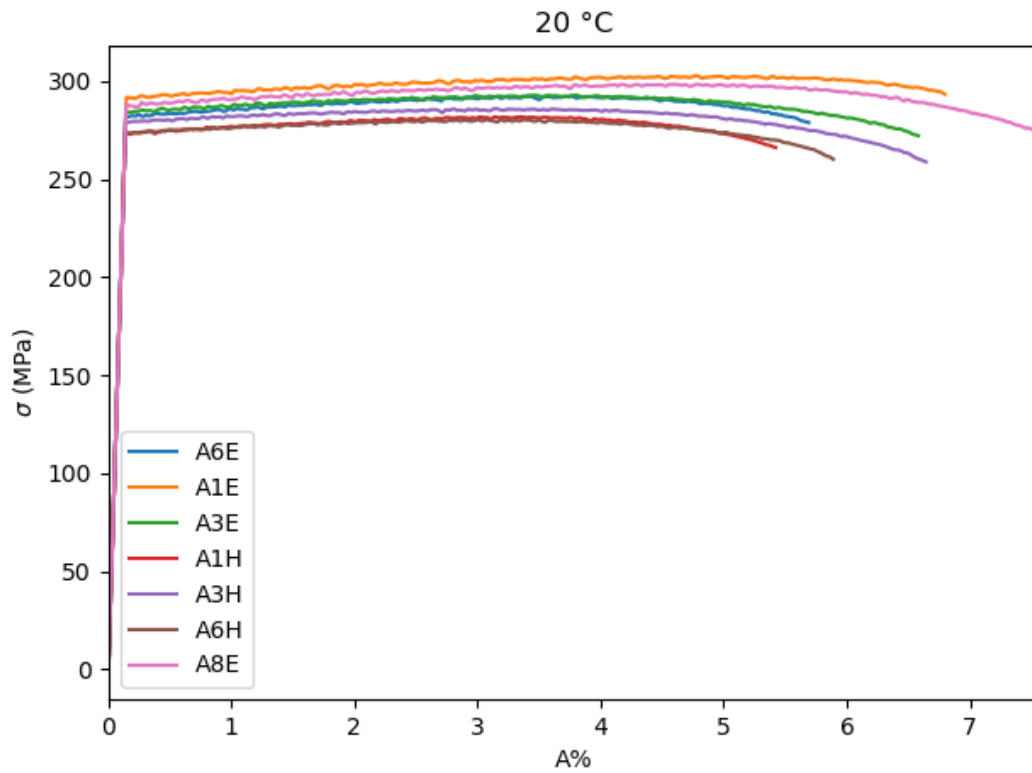
Annexe G : Analyse EDS dans la trempe air

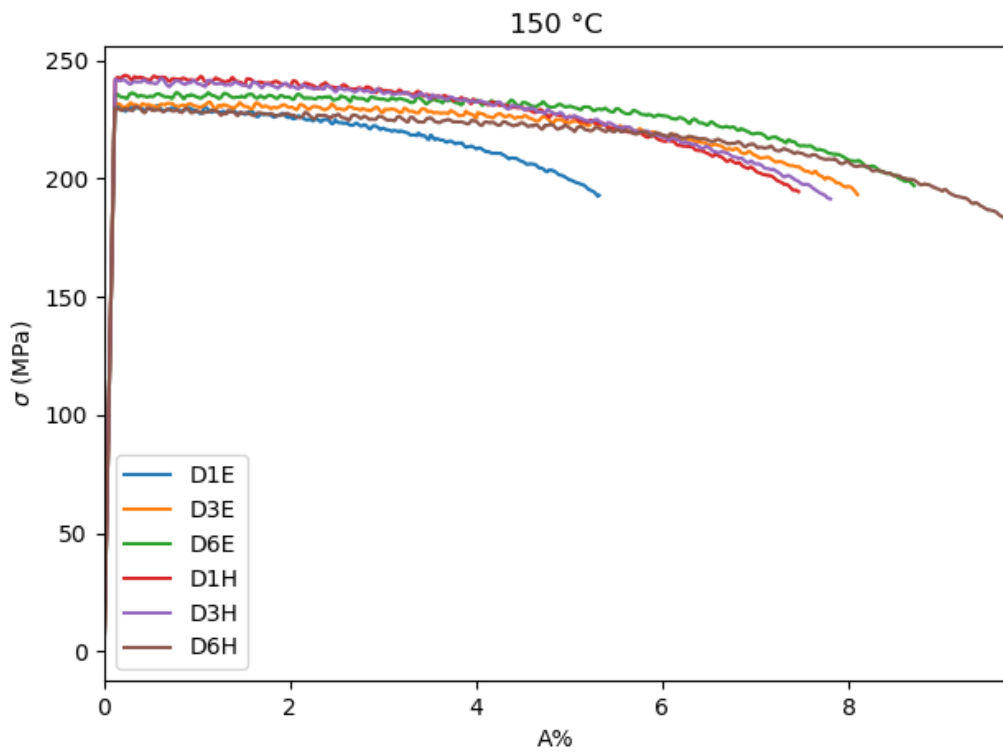
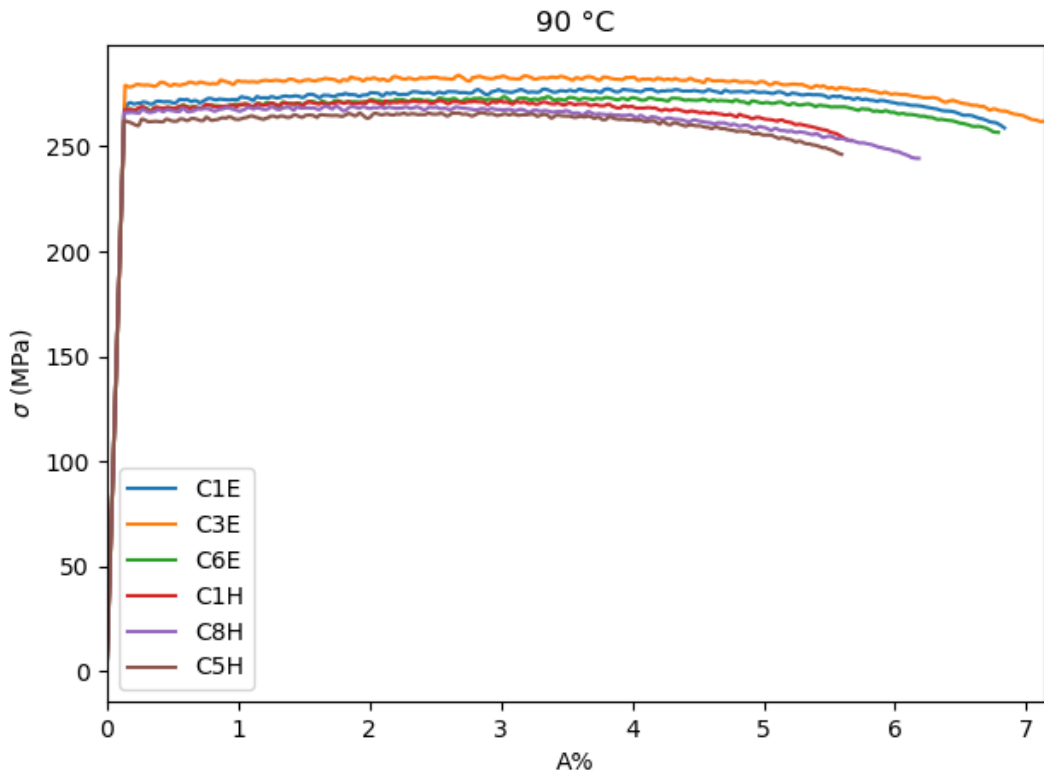
Complément de la figure 37 du chapitre 3



Annexe H : Courbes de traction

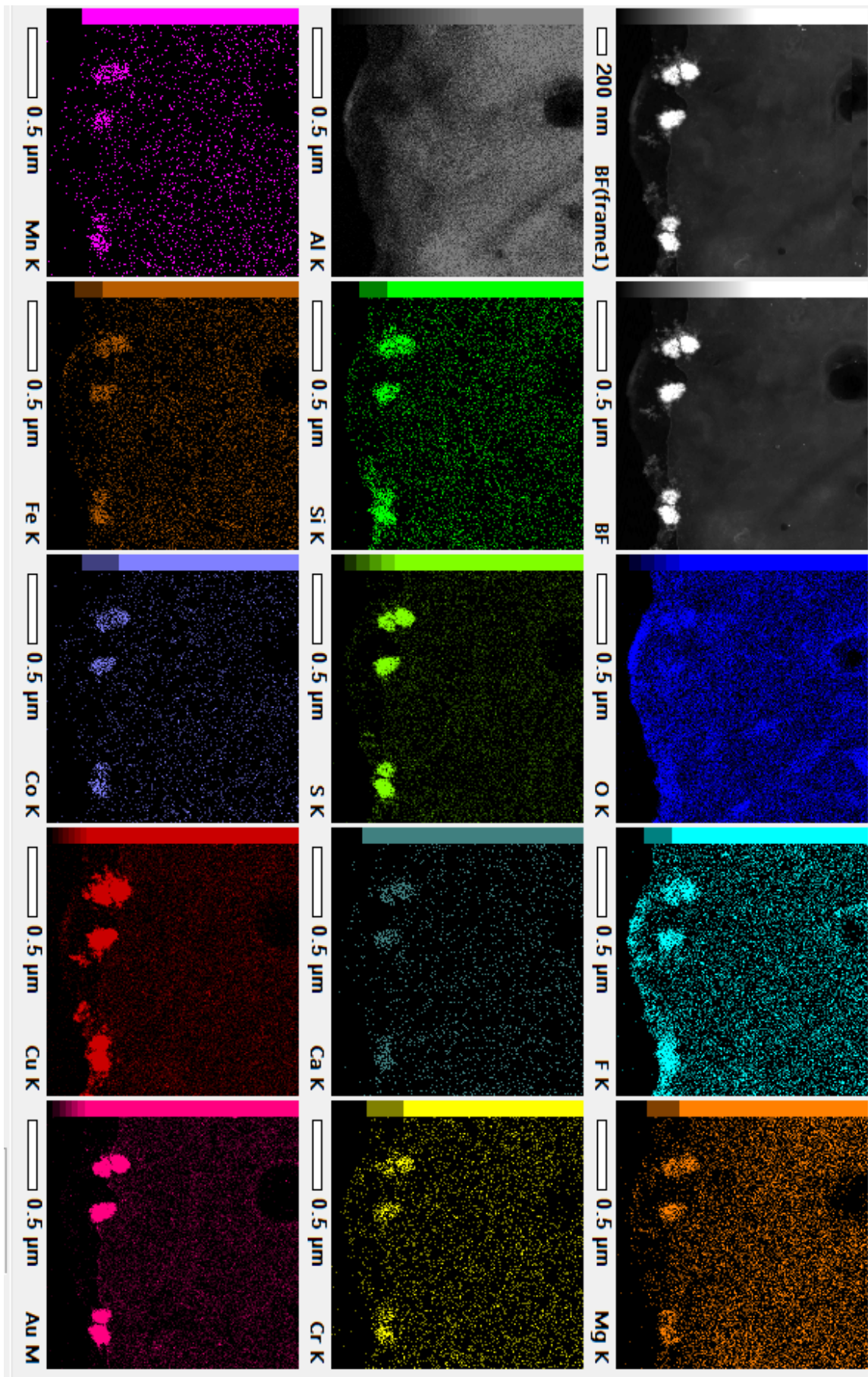
Les échantillons dont le nom se termine par « E » sont trempés eau. Ceux se terminant par « H » sont trempés huile





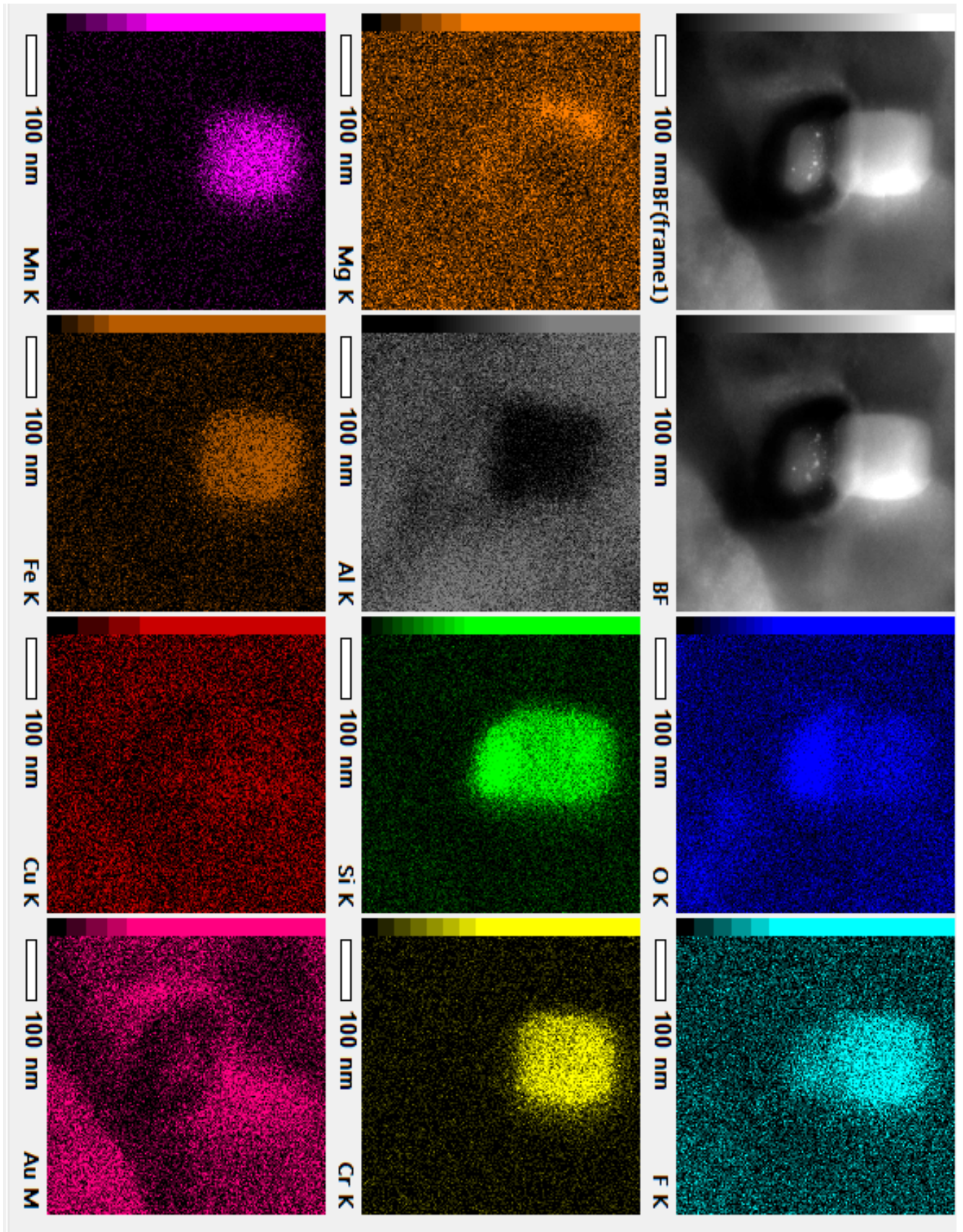
Annexe I : Spectre EDS sur des amas en trempe eau

Complément de la figure 7 du chapitre 4



Annexe J : Spectre EDS sur des amas en trempe huile

Complément de la figure 12 du chapitre 4



Annexe K : Spectre EDS sur la trempe air

Complément de la figure 18 du chapitre 4

