



Thèse préparée et soutenue publiquement par

Hadrien Leguy

Soutenue le 09/02/2026,

Pour obtenir le grade de Docteur en

Chimie des matériaux

CARACTERISATION DU GONFLEMENT SOUS IRRADIATION AUX IONS DE L'ACIER AUSTENITIQUE 321 APRES DIFFERENTS TRAITEMENTS THERMOMECANIQUES

Jury :

Mme Ingrid PRORIOI-SERRE , Directrice de recherche	Université de Lille	Présidente du jury
Mme Marie-France BARTHE , Directrice de recherche	CNRS Orléans	Rapporteure
Mme Nathalie MONCOFFRE , Directrice de recherche	Université Lyon 1	Rapporteure
M. Bertrand RADIGUET , Maître de conférences	Université de Rouen	Examineur
Mme Marie-Laure DAVID , Professeure	Université de Poitiers	Examinatrice
M. Alexandre LEGRIS , Professeur	Université de Lille	Directeur de thèse
M. Olivier TISSOT , Docteur	CEA Saclay	Encadrant
M. Yann DE CARLAN , HDR	CEA Saclay	Encadrant

Résumé : Caractérisation du gonflement sous irradiation aux ions de l'acier austénitique 321 après différents traitements thermomécaniques

L'urgence écologique impose le développement de nouvelles infrastructures de production électrique. Parmi les solutions envisagées, la production nucléaire dispose de nombreux atouts, mais également de certains inconvénients, en particulier la fermeture du cycle de combustible nucléaire pour ne plus dépendre de l'approvisionnement en matière fissile et la production d'éléments radioactifs à très longue durée de vie qui ne peuvent pas être résolus par les réacteurs de deuxième et troisième génération. Pour y remédier, une solution serait le développement de réacteurs à neutrons rapides (RNR), en particulier les RNR à caloporteur sodium (RNR-Na). Ces réacteurs novateurs imposent cependant des contraintes importantes en ce qui concerne les matériaux de cœur, notamment pour les matériaux des gaines de combustible. Les aciers austénitiques, tels que l'AIM1 (développé au CEA), sont de bons candidats pour répondre à ces problématiques, mais finissent par gonfler lorsque le dommage d'irradiation est important. L'objectif de cette thèse est de participer au développement d'une nuance AIM2, plus résistante au gonflement sous irradiation. La présente étude s'attache plus particulièrement à évaluer l'effet de la microstructure sur la réponse au gonflement des aciers austénitiques.

Faute de pouvoir utiliser un faisceau de neutrons pour irradier un acier de gaine, le choix a été fait de recourir aux irradiations aux ions afin de simuler le dommage neutronique. L'AIM1 est une nuance qui est peu sensible à l'irradiation aux ions comme le montrent les travaux de thèse de Mikael Kountchou [1]. On peut envisager de chercher à optimiser directement sa microstructure mais les observations risquent d'être délicates à conduire. Nous avons sélectionné une autre nuance d'acier austénitique, qui gonfle plus facilement sous irradiation aux ions, et sur laquelle différents traitements thermomécaniques sont conduits pour rechercher une optimisation. Le but était de pouvoir transférer à la nuance AIM1 les optimisations réalisées. La nuance qui a été retenue est l'acier austénitique 321. Les différents échantillons d'alliage 321 ont été irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 550°C et 600°C. Une méthode innovante d'analyse d'image MEB de haute résolution par segmentation d'image et un algorithme Random Forest a été appliquée pour déterminer le gonflement des différents états métallurgiques. Il en ressort que certains traitements thermomécaniques sont efficaces dans la réduction du gonflement mais la quantification des effets s'est avérée délicate à réaliser dans la mesure où le gonflement de la nuance 321 a été assez faible (inférieur dans tous les cas à 2%), dans la gamme des doses d'irradiation atteintes (jusqu'à 200 dpa).

Les caractérisations au MEB, et au MET ont néanmoins permis de déterminer qualitativement les éléments de microstructure les plus intéressants pour la réduction du gonflement. Il apparaît que les échantillons qui ont été laminés puis recuits à 700°C pendant 30 min sont les seuls à présenter des carbures de titane nanométriques avant irradiation, ce qui ralentit le gonflement. D'autre part un échantillon fortement laminé (40%), a présenté un changement de microstructure important sous irradiation, associé à une transformation de phase ou à une potentielle recristallisation. L'ensemble des résultats obtenus sont analysés et discutés dans le but d'optimiser la microstructure des aciers austénitiques vis-à-vis du gonflement.

Mots-clés : Gonflement ; Irradiation ; Acier austénitique ; Traitements thermomécaniques ; MEB-IA ; Caractérisations microstructurales

Abstract : Characterization of swelling in austenitic 321 steel under ion beam irradiation following various thermomechanical treatments

The ecological emergency calls for the development of new electricity generation infrastructure. Among the solutions under consideration, nuclear power offers many advantages, but also certain drawbacks, particularly the need to close the nuclear fuel cycle to eliminate dependence on fissile material supplies and the production of very long-lived radioactive elements—issues that cannot be resolved by second- and third-generation reactors. To address this, one solution would be the development of fast neutron reactors (FNRs), particularly sodium-cooled fast neutron reactors (FNR-Na). However, these innovative reactors impose significant constraints regarding core materials, particularly for fuel cladding materials. Austenitic steels, such as AIM1 (developed at the CEA), are good candidates for addressing these issues, but eventually swell when irradiation damage is significant. The objective of this thesis is to contribute to the development of an AIM2 grade that is more resistant to swelling under irradiation. This study focuses specifically on evaluating the effect of microstructure on the swelling response of austenitic steels.

Since it was not possible to use a neutron beam to irradiate cladding steel, the decision was made to use ion irradiation to simulate neutron damage. AIM1 is a steel grade that is not very sensitive to ion irradiation, as demonstrated in Mikael Kountchou's doctoral thesis [1]. One could consider attempting to optimize its microstructure directly, but the observations would likely be difficult to conduct. We selected another grade of austenitic steel, which swells more readily under ion irradiation, and on which various thermomechanical treatments are performed to seek optimization. The goal was to be able to transfer the optimizations achieved to the AIM1 grade. The grade selected was austenitic steel 321. Various samples of the 321 alloy were irradiated with Fe^{5+} ions at 5 MeV, at 550°C and 600°C. An innovative method of high-resolution SEM image analysis using image segmentation and a Random Forest algorithm was applied to determine the swelling of the different metallurgical states. The results show that certain thermomechanical treatments are effective in reducing swelling, but quantifying the effects proved difficult to achieve since the swelling of grade 321 was quite low (less than 2% in all cases) within the range of irradiation doses reached (up to 200 dpa).

SEM and TEM characterizations nevertheless made it possible to qualitatively identify the microstructural features most relevant to swelling reduction. It appears that the samples that were rolled and then annealed at 700°C for 30 minutes are the only ones to exhibit nanoscale titanium carbides prior to irradiation, which slows down swelling. Furthermore, a heavily rolled sample (40%) exhibited a significant change in microstructure under irradiation, associated with a phase transformation or potential recrystallization. All the results obtained are analyzed and discussed with the aim of optimizing the microstructure of austenitic steels with respect to swelling.

Keywords: Swelling; Irradiation; Austenitic steel; Thermomechanical treatments; SEM-AI; Microstructural characterization

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au sein du Laboratoire d'Analyse Microstructurale des Matériaux du CEA Saclay et cette page est l'occasion de remercier le CEA et les responsables hiérarchiques de m'avoir fait confiance pour ce projet et de m'avoir donné les moyens pour conduire ces travaux de recherche sur les aciers austénitiques.

Je tiens à remercier les membres du jury, Mme David, M. Radiguet, et Mme Proriot-Serre, pour leurs questions et les échanges que nous avons eu. Je tiens à remercier tout particulièrement Mme Moncoffre et Mme Barthe, qui ont accepté de rapporter mon manuscrit et qui m'ont prodigué de nombreux conseils pour son amélioration. Ce manuscrit leur doit beaucoup et je les remercie chaleureusement.

Je voudrais également remercier l'équipe qui m'a encadré au cours de la thèse. Tout d'abord Alexandre, mon directeur de thèse, tu nous as souvent éclairé de ton expertise sur les irradiations, et tu as su nous sortir de l'ornière plus d'une fois. Olivier, ensuite, je tiens à te remercier pour ton encadrement et ton soutien tout au long de la thèse ; je sais qu'elle a pris du temps, mais on en est venu à bout. Yann enfin, pour tous tes conseils, tes encouragements lors des moments de creux, et les discussions qu'on a pu avoir sur la thèse comme sur d'autres sujets. Je serai prêt pour le Vendée Globe 2028 si tu veux ta revanche sur Virtual Regatta. Arnaud Courcelle tient aussi une belle place dans ces remerciements, son expertise sur le comportement sous irradiation des aciers austénitiques a été particulièrement précieuse dans ce travail.

Je tiens aussi à remercier les ingénieurs et chercheurs du CEA qui m'ont fait bénéficier de leur expertises, l'équipe JANNuS qui a sacrifié des heures de sommeil pour cette fameuse campagne d'irradiation, et les techniciens, qui ont patiemment pris le temps de me former aux différentes techniques utiles pour ce travail.

En parlant d'eux je voudrais remercier les doctorants et ex-doctorants du SRMA, avec qui j'ai passé de très bons moments, au labo comme au bar comme en week-end doctorant. Je voudrais remercier plus particulièrement Azza, qui a su me remotiver pendant cette première année pleine d'interrogations, Emma avec qui nos rédac'dates furent une parenthèse enchantée lors de la rédaction en troisième année et mon inénarrable cobureau, mon cher Paulo, avec qui on a bien rigolé.

Je voudrais aussi remercier mon Papi qui a fait le déplacement depuis le nord pour venir m'écouter ainsi que toute la famille qui est venue et cela m'a beaucoup touché. Merci à vous Papa, Maman, Maman, et Victor pour votre soutien pendant toutes ces années.

Je voudrais remercier ma deuxième petite famille mes colocs, avec qui je vis depuis 5 ans. Même s'ils ne font pas la différence entre une éponge et une lavette, ils ne m'en ont presque pas voulu de faire du bruit tous les jours à 6h du matin quand je devais me lever pour aller à Saclay.

Je tenais à vous remercier, vous tous que je connais depuis toutes ces années, qui m'avez soutenu et qui avez pris de votre temps pour que ce travail aboutisse.

CARACTERISATION DU GONFLEMENT SOUS IRRADIATION AUX IONS DE L'ACIER AUSTENITIQUE 321 APRES DIFFERENTS TRAITEMENTS THERMOMECHANIQUES.....	1
Introduction : Contexte relatif au développement des réacteurs de 4^{ème} génération	9
Chapitre 1 : Les aciers austénitiques comme gainage dans les RNR-Na	15
1.1 Les aciers de gaines de combustible dans les RNR-Na	15
1.1.1 Définition des aciers inoxydables	15
1.1.2 Description chimique des aciers austénitiques	17
1.1.2.1 Chrome et nickel.....	18
1.1.2.2 Eléments d'alliage minoritaires.....	19
1.1.3 Microstructures des aciers austénitiques issues des traitements thermomécaniques	20
1.1.3.1 Mise en solution.....	21
1.1.3.2 Obtention de la microstructure de dislocations	21
1.1.3.3 Contrôle de la précipitation	23
1.2 La problématique du gonflement dans les aciers de gaines	26
1.2.1 Comportement du gainage lors de l'irradiation aux neutrons.....	26
1.2.1.1 Mécanisme simplifié	26
1.2.1.2 Précisions sur la formation des défauts par cascade de déplacements	27
1.2.1.3 Maîtrise du gonflement par les éléments de la microstructure	29
1.2.2 Amélioration de la résistance au gonflement : présentation de l'AIM1	32
1.2.3 Approximation de l'irradiation aux neutrons par l'irradiation aux ions	33
1.2.4 Influence des conditions expérimentales de l'irradiation aux ions sur le gonflement....	35
1.2.5 Sélection d'un acier inoxydable austénitique sensible au gonflement sous irradiation aux ions.....	37
1.2.5.1 Composition chimique	37
1.2.5.2 Choix d'une nuance sensible au gonflement sous irradiation aux ions.....	41
1.3 Conclusion	45
Chapitre 2 : Elaboration d'une démarche expérimentale visant à caractériser le gonflement pour différents états métallurgiques de l'acier 321	47
2.1 Introduction	47
2.2 Détermination des paramètres de traitements thermomécaniques précédant l'irradiation de l'alliage 321	48
2.2.1 Vérification de la composition chimique	48
2.2.2 Traitements thermomécaniques	48
2.2.3 Sélection et préparation des échantillons.....	50
2.3 Campagnes d'irradiation.....	53
2.3.1 Paramètres des campagnes d'irradiation pour obtenir un dommage supérieur à 150 dpa	53
2.3.2 Préparation des échantillons pour les observations au MEB et au MET	55
2.4 Conclusion	57
Chapitre 3 : Caractérisations microstructurales de l'alliage 321 traité thermomécaniquement non-irradié et irradié.....	58
3.1 Introduction	58

3.2	Caractérisation métallographique des états métallurgiques non-irradiés	59
3.2.1	Métallographie	59
3.2.2	Microdureté	61
3.2.3	Ferritométrie	62
3.2.4	Caractérisation de la nano-précipitation par Diffusion des Rayons X aux Petits Angles 63	
3.2.5	Caractérisation de la solution solide par mesure du Pouvoir ThermoElectrique	66
3.3	Evolution des microstructures suite à l'irradiation (MEB, MET, SAT)	68
3.3.1	Présentation des techniques de microscopie électronique utilisées pour caractériser l'évolution de la microstructure des échantillons d'acier 321 lors de l'irradiation	68
3.3.1.1	MEB	68
3.3.1.2	MET	69
3.3.2	Caractérisation des échantillons irradiés aux ions Fe ⁵⁺ , 5 MeV en imagerie MEB-SE .	70
3.3.3	Caractérisation des échantillons en imagerie MEB-EBSD	73
3.3.3.1	Caractérisation des échantillons non-irradiés	74
3.3.3.2	Caractérisation des échantillons irradiés	76
3.3.3.3	Caractérisation des phases dans les échantillons non-irradiés	79
3.3.3.4	Caractérisation des phases dans les échantillons irradiés	80
3.3.4	Nano-précipitation des TiC	85
3.3.4.1	Caractérisation des échantillons non-irradiés	85
3.3.4.2	Caractérisation des échantillons irradiés	86
3.3.5	Solution solide pour les états irradiés aux ions Fe ⁵⁺ , 5 MeV, à 600°C	91
3.4	Conclusion	95
Chapitre 4 : Caractérisation du gonflement dans l'alliage 321 irradié aux ions Fe⁵⁺ à 550°C et 600°C		96
4.1	Introduction	96
4.2	Présentation de la méthode MEB-IA pour caractériser le gonflement	96
4.2.1	Déduire les caractéristiques d'une population de sphères à partir de leur intersection avec un plan grâce à la stéréologie	97
4.2.2	Passer d'une image 2D à un gonflement 3D : Application de la stéréologie à l'étude de l'alliage 321 irradié aux ions Fe ⁵⁺	99
4.2.3	Limites de la méthode	106
4.3	Evaluation du dommage caractérisé par la méthode MEB-IA pour la gamme d'états métallurgique étudiée	107
4.3.1	Résultats des calculs de gonflement	107
4.3.2	Comparaison avec la littérature	107
4.3.3	Influence des microstructures sur le gonflement	109
4.3.3.1	Précipitation	109
4.3.3.2	Cas des échantillons 700A et 700B, irradiés à 600°C (Fe ⁵⁺ , 5 MeV)	109
4.3.3.3	Solution solide	109
4.4	Conclusion	111
CONCLUSION		113
BIBLIOGRAPHIE		115

ANNEXE 1	123
ANNEXE 2	137
ANNEXE 3	140

Introduction : Contexte relatif au développement des réacteurs de 4^{ème} génération

L'année 2023 a été annoncée comme l'année la plus chaude jamais enregistrée par les relevés météorologiques, avec un réchauffement moyen de 1,45°C par rapport à la moyenne préindustrielle 1850-1900 [2]. Un an plus tard, l'année 2024 dépasse ce record avec une température moyenne de 15,1°C, dépassant, sur l'année, les 1,5°C de réchauffement préconisés par l'Accord de Paris de 2015 [3]. Ce contexte de réchauffement climatique dans lequel nous évoluons aujourd'hui montre le besoin de réaliser une transition vers un modèle de société plus sobre, plus résilient, et dont la production d'énergie est « décarbonée » [4].

Au niveau international, la première activité émettrice de gaz à effet de serre est celle de l'énergie, parce que celle-ci repose en grande partie sur la combustion d'énergies fossiles pour le chauffage et la génération d'énergie électrique [5]. Concernant cette dernière, d'autres sources d'énergie peu émettrices sont envisageables. Parmi elles, les énergies renouvelables (solaire thermique et photovoltaïque, éolien terrestre et off-shore, hydroélectricité, ...) ainsi que l'énergie nucléaire. Les rapports de RTE [6], de l'ADEME [7], entre autres, indiquent plusieurs scénarii de référence selon lesquels, outre la sobriété des usages, il faudrait utiliser la génération d'énergie électrique par des moyens bas-carbone pour supplanter la génération d'énergie d'origine fossile.

Bien que son bouquet énergétique soit encore aux deux tiers fossiles, la France produit l'essentiel de sa consommation électrique par des sources d'énergie non-fossile [8]. Les trois quarts de cette production sont assurés par de l'énergie nucléaire, le reste étant assuré essentiellement par des énergies renouvelables, pour une intensité carbone de 11g/kWh [9]. Or cette production électrique est amenée à augmenter afin de représenter 55 % du bouquet énergétique français à horizon 2050 [10]. Pour ce faire, le développement de nouveaux réacteurs nucléaires est un enjeu fort.

Le parc nucléaire français doit relever plusieurs défis. Il est nécessaire d'assurer la continuité de la production électrique, dans le cas où les réacteurs les plus anciens seraient déclassés. De plus, bien que les combustibles usés issus des centrales actuelles soient en partie réutilisés pour faire du MOX (Mixed Oxide, combustible fait à partir d'oxyde d'uranium UOX et d'oxyde de plutonium produit lors des réactions nucléaires en réacteur), il serait préférable de réutiliser plus efficacement ce combustible en mettant en place la fermeture du cycle du combustible.

Afin de réduire notre dépendance aux énergies fossiles et de lutter contre le réchauffement climatique, un plan de relance du nucléaire a été annoncé en France en 2025. Il permet d'envisager le renouvellement des réacteurs nucléaires ainsi que le développement de start-ups du nucléaire qui proposent différents designs de réacteur. Certaines de ces dernières, s'appuient sur le retour d'expérience important sur les réacteurs de 4^{ème} génération [11]. Parmi ces réacteurs, certains permettent une utilisation optimale de la ressource uranium (fermeture du cycle), il s'agit des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) qui utilisent non seulement l'uranium 235 (fissile, donc produisant directement de l'énergie) mais aussi l'isotope 238 (fertile soumis à un flux de neutrons rapides, donc pouvant être transmuté en un noyau fissile de plutonium 239). De ce fait, contrairement aux réacteurs de générations précédentes, dans lesquels les neutrons sont dits « thermiques », qui n'utilisent que l'uranium 235 (soit 0,7% de la matière première), les RNR permettent en principe l'utilisation de plus de 80% de la ressource en uranium.

Ce design de réacteur présente de nombreux avantages. Aujourd'hui, l'utilisation de neutrons rapides permet l'exploitation de réacteurs isotogénérateurs en combustible ou « brûleur » d'actinides en produisant la transmutation des éléments radioactifs à longue durée de vie issus des réacteurs de 3^{ème} génération. Ces différentes fonctions permettent à la fois d'allonger la durée des réserves d'uranium sur le sol français et de réduire l'empreinte radioactive des réacteurs actuels.

La Figure 1 présente le schéma de fonctionnement d'un des modèles de RNR les plus aboutis, le RNR à caloporteur sodium ou RNR-Na (en anglais SFR : Sodium-cooled Fast Reactor) [12]. Des réacteurs démonstrateurs de ce type ont déjà été construits en France, notamment PHENIX et SUPERPHENIX ce qui a permis un important retour d'expérience.

Dans ces réacteurs, le sodium a notamment pour fonction de transmettre la chaleur produite dans le cœur (encadré en rouge) vers les échangeurs thermiques afin d'évaporer de l'eau et de faire fonctionner les turbines génératrices d'électricité. Il présente l'avantage de peu modérer les neutrons, c'est-à-dire que ceux-ci restent « rapides ». Cependant, les conditions d'utilisation de ce type de réacteur demandent des matériaux très performants, notamment sur les problématiques de fluage à haute température, de corrosion et de tenue à l'irradiation [13].

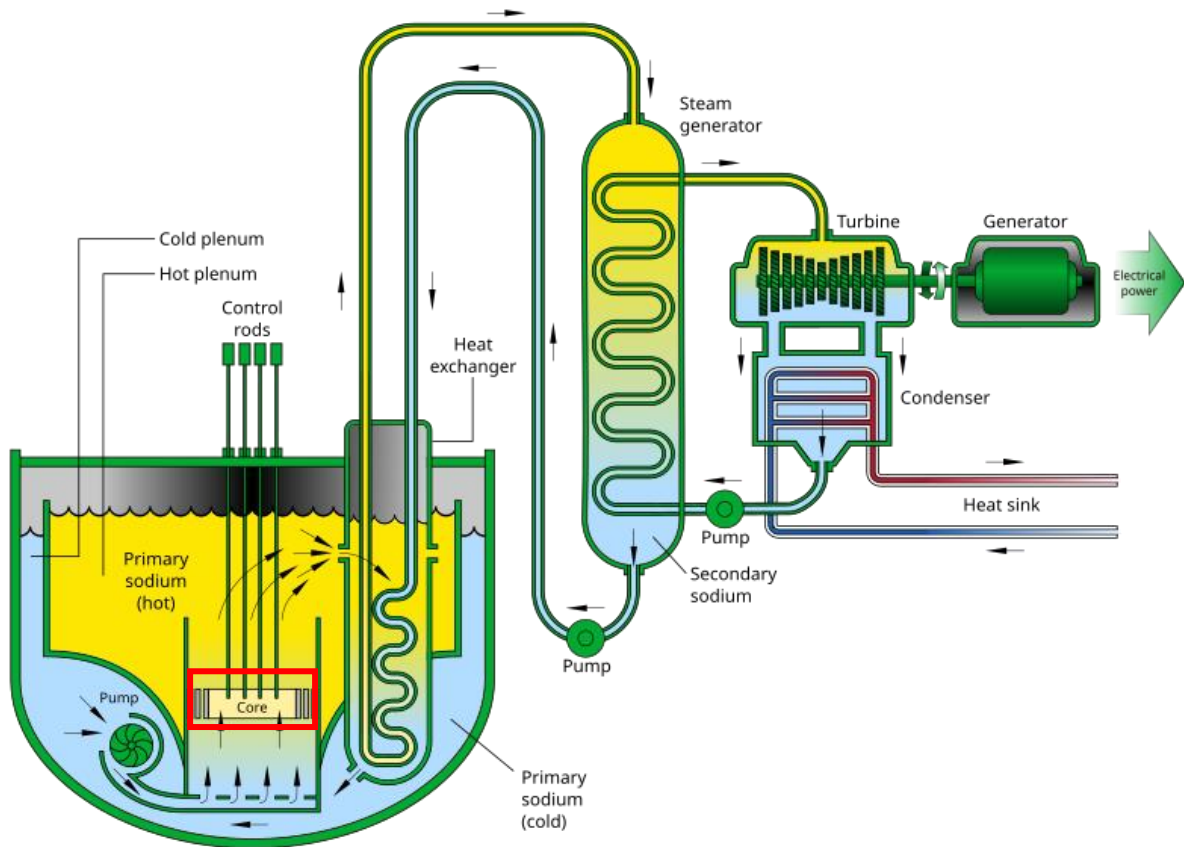


Figure 1 : Schéma d'un réacteur à Neutrons Rapides à caloporteur sodium [12]

Lors de l'exposition à l'irradiation par les neutrons les aciers austénitiques constituant les gaines du combustible nucléaire ont tendance à gonfler (augmentation isotrope du volume). Les premières observations de ce phénomène remontent aux années 1960, lors des premiers tests de réacteurs à neutrons rapides. La Figure 2 présente une image obtenue au Microscope Electronique en Transmission (MET) d'un échantillon issu d'une gaine de combustible en acier 316 [14]. Une population de cavités y est observée en contraste clair.

Ce phénomène s'explique notamment par la création de lacunes au sein de la matrice, engendrées par les chocs balistiques. Ces lacunes en se regroupant peuvent provoquer l'apparition de multiples cavités. Le gonflement détériore les propriétés du matériau (déformation, fragilisation, génération de contraintes, corrosion à l'interface oxyde-gaine). Pour pallier à ce phénomène, divers alliages métalliques ont été développés comme par exemple les aciers austénitiques 316 renforcés au titane, les aciers ODS (Oxide Dispersed Strengthened), ou encore les nuances austénitiques 15/15Ti (Fe 15Cr 15 Ni, renforcés au titane). Les compositions chimiques de ces aciers, ainsi que leurs microstructures, limitent le gonflement causé par l'irradiation ce qui leur assure une meilleure durabilité en réacteur [15].

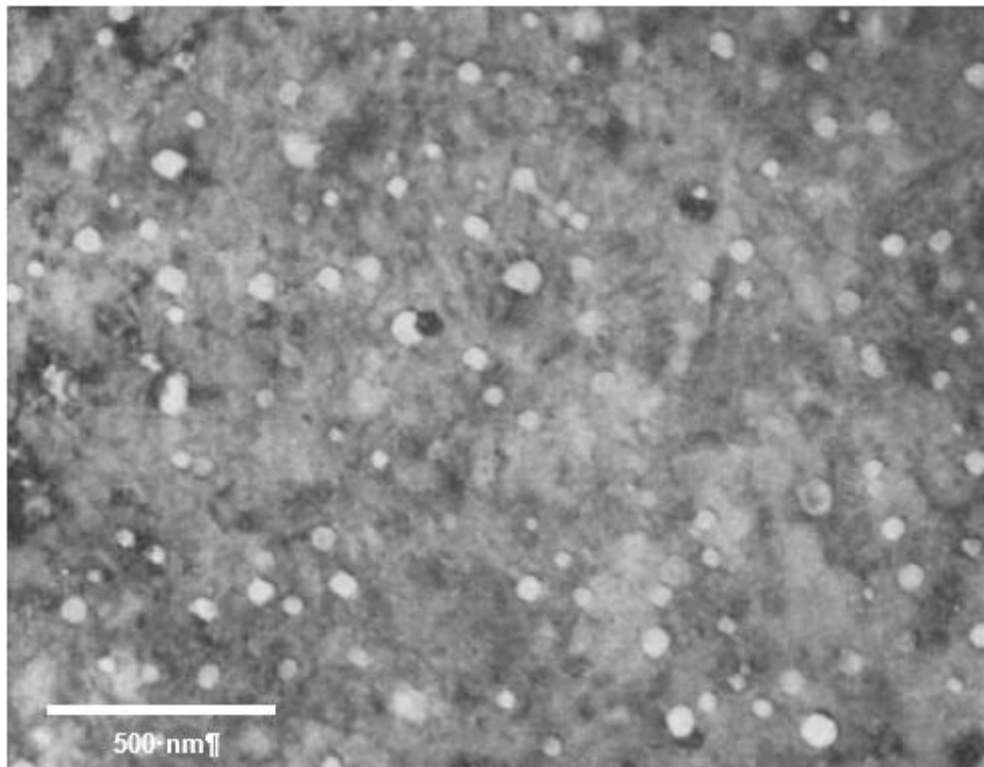


Figure 2 : Micrographie MET d'une gaine en acier 316 irradiée à 510°C aux neutrons (fluence de $4,7 \cdot 10^{22} \text{ n.cm}^{-2}$) [14]

La Figure 3, présente le gonflement macroscopique de gaines en acier 316 après exposition à l'irradiation par des neutrons rapides dans un cœur de réacteur [16], [17]. Parmi les aciers austénitiques 15/15Ti, conçus pour retarder le phénomène de gonflement, on compte la spécification actuelle AIM1, utilisée notamment dans les réacteurs Phénix et Superphénix, et qui est actuellement la spécification la plus aboutie. Sa spécification permet d'avoir un gonflement inférieur à 6% pour des doses proches de 100 dpa aux neutrons. Pour des doses allant de 152 à 171 dpa (déplacements par atome) aux ions Fe^{2+} , 2 MeV, Baptiste Rouxel obtient un gonflement de 6%, au pic de gonflement, sur une nuance hypereutectique puis revenue à 800°C pendant 24h. Pour des nuances plus optimisées au niveau de la microstructure, le gonflement est systématiquement inférieur à 2,6% [18]. Cependant, il apparaît nécessaire d'innover pour augmenter la dose que peuvent supporter les matériaux de gaine en acier austénitique. Le gonflement des gaines limitant le taux de combustion dans le réacteur, les solutions possibles pour résoudre ce problème sont d'utiliser des gaines en acier ferritiques ODS (très résistant aux dégâts d'irradiation jusqu'à 200 dpa, mais dont la fabrication est complexe), ou bien d'améliorer la résistance des aciers austénitiques avancés [19]. C'est dans ce cadre que s'inscrit la recherche sur une spécification AIM2 qui serait capable d'être utilisée typiquement entre 100 dpa et 150 dpa.

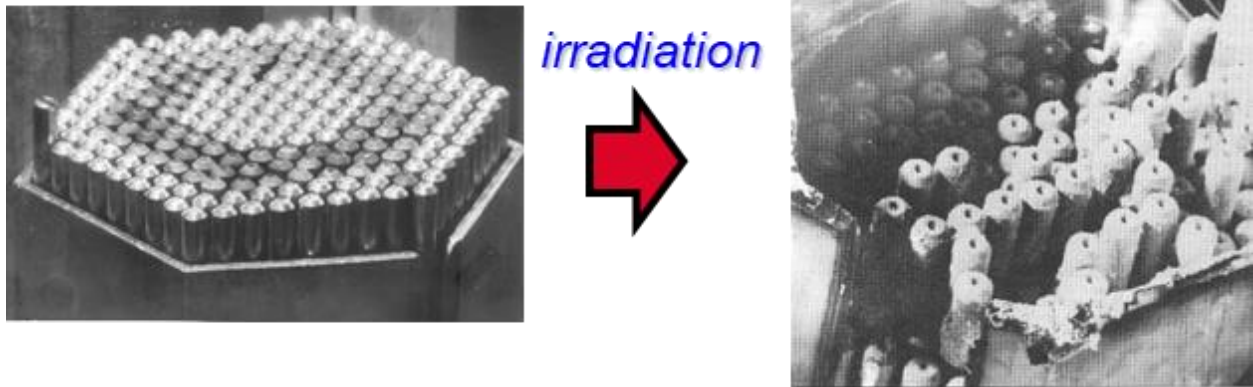


Figure 3 : Photo d'un assemblage de gaines en acier 316 déformées par l'irradiation dans le réacteur Phénix[16], [17]

L'analyse de la littérature montre que les éléments d'alliage majoritaires que sont le chrome et le nickel ont une grande influence sur la réponse du matériau à l'irradiation : plus la concentration en chrome est faible ou la concentration en nickel est élevée, moins le matériau a tendance à gonfler [20]. De plus, dans l'alliage 316 (17Cr 12Ni 2,5Mo) par exemple, des éléments d'addition comme le carbone ou l'azote permettent de réduire l'apparition de cavités [21], [22]. Dans le même alliage, il est d'ailleurs avéré que la présence de titane combinée à un écrouissage à froid a un effet favorable sur la résistance aux dommages d'irradiation [23].

Les paramètres de composition chimiques pour développer des aciers austénitiques résistants au gonflement ont notamment été étudiés par A. Vaugoude[24] et B. Rouxel [18], [25], dans le cadre de leurs thèses. Ceux-ci soulignent aussi l'influence des paramètres microstructuraux sur la résistance au gonflement, en particulier les paramètres liés à la densité de dislocations, à la composition de la solution solide, et l'état de la précipitation. Il convient de maîtriser ces éléments microstructuraux afin d'évaluer leurs effets sur le gonflement et proposer de nouvelles solutions.

L'alliage AIM1 gonfle très peu sous irradiation aux ions et il est très difficile de réaliser une optimisation de sa microstructure et de vérifier son influence directement à partir d'irradiations aux ions. Le but de cette étude est de considérer un matériau qui gonfle plus facilement lors d'irradiation aux ions (l'alliage austénitique 321 a été sélectionné pour cela), de réaliser des optimisations sur ce matériau et de vérifier si par irradiations aux ions ces optimisations fonctionnent pour éventuellement les transférer à l'AIM1.

Mon travail de recherche consiste, en partant d'une nuance de composition chimique donnée à faire varier les paramètres microstructuraux suite à des traitements thermomécaniques afin de pouvoir comparer leurs impacts respectifs sur le gonflement sous irradiation dans l'alliage austénitique 321. Le présent manuscrit s'articule autour de quatre chapitres.

Le premier chapitre est une revue de la bibliographie présentant les aciers inoxydables austénitiques utilisés comme gaines de combustible nucléaire ainsi que la problématique du gonflement lors de l'utilisation en réacteur de ces aciers. Est également présentée l'analyse ayant conduit à la sélection de la nuance 321 pour réaliser cette étude.

Le deuxième chapitre consiste en l'élaboration du plan expérimental : les traitements thermomécaniques appliqués à la nuance d'acier inoxydable austénitique d'intérêt sont explicités. Les campagnes d'irradiation réalisées sur les échantillons sont également présentées, de même que la préparation des échantillons en vue de leur caractérisation.

Le troisième chapitre s'attache à présenter les résultats de la caractérisation de la microstructure des échantillons non-irradiés et irradiés. L'objectif est d'identifier et de quantifier quand cela est possible les changements de microstructure induits par l'irradiation.

Le quatrième chapitre présente la méthodologie de caractérisation du gonflement, reposant sur l'acquisition de clichés de haute qualité au Microscope Electronique à Balayage. Les résultats obtenus sur les différents échantillons d'intérêt sont présentés, ainsi que le lien entre les différents éléments de microstructure et le gonflement. Il s'avère que la plupart des traitements thermomécaniques conduisent à des taux de gonflement inférieurs à 0,5 %, ce qui rend difficile la discrimination entre plusieurs traitements différents à l'issue de ce travail mais permet néanmoins d'identifier des tendances qualitatives.

La conclusion rappellera ces résultats et présentera les traitements thermomécaniques qui semblent optimaux ainsi que les perspectives visant à préciser l'influence de certaines caractéristiques microstructurales.

Chapitre 1 : Les aciers austénitiques comme gainage dans les RNR-Na

1.1 Les aciers de gaines de combustible dans les RNR-Na

Au sein des RNR-Na, les conditions particulières de température et d'exposition à l'irradiation neutronique imposent un cahier des charges exigeant. Il faut utiliser des matériaux capables de supporter des températures allant jusqu'à 650°C-700°C, capables de supporter un dommage d'irradiation en fin de vie de la gaine pouvant atteindre plus de 100 dpa [13]. Pour les gaines de combustible, il est nécessaire de respecter les préconisations suivantes :

- une faible section efficace d'absorption des neutrons pour entretenir la réaction,
- une bonne compatibilité avec le fluide caloporteur (sodium liquide) et le combustible (U-PuO₂),
- une capacité à supporter les étapes de retraitement du combustible,
- une faisabilité industrielle acquise,
- la possibilité d'assemblage avec d'autres matériaux [16].

Les aciers inoxydables austénitiques sont de bons candidats pour répondre à ces différentes contraintes. Leur composition chimique offre un bon compromis. Leur section efficace d'absorption (qui provoque des réactions nucléaires dans le matériau de gainage) et de choc élastique (qui modère les neutrons) sont relativement faibles. Par ailleurs leur caractère inoxydable ralentit leur corrosion externe par le sodium liquide [26] ainsi que la corrosion interne due au contact avec le combustible [27] et empêche leur dissolution par l'acide nitrique lors du retraitement [28].

1.1.1 Définition des aciers inoxydables

Les aciers sont définis par la norme AFNOR NF EN 10020 [29] comme étant des alliages de fer, contenant moins de 2% massique de carbone, et pouvant comporter d'autres éléments d'alliage. La figure 4 représente la configuration la plus simple à savoir le diagramme Fe-C (teneurs massiques) [30] ; au-delà de 2% en masse de carbone, on parle de fontes plutôt que d'aciers. Ces derniers sont classés en plusieurs catégories, selon leur structure cristalline.

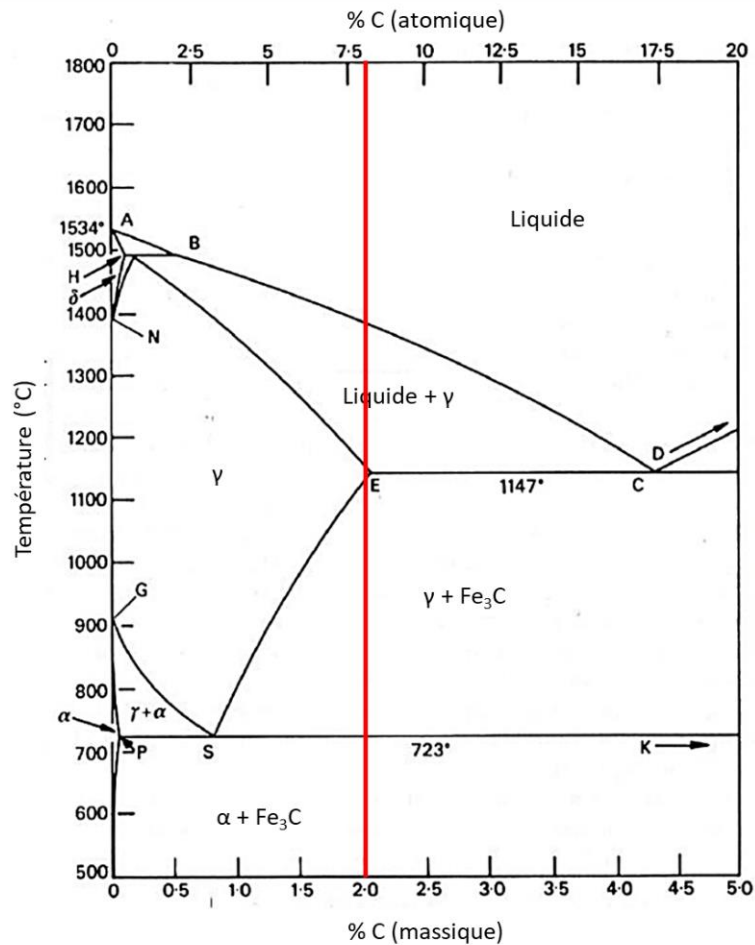


Figure 4 : Diagramme de phase Fe-C [30]

Toujours selon cette norme, on distingue plusieurs catégories au sein des aciers dont les aciers inoxydables. Pour répondre à l'appellation « acier inoxydable », le matériau doit posséder au minimum 10,5% massique de chrome, et au maximum 1,2% massique de carbone.

La Figure 5 présente le diagramme de phases du mélange Fe-Cr (teneurs massiques) [31], [32]. On y distingue plusieurs phases comme la phase α (ferrite, de structure cubique centrée ou cc), γ (austénite, de structure cubique à faces centrées ou cfc), ainsi que la phase cristallographique σ . En particulier la phase austénitique n'apparaît que pour des concentrations en Cr inférieures à 14% massique, et à des températures comprises entre 910°C et 1400°C. Les mailles élémentaires cubique centrée et cubique à faces centrées des phases α et γ respectivement sont également représentées sur le diagramme [33].

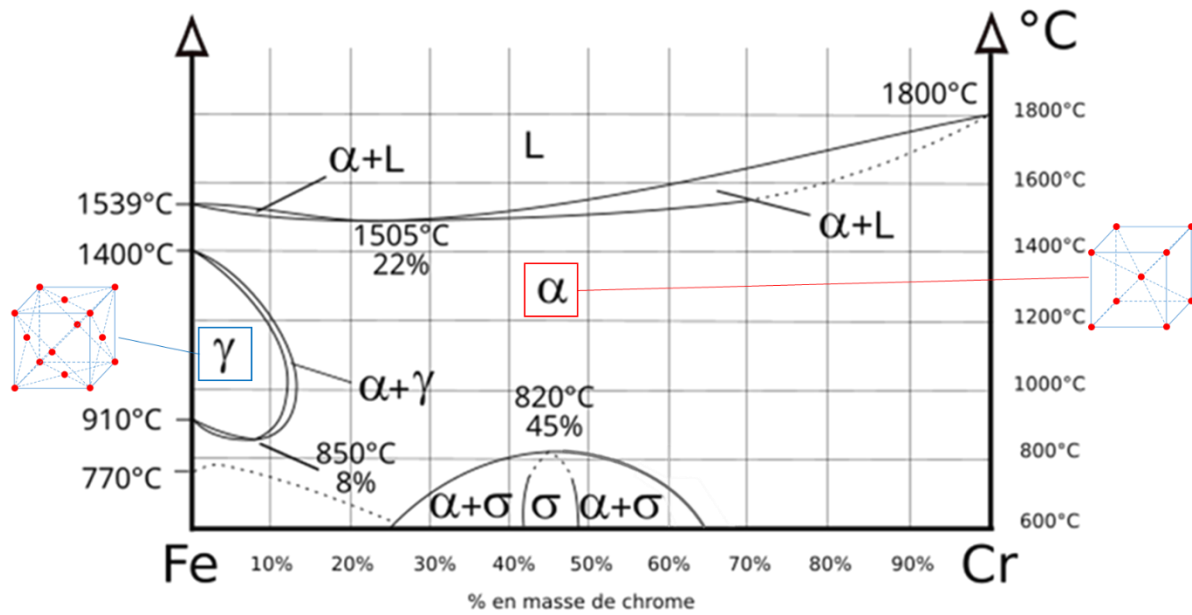


Figure 5 : Diagramme de phase Fe-Cr[31], [32], les structures cubique faces centrées et cubique centrée sont représentées pour les phases austénitique γ et ferritique α (d'après [33])

1.1.2 Description chimique des aciers austénitiques

Les éléments d'alliages ont une grande influence sur la microstructure des aciers inoxydables. On distingue classiquement les aciers ferritiques, et les aciers austénitiques, mais aussi les aciers martensitiques. La martensite est une phase métastable, caractérisée par une sursaturation du carbone en insertion dans une matrice ferritique. C'est une phase dure et fragile. A cela s'ajoutent d'autres structures plus complexes comme les aciers duplex (aciers biphasés austénite + ferrite), ainsi que différents autres aciers présentant plusieurs phases[32].

Les aciers austénitiques ont pour structure cristalline, l'austénite- γ , avec une maille cubique faces-centrées. Cette structure peut être obtenue par la chauffe d'un mélange Fe-C à moins de 2% massique de C pour que le matériau se retrouve dans le domaine de l'austénite typiquement à une température de l'ordre de 1000 °C (Figure 4). Si on trempe jusqu'à température ambiante, l'austénite va disparaître. La vitesse de trempe influence la microstructure et notamment la présence de ferrite, ou de martensite [34], [35]. La persistance de la structure cristalline austénitique après trempe ne peut être obtenue que si le matériau est chargé en éléments gammagènes qui vont être présentés ci-après.

1.1.2.1 Chrome et nickel

Le chrome est, pour les aciers inoxydables austénitiques de la série ASTM 300 le principal élément d'alliage après le fer. Le chrome donne à l'acier son caractère inoxydable puisqu'il permet la formation d'une couche passivante de chromite Cr_2O_3 , qui confère à l'acier sa résistance à la corrosion aqueuse[36] mais aussi dans d'autres milieux comme le Na liquide. Le chrome est cependant alphagène, c'est-à-dire qu'il favorise la structure ferritique.

Par compensation, le nickel est un élément gammagène, favorisant la structure austénitique. Le pouvoir gammagène du Ni est illustré Figure 6[37] qui montre que l'ajout de Ni augmente la taille du domaine austénitique. En présence de Ni il est possible de conserver la structure austénitique malgré de forts taux de Cr.

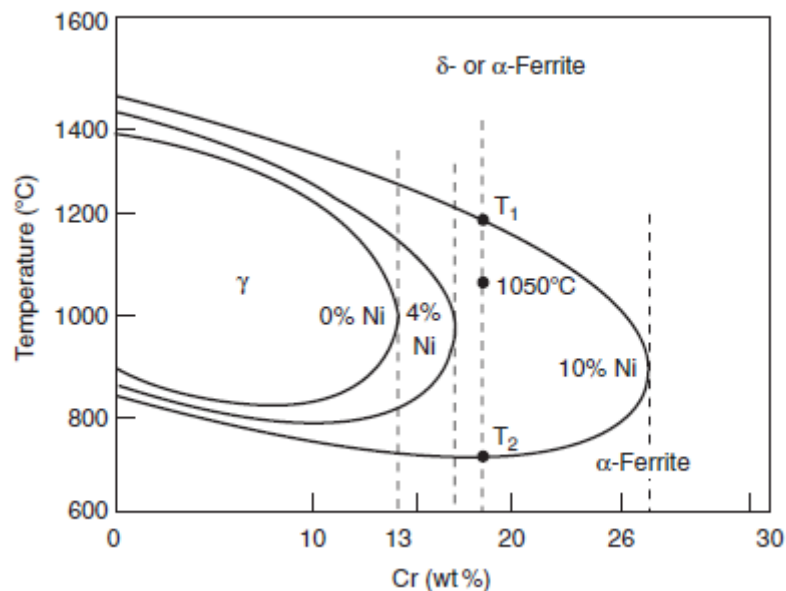


Figure 6 : Influence du Ni sur la boucle austénitique dans le diagramme Fe-Cr[37]

Ces deux éléments sont primordiaux pour assurer aux aciers austénitiques leurs propriétés mécaniques, de fluage en température, et de résistance à la corrosion supérieures à celles des aciers ferritiques et ferrito-martensitiques[38] : le chrome apporte le caractère inoxydable et le nickel permet de garder un matériau austénitique plus ductile et tenace qu'un matériau ferritique.

Les pourcentages en chrome et nickel sont variables selon les éléments d'addition ajoutés. Certains de ces éléments d'addition permettent la stabilisation de la phase austénitique comme le carbone ou le manganèse, d'autres de la phase ferritique comme le titane, le molybdène ou le silicium.

1.1.2.2 Eléments d'alliage minoritaires

Des éléments tels que le manganèse, le molybdène, le titane, le carbone ou l'azote, peuvent modifier la microstructure du matériau et influencer ses propriétés mécaniques.

La présence de carbone (Figure 7) ou d'azote (Figure 8) dans l'acier favorisent l'adoption de la structure austénitique [37], [39] : la boucle γ s'élargit à mesure que la teneur de ces deux éléments augmente. Outre cet effet stabilisateur de l'austénite, ces deux éléments interstitiels provoquent le durcissement de l'acier [40] par ancrage des dislocations. A cela s'ajoute le fait que ces deux éléments peuvent précipiter notamment avec le titane [41] : en épinglant les dislocations, ces précipités participent aussi au durcissement de l'acier [42].

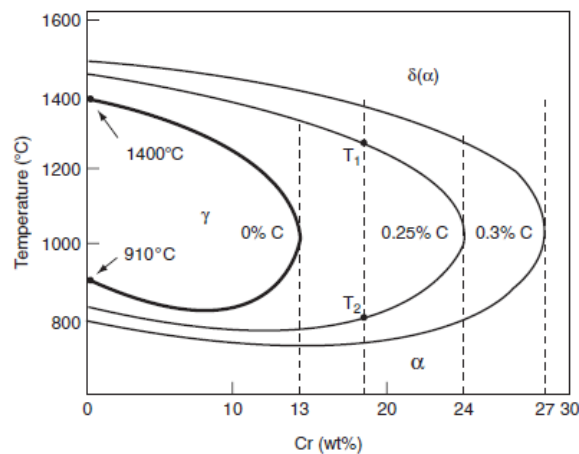


Figure 7 : Influence du C sur la boucle austénitique dans le diagramme Fe-Cr [37]

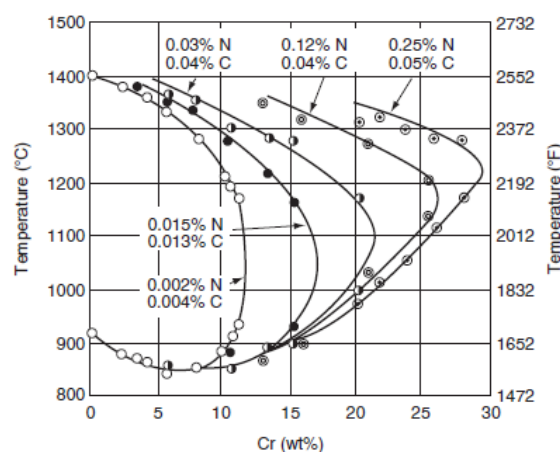


Figure 8 : Influence de N et de C + N sur la boucle austénitique dans le diagramme Fe-Cr [39]

D'autres éléments d'alliage favorisent en revanche la formation de ferrite, parmi lesquels le silicium ou le molybdène. Une manière de synthétiser l'influence de chaque

élément sur les phases présentes est l'utilisation d'un diagramme de Schaeffler. Ce type de diagramme est normalement utilisé dans le domaine du soudage des aciers pour déterminer la structure cristallographique de la soudure, à partir de la composition chimique. Dans le cas présent, le diagramme de Schaeffler [32] présenté en Figure 9 permet d'identifier les éléments alphagènes, gammagènes ainsi que le domaine d'existence, à température ambiante, des phases austénitiques, ferritiques, et martensitiques, selon la composition de l'acier.

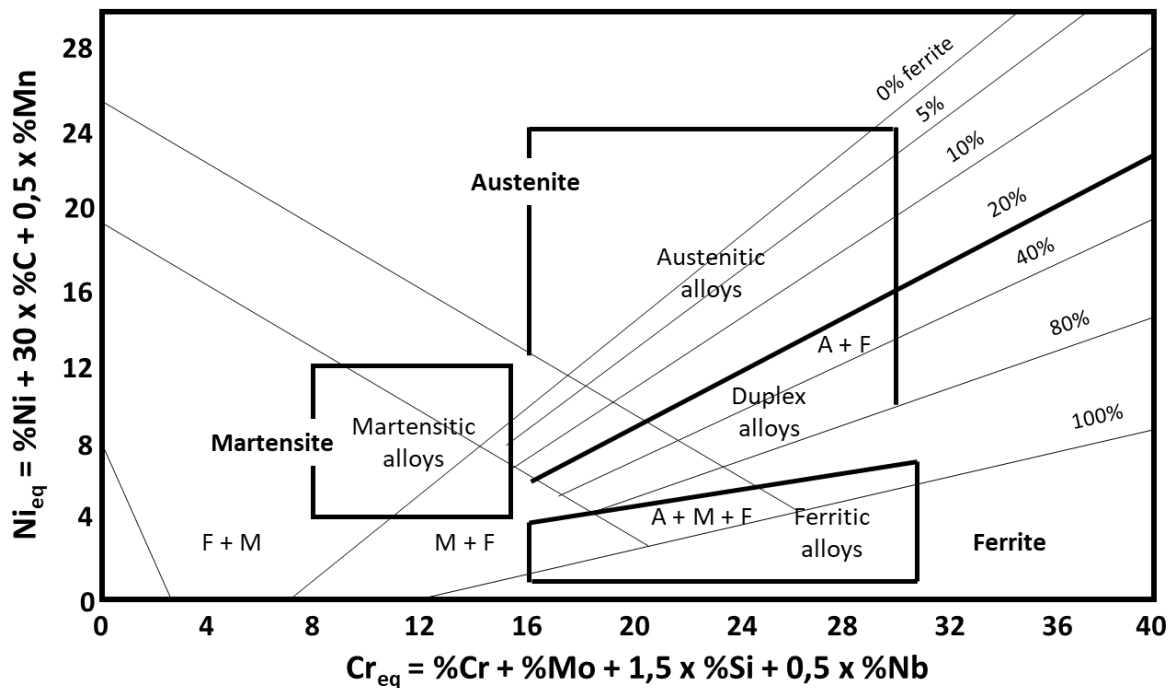


Figure 9 : Diagramme de Schaeffler des domaines de stabilité des aciers[32]

Lorsque la teneur en « équivalent Cr » augmente, la ferrite est stabilisée [43]. La phase ferritique, bien que résistante au gonflement possède des propriétés mécaniques moins intéressantes que celle de l'austénite. Pour empêcher la formation de cette phase, il est alors nécessaire de rajouter des éléments gammagènes (Ni, C ou Mn).

1.1.3 Microstructures des aciers austénitiques issues des traitements thermomécaniques

L'objectif de cette section est de présenter l'effet des traitements thermiques et mécaniques sur la microstructure d'un acier inoxydable austénitique stabilisé au titane. Les caractéristiques impactées par les traitements sont la taille de grains, la densité de dislocations, la précipitation, la présence d'éléments dans la solution solide ainsi que la présence de macles (définies ci-après). Certains éléments de microstructure ralentissent le gonflement et notamment la présence d'un réseau dense de dislocations [16], [44], [45], de Ti en solution solide [46], [47], [48] et des nano-précipités TiC [16], [49]. Différents types de traitements thermomécaniques ont été étudiés par Adrien Vaugoude et Baptiste Rouxel lors

de leurs thèses [18], [24]. Ils démarrent par un traitement de mise en solution à haute température suivie d'une hypertrempe, un laminage, et un traitement de recuit. Les sous-parties suivantes visent à présenter ces différents traitements et leurs rôles dans l'obtention d'une microstructure résistante au gonflement sous irradiation.

1.1.3.1 Mise en solution

Un recuit à haute température ($>1000^{\circ}\text{C}$ pour les aciers austénitiques [32]) permet la mise en solution des éléments d'addition. Par ailleurs, la plupart des précipités déjà présents dans le matériau sont alors dissous. Une hypertrempe à partir de la haute température consiste en l'abaissement rapide de la température de l'acier, et permet de conserver la solution solide ainsi que la microstructure austénitique à température ambiante. La température et le temps de recuit ont un impact fort sur l'état de précipitation [24], [50] post traitement.

1.1.3.2 Obtention de la microstructure de dislocations

La réalisation de traitements mécaniques a pour effet d'écrouir le matériau : la taille et l'orientation des grains sont affectées, et la densité de dislocations augmente ce qui provoque le durcissement du matériau.

La Figure 10 correspondant à l'austénite, présente un schéma d'une dislocation « parfaite », à gauche, et de dislocations « partielles », à droite [51]. La dislocation parfaite peut se traduire par la présence de deux demi-plans atomiques supplémentaires dans la succession de plans, ce qui ne change pas la suite d'empilement de plans ABCABC dans la direction perpendiculaire au plan de glissement dense. Les dislocations partielles résultent en revanche en une faute d'empilement dans la succession des plans denses.

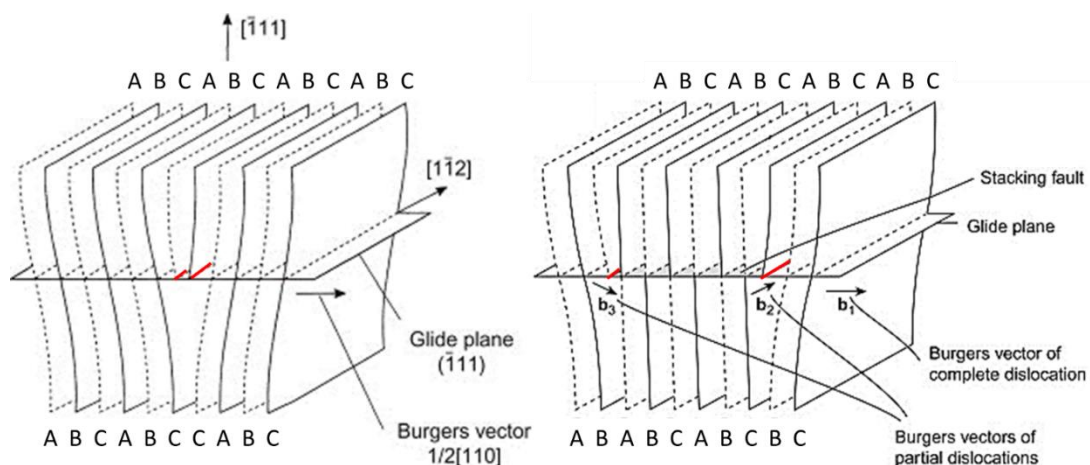


Figure 10 : Dislocation coin parfaite (à gauche) et partielle (à droite), représentées en rouge, dans un métal cfc, au sein d'un empilement de plans [51]

Dans les aciers austénitiques, la maille cfc ne permet que certains systèmes de glissement d'un plan par rapport à un autre. Ces systèmes ainsi que les dislocations associées sont connus. Les dislocations « parfaites » ont, en grande majorité, un vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{2} \langle 110 \rangle$. Les dislocations partielles peuvent quant à elles être de deux types, Shockley ($\vec{b} = \frac{1}{6} \langle 112 \rangle$) et Frank ($\vec{b} = \frac{1}{3} \langle 111 \rangle$), et la somme de deux dislocations partielles de Shockley ou d'une dislocation partielle de Shockley et une dislocation partielle de Frank donne une dislocation parfaite [51].

L'écroutissage (déformation plastique) à froid entraîne une multiplication des dislocations mais conduit également à l'apparition de macles mécaniques, des défauts d'empilement au sein du réseau cristallin [52] entraînant une déformation plastique, représentés sur la Figure 11 [53].

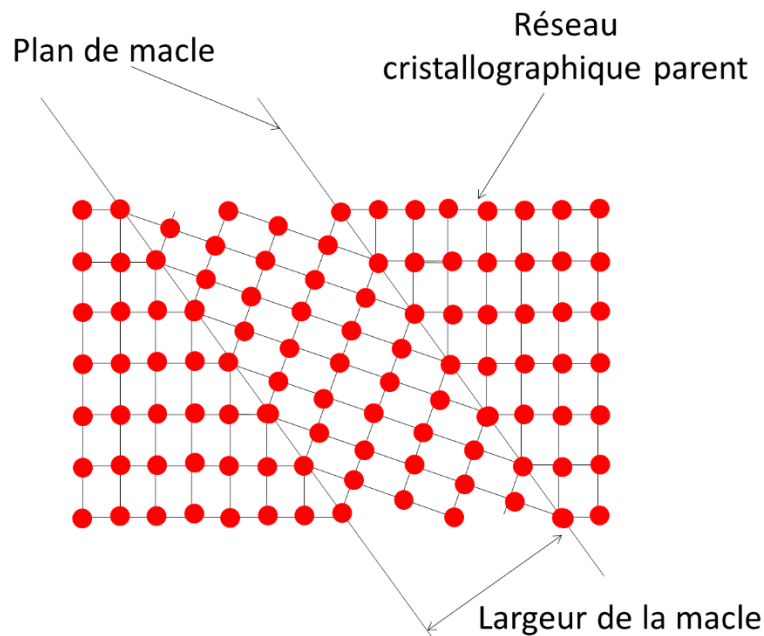


Figure 11: Macle au sein d'un réseau cristallographique d'après Balcaen [53]

Il est aussi important de noter que les traitements mécaniques de l'austénite, outre les dislocations et les macles, peuvent provoquer l'apparition de ferrite et de martensite dans le matériau [54], [55], [56], [57]. La formation de ces phases, de par leur dureté intrinsèque et le champ de déformation qu'elles occasionnent dans le matériau, a aussi comme conséquence le durcissement du matériau.

1.1.3.3 Contrôle de la précipitation

Après des recuits à haute température qui visent la mise en solution des éléments d'alliage, on procède à des recuits à plus faible température ($<1000^{\circ}\text{C}$), pour contrôler la formation de précipités. Les éléments de la solution solide diffusent au sein de la matrice pour former les précipités dont l'interaction avec les dislocations contribue au durcissement. Parmi ces précipités, on trouve des précipités micrométriques TiC , qui améliorent les performances en fluage et en corrosion des aciers austénitiques [58], ainsi que des TiC nanométriques. La composition et la taille de ces précipités dépendent non seulement du temps et de la température de recuit, mais aussi de l'état métallurgique avant le traitement. En particulier, en agissant comme sites de germination hétérogène, les dislocations créées par l'écrouissage permettent d'obtenir une fine précipitation de carbures de titane TiC et, consommant le carbone, évitent la précipitation de carbures de type M_{23}C_6 [59].

L'étude de la cinétique de précipitation des précipités de type MX a montré que ceux-ci précipitent au niveau des dislocations, plus particulièrement de Shockley [60], car la relaxation élastique et la dissociation en dislocations partielles contrebalancent l'augmentation d'énergie élastique due à la croissance du précipité [61].

Outre la nano-précipitation, des composés intermétalliques comme les phases sigma ou de Laves sont susceptibles d'apparaître lors des traitements thermiques [62].

AF. Padilha [54] met en évidence différents types de phases (précipités et intermétalliques) apparaissant dans les aciers austénitiques. Les phases présentes dans les aciers austénitiques stabilisés au titane sont répertoriées dans le Tableau 1, ainsi que certaines de leurs caractéristiques :

Tableau 1 : Précipités et phases apparaissant dans les aciers austénitiques inoxydables stabilisés au titane après traitements thermomécaniques d'après [54]

Précipité	Maille	Nombre d'atome par maille	Groupe d'espace	Paramètre de maille (nm)	Eléments
M₂₃C₆	cfc	116	Fm3m	a=1,057-1,068	Cr, Fe, Mo, Ni
MC	cfc	8	Fm3m	a=0,4131-0,4698	Ti, Nb, V, Zr
M₆C	cfc	112	Fd3m	a=1,085-1,128	Fe, Mo, Cr
M₇C₃	Pseudo hcc	40	Pnma	a=0,6928-0,6963 c=0,4511-0,4541	Cr, Fe
Phase	Maille	Nombre d'atome par maille	Groupe d'espace	Paramètre de maille	Eléments
σ	bct	30	P4 ₂ /mm	a= 0,87-0,92 c=0,45-0,48	(Fe, Ni) _x (Cr, Mo) _y
χ	cc	58	I43m	a=0,881-0,895	(Fe, Ni) ₃₆ Cr ₁₂ Mo ₁₀
Laves	hex	12	P6 ₃ /mmc	a=0,473-0,483 c=0,772-0,786	Fe ₂ Mo, Fe ₂ Nb, Fe ₂ Ta, Fe ₂ Ti, Fe ₂ W
G	cfc	116	Fd3m	a=1,115-1,120	(Ni, Fe, Cr) ₁₆ (Nb, Ti) ₆ Si ₇
γ'	cfc	4	Pm3m	a=0,3565-0,3601	(Ni, Co, Fe, Cr) ₃ (Al, Ti)

Les phases présentées influencent les propriétés du matériau. Il faut donc connaître précisément la microstructure avant le traitement, ainsi que les temps et températures de traitement, pour avoir un bon contrôle de la précipitation, et donc des propriétés de l'acier. Plusieurs paramètres permettent de caractériser la précipitation :

- La taille des précipités ;
- Leur fraction volumique ;
- Leur composition chimique ;
- Leurs paramètres cristallographiques ;
- Leur stabilité.

M. Chabaud-Reytier [63] observe que, pour la nuance d'acier 321, la finesse de la précipitation – à savoir la taille, le nombre et la fraction volumique de précipités – est fortement dépendante des temps et températures de recuit. A 650°C, plus le temps de recuit est long, plus le nombre de précipité diminue, mais la fraction volumique et le rayon des précipités augmentent. Il s'agit d'un processus classique de croissance et coalescence (Ostwald ripening). En comparant des traitements à 600°C et 650°C tous deux réalisés pendant 10 000h (un an), le nombre de précipités est plus élevé à 600°C, mais la fraction volumique et le rayon sont plus faibles qu'à 650°C.

L'étude de V. Moura et al. [64] montre que la précipitation des carbures de titane TiC dans l'acier 321 serait optimale pour des températures de recuit de l'ordre de 850°C à 950°C. Selon les auteurs, il apparaît qu'à des températures plus faibles on observe l'apparition de précipités de type $M_{23}C_6$, qui fragilisent le matériau [50], [65]. Il s'agit de précipités volumineux qui se forment aux joints de grains, mais aussi au niveau des macles (thermiques et mécaniques) et des dislocations. Cela pose problème puisqu'en précipitant aux joints de grains, la concentration en chrome diminue localement, favorisant ainsi la corrosion intergranulaire et fragilisant le matériau. Il est cependant possible de limiter la précipitation des $M_{23}C_6$ (M = Fe ou Cr) en ajoutant du titane, puisque celui-ci précipite avec le carbone pour former des MC (M = Ti) empêchant ainsi, par rationnement du carbone, la formation des carbures grossiers [66], [67].

C'est en fait la formation des précipités de type MC qui contribue de manière importante à la dureté du matériau, et améliore les performances en fluage de l'acier. Par ailleurs, en épinglant les dislocations elles ne peuvent plus s'éliminer sur les joints de grains ou à la surface du matériau : ils ont ainsi un rôle stabilisateur pour le réseau de dislocations, ce qui permet de limiter la restauration de celui-ci lors des traitements thermiques. L'épinglage des dislocations cause aussi le durcissement du matériau, puisqu'en empêchant le déplacement des dislocations, la déformation plastique est moins aisée. Les nano-précipités favorisent la diminution du gonflement sous irradiation, conjointement aux dislocations et au titane en solution solide.

1.2 La problématique du gonflement dans les aciers de gaines

1.2.1 Comportement du gainage lors de l'irradiation aux neutrons

1.2.1.1 Mécanisme simplifié

Le gonflement sous irradiation est provoqué par l'agglomération de lacunes qui sont produites par irradiation en quantités de plusieurs ordres de grandeur supérieures à celles correspondant à l'équilibre thermique. Schématiquement, les neutrons incidents induisent des collisions balistiques dans le matériau ce qui génère un surplus de défauts ponctuels. La plupart d'entre eux s'annihilent dans les puits de défauts, se recombinent entre eux (lacune-interstitiel) et les restants constituent des amas de lacunes d'un côté et d'interstitiels de l'autre qui croissent et deviennent respectivement des cavités et des boucles de dislocations.

Lorsqu'un matériau est irradié par un faisceau de neutrons, il se produit des interactions élastiques (chocs balistiques) et des interactions inélastiques (réactions nucléaires). Les interactions élastiques peuvent être assimilées à des chocs entre boules de billard (l'énergie cinétique mise en jeu – de l'ordre du MeV ou du keV- est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des liaisons chimiques – de l'ordre de l'eV). Les équations du mouvement permettent alors d'obtenir les trajectoires des deux particules (incidente et cible) après le choc [68]. La Figure 12 illustre cet événement : suite à l'impact, et si l'énergie est suffisante (si elle dépasse une énergie seuil de déplacement T_d définie ultérieurement), l'atome de la matrice est éjecté. Il y a ainsi création d'une lacune à l'emplacement d'origine de l'atome et d'un interstitiel là où il arrive.

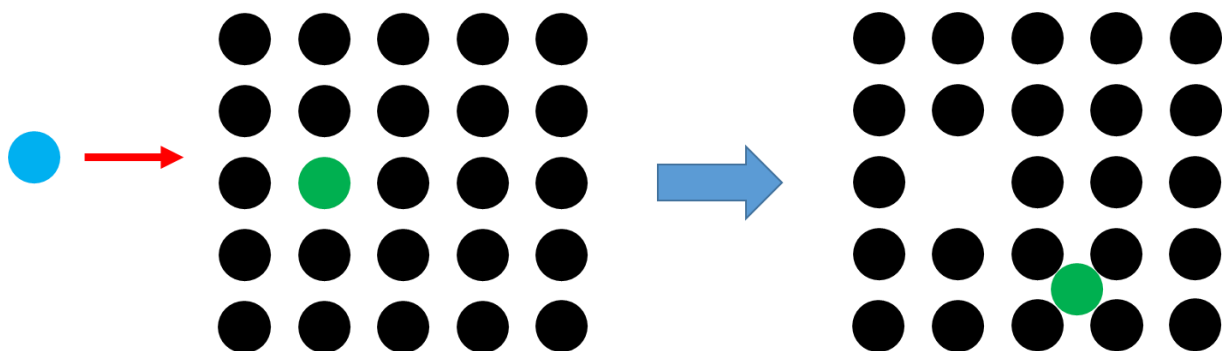
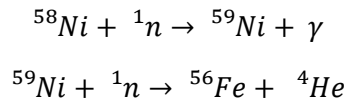


Figure 12 : La particule incidente (en bleu) provoque le déplacement d'un atome de la matrice (en vert), aboutissant à la formation d'une lacune et d'un interstitiel appelée paire de Frenkel.

Dans le cas des irradiations aux neutrons, les interactions inélastiques sont essentiellement des réactions nucléaires à l'issue desquelles il peut y avoir émission de photons (rayonnements γ) ou transmutations (changement de la nature des noyaux atomiques). Ces exemples sont illustrés par les réactions ci-après. Du fait de ces réactions nucléaires, il est alors possible que les atomes percutés libèrent, par exemple, de l'hélium dans la matrice.



L'hélium produit diffuse dans la matrice. Il est alors en mesure de favoriser le gonflement du matériau en se liant aux lacunes, favorisant la germination de cavités. De plus sa présence dans les cavités les stabilise en créant une pression interne qui constitue une force motrice pour leur croissance [69], [70].

1.2.1.2 Précisions sur la formation des défauts par cascade de déplacements

La formation de défauts est due aux déplacements des atomes sous l'effet de l'irradiation aux neutrons. Il est alors important de s'intéresser au PKA (Primary Knocked Atom, ou Premier Atome Frappé) qui est généré par la collision du neutron avec un atome du matériau. Si l'énergie transférée dépasse une énergie seuil (T_d), le neutron pourra déplacer l'atome, suite à quoi plusieurs événements sont possibles. En-dessous de ce seuil l'énergie transmise à l'atome va provoquer sa vibration puis sera dissipée, émettant ainsi de la chaleur.

Dans le cas où l'énergie transmise est suffisante ($T > T_d$), le PKA est éjecté de sa position dans le réseau cristallin pour se retrouver dans une position interstitielle. Il y a alors création d'une paire de défauts (une lacune et un interstitiel) appelée paire de Frenkel. L'énergie seuil de déplacement est dépendante de la direction de déplacement du PKA. Le PKA peut collisionner avec un ou plusieurs autres atomes (dits secondaires) de la matrice. De la même manière, si l'énergie transmise à l'atome secondaire est supérieure à l'énergie seuil de déplacement, il y a de nouveau création d'une paire de Frenkel, induisant de ce fait une réaction en chaîne : il se forme alors une « cascade de déplacements ». Les atomes frappés collisionnent à leur tour avec un autre atome, jusqu'à ce que l'énergie cinétique initiale soit dissipée [71].

La Figure 13 présente ce phénomène [72], qui est très localisé (de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de nm³) et très rapide (de l'ordre de la dizaine de ps) : dans un premier temps, a) le neutron arrive en direction du matériau et b) percute un atome de la matrice, le PKA. Celui-ci c) est éjecté de son site et traverse des plans cristallins en d) étant ralenti par les autres atomes du matériau, jusqu'à e) percuter un autre atome qui est lui-même f) éjecté de son site. Cela g) induit la cascade de déplacements où plusieurs atomes sont percutés et h) délogent encore d'autres atomes. Après ces événements les atomes i) sont désordonnés et j) se réorganisent pour k) reformer un maillage cristallin où subsistent des défauts ponctuels et des petits amas de défauts.

Suite à cette cascade, les défauts se recombinent en très peu de temps (de l'ordre de 10^{-11} s), et ne subsistent alors que quelques défauts ponctuels, dits « libres » qui diffusent dans la matrice, ainsi que de petits amas défauts [71]. Lors de l'irradiation, le matériau subit une grande quantité de ces cascades, et donc la quantité de défauts ponctuels dans le matériau augmente.

Au cours de cet évènement, chaque atome percuté subit des déplacements dans la matrice : on utilise la moyenne du nombre de déplacements comme mesure de la dose d'irradiation, notée dpa (déplacement par atome). Un dpa signifie que chaque atome du cristal a subi un déplacement, en moyenne.

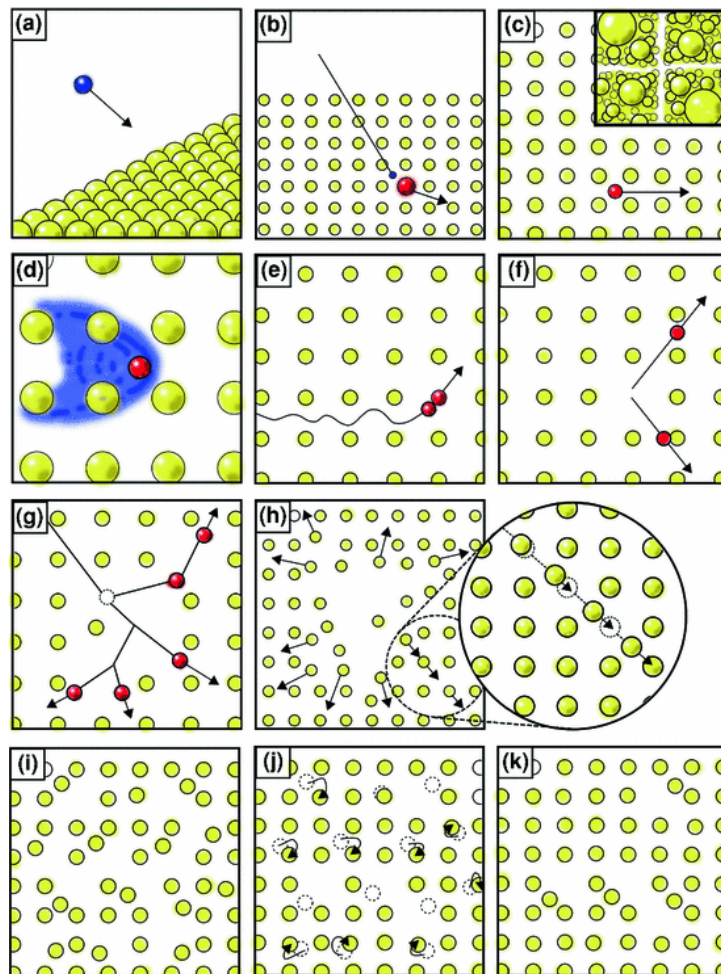


Figure 13 : Cascade de déplacements induite par l'irradiation aux neutrons [72]

Les cascades de déplacement conduisent à une augmentation du nombre de lacunes et d'interstitiels, qui, en diffusant et se regroupant créent des amas de lacunes et d'interstitiels. Les amas d'interstitiels ont alors tendance à se regrouper dans un même plan et ainsi former des boucles de dislocation, c'est-à-dire, des dislocations dont la ligne est circulaire. La Figure 14 [51] présente une boucle partielle de Frank, de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{3} [111]$, ainsi qu'une boucle parfaite, de vecteur $\vec{b} = \frac{1}{2} [110]$. Les observations expérimentales montrent qu'après irradiation, les boucles se situant dans les plans de la famille $\{111\}$ sont majoritaires dans la structure cfc [73].

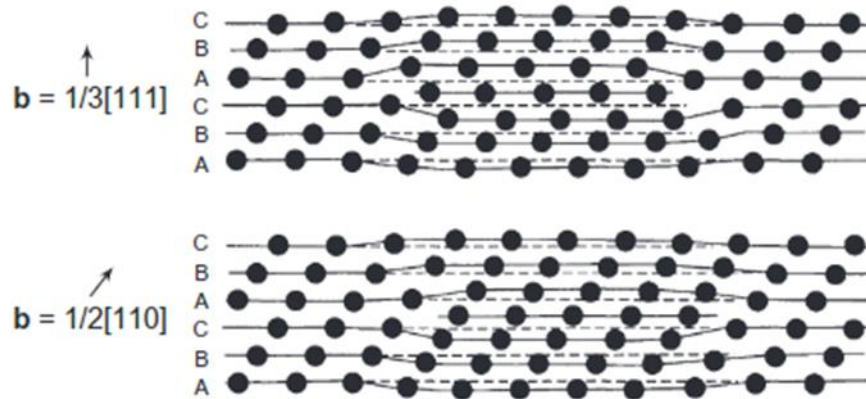


Figure 14 : Boucles de dislocation dues à la présence d'un amas d'interstitiels[51]

Les lacunes s'agrègent en amas plans, soit en faute d'empilement (ou SFT, pour Stacking Fault Tetrahedron), ou en boucle lacunaires, quoique ces dernières soient rarement observées expérimentalement [74]. De tels défauts lacunaires forment des sites de germination qui croissent en recevant des lacunes diffusant dans la matrice. Ils augmentent ainsi en taille, et peuvent finalement devenir des cavités. Ces cavités sont responsables du gonflement sous irradiation du matériau.

De la même manière, suite à la diffusion d'interstitiels, il est possible d'observer de la précipitation sous irradiation. C'est le cas des carbures de titane à relativement haute température (450°C-600°C), qui forment une nano-précipitation fine, multipliant les puits d'annihilation/recombinaison ce qui limite le développement des cavités [75]. Ces carbures sont dits « semi-cohérents » avec la matrice : ils partagent avec celle-ci la même structure cfc, mais avec un paramètre de maille différent (plus grand que la matrice en l'occurrence). Cela induit un champ de déformation élastique autour du nano-précipité qui interagit avec le flux de diffusion des défauts ponctuels.

1.2.1.3 Maîtrise du gonflement par les éléments de la microstructure

Pour modéliser l'évolution des concentrations en amas de défauts, les méthodes de type dynamique d'amas sont souvent utilisées. Les équations cinétiques des modèles d'amas prennent en compte la création des défauts ponctuels par l'irradiation, et leur disparition par

recombinaison (rencontre d'une lacune et d'un interstitiel) ou par réaction avec les puits de défauts [76] qui conduit le plus souvent à leur annihilation (délocalisation le plus souvent sauf dans le cas particulier d'interfaces cohérentes). Concrètement les puits sont des éléments de la microstructure tels que les dislocations, les joints de grains ou les interfaces matrice précipités (essentiellement les carbures de titane dans le cas qui nous occupe) dans lesquels les défauts ponctuels sont absorbés. Le Ti en solution solide, piégeant les lacunes, favorise leur recombinaison avec les interstitiels [77].

La Figure 15 présente le gonflement d'un échantillon riche en nickel (Fe 15Cr 20Ni) comparé au même échantillon enrichi au silicium [78]. Dans cette étude les échantillons sont amincis à une épaisseur de 2000 Å pour ne garder que le pic de gonflement, puis le gonflement est mesuré sur des micrographies MET. La courbe de gonflement en fonction de la dose de la nuance Fe 15Cr 20Ni montre bien un gonflement linéaire, tandis que la nuance enrichie en Si fait apparaître, à faible dose, une première portion de courbe correspondant à la période d'incubation ; à plus forte dose on observe également un gonflement linéaire en fonction de la dose, mais de pente moindre que pour la nuance Fe 15Cr 20Ni. L'effet bénéfique du Si vis-à-vis du gonflement est attribué au fait qu'il crée des complexes avec les lacunes qui accélèrent leur diffusion (effet cinétique) rapprochant leur mobilité de celle des interstitiels, favorisant ainsi le taux de recombinaison des paires de Frenkel [79].

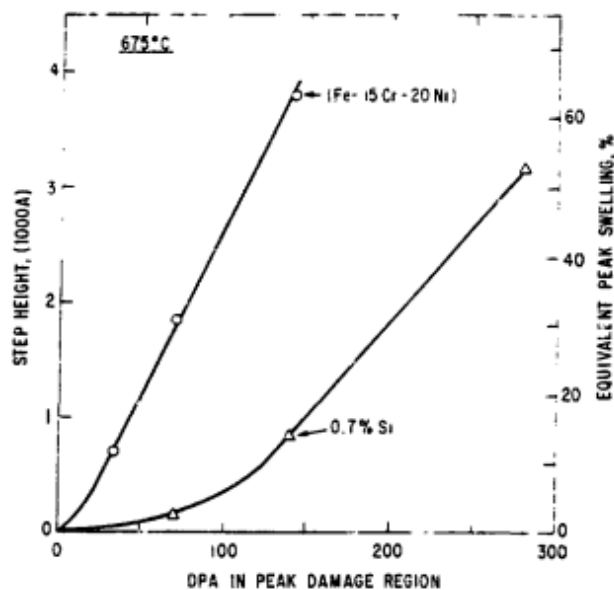


Figure 15 : Gonflement en fonction de la dose pour des aciers Fe15Cr20Ni et Fe15Cr20Ni0,7Si irradiés à 675°C (ions Ni ; 5MeV) [78]

Il est possible de réduire la sensibilité du matériau au gonflement en rallongeant la période d'incubation (première partie des courbes présentées Figure 15), ou en diminuant la vitesse de gonflement (pente de la deuxième partie des courbes présentées Figure 15). Plusieurs mécanismes d'inhibition du gonflement ont été mis en évidence et sont présentés ci-après.

Le piégeage consiste en ce que les défauts ponctuels, lors de leur diffusion dans la matrice, se retrouvent liés à certains éléments de la microstructure, essentiellement les éléments en solution solide (comme le titane), avec lesquels ils forment des complexes, ou les précipités, à la surface desquels les défauts sont piégés. Leur mobilité est alors pratiquement nulle et ils se recombinent avec les défauts ponctuels de nature opposée. De cette manière, la germination de cavités peut être inhibée, ainsi que leur croissance. La Figure 16 présente un calcul numérique de ce phénomène dans le nickel ; le gonflement γ est déduit de la cinétique de production des lacunes. Lorsque les énergies de liaisons des puits avec les interstitiels (E_i) et les lacunes (E_v) sont nulles, les défauts ne sont pas piégés par les puits, c'est-à-dire que le gonflement augmente beaucoup plus vite que lorsque des puits sont présents [80]. Plus forte est l'énergie de liaison et plus le gonflement est ralenti.

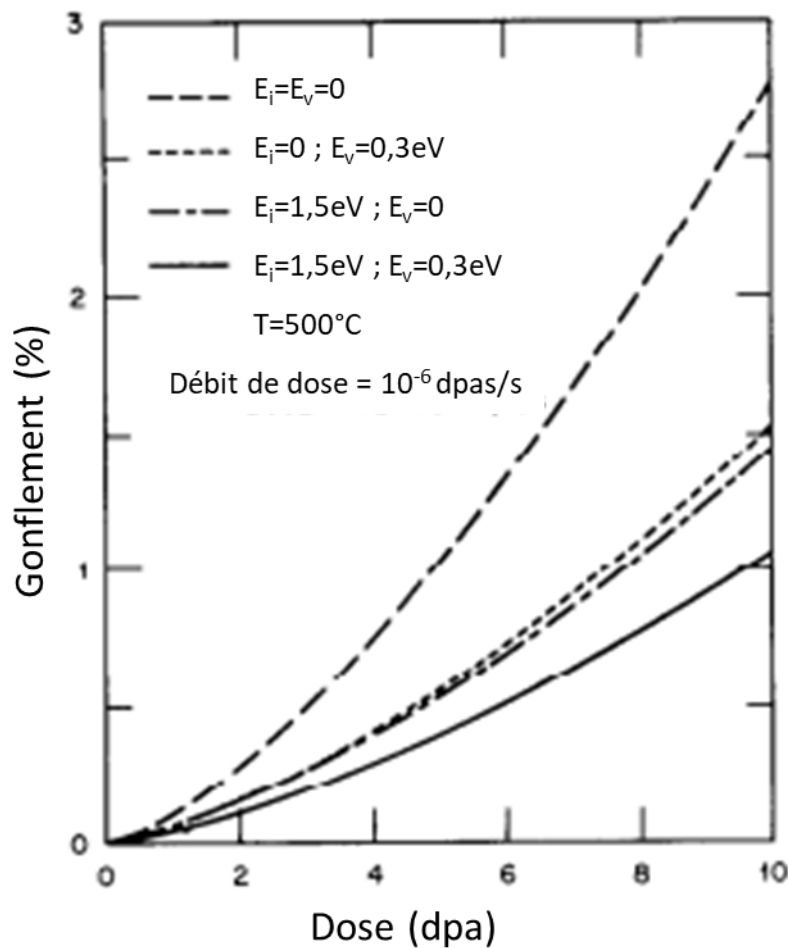


Figure 16 : Gonflement en fonction de la dose selon l'énergie de liaison des puits avec les défauts ponctuels [80]

Un autre mécanisme repose sur la mobilité des lacunes. Certains éléments d'alliage, en substitution tels que le Si [81], sont particulièrement mobiles dans la matrice austénitique, ce qui augmente de fait la mobilité des lacunes. Ainsi, leur probabilité de se recombinaison avec un interstitiel augmente. Ce mécanisme peut aussi être complémentaire du premier : l'augmentation de la mobilité des lacunes, associée à la diminution de mobilité d'interstitiels piégés par un atome de substitution comme le titane augmente la probabilité de recombinaison entre les deux. Les éléments, comme le silicium, retardent ainsi le gonflement.

Il apparaît que la réponse du matériau à l'irradiation est non seulement très dépendante de sa microstructure, mais a une influence considérable sur celle-ci. Il est donc important de maîtriser les éléments de microstructure servant de puits (dislocations, joints de grains, précipités) pour parfaire la résistance du matériau au gonflement.

1.2.2 Amélioration de la résistance au gonflement : présentation de l'AIM1

Pour limiter le gonflement des aciers de gainage dans les RNR-Na, plusieurs optimisations des nuances d'acier ont été nécessaires. La Figure 17 présente le gonflement sous irradiation en fonction de la dose d'irradiation en dpa, pour différents aciers dans le réacteur Phénix [15].

En partant de la nuance 316, qui a un rapport Cr/Ni supérieur à 1 on constate que l'ajout de Ti [46] associé à un écrouissage à froid retarde le gonflement de l'acier. Enfin les nuances présentant un rapport Cr/Ni égal à 1, et renforcées au Ti présentent des performances plus intéressantes que le 316Ti. Parmi ces nuances on peut trouver l'AIM1 (Austenitic Improved Material 1) développé au CEA.

L'AIM1 est un acier austénitique 15/15Ti (i.e. 15Cr 15Ni renforcé au Ti) développé pour résister à des doses allant jusqu'à environ 100 dpa, sans dépasser une valeur limite de gonflement de 6% [16] (irradiation aux neutrons). Au niveau microstructural, l'AIM1 est écroui à froid dans sa spécification actuelle. De cette manière, le réseau de dislocations agit comme puits de défauts et le Ti en solution solide, en piégeant les lacunes favorise leur recombinaison avec les interstitiels.

Remarquons l'excellente tenue au gonflement des aciers ferritiques (qui ont cependant de moins bonnes propriétés mécaniques que les aciers austénitiques). Elle est attribuée à la moindre différence de mobilité entre lacunes et interstitiels que dans les aciers austénitiques ce qui favorise leur recombinaison.

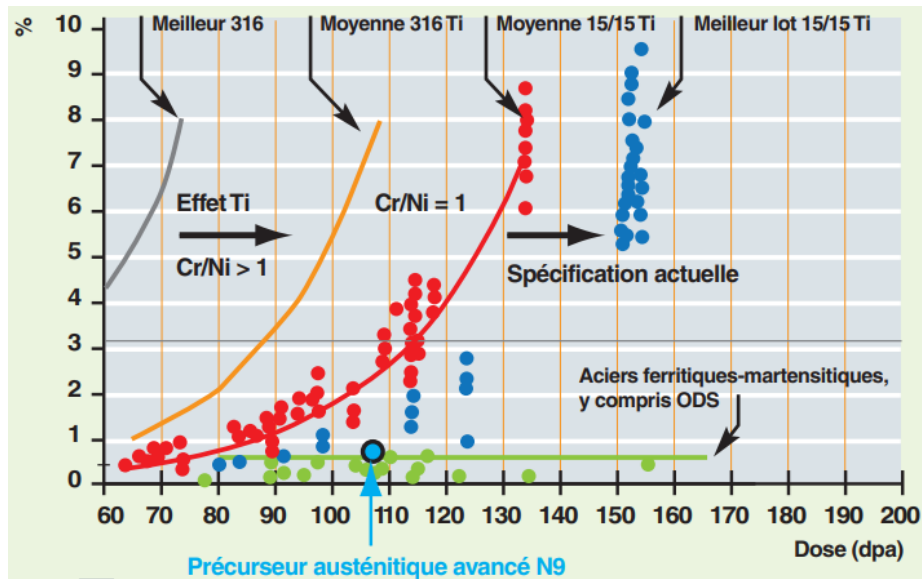


Figure 17 : Comparaison des déformations diamétrales sous irradiation de diverses nuances d'aciers utilisés comme matériaux de gainage dans le réacteur Phénix [15]

Outre son importance dans la solution solide [46], le Ti précipite avec le carbone pour former des carbures MC qui stabilisent le réseau de dislocations, et permettent aussi de limiter le gonflement [25], [82], [83].

Par ailleurs, l'AIM1 comporte d'autres éléments tels que le manganèse et le molybdène (éléments majeurs, de 1 à 2% massique) ainsi que le carbone, le phosphore et le bore (éléments d'addition inhibiteurs de gonflement [84], [85], [86]) qui permettent d'allonger la période d'incubation qui précède la croissance linéaire du gonflement avec la dose, ainsi que des impuretés qu'il est nécessaire de garder à de très faibles concentrations.

1.2.3 Approximation de l'irradiation aux neutrons par l'irradiation aux ions

Comme précisé dans l'introduction, l'objectif étant que l'AIM2 soit un matériau qui gonfle moins de 6% à des doses d'irradiation aux neutrons supérieures à 100 dpa, il est nécessaire de choisir des conditions expérimentales reproduisant ces fortes doses.

D'un point de vue expérimental, on cherche à produire des défauts ponctuels dans le matériau afin d'étudier le comportement de celui-ci face au gonflement sous flux de neutrons. Toutefois les irradiations aux neutrons sont difficiles à mettre en œuvre et demandent des temps d'irradiation trop importants pour obtenir les doses recherchées durant la période impartie pour la réalisation d'une thèse. En effet, dans des RNR, la dose neutronique reçue est de l'ordre de 20 à 30 dpa/an [87], quand une irradiation aux ions permet d'obtenir en quelques jours des doses que l'on observe dans les gaines en fin de vie. Enfin, l'irradiation aux neutrons impose une sécurité élevée du fait de l'activation des matériaux (travail en laboratoire 'chaud').

Pour les études modèles, on procède plutôt à une irradiation aux ions (on distingue le cas des protons, considérés comme des ions légers). Le profil de dommage dans le matériau est alors dépendant du flux, de la taille et de l'énergie de l'ion incident. Le modèle de Kichin et Pease[78], déduit du modèle de collision de sphères dures permet simplement de fixer les conditions d'irradiation aux ions qui permettent d'obtenir un dommage similaire à celui obtenu par des neutrons. Il y a cependant des points importants de différence entre irradiations aux ions et aux neutrons. Les ions, du fait de leur charge électrique, interagissent plus fortement avec les électrons de la cible (interaction inélastique), et sont plus fortement ralentis que les neutrons. Le dommage est ainsi beaucoup plus localisé au voisinage de la surface de la cible (typiquement 1 μm dans les conditions d'irradiation utilisées dans ce travail). Par ailleurs, pour des raisons pratiques (durée des campagnes d'irradiation) le flux de dommage ($\text{dpa}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$) produit par les ions sont de plusieurs ordres de grandeurs plus importants que ceux des neutrons. Comme cela a déjà été mentionné, l'effet de flux impose que pour obtenir des effets similaires, il faut que les irradiations aux ions soient effectuées à des températures plus élevées que les irradiations aux neutrons afin de permettre aux défauts ponctuels de parcourir des distances comparables entre deux cascades de déplacements. Was [68] illustre ces différences de parcours des particules avec la Figure 18, qui représente l'implantation d'ions Ni^{2+} , 5 MeV, de protons d'énergie 3,2 MeV, et de neutrons rapides d'énergie 1 MeV, dans du nickel. Les hexagones représentent des grains de 10 μm . Les ions sont arrêtés à une profondeur de quelques microns, après un pic de dommage, tandis que le dommage dû aux neutrons rapides est uniforme dans le matériau.

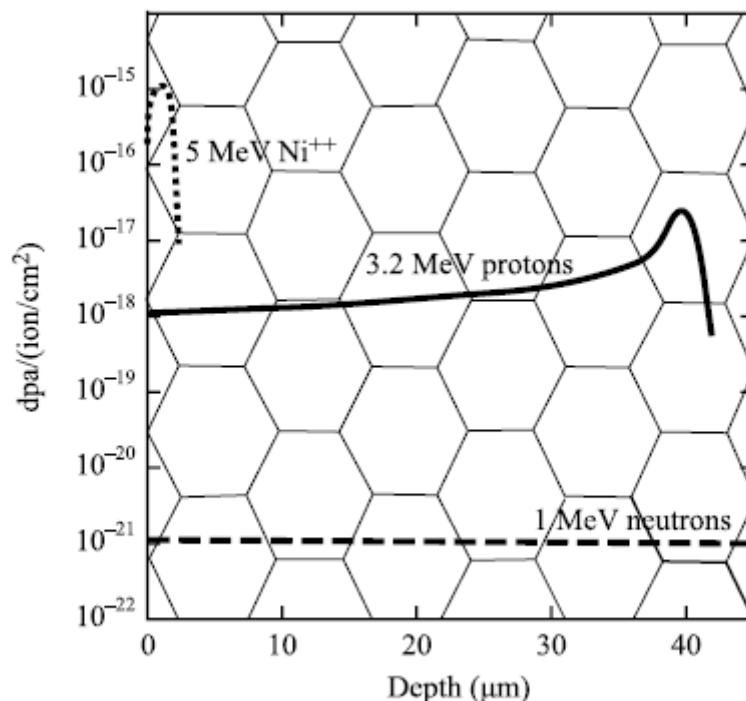


Figure 18 : Schéma du parcours de différentes particules dans du nickel [68]

Retenons que pour obtenir des effets d'irradiation similaires entre irradiations aux ions et aux neutrons il ne suffit pas d'atteindre les mêmes doses mais plusieurs paramètres sont à prendre en compte, en particulier l'effet de la température d'irradiation, l'effet du flux de particules ainsi que l'énergie et la nature des particules incidentes.

1.2.4 Influence des conditions expérimentales de l'irradiation aux ions sur le gonflement

Dans un premier temps il est nécessaire de prendre en compte le fait que, lors d'une irradiation aux ions, ceux-ci sont implantés dans la matrice : cet apport de matière va se traduire par un déséquilibre entre la concentration en interstitiels et en lacunes en faveur des interstitiels, lorsque des doses élevées sont atteintes. Comme le dommage est spatialement hétérogène, les doses maximales sont atteintes à une profondeur de l'ordre de $1\ \mu\text{m}$ pour les conditions d'irradiation utilisées dans ce travail. A cette profondeur, il va donc y avoir un fort taux de recombinaison et le gonflement sera moins important que pour une irradiation similaire aux neutrons [88].

La Figure 19, reproduite d'après Was et al. [89], illustre les parcours d'un ion et d'un neutron.

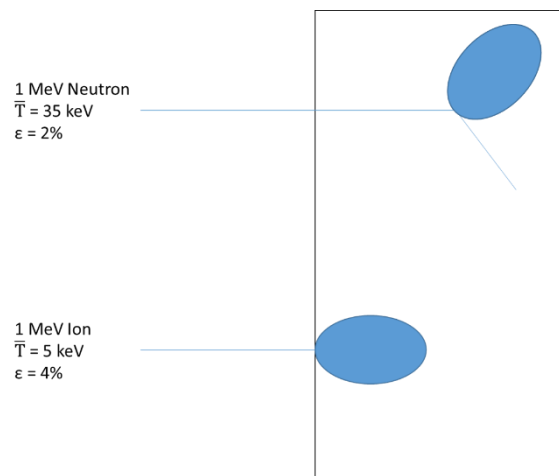


Figure 19 : Description de la morphologie des dommages dans le cas des irradiations aux neutrons 1 MeV et aux ions 1 MeV d'un échantillon de Ni pur (d'après Was [89])

Pour une même énergie initiale de 1 MeV, l'énergie moyenne transférée au PKA, $\bar{T}$, est de 35 keV pour un neutron, et de 5 keV pour un ion. D'autre part, si l'on introduit le concept d'efficacité de la cascade de déplacement ϵ (il s'agit du nombre de défauts ponctuels qui subsistent après la fin de la cascade rapporté au nombre de défauts ponctuels produits au total par la cascade), ϵ vaut 2% lors d'une irradiation aux neutrons et 4% pour une irradiation aux ions. Par ailleurs, compte tenu de la moindre pénétration des ions dans la matière, ceux-ci sont arrêtés en grande majorité autour du pic d'implantation (de l'ordre de $1\ \mu\text{m}$ dans notre cas) endroit où ils vont préférentiellement se recombinaison avec les lacunes. De ce fait, le taux

effectif de création de lacunes est donc moindre pour une même dose pour l'irradiation aux ions. En outre, dans le cas des irradiations aux ions, l'absence d'hélium généré par les réactions nucléaires dans le matériau (produit lors de l'irradiation aux neutrons) fait que la stabilisation des cavités est moindre lors de l'irradiation aux ions [1].

Afin d'obtenir un gonflement comparable entre une irradiation aux neutrons et une irradiation aux ions lourds, Abromeit et al. montrent qu'il faut des fluences de l'ordre de 10^{22} n/cm² et de 6.10^{16} ions/cm² pour chacun des deux types de particules [90]. Ces fluences s'obtiennent sur des durées de l'ordre de l'année pour les neutrons et de l'heure pour les ions lourds.

La Figure 20 montre que pour une dose d'irradiation aux neutrons de 67 dpa, le maximum de gonflement de l'acier 304 est atteint à $\sim 450^\circ\text{C}$ pour un gonflement d'environ 10%, alors que toutes choses égales par ailleurs il est atteint à $\sim 650^\circ\text{C}$ pour la même nuance lors d'une irradiation aux ions (ici des ions Ni, 5MeV) [78]. Les taux de dommage pour les irradiations sont de 10^{-6} dpa/s pour l'irradiation aux neutrons et de 2.10^{-2} dpa/s soit environ quatre ordres de grandeur plus important pour les irradiations aux ions Ni [91], [92].

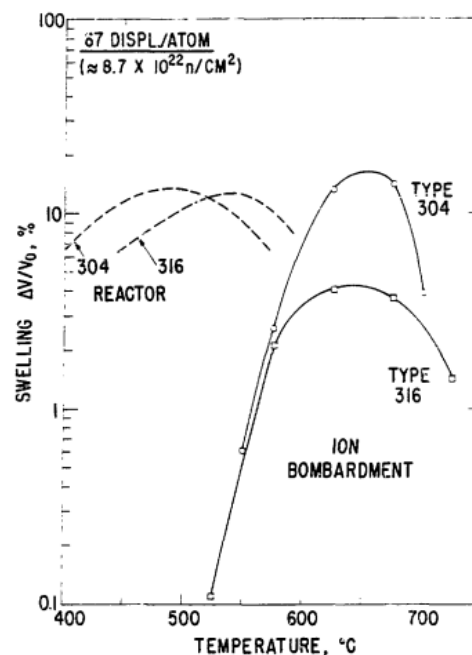


Figure 20 : Dépendance en température du gonflement lors d'irradiation aux neutrons et aux ions (Ni ; 5MeV) [78]. Les taux de dommage sont de 10^{-6} dpa/s en réacteur et de 2.10^{-2} dpa/s pour les irradiations aux ions

Pour une dose donnée, on désigne par pic de gonflement le gonflement maximal atteignable lorsque l'on fait varier la température. A trop basse température les lacunes ne sont pas assez mobiles pour pouvoir s'agglomérer, elles sont piégées par les puits et se recombinaient avec des interstitiels. A trop haute température l'émission de lacunes par les cavités devient plus fréquente, limitant ainsi la croissance de cavités [93]. Ceci explique la

forme en cloche Figure 20 du taux de gonflement en fonction de la température. Retenons aussi que le pic de gonflement est atteint, lors de l'irradiation aux ions, à des températures plus élevées que lors de l'irradiation aux neutrons.

Par ailleurs,(cf. Figure 21[94]) l'augmentation du flux non seulement décale vers les hautes températures le pic de gonflement (a) mais il ralentit également le rythme de gonflement dans le régime linéaire[94] (b). Ce phénomène est d'autant plus marqué que la température d'irradiation est élevée.

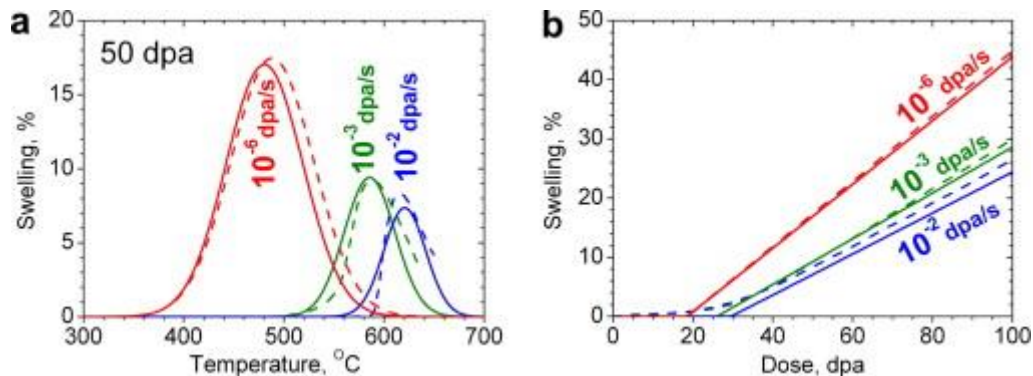


Figure 21 : Gonflement, pour différents taux de dommage, d'un acier 18Cr10NiTi en fonction a) de la température d'irradiation, à 50 dpa, et b) de la dose d'irradiation (les lignes pleines sont les valeurs simulées ; les lignes en pointillé sont les courbes expérimentales)[94]

L'objectif de ce travail est de tester des traitements thermomécaniques permettant de ralentir le gonflement. Le principal obstacle à cette étude est le fait que l'AIM1 n'est pas une nuance adéquate en raison de son faible gonflement lors d'irradiations aux ions comme l'a montré le travail de thèse de M. Kountchou [1]. La stratégie développée dans ce travail est de partir d'une nuance d'acier pour laquelle le gonflement est a priori observable dans des conditions expérimentales accessibles afin de constater une diminution du gonflement suite aux traitements. Nous décrivons par la suite les caractéristiques de cette nuance.

1.2.5 Sélection d'un acier inoxydable austénitique sensible au gonflement sous irradiation aux ions

1.2.5.1 Composition chimique

Nous sommes partis de l'alliage AIM1 pour guider notre réflexion.

1.2.5.1.1 Chrome et nickel

La sensibilité au gonflement recherchée peut être due, dans un premier temps, à la composition chimique de l'acier étudié. La Figure 22 [20] présente le gonflement sous

irradiation de plusieurs nuances industrielles ainsi que des nuances modèles Fe 15Cr xNi lors d'irradiations à 140 dpa par des ions Ni, 5 MeV, à 625°C. La Figure illustre la capacité du nickel à ralentir le gonflement : celui-ci est presque nul lorsque le taux de nickel dépasse 40% massique.

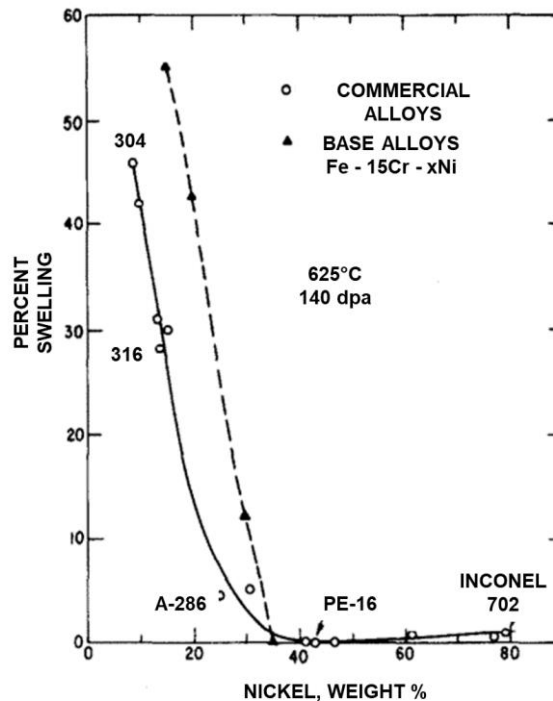


Figure 22 : Evolution du gonflement en fonction de la teneur en Ni dans des aciers austénitiques [20]

La Figure 23 [78] illustre l'effet combiné des teneurs en nickel et en chrome pour des irradiations de 140 dpa à 675 °C. Les conclusions sont les mêmes que pour la Figure 22 concernant le Ni, mais concernant le Cr l'effet est inverse : une teneur élevée en Cr augmente la sensibilité au gonflement [95]. Il apparaît donc, au vu de ces deux graphiques, que le rapport entre les taux de chrome et de nickel, Cr/Ni doit être le plus faible possible pour atténuer le gonflement et l'inverse si on veut l'accélérer.

Dans l'AIM1 (15Cr 15Ni), le rapport Cr/Ni vaut 1, ce qui a conduit à le qualifier pour des applications en réacteur à des doses de l'ordre de 100 dpa. Cependant la Figure 23 indique que la composition 15Cr 15Ni présente un gonflement important à 140 dpa, d'où le besoin d'optimiser la nuance.

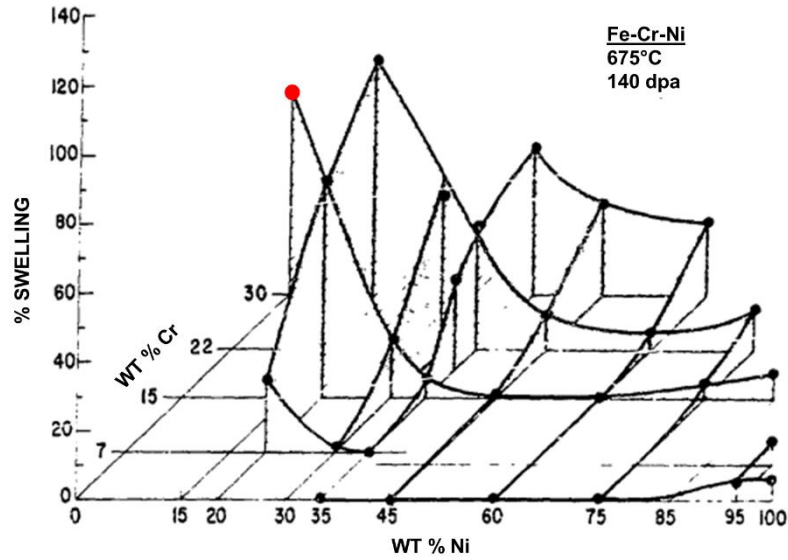


Figure 23 : Evolution du gonflement en fonction des teneurs en Ni et Cr[78]

Dans l'objectif d'obtenir un alliage possédant un taux de gonflement observable on vise un rapport Cr/Ni suffisamment important tout en conservant un alliage austénitique.

1.2.5.1.2 Influence des éléments d'alliage sur la réponse au gonflement

La Figure 24 extraite du travail de Hull[43], [55] présente la frontière austénite/austénite + ferrite ainsi que les formules d'équivalents Cr et Ni incluant des éléments d'alliage [55] :

$$Eq \%Ni = \%Ni + 0,11\%Mn - 0,0086\%Mn^2 + 0,41\%Co + 0,44\%Cu + 18,4\%N + 24,5\%C$$

$$Eq \%Cr = \%Cr + 1,21\%Mo + 0,48\%Si + 2,27\%V + 0,72\%W + 2,2\%Ti + 0,14\%Nb + 0,21\%Ta + 2,48\%Al$$

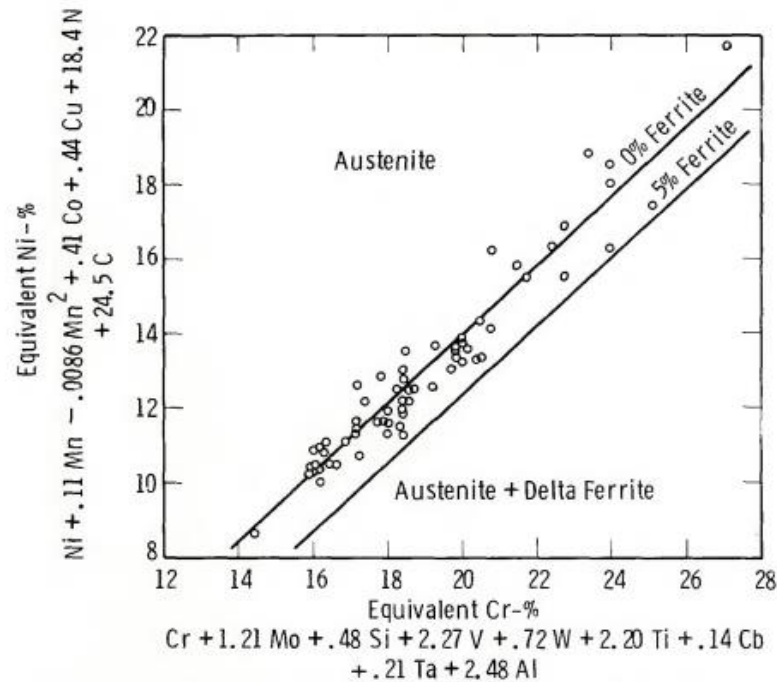


Figure 24 : Portion du diagramme de Schaeffler, indiquant les domaines de phases en fonction des %eq massique) de Nickel et de Chrome [55]

Pour obtenir des nuances qui présentent un gonflement observable, il faudrait limiter la quantité d'éléments équivalents au chrome et maximiser la quantité d'éléments équivalents au nickel tout en restant dans le domaine austénitique.

1.2.5.1.3 Carbone et azote

L'azote et le carbone, qui sont fortement gammagènes, ont tendance à empêcher le gonflement de l'acier. L'azote crée des complexes avec les interstitiels et leur permet de se recombinaison avec les lacunes, jusqu'à 550°C ; au-delà de 600°C, la formation de nitrures favorise le gonflement [96]. Le carbone forme des complexes assez stables avec les lacunes comme le montrent des calculs ab initio récents [97]. Lorsqu'ils restent en solution solide, le carbone et l'azote ont tendance à ségréger au niveau des dislocations. A cause des interactions élastiques, ces dernières sont « biaisées » en faveur des interstitiels : elles permettent l'annihilation de plus d'interstitiels que de lacunes. La ségrégation de C et de N autour des dislocations, favorisée par les interactions élastiques, change le biais de celles-ci à cause des interactions chimiques évoquées précédemment, favorisant l'annihilation de lacunes, et diminuant l'annihilation d'interstitiels. Cela a pour conséquence d'inhiber fortement le gonflement [22], [98], [99]. A cela s'ajoute que ces deux éléments peuvent précipiter avec le titane pour former des carbures MX, dont la présence en forte densité ralentit le gonflement [100].

1.2.5.1.4 Titane

Le titane est un élément inhibiteur du gonflement sous irradiation. Plusieurs mécanismes sont susceptibles d'expliquer cela. D'une part celui-ci forme des complexes avec des lacunes, les piégeant et favorisant leur recombinaison avec les interstitiels ce qui limite la sursaturation en lacunes. Cela a pour effet de retarder la germination de cavités, et donc le gonflement [101], [102], [103], [104].

Par ailleurs, la formation de nano-précipités TiC permet de piéger les défauts ponctuels, et donc d'accélérer leur recombinaison [105], [106] ce qui ralentit la formation de cavités. Enfin ces précipités permettent d'épingler les dislocations, les empêchant ainsi de s'annihiler à la surface ou aux joints de grains [61] ce qui contribue indirectement à maintenir une densité de puits (et donc un ralentissement du gonflement) .

Toutefois, augmenter la teneur en titane n'est efficace contre le gonflement que jusqu'à un certain point, au-delà duquel le gonflement, après avoir atteint un minimum, croît avec la composition en Ti. Ce phénomène se produit lorsque le rapport Ti/C excède 1, et est dû à une trop grande diminution du carbone libre en solution [16], ainsi qu'à une accélération du taux restauration du réseau de dislocations [107].

1.2.5.1.5 Phosphore

La présence de phosphore en solution solide conduit à une réduction du gonflement [101]. De plus, à haute température, le phosphore a tendance à précipiter en phosphures qui, à l'instar des carbures, piègent les lacunes et les bulles d'hélium à leur interface avec la matrice. A cela s'ajoute que le titane et le silicium précipitent avec le phosphore augmentant ainsi la concentration de phosphures, ce qui limite le gonflement [86], [108].

1.2.5.1.6 Silicium

Le silicium a aussi la faculté de réduire le gonflement. En effet, celui-ci, qui est un élément en substitution, a une mobilité très importante dans la matrice austénitique. Il se déplace dans le matériau par diffusion lacunaire ce qui permet d'augmenter la mobilité des lacunes, ce qui les rapproche de la mobilité des interstitiels et favorise leur recombinaison réduisant par la même occasion le gonflement [79], [109], [110].

1.2.5.2 Choix d'une nuance sensible au gonflement sous irradiation aux ions

Le choix du matériau pour notre étude s'est finalement porté sur l'acier austénitique 321 (Fe 17Cr 9Ni). Celui-ci est de même composition en chrome et en nickel que l'acier 304, à savoir 17% massique de Cr et 9% massique de Ni, ce qui est un rapport Cr/Ni favorable au gonflement. L'acier 321 a comme propriété d'être enrichi en Ti et en C, contrairement au 304

[111]. De ce fait, il devient possible de faire précipiter des carbures de titane TiC, et de garder du Ti en solution solide, pour déterminer un équilibre optimal entre ces deux formes qui ont toutes deux une influence sur la réponse au gonflement. La composition nominale de l'acier 321 est donnée dans le Tableau 2 :

Tableau 2 : Composition (% massique) de l'acier 321 selon la norme ASTM A240 [111]

Elément	C	Cr	Ni	Mn	Si	N	P	S	Ti
321	0,08	17,0- 19,0	9,0- 12,0	2,00	0,75	0,10	0,045	0,030	5(C+N) min / 0,70 max

La littérature est abondante sur l'acier 321, ainsi que sur les aciers de la série 300 ASTM (de composition chimique proche), tant au niveau microstructural qu'à propos du comportement sous irradiation.

1.2.5.2.1 Gonflement sous irradiation

La sensibilité au gonflement des aciers de la série 300 ASTM, et de l'acier 321 en particulier, dans l'état hypere trempé, a fait l'objet de plusieurs études [20], [91], [92], [112], [113]. La Figure 22, datant de 1974, illustre le gonflement de différentes nuances d'aciers ainsi que d'autres alliages en fonction de leur fraction massique en nickel. Une version plus étendue a été obtenue en 1976 et est illustrée Figure 25 [78], sur laquelle la nuance 321 est indiquée en rouge : on observe que les aciers 304 et 321, dans l'état hypere trempé, gonflent de plus de 40% lors d'une irradiation de 140 dpa aux ions Ni, 5 MeV, à 625°C.

La même publication [78] alerte sur l'importance de ne pas faire précipiter tout le titane sous forme de TiC, car le gonflement augmenterait considérablement en comparaison à un état où le titane serait intégralement en solution solide. Toutefois, il a été noté que la précipitation dans les aciers de la série 300 ASTM joue un rôle dans la réduction du gonflement : en particulier, la nuance 304, qui ne comporte pas de titane, présente un gonflement moins important que la nuance 304L, version faible en C du même alliage qui ne peut donc pas former de carbures. Il semble donc que vis-à-vis du gonflement il y ait un optimum dans la quantité de carbures de titane précipitant dans le matériau.

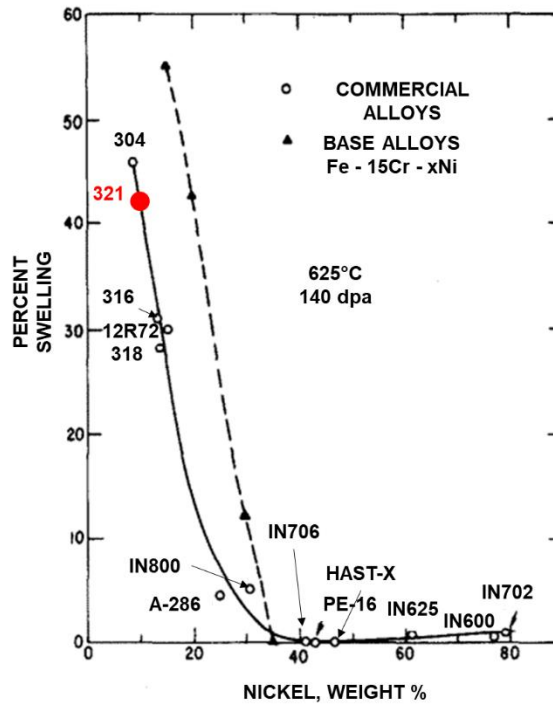


Figure 25 : Evolution du gonflement en fonction de la teneur en Ni dans des aciers austénitiques irradiés aux ions Ni, 5 MeV, à 140 dpa, à 625°C [78]

1.2.5.2.2 Précipitation

Les influences respectives du réseau de dislocations, ainsi que de la composition chimique sur le comportement sous irradiation ont déjà été évoquées. Il reste cependant à étudier la précipitation dans l'acier 321. Celui-ci est renforcé au titane. Cet ajout doit favoriser la nano-précipitation de carbures de type MC ($M=Ti$) et ainsi limiter la précipitation de carbures de type $M_{23}C_6$ ($M=Cr$), qui ont tendance à fragiliser le matériau : lorsque ceux-ci précipitent aux joints de grains, la concentration en chrome dans le grain diminue et rend alors le matériau localement plus sensible à la corrosion intergranulaire [114], [115].

La résistance au gonflement étant non seulement due à la précipitation des TiC , mais aussi à la présence de titane et de carbone dans la solution solide [23], [78], [116] (et de manière générale à la présence de puits de défauts), ce facteur doit être pris en compte par le plan d'expérience, en particulier pour déterminer les temps et températures de traitement thermique. Pour déterminer ces paramètres on se basera sur les diagrammes temps-température-transformation qui illustrent la compétition entre la précipitation des MC et des $M_{23}C_6$ [54], [64], [117].

La Figure 26 présente une version schématique du diagramme Température-Temps-Transformation (TTT) pour un acier 321[64]. Les valeurs de températures sont toutefois indicatives, car dépendantes de la composition chimique du matériau. Ce diagramme permet notamment de déduire que les Cr_{23}C_6 précipitent à plus basse température que les TiC , mais avec une cinétique plus lente.

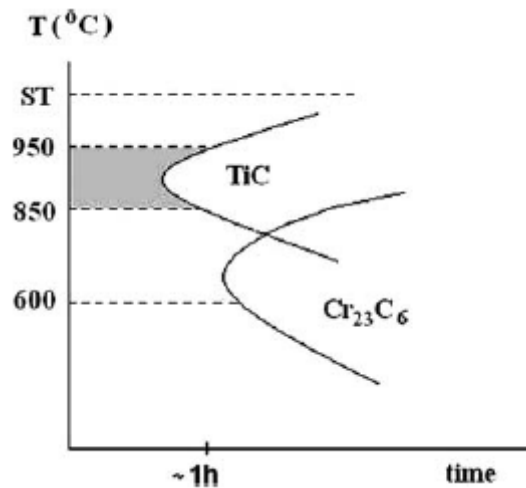


Figure 26 : Diagramme TTT schématisé de la précipitation de TiC et de Cr_{23}C_6 dans l'acier austénitique 321[64]

1.3 Conclusion

La nécessité de développer des réacteurs de nouvelle génération crée un besoin en nouveaux matériaux. Plus particulièrement, parmi les matériaux importants pour les RNR-Na, les aciers austénitiques avancés semblent prometteurs pour la réalisation des gaines de combustible nucléaire. Les recherches passées en France ont permis de faire de l'AIM1 le matériau de référence pour cette application, puisque ses propriétés mécaniques et sa résistance à la corrosion font de lui un matériau adapté aux conditions d'irradiation dans les réacteurs RNR-Na. Cependant, bien que sa résistance à l'irradiation fût suffisante dans le réacteur Phénix, il apparaît aujourd'hui intéressant d'obtenir des matériaux plus performants en termes de résistance au gonflement.

C'est dans ce contexte que s'inscrivent les recherches sur l'AIM2, qui visent à optimiser les performances de l'AIM1. Ainsi le cadre de cette étude concerne l'optimisation de traitements thermomécaniques d'aciers austénitiques, afin de ralentir leur gonflement sous irradiation. Pendant ce travail, l'application des traitements thermomécaniques directement sur l'AIM1 est difficilement envisageable car il a été montré [1] que sous irradiation aux ions (seules accessibles pendant ce travail) celui-ci est peu sensible au gonflement. Afin de contourner cette difficulté, une nuance industrielle, connue pour gonfler relativement facilement sous irradiation, est considérée afin de mesurer l'impact des traitements thermomécaniques sur le ralentissement du gonflement. Cette démarche expérimentale est synthétisée Figure 27.

L'état de l'art semble indiquer que la nuance 321 est une bonne candidate, puisque présentant un taux de Cr suffisamment élevé par rapport au Ni, mais contenant en plus du Ti et du C afin d'obtenir de la précipitation.

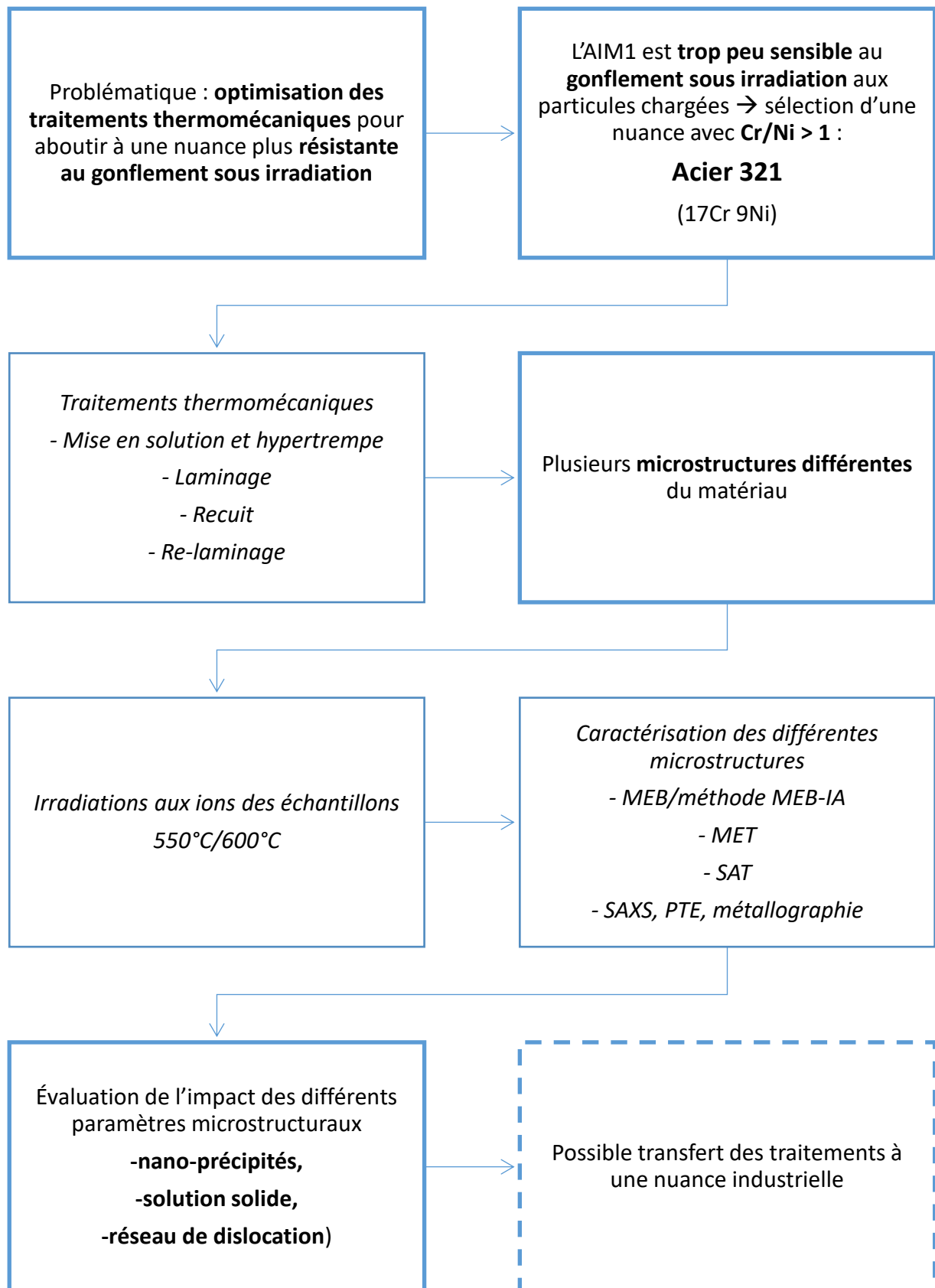


Figure 27 : Schéma de la démarche expérimentale

Chapitre 2 : Elaboration d'une démarche expérimentale visant à caractériser le gonflement pour différents états métallurgiques de l'acier 321

2.1 Introduction

Ainsi que présenté dans l'état de l'art, les aciers utilisés comme gaines de combustibles dans les réacteurs à neutrons rapides sont susceptibles de gonflement sous irradiation. L'irradiation provoque l'apparition d'interstitiels et de lacunes dans la matrice, ces dernières s'agregent sous forme de cavités et provoquent ce gonflement. Le but de cette étude est d'évaluer si pour une chimie et une cristallographie donnée, il est possible de réduire le gonflement en utilisant des traitements thermomécaniques.

En effet, grâce à ceux-ci, il est possible de modifier la microstructure du matériau de manière à faciliter la recombinaison des défauts et leur annihilation sur des puits de défauts. Cela permettrait d'empêcher la formation des amas de lacunes responsables de l'apparition des cavités. L'étude des traitements thermomécaniques et des microstructures qui en découlent constitueront alors un jalon dans la création d'une spécification AIM2 qui prendrait la suite de l'AIM1, candidat au gainage de combustible des RNR-Na.

L'objectif de ce travail est d'identifier les éléments de microstructure efficaces dans la réponse du matériau au gonflement, et par conséquent les traitements thermomécaniques adaptés. A cette fin, la démarche expérimentale est exposée dans cette partie afin de mettre en évidence l'importance relative de la microstructure de dislocations, de la nano-précipitation de carbures de Ti, et du Ti en solution solide. Dans un deuxième temps, les différentes campagnes d'irradiation sont présentées.

2.2 Détermination des paramètres de traitements thermomécaniques précédant l'irradiation de l'alliage 321

2.2.1 Vérification de la composition chimique

La vérification de la composition chimique du matériau reçu a été réalisée par Bureau Veritas. Le Tableau 3 donne les compositions correspondantes :

Tableau 3 : Comparaison des compositions (en % massique des différents éléments d'alliage) du matériau étudié

	C	Cr	Mn	Mo	N	Ni	P	S	Si	Ti
Composition constructeur	0,042	17,1	1,17	-	0,01	9,05	0,032	0,002	0,49	0,396
Bureau Veritas	0,055	17,12	1,35	0,56	0,013	9,3	0,034	<4ppm	0,54	0,28

La composition fournie par Bureau Veritas a fait appel à plusieurs méthodes d'analyse. Le carbone et le soufre ont été dosés par CIR (Combustion InfraRed absorption, ou combustion à détection infrarouge), l'azote par FRCT (Fusion Réductrice – Conductibilité Thermique), et le reste des éléments par SEO (Spectroscopie d'Emission Optique). Pour la suite du manuscrit, la composition considérée sera celle de Bureau Veritas.

2.2.2 Traitements thermomécaniques

La première étape du plan d'expériences, après réception et caractérisation du matériau, est l'application des traitements thermomécaniques. On souhaite en effet faire apparaître des puits de défauts et des sites de recombinaison dans le matériau. Les dislocations, nano-précipités, et éléments « ralentisseurs » de gonflement (nommément le titane) en solution solide sont les paramètres microstructuraux qui nous intéressent pour cette étude. La Figure 28 présente les traitements thermomécaniques qu'il a été décidé de réaliser au vu de la littérature présentée précédemment, ainsi que les microstructures attendues après chaque traitement.

La première étape consiste en la mise en solution des éléments d'alliage, suivie d'une hypertrempe. Vient ensuite la création d'un réseau de dislocations par le laminage du matériau. Le laminage a été choisi comme traitement mécanique afin d'obtenir une réduction d'épaisseur uniforme d'une part, mais surtout parce qu'il s'agit du traitement privilégié pour les gaines de combustible. Ce réseau permet alors, après le traitement thermique de recuit d'obtenir une fine précipitation de carbures de titane de type MC qui vont germer préférentiellement (germination hétérogène) sur lesdites dislocations. Il a été observé en effet que plus le réseau de dislocations est dense plus on observe de nano-précipités MC[118].

Le but du traitement thermique effectué par la suite est d'empêcher la précipitation totale du carbone et du titane, et de créer, pour chaque échantillon, un équilibre $TiC \leftrightarrow Ti_{Solution\ solide}$. En effet, les atomes de Ti et C pouvant diffuser dans la matrice, leur mobilité va influencer la mobilité des lacunes ainsi que la création ou la recombinaison des défauts ponctuels sous irradiation[119] comme indiqué dans le chapitre précédent. Il a été choisi de réaliser ce traitement sous vide secondaire pour prévenir l'oxydation du matériau. Au vu des diagrammes TTP de la littérature[120], [121], les températures de recuit ont été choisies entre 500°C et 700°C, pour une durée de 30 min.

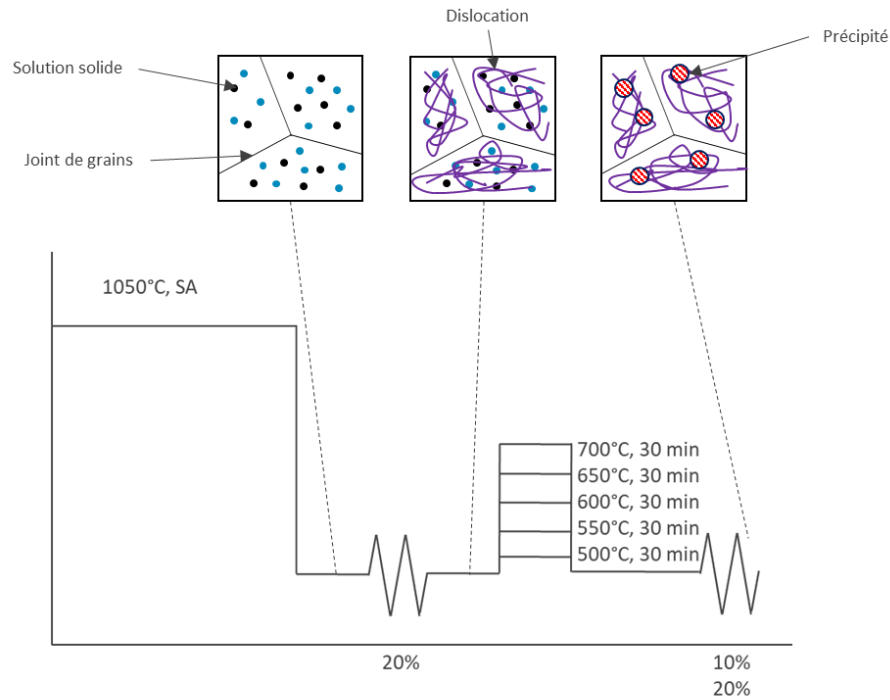


Figure 28 : Plan d'expériences et microstructures attendues

Etant donné le diagramme TTT de la Figure 26, le choix de la plage de la température de recuit permet de contrôler la proportion de carbures qui précipite, tandis que le reste du titane et du carbone est maintenu dans la solution solide. Le recuit a aussi pour effet de restaurer partiellement le réseau de dislocations. Cependant, grâce au deuxième laminage, un réseau plus dense de dislocations peut être obtenu. Celles-ci seront épinglées par la population de TiC préalablement précipités, limitant ainsi leur restauration par la suite. On pourra alors comparer l'influence de la précipitation, de la composition de la solution solide, et de la densité du réseau de dislocations sur la résistance au gonflement.

On envisage dans un premier temps d'obtenir dix échantillons dont la microstructure dépendra de la température de recuit et du laminage post-recuit. Le Tableau 4 présente les différents états métallurgiques ainsi que les étapes nécessaires à leur production. La première étape pour tous les échantillons a été un laminage à froid (Cold Work en anglais, abrégé en CW) qui a conduit à une réduction d'épaisseur de 20% ; la seconde étape consiste en un recuit dont la température varie entre 500°C et 700°C d'une durée de 30 minutes ; et le dernier traitement a été un relaminage à froid pour obtenir une réduction de 10% ou 20% par rapport à l'état recuit.

Le but du traitement thermique effectué par la suite est d'empêcher la précipitation totale du carbone et du titane, et de créer, pour chaque échantillon, un équilibre $TiC \leftrightarrow Ti_{\text{Solution solide}}$. En effet, les atomes de Ti et C pouvant diffuser dans la matrice, ils peuvent piéger des lacunes créant des sites de recombinaison des défauts ponctuels sous irradiation comme indiqué dans le chapitre précédent [22], [77]. Au vu des diagrammes TTP de la littérature [120], [121], les températures de recuit ont été choisies entre 500°C et 700°C, pour une durée de 30 min.

Tableau 4 : Etats métallurgiques des échantillons

Etat	500A	500B	550A	550B	600A	600B	650A	650B	700A	700B
Laminage	20% Cold Work									
Traitement thermique	500°C/30min		550°C/30min		600°C/30min		650°C/30min		700°C/30min	
Laminage	10% CW	20% CW	10% CW	20% CW	10% CW	20% CW	10% CW	20% CW	10% CW	20% CW

2.2.3 Sélection et préparation des échantillons

La vérification de la composition chimique de la nuance 321 ayant pris plus de temps que prévu, seuls certains échantillons ont été sélectionnés, afin de simplifier la suite de l'étude. Les échantillons ont été choisis de manière à pouvoir étudier les relations entre les paramètres suivants :

- La densité du réseau de dislocations,
- La précipitation, et en contrepartie la solution solide,
- La température d'irradiation.

Le choix s'est porté sur les états métallurgiques suivant : 500A, 700A, et 700B, irradiés chacun à 550°C et 600°C, auxquels s'ajoutent l'état hypereutectique, ainsi que des échantillons d'AIM1 écroui (T63) et d'AIM1 écroui et recuit une heure à 550°C (T63M1), nuance industrielle de référence. La comparaison entre l'état 500A et l'état 700A vise à étudier les conséquences du traitement thermique ; la comparaison entre l'état 700A avec l'état 700B, celles de la deuxième passe de laminage (10% ou 20%).

Tableau 5: Traitements thermomécaniques appliqués à chaque échantillon

Nom	500A	700A	700B	T63	T63M1
Etape 1	Laminage 20%				
Etape 2	500°C/30min	700°C/30min		/	550°C/1h
Etape 3	Laminage 10%		Laminage 20%	/	/

Des lames MET ont été préparées pour procéder à la caractérisation. Pour ce faire, les échantillons sont, dans un premier temps amincis à 100 μm , puis un disque est percé dans chacun des échantillons amincis, comme représenté Figure 29.

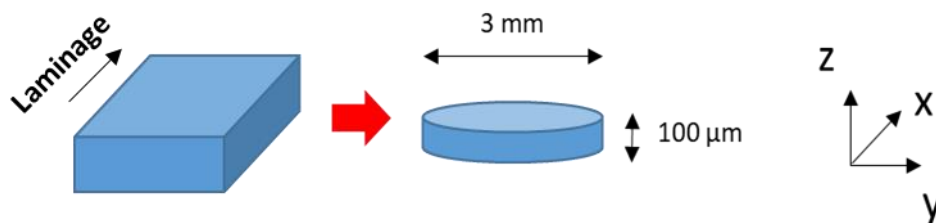


Figure 29 : Obtention d'une lame MET à partir d'un lingot d'acier

Ces disques, d'un diamètre de 3 mm, sont ensuite pré-polis sur une face, de manière à obtenir des états de surface homogènes d'un échantillon à l'autre. Ce pré-polissage est un électro-polissage réalisé avec l'électrolyte 721 (70% éthanol, 20% 2-butoxyéthanol, 10% acide perchlorique) à une tension de 30V, et une température de - 2°C, pendant 30 secondes. On obtient alors une « cuvette », creusée dans la lame MET, comme représenté Figure 30.



Figure 30 : Aspect schématique de l'échantillon post-électropolissage

Ces lames MET sont ensuite montées sur un porte-échantillon pour être irradiées sur la ligne Epiméthée de JANNuS au CEA Saclay. La Figure 31 présente le montage avant l'irradiation.



Figure 31 : Echantillons montés sur le porte-échantillon avant irradiation ; les flèches rouges indiquent les endroits où sont insérés les thermocouples permettant de mesurer la température d'irradiation

2.3 Campagnes d'irradiation

2.3.1 Paramètres des campagnes d'irradiation pour obtenir un dommage supérieur à 150 dpa

Pour l'étude, on envisage d'obtenir une dose d'irradiation la plus élevée possible. Les campagnes d'irradiation sont réalisées sur la plateforme JANNuS du CEA Saclay. Le gonflement étant aussi tributaire des effets de flux et de température, ceux-ci doivent être adaptés pour avoir suffisamment de cavités. Enfin, des problématiques techniques demandent aussi de faire des choix pertinents de température et de flux.

Concernant la température d'irradiation, différents retours d'expérience ont montré que les lames en acier austénitique ont tendance à adhérer au porte-échantillon, qui est de composition proche, lorsque la température est élevée à cause de phénomènes d'interdiffusion. De ce fait, la température d'irradiation ne peut excéder 600°C.

D'autre part, le temps de faisceau étant limité (25h pour la première campagne, 38h pour la deuxième), et l'objectif étant d'obtenir 150 dpa de dommage au pic d'irradiation, le choix a été fait d'opter pour le flux maximum, proche de 10^{12} ions.cm⁻².s⁻¹. Cela se traduit par un taux de dommage de l'ordre de 10⁻³ dpa/s.

Pour des aciers de composition proches du 321, la Figure 20 indique que des gonflements de l'ordre de 1% sont observables à partir de 550°C lors d'irradiations aux ions Ni de 5MeV, à un taux de dommage de l'ordre de 10⁻²dpa/s[78]. Pour des taux de dommage plus faibles, on doit s'attendre à un décalage du pic de gonflement vers des températures plus faibles[94]. Pour un taux de dommage de l'ordre de 10⁻³ dpa/s, la température du pic de gonflement devrait se situer entre 550°C et 600°C. Au vu de ces informations, et afin de mettre en évidence un éventuel effet de la température d'irradiation, il a été choisi de réaliser des irradiations à 550°C et 600°C.

Deux campagnes d'irradiation ont été menées. La première fut réalisée à une température de 550°C, sur plusieurs jours, pour un total de 25h, et à une fluence de 8.10¹⁶ions/cm². La seconde a été effectuée à 600°C, et le faisceau a été maintenu pendant 38h en continu, à une fluence de 9.2.10¹⁶ ions/cm². Les deux irradiations ont été réalisées avec des ions Fe⁵⁺, d'une énergie de 5 MeV. Outre la température, la principale différence entre ces deux campagnes réside dans le fait que les échantillons irradiés à 550°C ont été soumis à plusieurs transitoires thermiques, le faisceau ayant été arrêté pendant la nuit. Les échantillons irradiés à 600°C ont été maintenus à température constante pendant toute la durée de la campagne, avec un transitoire thermique de moindre ampleur provoqué par l'instabilité du faisceau. L'existence des transitoires thermiques a pu influencer la microstructure issue de l'irradiation, cependant Lisa Lefort, dans sa thèse [122], n'observe pas d'effet significatif du séquençage des irradiations sur les densités et tailles de cavités. Les paramètres des deux campagnes d'irradiation sont répertoriés dans le Tableau 6.

Tableau 6 : Conditions d'irradiation pour les deux campagnes

Paramètre	Campagne 1	Campagne 2
Date	28/11/2022-02/12/2022	05/07/2023-07/07/2023
Ions	Fe ⁵⁺	Fe ⁵⁺
Energie (MeV)	5	5
Fluence (ions/cm ²)	8.10 ¹⁶	9,2.10 ¹⁶
Température (°C)	550	600
Durée (h)	25 (réparties sur 4 jours)	38 (en continu)
Dose maximale (dpa)	165	200

La simulation obtenue par le logiciel IRADINA [123], [124] permet d'évaluer le dommage d'irradiation, en dpa, la production de lacunes et d'interstitiels, la profondeur du dommage, ainsi que la profondeur d'implantation des ions. Il s'agit ici d'une simulation en Full Cascade. Les énergies seuils de déplacement pour les différents atomes de la matrice sont issues de TRIM : elles sont de 40 eV pour le chrome et le fer, et de 33 eV pour le Ni. La simulation de ces phénomènes est présentée dans les Figure 32 et Figure 33 et elle suppose des interactions balistiques élastiques entre les ions énergiques et la cible.

La Figure 32 présente la simulation de la valeur du dommage en fonction de la profondeur de la lame. Le maximum de dommage est atteint à environ 1200 nm pour une valeur de 165 dpa pour une fluence de 8.10¹⁶ ions/cm² pendant 25h, et à environ 1250 nm, pour une valeur de 200 dpa, pour une fluence de 9,2.10¹⁶ ions/cm² pendant 38h.

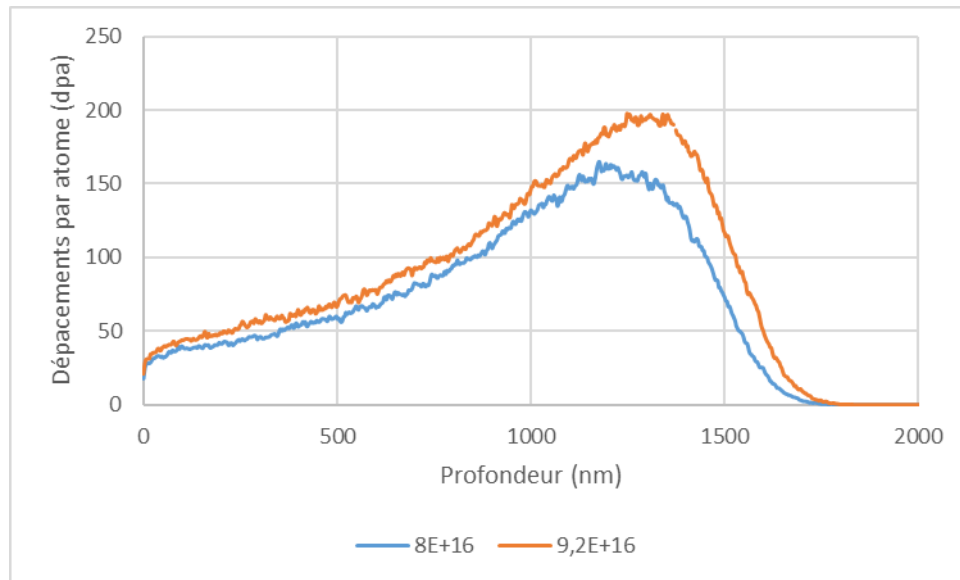


Figure 32 : Dommage d'irradiation, exprimé en dpa, simulé pour un acier 17Cr 9Ni grâce au logiciel Iradina pour des ions Fe⁵⁺ de 5 MeV et des fluences de 8.10¹⁶ ions/cm² et 9,2.10¹⁶ ions/cm²

La Figure 33 présente la concentration en fer implanté dans un acier austénitique (17Cr 9Ni) de densité 7,9 en pourcentage atomique, en fonction de la profondeur de la lame. Le maximum d'implantation est obtenu à 1400 et 1450 nm de profondeur pour la campagne à 8.10^{16} ions/cm² et la campagne à $9,2.10^{16}$ ions/cm² respectivement. A cette profondeur, les ions implantés vont contribuer à augmenter artificiellement la teneur en interstitiels, et de ce fait atténuer le gonflement. Par ailleurs, la surface de l'échantillon constitue un puits de défauts idéal, ces effets se font ressentir jusqu'à une profondeur de 100-150 nm, les effets de surface seront présents. L'observation du gonflement sera donc possible dans une région limitée de la lame entre 200 et 1000 nm de profondeur, correspondant à un endommagement entre 50 et 100 dpa.

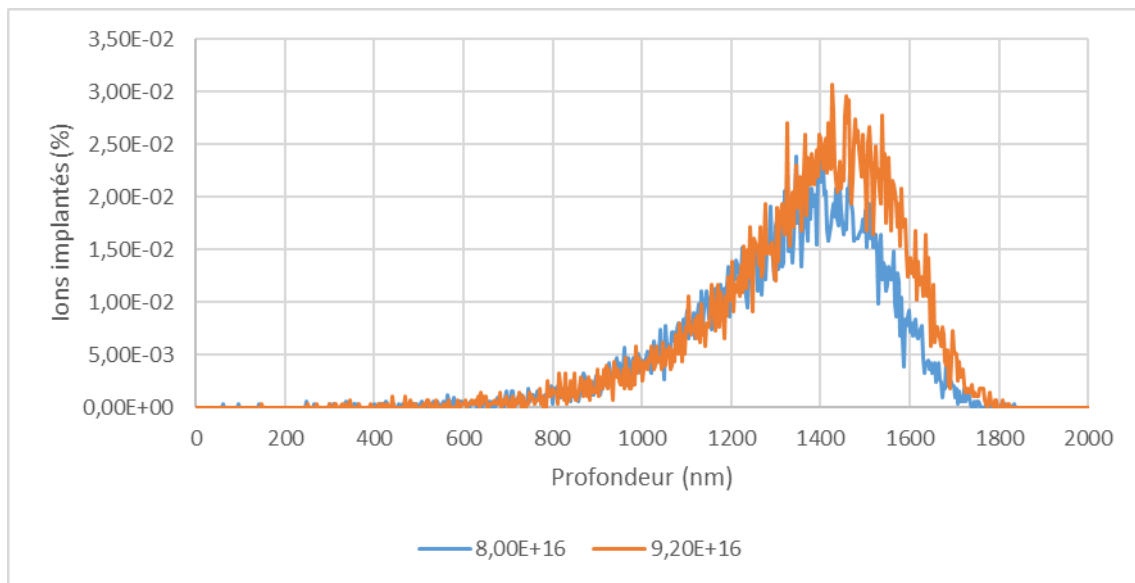


Figure 33 : Profil de concentration du fer dans la lame, simulé pour un acier 17Cr 9Ni avec le logiciel Iradina

2.3.2 Préparation des échantillons pour les observations au MEB et au MET

Suite à l'irradiation, les lames doivent être percées pour pouvoir réaliser les observations au MET et au MEB. En effet, comme présenté sur la Figure 34, le dommage n'apparaît pas au niveau de la surface irradiée (appelée face avant par la suite), mais en profondeur : il faut donc trouver un moyen d'observer ce dommage.

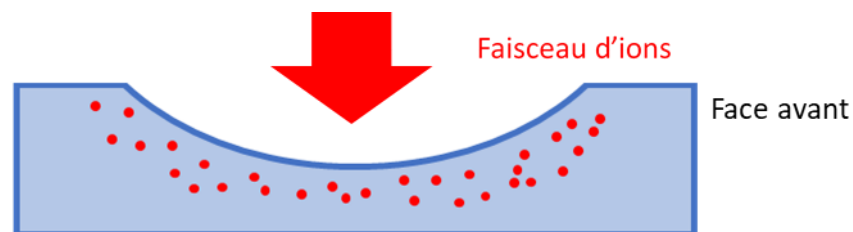


Figure 34 : Illustration de l'irradiation de la face avant

Pour ce faire, on perce la lame en électropolissant uniquement la face arrière. Cet électropolissage est également réalisé avec l'électrolyte 721 (70% éthanol, 20% 2-butoxyéthanol, 10% acide perchlorique) à une tension de 30V, et une température de - 2°C, jusqu'au perçage de la lame. La lame est considérée comme percée lorsqu'un photorécepteur détecte de la lumière au travers de celle-ci, coupant alors la tension, ce qui termine l'électropolissage. Cette opération est schématisée Figure 35. On visualise sur une partie de la face arrière de la lame percée les changements de microstructure provoqués par l'irradiation aux ions.



Figure 35 : Illustration du dommage observable sur la face arrière de la lame percée

Après l'électropolissage, on retrouve l'évolution du dommage projetée sur la face arrière de la lame. Les cavités visibles sur la face arrière permettent ainsi de remonter au dommage réel, vérifiant par là même l'évaluation de celui-ci par la simulation. La Figure 36 présente une vue en tranche schématique de la lame mince irradiée et percée, proche du trou. L'évolution du dommage d'irradiation dans la profondeur est visible sur la face arrière de la lame (hypoténuse du triangle ci-dessous).

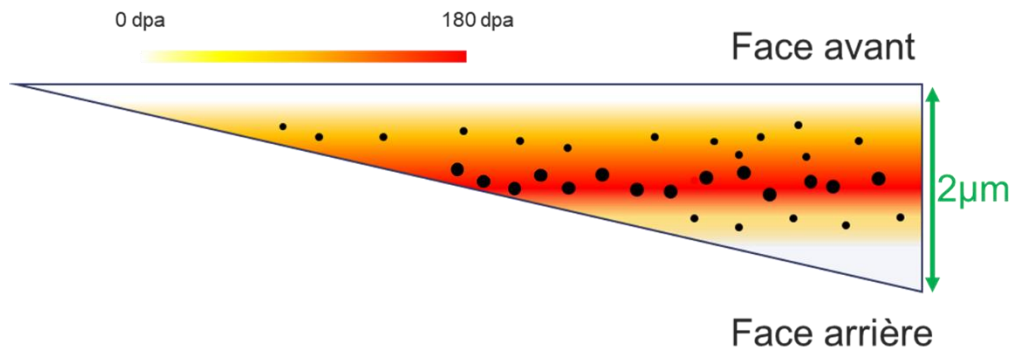


Figure 36 : Illustration du dommage d'irradiation observable face arrière avec un gradient dans la profondeur de la lame

Suite à ces campagnes d'irradiation, les échantillons seront examinés au MEB ainsi qu'au MET. Les résultats qui en découleront permettront alors de comparer le gonflement de ceux-ci entre eux, de déterminer une microstructure qui puisse y être plus résistante, et ainsi de déterminer la suite de traitements thermomécaniques la plus adaptée.

2.4 Conclusion

La démarche expérimentale pour tester l'influence des traitements thermomécaniques sur le gonflement sous irradiation dans l'acier 321 a été présentée. L'influence de l'écrouissage et d'une précipitation contrôlée sera testée. La suite des traitements thermomécaniques envisagés devrait permettre d'obtenir différentes teneurs des trois éléments de la microstructure identifiés comme conditionnant le taux de gonflement : la densité de dislocations, la fraction de titane en solution solide et la densité de nano-précipités de carbures de titane. L'objectif est de mettre en évidence les phénomènes physiques responsables du gonflement sur cette nuance, ainsi que de sélectionner les microstructures optimales pour améliorer la résistance au gonflement. On cherchera enfin à transférer les informations génériques obtenues sur le 321 à d'autres nuances comme l'AIM1.

Les conditions expérimentales d'irradiation ont également été présentées. Deux campagnes d'irradiation ont été menées, à 8.10^{16} ions/cm² (réalisée à 550°C), et à $9,2.10^{16}$ ions/cm² (réalisée à 600°C), et le dommage d'irradiation a été simulé avec le code IRADINA. Il en résulte des maxima de dommage de 165 dpa et 200 dpa, respectivement.

Chapitre 3 : Caractérisations microstructurales de l'alliage 321 traité thermomécaniquement non-irradié et irradié

3.1 Introduction

Afin de mettre en évidence les mécanismes de réduction du gonflement dans les aciers austénitiques, la nuance ASTM 321 a été choisie pour sa propension au gonflement sous irradiation. Cette nuance a subi différents traitements thermomécaniques pour obtenir plusieurs états métallurgiques de microstructures différentes. Le présent chapitre vise à présenter la caractérisation des états métallurgiques d'intérêt ainsi que de l'état de réception (état hypereutecté).

Plusieurs méthodes de caractérisation seront présentées, qui permettront d'établir les spécificités de chaque état métallurgique. Dans un premier temps les caractéristiques métallurgiques générales des états non-irradiés seront présentées. Puis les microstructures observées des états irradiés et non-irradiés seront comparées, par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et en Transmission (MET). En particulier, des imageries par électrons secondaires (Secondary Electron ou SE en anglais), EBSD (Electron BackScattered Diffraction, ou Diffraction des Electrons RetroDiffusés) seront réalisées au MEB pour caractériser les échantillons.

Pour plus de lisibilité, les échantillons irradiés ont été renommés selon la campagne d'irradiation étudiée. Le Tableau 7 récapitule les traitements thermiques et les campagnes d'irradiation associés à chaque échantillon.

Tableau 7 : Récapitulatif des noms des échantillons tenant compte des campagnes d'irradiation

Nom	500A-IRR550	500A-IRR600	700A-IRR550	700A-IRR600	700B-IRR550	700B-IRR600
Etape 1	Laminage 20%					
Etape 2	500°C/30min		700°C/30min			
Etape 3	Laminage 10%				Laminage 20%	
Etape 4	Irradiation Campagne 1 550°C	Irradiation Campagne 2 600°C	Irradiation Campagne 1 550°C	Irradiation Campagne 2 600°C	Irradiation Campagne 1 550°C	Irradiation Campagne 2 600°C

3.2 Caractérisation métallographique des états métallurgiques non-irradiés

Il est nécessaire d'étudier la microstructure de chacun des échantillons traités thermomécaniquement afin d'être capable de les comparer aux échantillons irradiés. Grâce à ces informations, il sera alors possible d'observer l'évolution de ces microstructures sous irradiation, et d'en déduire leur influence sur la résistance aux dommages d'irradiation. Pour réaliser cette étude, un panel de caractérisations a été réalisé :

- La métallographie permet d'identifier la taille de grains ainsi que de la précipitation grossière ;
- La microdureté est la résultante de plusieurs paramètres tels que la densité du réseau de dislocations, la présence de phases durcissantes, et de la taille de grains, dans l'hypothèse où ceux-ci seraient très petits. ;
- La SAXS (Small Angle X-ray Scattering, ou diffusion des rayons X aux petits angles) permet, moyennant des hypothèses, une analyse quantitative de la précipitation ;
- La caractérisation par ferritométrie permet d'avoir une estimation de la quantité de phase magnétique (ferritique ou martensitique) dans l'échantillon ;
- L'étude des variations du PTE (Pouvoir ThermoElectrique) de chaque échantillon permet de comparer deux à deux l'évolution de la solution solide.

Ces analyses renseignent sur les caractéristiques métallurgiques des différents échantillons sélectionnés.

3.2.1 Métallographie

L'analyse métallographique a été réalisée sur les dix échantillons non-irradiés. Après un polissage mécanique, les échantillons ont subi une attaque électrolytique, avec une solution d'acide oxalique à 10%, sous une tension de 6V pendant quinze secondes.

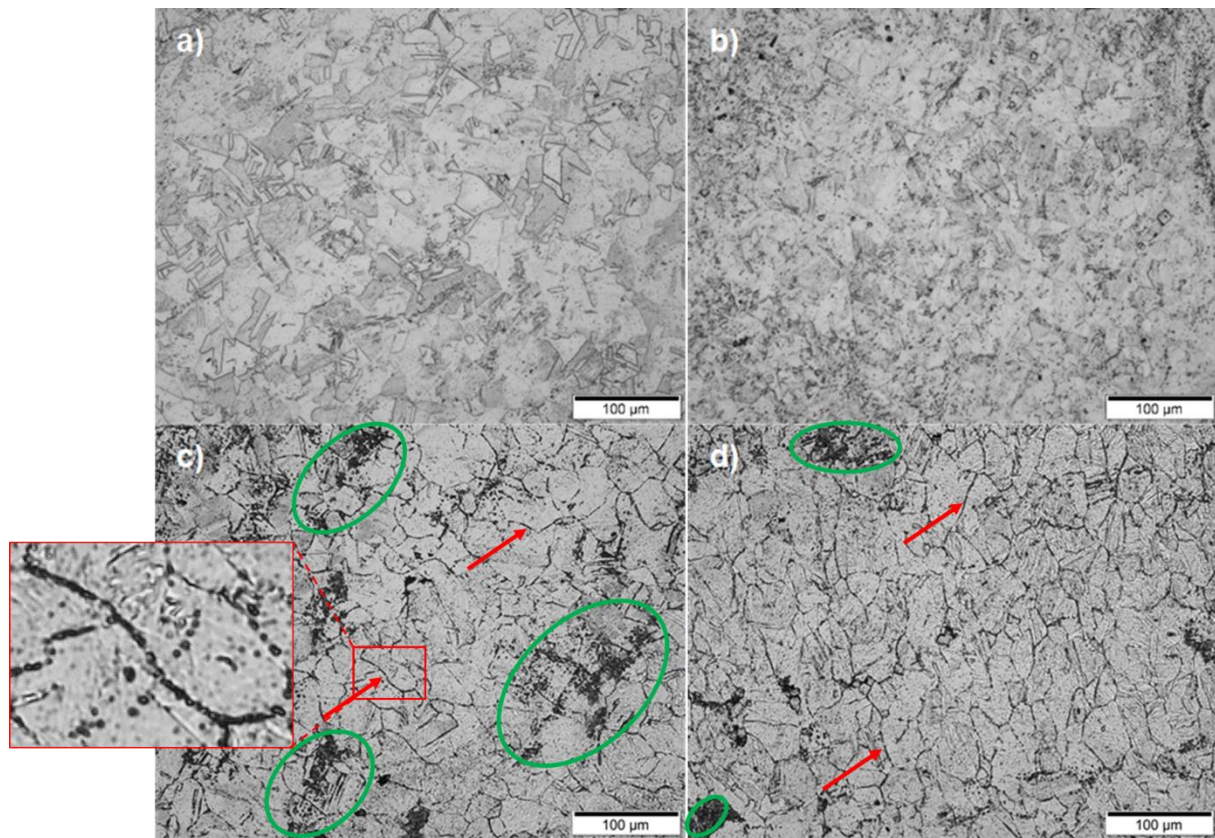


Figure 37 : Micrographie optique des échantillons a) hypertympé, b) 500A, c) 700A, d) 700B après attaque à l'acide oxalique (10%)

Les échantillons recuits 30 min à 700°C (700A et 700B, présentés Figure 37 c) et d)) montrent de la précipitation intergranulaire (indiquée par les flèches rouges, une version agrandie d'un joint de grains présentant cette précipitation est représentée pour l'échantillon 700A). D'autre part, sur tous les échantillons traités thermomécaniquement, on note la présence d'une phase, de contraste sombre, qui semble être de la martensite de déformation α' (entourée en vert). Cette dernière apparaît lors de l'écrouissage du matériau. Cependant, il a été identifié que sa présence est également causée par le polissage mécanique des échantillons, qui induit une déformation plastique de la surface de l'échantillon [125]. La taille de grains est déterminée par la méthode des intercepts. Plusieurs segments (20 sur ces micrographies), de directions différentes, sont tracés sur l'image ; leurs intersections avec les joints de grains permettent d'obtenir une distance moyenne entre deux joints de grains. Cette méthode est toutefois dépendante de la visibilité des joints de grains, notamment pour l'échantillon 500A dans ce cas. Cette quantification sera donc complétée par une mesure de la taille des joints de grains en EBSD. L'analyse par la méthode des intercepts permet d'obtenir une taille de grains moyenne pour chaque échantillon, présentée dans le Tableau 8 :

Tableau 8: Taille de grains des états métallurgiques étudiés

Etat métallurgique	Méthode des intercepts - Taille de grains (μm)
Hypertrempé	$30,7 \pm 6,4$
500A	$34,4 \pm 5,0$
700A	$21,5 \pm 4,3$
700B	$19,4 \pm 2,2$

L'analyse menée donne des résultats avec des incertitudes de l'ordre de 10% à 20%. Cela ne permet donc pas de juger de l'évolution de la taille de grains entre l'état hypertrempé et l'état 500A. Une diminution de la taille de grains semble apparaître entre l'état hypertrempé et les états 700A et 700B passant de 30 μm à environ 20 μm . Cette diminution a toutefois probablement été causée par la présence de la phase martensitique qui augmente le nombre d'interception de joints de grains. Ces valeurs doivent donc être comparées à celles obtenues grâce à d'autres méthodes de caractérisation telles que la microscopie électronique.

3.2.2 Microdureté

Afin d'évaluer le comportement mécanique des différents états métallurgiques de l'acier des mesures de dureté ont été réalisées. Les caractérisations sont réalisées par un duromètre Wilson VH3300 sous une charge de 0,01kg. La taille des empreintes est de l'ordre de 7 μm , ce qui ne permet pas de s'affranchir des effets des joints de grains sur la dureté. Cependant des charges plus faibles donnent des incertitudes trop élevées pour conclure sur la dureté du matériau. Les valeurs moyennes et écarts-type des points de filiation avec l'indent Vickers HV0,01 sont répertoriées dans le Tableau 9.

Tableau 9: Microdureté (Hv) de chaque état métallurgique

Etat métallurgique	Dureté Vickers (Hv0,01)
Hypertrempé	145 ± 3
500A	379 ± 6
700A	337 ± 3
700B	344 ± 4

La comparaison entre l'état hypertrempé et les états traités fait apparaître une nette (et attendue) augmentation de la dureté du matériau (environ multiplié par 2,5). Les laminages successifs, en provoquant l'apparition de macles mécaniques, de martensite de déformation et de dislocations, augmentent la dureté du matériau. Les traitements thermiques peuvent conduire soit à un durcissement par la précipitation soit à un adoucissement par restauration des dislocations.

D'après le tableau, l'état 700A est moins dur que l'état 500A, ce qui pourrait s'expliquer par la différence de température du traitement thermique aboutissant à une recombinaison plus importante du réseau de dislocations pour l'état 700A, la précipitation de TiC ne compensant alors probablement pas la diminution de densité des dislocations. Enfin, l'état 700B a une dureté supérieure à l'état 700A, qui peut être attribuée à un taux de laminage supérieur (20% contre 10%). La dureté de l'état 700B est en revanche inférieure à celle de l'état 500A. Le recuit à 700°C a donc, a priori, provoqué une restauration du réseau des dislocations plus importante que le recuit à 500°C ; cette baisse de densité ne semble pas avoir été compensée par le laminage à 20%.

3.2.3 Ferritométrie

Les différentes nuances ont également été analysées avec un FeritScope FMP30 de Fischer, permettant de déterminer le taux de ferrite dans le matériau. Un champ magnétique est généré par un solénoïde, et est perturbé par la ferrite présente dans le matériau ; la variation du champ magnétique permet ainsi de remonter au taux de ferrite.

Ce résultat est à nuancer, car la ferritométrie étant basée sur la mesure du magnétisme du matériau, elle ne permet pas d'analyser sélectivement une phase magnétique par rapport à une autre. De ce fait, il est impossible de différencier une valeur associée à la présence de ferrite α , δ , de la martensite α' ou ϵ . Toutefois, Talonen et al.[126] montrent que sur l'acier 304 laminé, l'utilisation du FeritScope permet une bonne mesure du taux de martensite α' , en comparant ses mesures à d'autres méthodes de caractérisation plus poussées. Le facteur correctif pour obtenir le taux de martensite α' est de 1,7, en supposant que cette phase est la seule phase magnétique en présence. Le Tableau 10 ci-contre recense pour chaque échantillon la valeur de proportion de ferrite renvoyée par le FeritScope, ainsi que la conversion en taux de martensite de déformation obtenue en appliquant la méthode citée précédemment. Pour chaque échantillon, la mesure est effectuée dix fois, pour en obtenir une moyenne et un écart-type.

Tableau 10 : Evaluation du taux de martensite de déformation dans chaque état métallurgique

Etat métallurgique	Taux de ferrite évalué (%)	Conversion en taux de martensite α' (%)
Hypertrempé	1,5 $\pm$ 0,1	2,5 $\pm$ 0,1
500A	4,8 $\pm$ 0,2	8,2 $\pm$ 0,3
700A	3,3 $\pm$ 0,3	5,5 $\pm$ 0,5
700B	10,1 $\pm$ 0,9	17,1 $\pm$ 1,5

On peut noter, au vu des résultats, que plus le laminage est important plus on génère de martensite ce qui est compatible avec les observations MEB. La comparaison des échantillons 500A et 700A montre que le taux de martensite varie de 8,2% à 5,5% pour le recuit à 500°C et celui à 700°C, respectivement. Cela peut s'expliquer par la réversion d'une partie de la martensite en austénite. En revanche, l'échantillon 700B ayant été laminé à 20% (réduction d'épaisseur totale de 36% contre 28% pour les échantillons 500A et 700A), on observe une forte augmentation de phase magnétique dans le matériau, par rapport aux autres échantillons.

3.2.4 Caractérisation de la nano-précipitation par Diffusion des Rayons X aux Petits Angles

La SAXS (Small Angle Xray Scattering ou Diffusion des Rayons X aux Petits Angles) est une technique d'analyse non destructive, qui se base sur des différences de densités électroniques pour obtenir des informations sur la microstructure d'un matériau. Celle-ci donne des informations structurales sur les objets à des échelles nanométriques (de 0,1 à 100 nm selon les matériaux), en particulier la fraction volumique de précipités, ainsi que leur distribution en taille. Pour obtenir un signal exploitable, les échantillons ont été amincis par polissage mécanique à des épaisseurs comprises entre 60 μm et 80 μm . Cette épaisseur garantit une bonne transmission des rayons X.

Les précipités diffusent les rayons X avec un certain angle, comme l'illustre la Figure 38[127]. On note alors $\vec{k}_i$ et $\vec{k}_d$ les vecteurs d'onde des rayons incident et diffusé, $\vec{q}$ le vecteur de diffusion, et θ l'angle de diffusion. Ces trois paramètres sont reliés par la formule suivante : $|\vec{q}| = |\vec{k}_i - \vec{k}_d| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$. La projection sur un écran des rayons diffusés donne un spectre de diffusion.

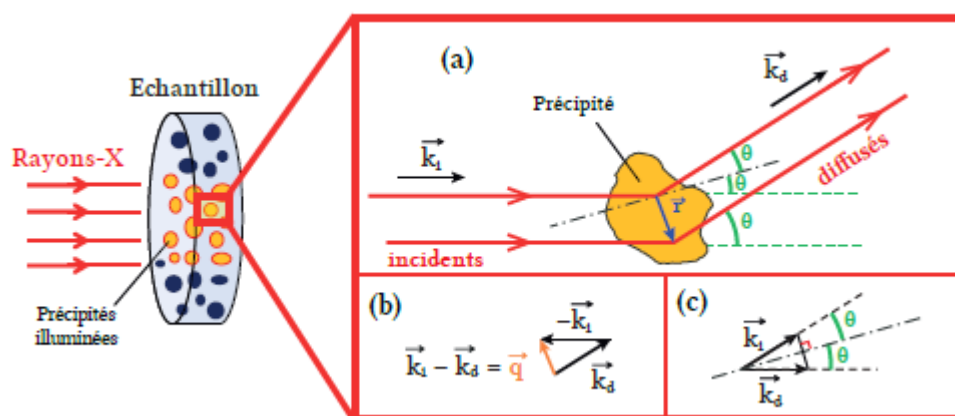


Figure 38 : Schéma de principe de la Diffusion des rayons X[127]

Les informations permettant l'analyse n'étant pas lisibles sur le spectre en deux dimensions, on intègre l'intensité selon q pour obtenir une courbe $I=f(q)$. La courbe expérimentale est modélisée par la fonction suivante :

$$I = Aq^n + \int_{r=0}^{+\infty} f(r)I_{\text{sphere}}(q, r)dr + K_L$$

Où A est le facteur de Porod, K_L est la constante de Laue et n est compris entre 3 et 4. La fonction f est un facteur de forme qui s'exprime comme une fonction log-normale, avec une dispersion de $s=0,2$, et la fonction $I_{\text{sphere}}(q, r)$ est l'intensité diffusée par une sphère de rayon r.

$I_{\text{sphere}}(q, r)$ dépend de $\Delta\rho$, la différence de densité électronique, ou contraste électronique, entre la matrice et le précipité. Chaque terme de la fonction peut être relié à une portion de la courbe comme le schématise la Figure 39[127].

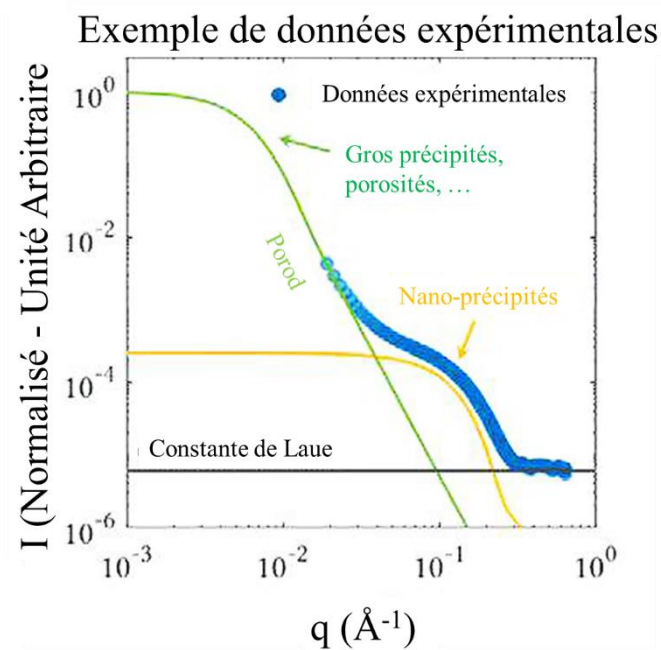


Figure 39 : Courbe expérimentale, décomposable en trois termes distincts qui apportent chacun un type d'information sur le matériau[127]

On peut de même attribuer à chaque portion de courbe, une contribution venant des éléments du matériau. La portion à grands q, caractérisée par la constante de Laue, est due à la nature des atomes constituant le matériau ainsi qu'au bruit de fond ; la portion à faible q, ou région de Porod, dépend des éléments du matériau qui diffusent peu, comme les gros précipités, les porosités, les joints de grains (contribution en q^{-4}), ainsi que les fortes densités de dislocations (contribution en q^{-3}) ; enfin la « région bombée » que l'on peut observer sur la courbe et définie par l'intégrale est la contribution des nano-précipités. Elle nous renseigne sur la distribution en taille des nano-précipités, mais aussi sur leur fraction volumique par rapport à la matrice.

Les analyses SAXS ont été obtenues au Laboratoire Interdisciplinaire sur l'Organisation Nanométrique et Supramoléculaire (LIONS) en utilisant la plateforme Xeuss 3, avec une source de rayon X au Molybdène. Les résultats de ces analyses sont présentés Figure 40 :

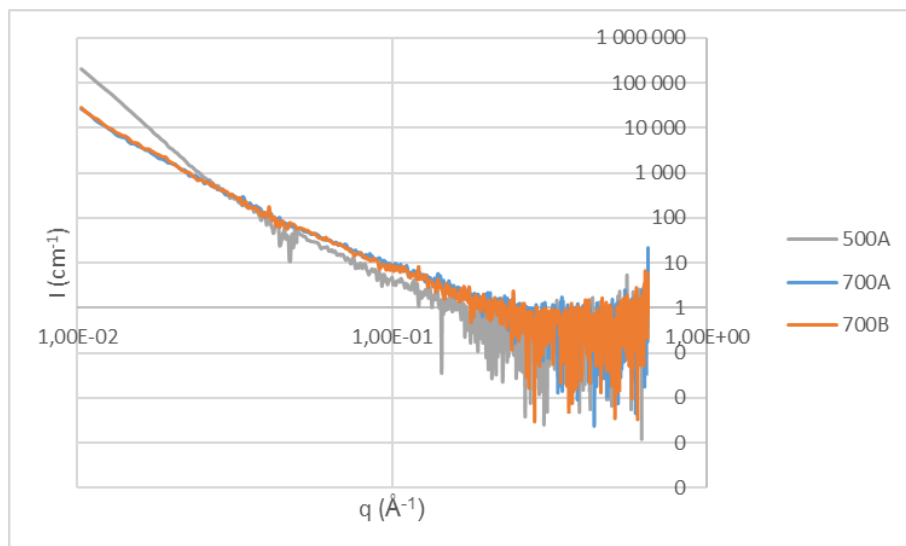


Figure 40 : Courbes de diffusion des rayons X aux petits angles pour les échantillons 500A, 700A, et 700B

Pour en réaliser l'analyse, une régression est réalisée par la méthode des moindres carrés, pour chacun des trois termes de l'équation (1). Cela permet notamment d'isoler le deuxième terme qui donne par la suite la fraction volumique ainsi que le volume des précipités. Ces régressions sont présentées Figure 41 :

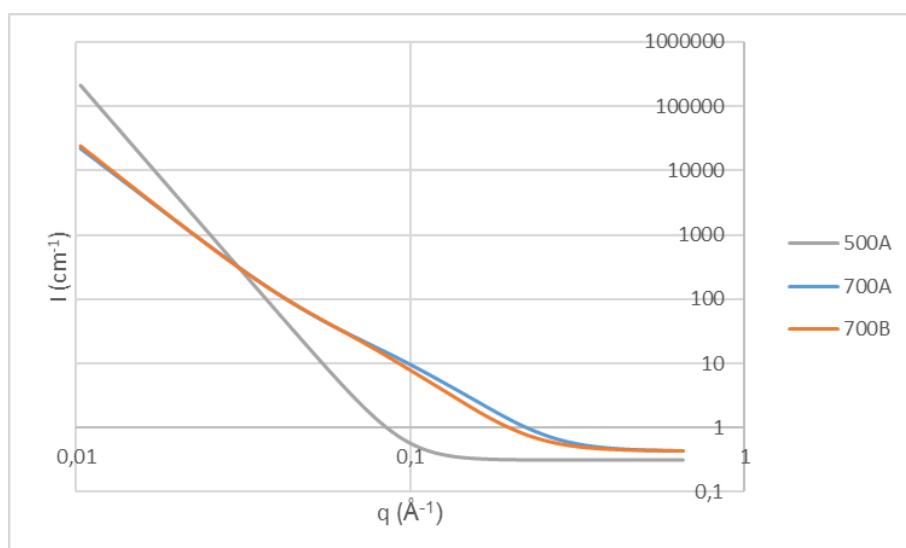


Figure 41 : Régressions des courbes de diffusion des rayons X aux petits angles pour les échantillons 500A, 700A, et 700B

L'analyse par le logiciel SASVIEW ne met pas en évidence de précipitation pour l'échantillon 500A. On trouve par cette méthode des concentrations et des tailles de précipités pour les échantillons 700A et 700B, synthétisées dans le Tableau 11. Ce dernier présente pour chacun des échantillons le rayon moyen estimé, en nm, la fraction volumique de précipités, ainsi que le nombre de précipités par unité de volume. Bien que les rayons observés aient des valeurs proches de celles constatées dans la littérature, les concentrations de précipités sont faibles car le signal enregistré ne présente pas une bosse bien résolue. Il est donc nécessaire de comparer ces résultats préliminaires aux analyses réalisées en MET.

Tableau 11 : Rayon moyen, fraction volumique et concentration des précipités extraits grâce aux courbes SAXS

Echantillon	Rayon estimé (nm)	F _v (%)	Densité de précipités(m ⁻³)
500A	Pas de précipité mis en évidence par l'analyse		
700A	8,7	0,98	3,6.10 ²¹
700B	10,1	0,70	1,6.10 ²¹

Précisons les hypothèses faites pour l'analyse SAXS : une seule population de précipités est considérée, de chimie fixée au préalable, de forme sphérique, et dont la distribution en taille suit une loi log-normale. Cela permet d'obtenir des paramètres moyens sur la précipitation.

3.2.5 Caractérisation de la solution solide par mesure du Pouvoir ThermoElectrique

La mesure du Pouvoir ThermoElectrique (PTE ; en $\mu\text{V}/^\circ\text{C}$) est une méthode de caractérisation qui exploite l'effet Seebeck qui relie un gradient de température à un gradient de tension. Pour exploiter cette propriété il s'agit de maintenir les extrémités d'un échantillon à deux températures différentes. Cette différence de température induit une différence de potentiel électrique, qui est caractéristique du matériau. L'évolution de cette différence de potentiel renseigne sur les changements de composition de la solution solide du matériau. Il a été choisi de réaliser ces analyses PTE sur des échantillons différents des échantillons irradiés, à savoir :

- Un échantillon non-écroui et non-recuit (analogue à l'échantillon hyperechauffé de l'étude)
- Un échantillon écroui (laminage à 20% de réduction) et non-recuit
- Un échantillon non-écroui et recuit à 700°C pendant 30 min
- Un échantillon écroui et recuit à 700°C pendant 30 min (analogue à l'échantillon hyperechauffé de l'étude)

Ce choix a été fait dans le but de pouvoir comparer l'effet d'un traitement thermique sur les échantillons écroui et non-écroui. En particulier, la précipitation n'est pas la même pour ces deux échantillons et cette expérience vise à évaluer l'influence du laminage sur la solution solide après le traitement de recuit.

Le PTE est aussi sensible à plusieurs autres paramètres comme la quantité de dislocations dans la matrice, la précipitation, la formations de phases différentes, ou encore la géométrie de l'échantillon, les valeurs mesurées doivent donc être interprétées avec précaution. En particulier, la SAXS, la microdureté, le ferritomètre et la microscopie électronique sont utiles pour mettre en perspective les résultats du PTE. Le PTE étant caractéristique de la solution solide, il est également prévu de le comparer aux résultats SAT, qui permettent une résolution fine de la composition chimique du matériau.

Pour cette caractérisation l'équipement utilisé est un analyseur du PTE de TechLab. Les échantillons utilisés sont des plaquettes de $3 \times 1 \times 0,1 \text{ cm}^3$. Les températures des électrodes sont respectivement de 15°C et 25°C , et la température de la pièce de $20,5^\circ\text{C}$. Le PTE étant une valeur relative, on considère le PTE du cuivre comme valeur de référence, fixé à $0 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$. Les valeurs trouvées pour différents états métallurgiques tout au long de la gamme de traitement thermomécanique sont données ci-après :

Tableau 12 : Valeurs de PTE ($\mu\text{V}/^\circ\text{C}$) obtenues pour différents états métallurgiques

	Pas de recuit	Recuit 700°C 30 minutes
Non-écroui	$-2,82 \pm 0,01 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$	$-2,74 \pm 0,01 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$
Ecroui 20%	$-2,36 \pm 0,01 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$	$-2,55 \pm 0,01 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$

On peut constater qu'un traitement thermique simple fait augmenter la valeur du PTE de $0,08 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$ par rapport à l'état hypereutectique (non-écroui et non recuit), mais moins que l'écrouissage, qui, dans le cas de l'échantillon écroui non recuit, augmente la valeur du PTE de $0,46 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$. On peut conclure que le traitement thermique étant de courte durée, il ne permet pas une forte précipitation, d'autant plus que la faible densité de dislocations des états non-écrouis a pour conséquence qu'il y a peu de sites de germination hétérogène.

L'état écroui puis recuit renvoie une valeur de PTE intermédiaire ($-2,55 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$). Il est difficile de comparer cette valeur aux autres, étant donné que plusieurs transformations ont eu lieu. D'une part, la précipitation de carbures de type MC sur les dislocations, et de type M_{23}C_6 aux joints de grains, est supposée faire diminuer la valeur absolue du PTE[128]. D'autre part, le traitement thermique provoque la restauration d'une partie du réseau de dislocations, et doit donc faire augmenter la valeur absolue du PTE. Enfin, certaines phases comme la martensite de déformation ou de la ferrite peuvent apparaître lors des traitements mécaniques et thermiques, et leur influence sur le PTE est alors difficile à déterminer.

3.3 Evolution des microstructures suite à l'irradiation (MEB, MET, SAT)

3.3.1 Présentation des techniques de microscopie électronique utilisées pour caractériser l'évolution de la microstructure des échantillons d'acier 321 lors de l'irradiation

3.3.1.1 MEB

Le Microscope Electronique à Balayage (MEB) est un instrument dont le principe consiste à balayer un échantillon avec un faisceau d'électrons accélérés à une tension de quelques dizaines de kV. Lors du balayage, au niveau de la « poire d'interaction » entre le faisceau et le matériau, représentée sur la Figure 42, il y a émission de différents rayonnements. Grâce à des systèmes de détection adaptés, ils permettent d'obtenir un panel d'informations sur l'échantillon.

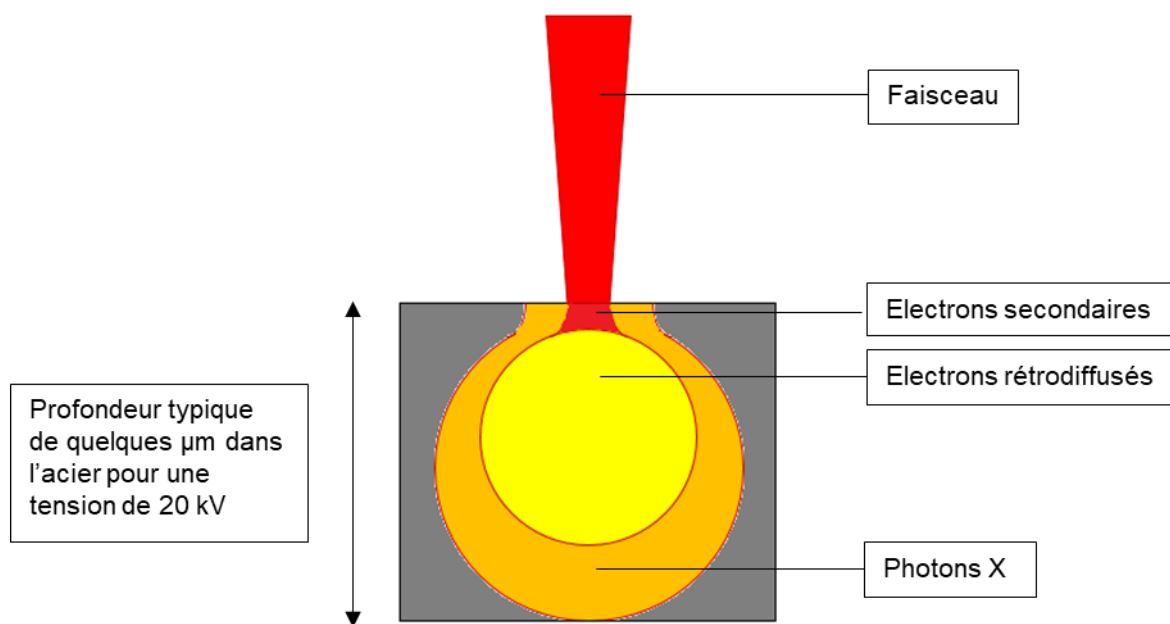


Figure 42 : Poire d'interaction schématique entre le faisceau et le matériau

En premier lieu, les électrons rétrodiffusés sont issus d'une interaction élastique avec le noyau d'un atome du matériau. Ils sont fortement déviés de leur trajectoire initiale et perdent peu d'énergie. Ils permettent donc de sonder une profondeur de l'ordre de 100 nm à 1 μm . Leur trajectoire est dépendante, non seulement de l'état de surface, mais aussi de la composition chimique du matériau. L'imagerie en électrons rétrodiffusés (BackScattered Electrons ou BSE) permet d'observer des contrastes de composition chimique. Il est possible d'exploiter la diffraction d'électrons rétrodiffusés (ou Electron Back Scattered Diffraction ou EBSD) afin d'obtenir des informations sur la texture locale de l'échantillon. L'échantillon est incliné de manière à ce que sa surface réalise un angle de 70° avec le faisceau. Les électrons

sont alors diffractés par le réseau cristallin. Le cliché de diffraction est ensuite enregistré à l'aide d'un écran fluorescent, et peut être comparé à des clichés de diffraction déjà tabulés afin d'en déduire la phase diffractante et son orientation. Les cartographies EBSD présentes dans ce manuscrit ont été réalisées sur un MEB Zeiss Sigma, avec une tension d'accélération de 20 kV (spot size 1). Les clichés ont été retraités selon la méthode du Dictionary Indexing développée au laboratoire par C. Lafond (voir Annexe 2 [129]). Pour calculer les tailles de grains, il a été considéré qu'une désorientation supérieure à 15° marque un changement de grains.

L'imagerie en électrons secondaires exploite non pas les électrons issus du faisceau, mais ceux émis par l'échantillon suite à l'impact des électrons du faisceau. Ils sont produits à une profondeur très faible (quelques nm), et leur énergie est essentiellement dépendante de l'angle entre le faisceau et la surface de l'échantillon. Par conséquent, l'imagerie SE (pour Secondary Electrons) est particulièrement utile pour l'analyse de l'état de surface de l'échantillon. Pour cette étude, les clichés en électrons secondaires ont été obtenus avec un détecteur InLens, et réalisés avec une tension de 20kV (spot size 1), une résolution de 12288x9216 et un grossissement tel que le pixel size image pour chaque cliché soit toujours de 6,203nm.

Enfin, l'Energy Dispersion Spectroscopy (ou EDS) est une méthode d'analyse réalisée au MEB visant à recueillir les rayons X issus de la désexcitation des électrons des atomes constitutifs de la matière étudiée. Ces rayons X ont une énergie qui est connue et caractéristique de l'atome dont ils proviennent. Cette méthode permet ainsi de caractériser qualitativement, voire quantitativement selon l'appareil, la chimie de l'échantillon. Ces photons X sont générés à une profondeur pouvant aller jusqu'à quelques microns.

3.3.1.2 MET

La Microscopie Electronique en Transmission (MET), de son côté, consiste, non pas à étudier les électrons dispersés par l'échantillon, mais le faisceau transmis au travers d'un échantillon très fin. Les échantillons sont percés par électropolissage, pour que les bords du trou soient d'une épaisseur de l'ordre de 100 nm. Cela permet d'observer des éléments microstructuraux de plus petite taille que ceux observés au MEB. En particulier, il devient possible d'observer des précipités de diamètres de l'ordre de quelques nanomètres, ainsi que les dislocations dans les conditions adéquates.

La Figure 43 présente le fonctionnement schématisé du microscope. Lors de la transmission du faisceau au travers de l'échantillon, le réseau cristallin fait diffracter les électrons selon certaines directions. Après concentration des faisceaux transmis et diffractés, on observe dans le plan focal image le cliché de diffraction. Il est caractéristique de l'orientation des plans cristallins étudiés. Il est aussi possible de réaliser des observations dans le plan image, ce qui permet de voir tous les objets présents dans une certaine épaisseur.

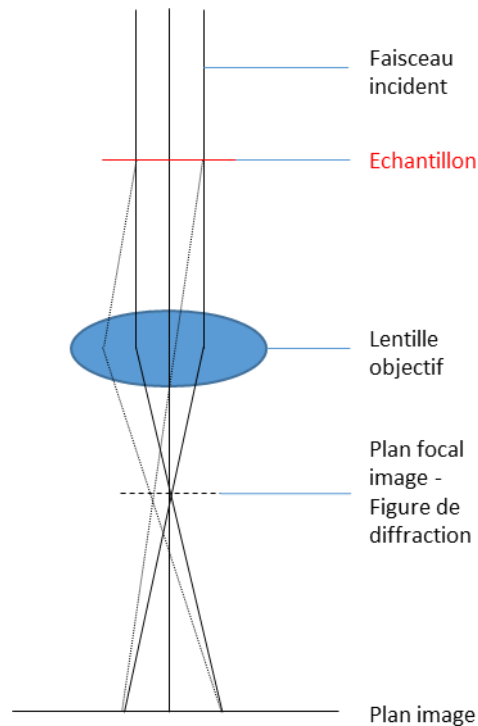


Figure 43 : Principe de l'imagerie avec un Microscope Electronique en Transmission

D'autres techniques expérimentales sont utilisables. Il est possible de faire du STEM (Scattering Transmission Electronic Microscopy), à savoir faire balayer le faisceau sur une zone pour en obtenir une image. Couplé au STEM, la technique d'EDS est aussi disponible, selon le même principe de fonctionnement qu'en MEB. Cela permet d'obtenir une information chimique très précise. Enfin l'EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy) permet, en analysant la perte d'énergie des électrons transmis, d'accéder à d'autres paramètres, entre autres l'épaisseur de la zone étudiée. Ceci est particulièrement important pour les calculs de densités d'objets dans une zone.

3.3.2 Caractérisation des échantillons irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV en imagerie MEB-SE

Les premières observations des microstructures sont extraites des clichés MEB en électrons secondaires qui seront utilisés comme donnée d'entrée par la méthode MEB-IA (qui sera présentée au Chapitre 4 :, qui exploite des clichés de haute qualité et permettra par la suite de compter les cavités créées sous irradiation. La Figure 44 présente des clichés des échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, c) 700B-IRR550 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV.

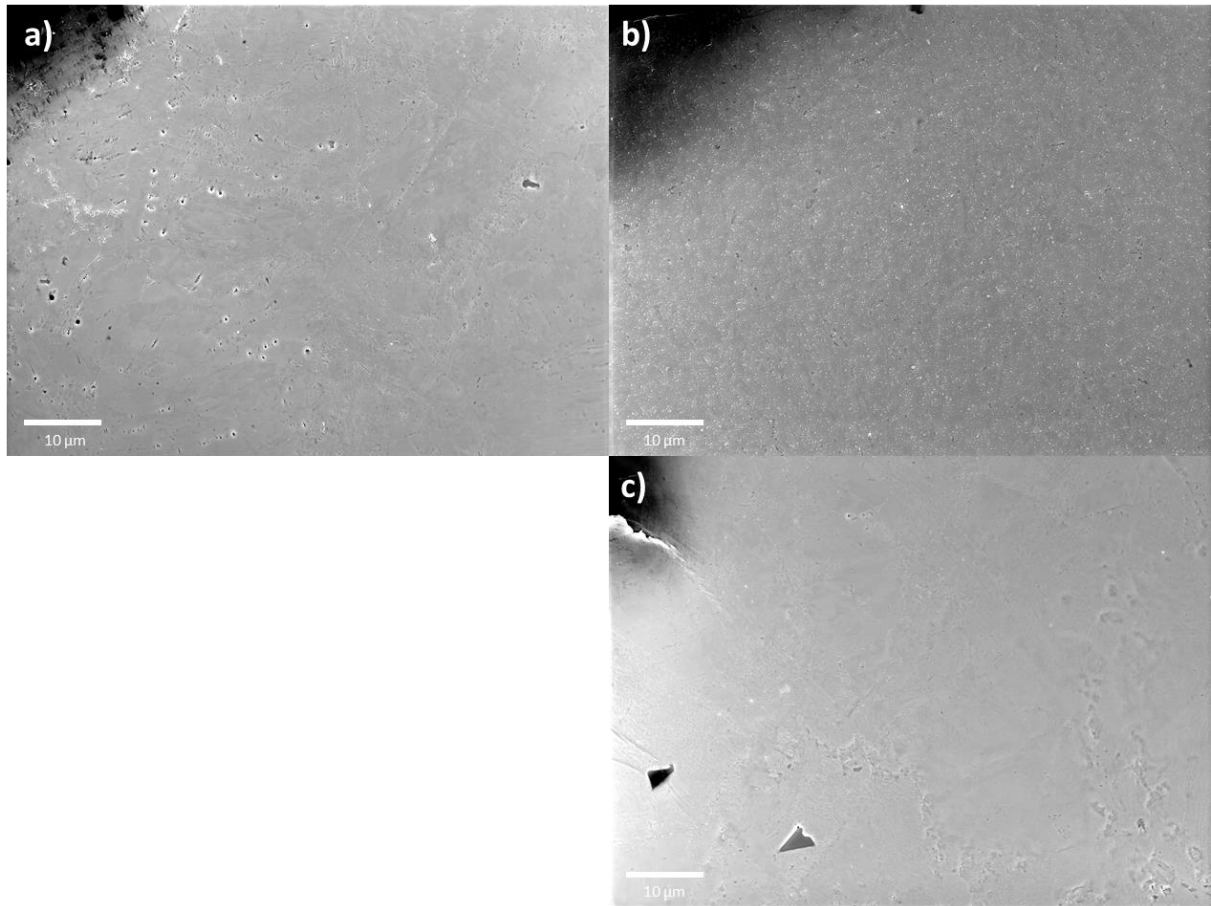


Figure 44 : Clichés MEB-SE des échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, c) 700B-IRR550 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 550°C

La Figure 45 présente les échantillons a) hyperefflué, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV. L'identification d'éléments de microstructure, sur ces clichés n'est pas aisée mais la zone étudiée permettra le calcul du gonflement. Le grandissement des clichés est également comparable au grandissement des clichés EBSD réalisés par la suite pour apprécier les changements cristallographiques liés aux irradiations.

A l'exception de l'échantillon hyperefflué irradié à 600°C les cavités sont peu présentes. Dans les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 les clichés montrent des zones à petits grains (de l'ordre du μm), dans lesquelles il est difficile de comptabiliser des cavités. Ces zones (encadrées en rouge sur la Figure 45) sont notables sur la Figure 46, qui présente des agrandissements des clichés MEB-SE des échantillons irradiés à 600°C.

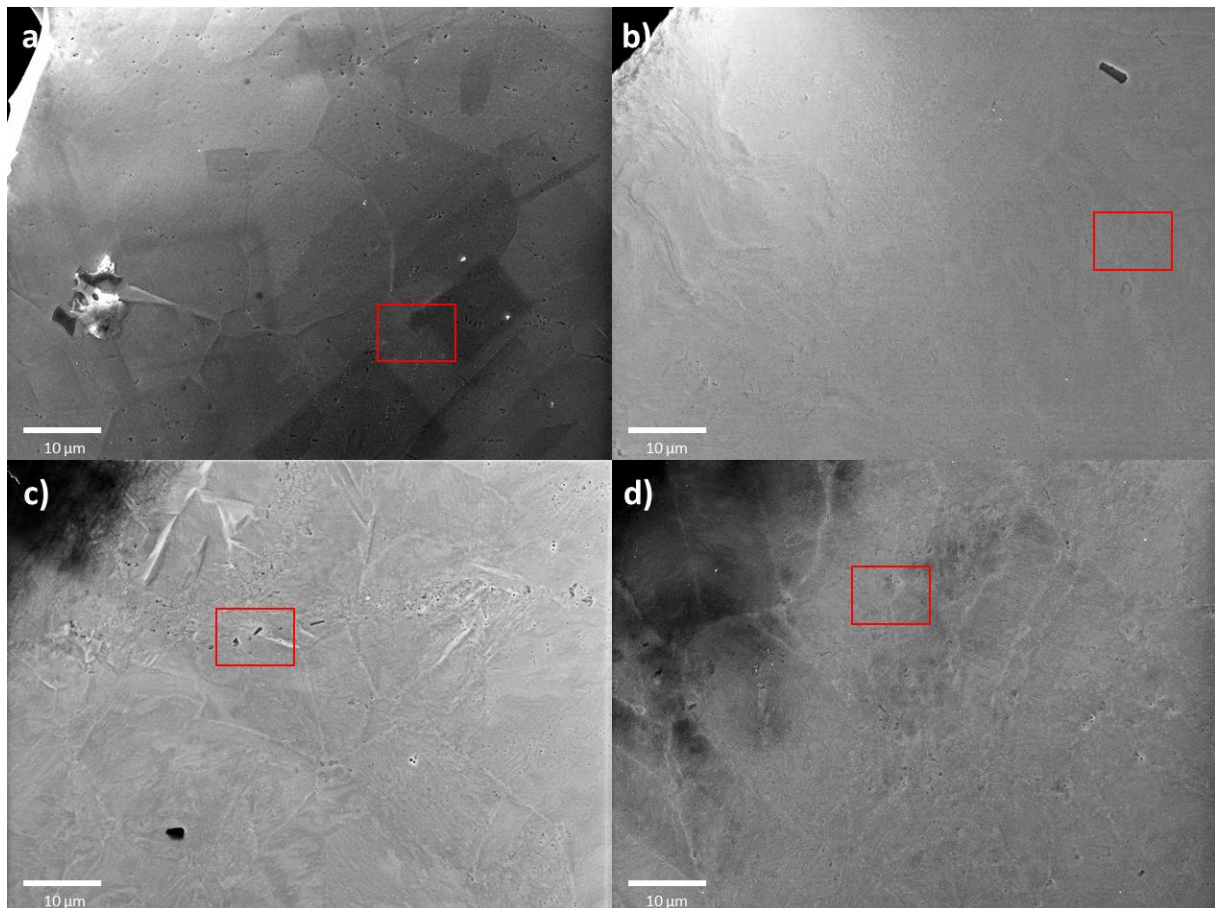


Figure 45 : Clichés MEB-SE des échantillons a) hypertrempé, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C ; les zones encadrées en rouge sont représentées Figure 46

D'autres éléments, tels que des porosités, ainsi que des précipités, sont également observés. Sur ces figures, plusieurs éléments sont indiqués : les flèches rouges désignent les cavités, les flèches vertes des précipités (de chimie inconnue car trop petits pour la résolution de l'EDS), et des porosités, dont le contraste ne correspond pas à des cavités, sont pointées par des flèches bleues. Ces dernières pourraient être dues à des déchaussements de précipités lors du polissage.

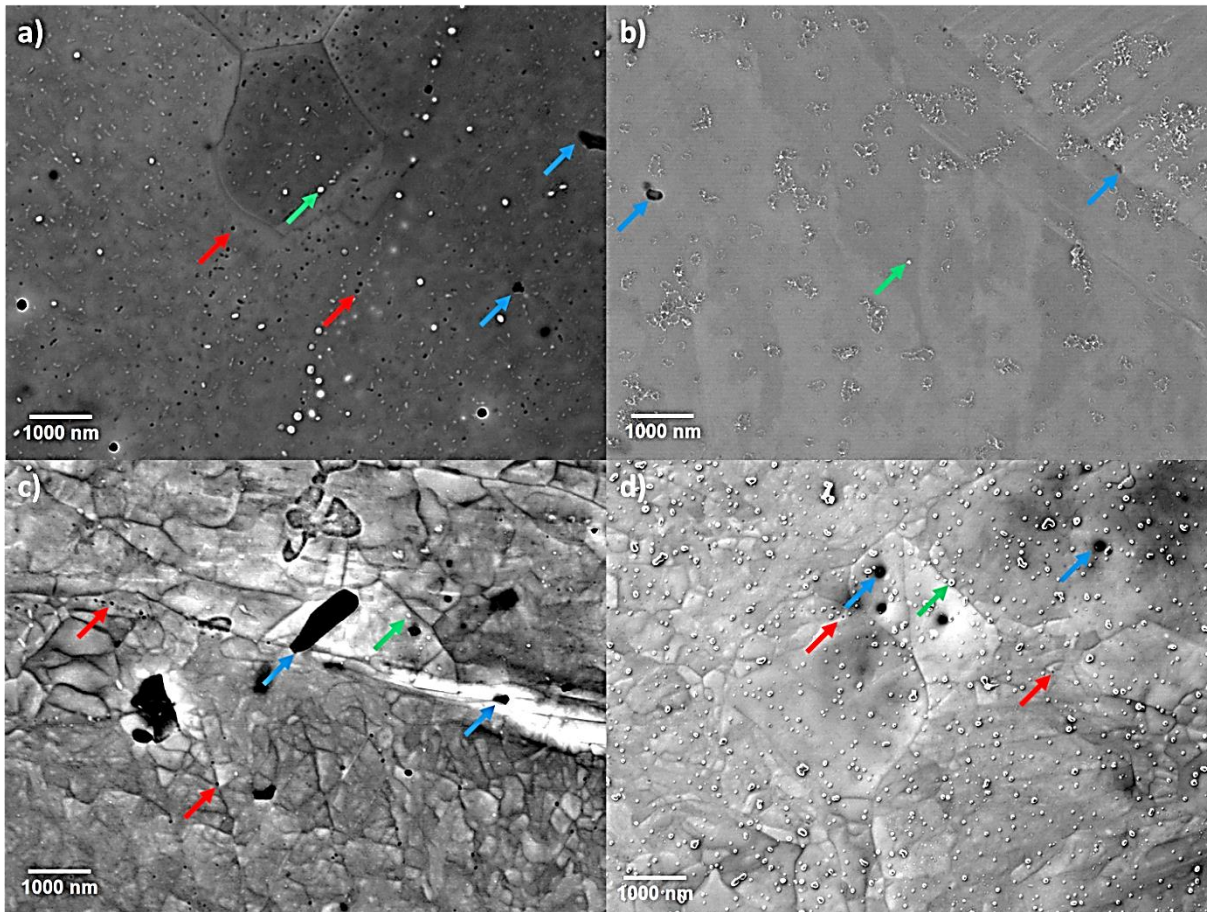


Figure 46 : Clichés MEB-SE zoomés des échantillons a) hyperefflué, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C ; les cavités sont indiquées par des flèches rouges, les précipités par des flèches vertes, et les porosités par des flèches bleues.

L'échantillon 500A-IRR600 est celui pour lequel les cavités sont le moins visibles. Ces dernières sont repérables dans les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 quoiqu'en moins grand nombre, plus petites, et plus difficiles à distinguer que dans l'échantillon hyperefflué. De plus dans les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600, nombre de ces cavités sont observables aux joints de grains dans les zones à petits grains.

3.3.3 Caractérisation des échantillons en imagerie MEB-EBSD

L'imagerie MEB-EBSD utilise la diffraction des électrons rétrodiffusés. Cela permet d'obtenir des cartographies des figures de pôles inverses (Inverse Pole Figure, ou IPF en anglais) qui renseignent sur l'orientations des grains constituant le matériau, ou bien des cartographies de phases qui peuvent donner des indications sur les potentiels changements de phase ayant cours lors de l'irradiation.

3.3.3.1 Caractérisation des échantillons non-irradiés

La Figure 47 présente les cartographies EBSD en figures de pôles inverses selon l'axe Z, ou Inverse Pole Figure Z (IPF-Z) de l'état hypertrempé (Figure 47 a)) ainsi que des états traités thermomécaniquement (Figure 47 b) 500A, c) 700A, et d) 700B). Elle est complétée par la Figure 48, qui représente l'IPF-X, l'IPF-Y, et l'IPF-Z de l'échantillon 500A.

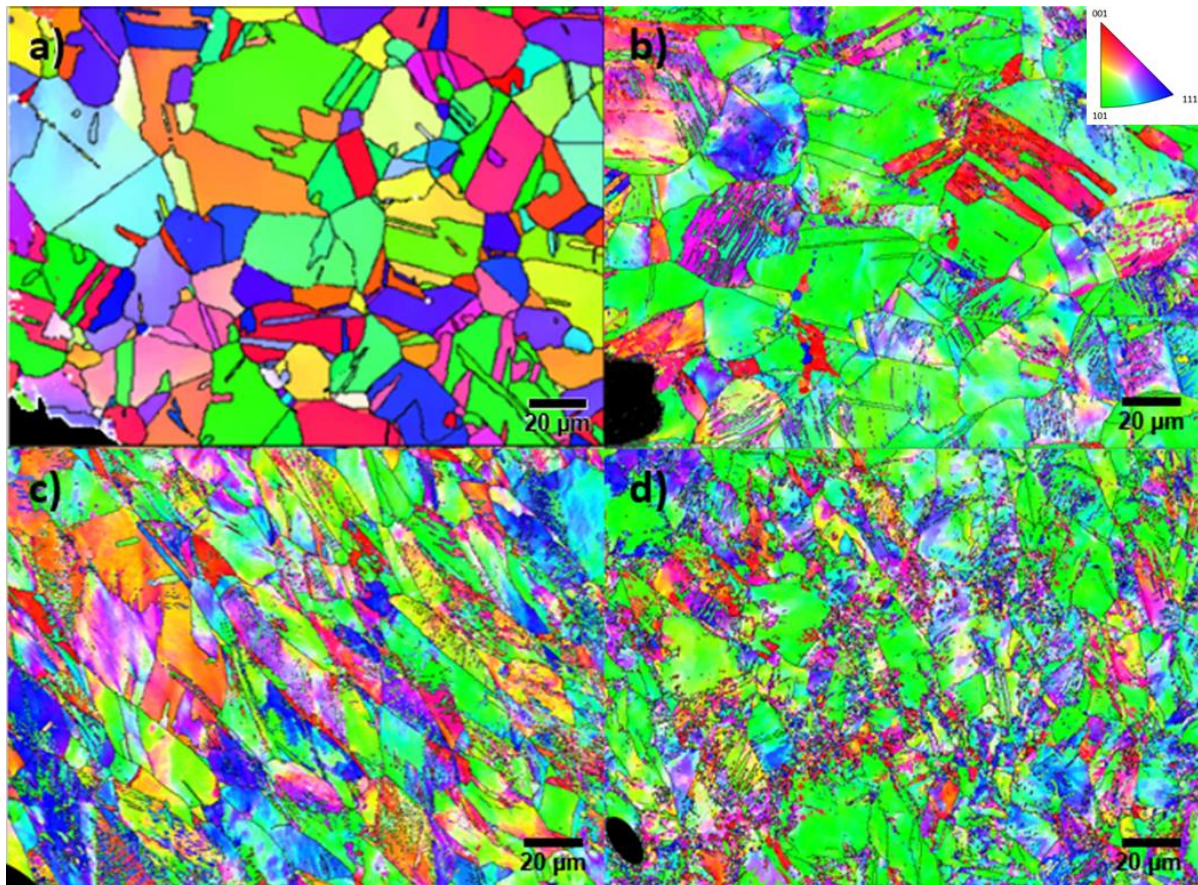


Figure 47 : Cartographies IPFZ des échantillons d'acier 321 a) hypere trempé, b) 500A, c)700A, et d)700B

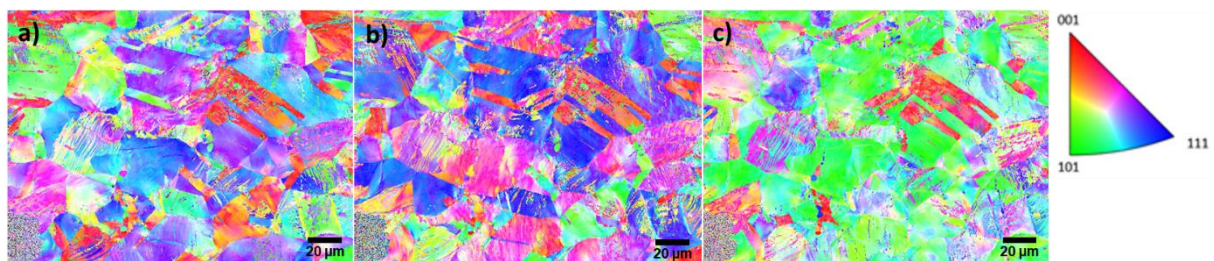


Figure 48 : Figures de pôles inverses en a) X, b) Y, c) Z de l'échantillon 500A

L'analyse MEB permet de mettre en évidence des grains plus petits que ceux observés par microscopie optique mais met en évidence également les grains de martensite, plus petits que ceux d'austénite. La surface examinée est considérablement plus faible que pour les échantillons observés en métallographie. Enfin, la déformation intra-granulaire due aux traitements de laminage ajoute à l'incertitude sur la taille de grains (distinction entre grains et sous-grains). Les tailles de grains obtenues sont récapitulées dans le Tableau 13 :

Tableau 13 : Comparaison des tailles de grains évaluées par la méthode d'interception des joints de grains, et par MEB

Etat métallurgique	Intercepts - Taille de grains (μm)	MEB - Taille de grains (μm)
Hypertrempé	$30,7 \pm 6,4$	$36,3 \pm 13,3$
500A	$34,4 \pm 5,0$	$52,2 \pm 5,9$
700A	$21,5 \pm 4,3$	$44,4 \pm 7,3$
700B	$19,4 \pm 2,2$	$25,0 \pm 4,9$

Concernant les échantillons hypertrempés, les deux méthodes donnent des résultats similaires, de l'ordre de 30-36 μm . Pour les échantillons 500A et 700A, en revanche, la méthode des intercepts renvoie des valeurs de tailles de grains plus faibles de 20 μm (35 à 50% de différence relative). Cette incohérence rend difficile l'appréciation juste de la taille de grains de ces échantillons. Les effets de l'écrouissage pourraient être responsables d'une erreur d'appréciation des tailles de grains, nous n'avons pas par ailleurs repéré des indices de recristallisation. Notons que la simple observation des cartographies EBSD de la Figure 47 indique qu'il n'y a pas de différence majeure de taille de grains entre les différents échantillons.

On observe néanmoins une plus faible taille de grains pour l'échantillon 700A par rapport à l'échantillon 500A, selon les deux méthodes. Pour les échantillons recuits à plus haute température on s'attend à une augmentation de la taille de grains, contrairement à ce qui est observé. La diminution de la taille de grains pourrait alors être due à la précipitation dans l'échantillon 700A. La littérature indique en effet que les précipités de type MC épingleraient les joints de grains empêchant ainsi la croissance des grains[130], [131].

3.3.3.2 Caractérisation des échantillons irradiés

Des cartographies en IPF-Z sont également obtenues sur les échantillons irradiés. La Figure 49 présente les échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, et c) 700B-IRR550, et la Figure 51 présente les échantillons a) hypereffé, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600. De même que pour les échantillons non-irradiés l'IPF-X, l'IPF-Y, et l'IPF-Z des échantillons 500A-IRR550 et 500A-IRR600 sont représentés. Sur chacune des micrographies, on observe de la déformation intra-granulaire due aux traitements de laminages subis par les différents échantillons. En particulier, on observe peu cette déformation intra-granulaire dans la micrographie de l'échantillon hypereffé irradié à 600°C.

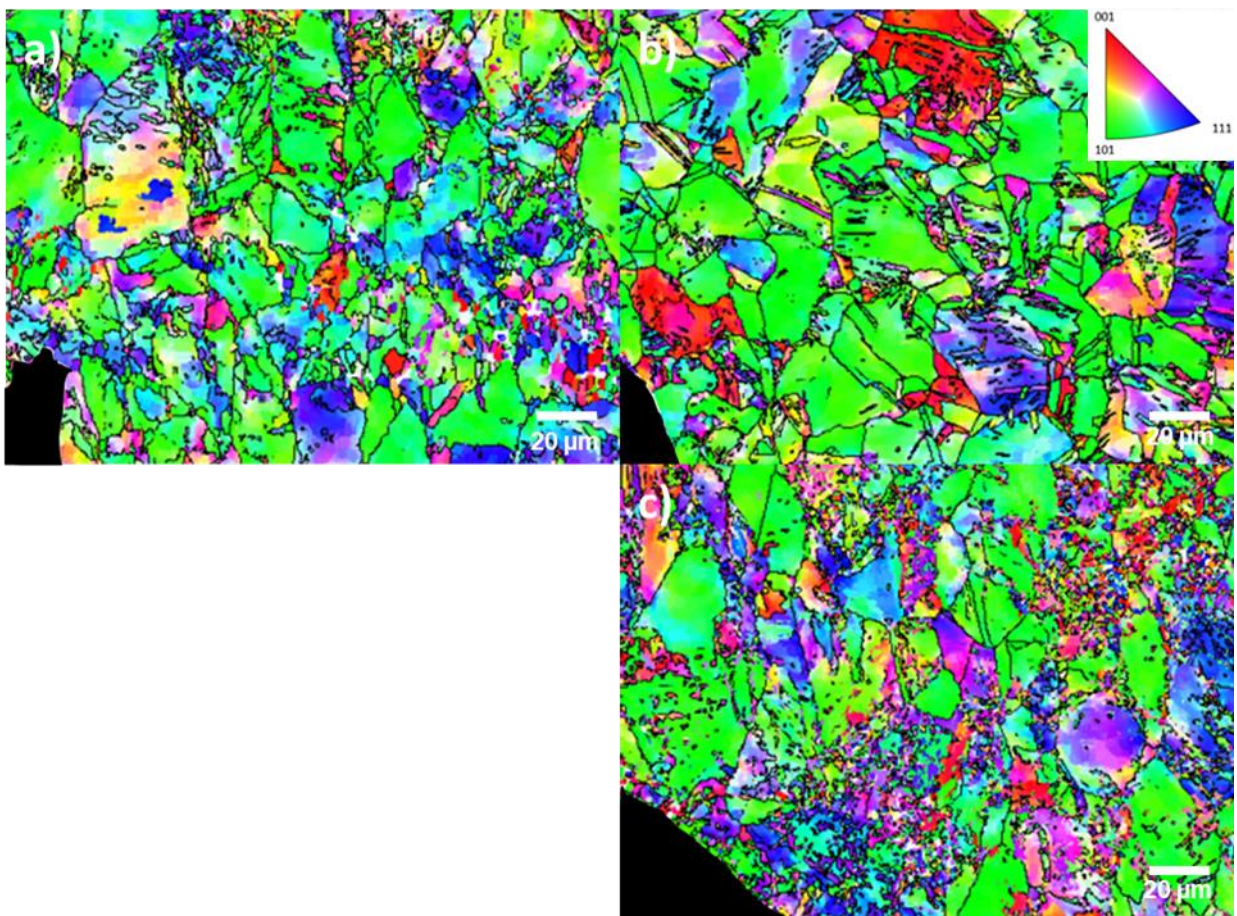


Figure 49 : Cartographies IPFZ des échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, et c) 700B-IRR550, irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 550°C

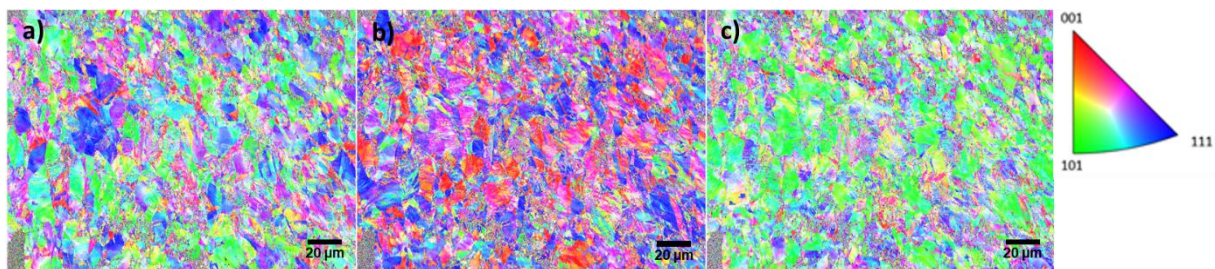


Figure 50 : Figures de pôles inverses en a) X, b) Y, c) Z de l'échantillon 500A-IRR550

Les échantillons, laminés dans la direction x, présentent une texture : la normale des plans cristallographiques [101] a tendance à être colinéaire avec la normale au plan de l'échantillon (direction z). Les cartographies mettent également en évidence des zones à petits grains, encadrées en rouge, également observées sur les images MEB-SE des échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600. Les cartographies d'identification de phase ou pourraient déterminer si ces petits grains correspondent à de la formation de martensite ou à un potentiel phénomène de recristallisation.

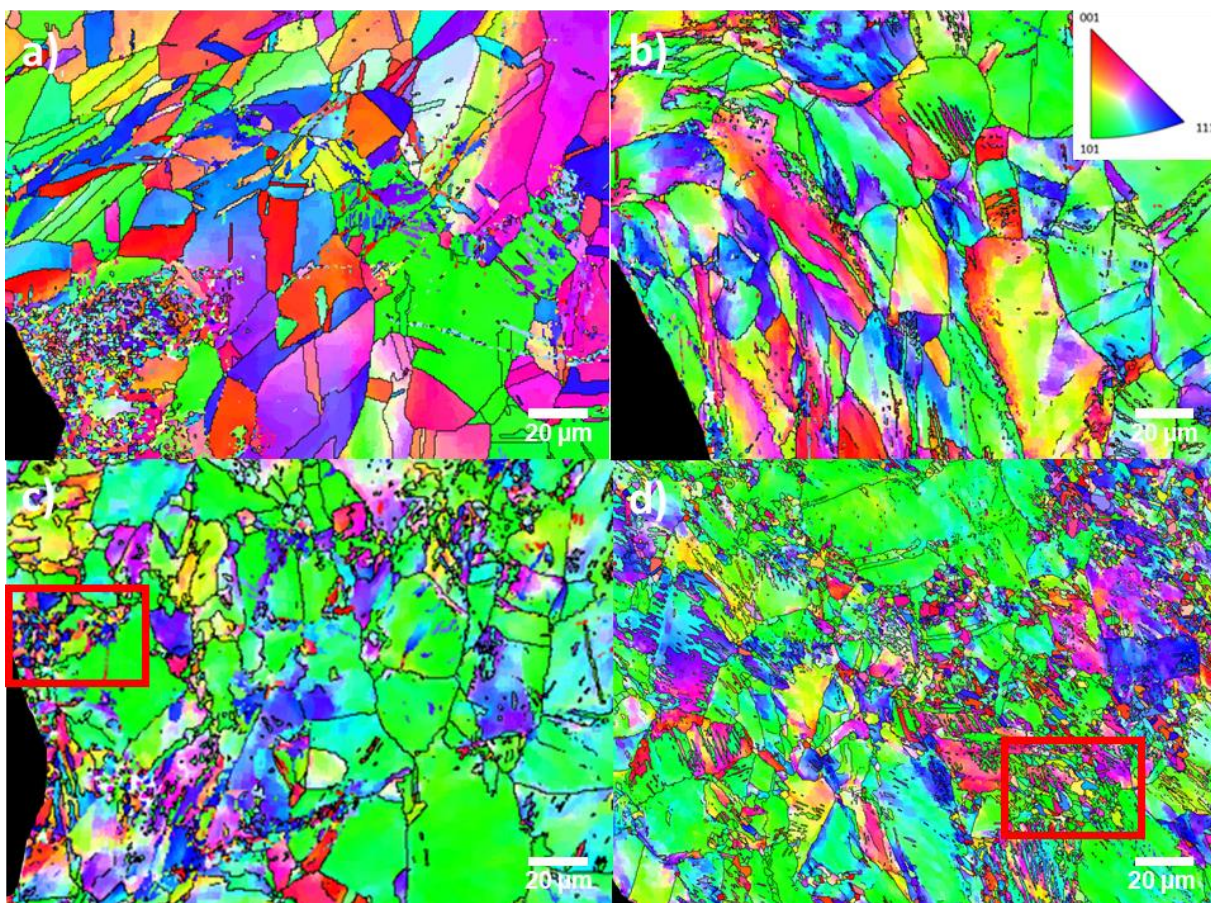


Figure 51 : Cartographies IPFZ des échantillons a) hypereutectic, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600, irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C

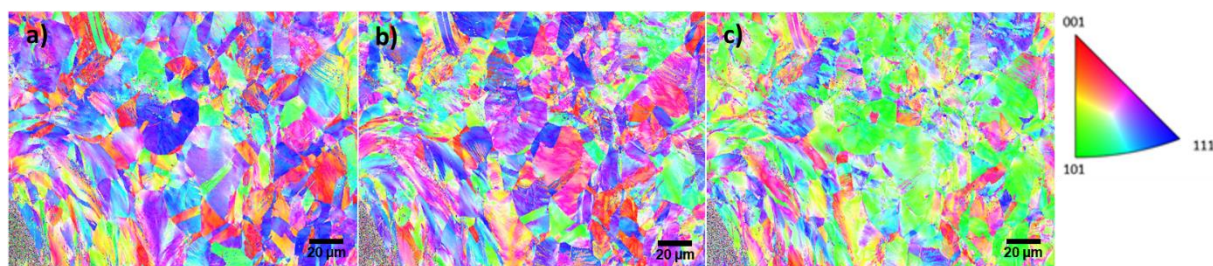


Figure 52 : Figures de pôles inverses en a) X, b) Y, c) Z de l'échantillon 500A-IRR600

Ces clichés permettent de comparer les tailles de grains à celle des échantillons non-irradiés. Le Tableau 14 répertorie les tailles de grains de chaque échantillon, non-irradié, irradié à 550°C, et irradié à 600°C. La taille de grains des échantillons non-irradiés est celle obtenue par la caractérisation MEB.

Tableau 14 : Tailles de grains obtenues au MEB pour les différents échantillons, non-irradiés et irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 550°C et 600°C.

Taille de grains (μm)			
Etat métallurgique	Non-irradiés	Irradiés 550°C	Irradiés 600°C
Hypertrempé	$36,3 \pm 13,3$	-	$61,8 \pm 9,8$
500A	$52,2 \pm 5,9$	$17,9 \pm 4,0$	$32,5 \pm 6,7$
700A	$44,4 \pm 7,3$	$34,3 \pm 7,0$	$38,0 \pm 7,0$
700B	$25,0 \pm 4,9$	$19,9 \pm 3,8$	$22,1 \pm 3,4$

Ainsi l'échantillon hypertrempé a subi une augmentation importante de sa taille de grains après la campagne d'irradiation à 600°C. La taille moyenne de grains de $36,3 \mu m$ avant irradiation est passée à $61,8 \mu m$ après irradiation. Cette augmentation semble trop importante et demeure inexpliquée, surtout au vu des résultats concernant l'échantillon 700B, dont la taille de grains reste stable après les deux campagnes.

Pour les autres échantillons hormis le 700B, une diminution de la taille de grains est observée après irradiation, ce qui serait causé par la présence des petits grains observés en MEB-SE. La présence de ces derniers doit être précisée par l'analyse des cartographies de phases, afin de déterminer s'il s'agit d'austénite, ou bien d'une phase cc. Pour les échantillons 700A et 700B, la taille de grains ne semble pas présenter de différence significative entre les campagnes d'irradiation. La taille de grains de l'échantillon 500A-IRR550 est sensiblement plus faible que pour le même échantillon irradié à 600°C.

Outre les cartographies en IPF-Z, l'analyse par EBSD permet d'obtenir des cartographies indiquant les phases en présence dans le matériau. Par ailleurs, les cartographies de contraste de bande indiquent avec un niveau de gris la qualité du cliché de diffraction obtenu. Pour chacune des cartographies représentées ici le contraste de phase est superposé avec le contraste de bande, ce dernier permettant également de visualiser les joints de grains.

3.3.3.3 Caractérisation des phases dans les échantillons non-irradiés

Sur les cartographies de phases présentées Figure 53, on observe la présence de phases cc dont il est possible d'évaluer une proportion surfacique. On peut noter la présence de pixels identifiés comme étant de la phase cc dans l'échantillon hypertrempé. Ils sont cependant assez épars et il est possible qu'il s'agisse d'artefacts.

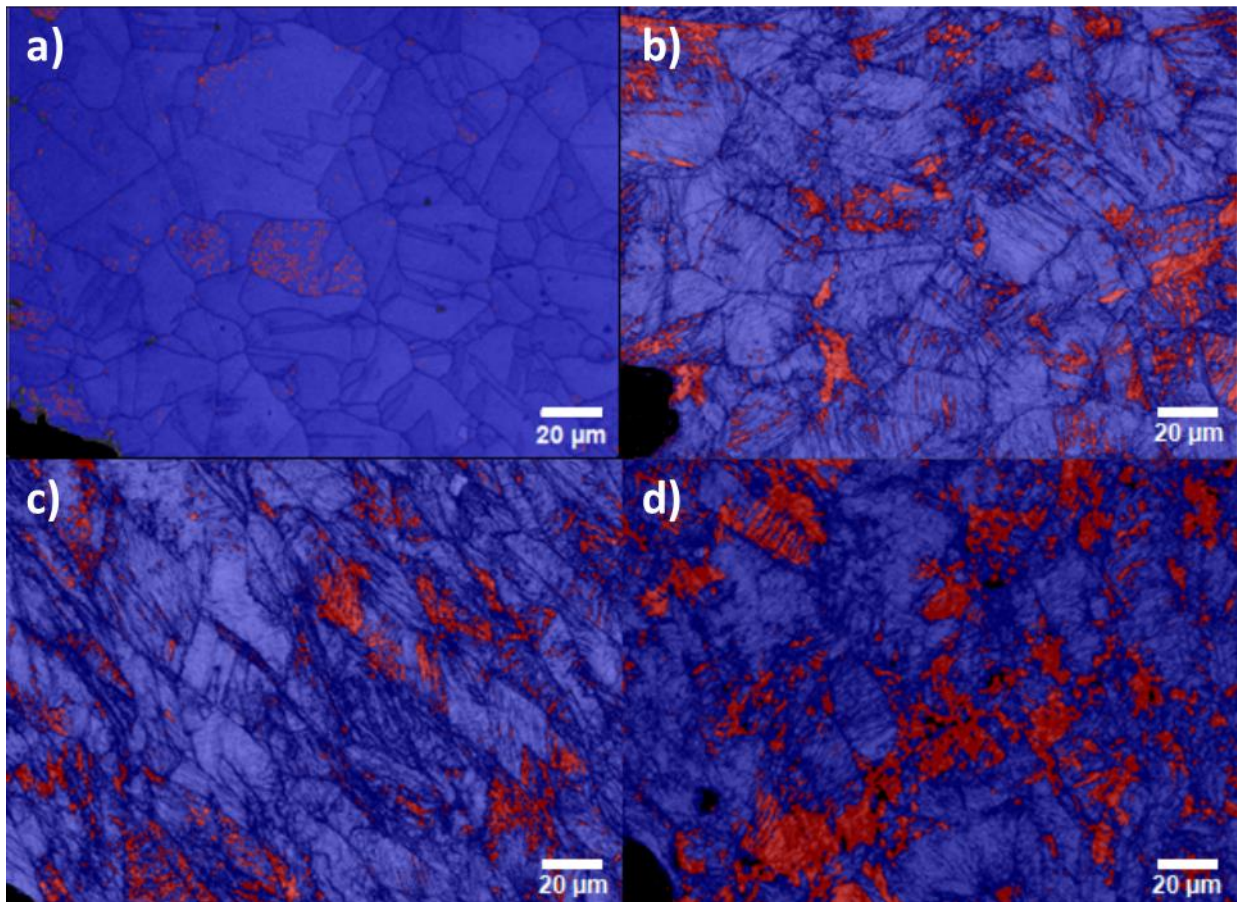


Figure 53 : Contraste de phase des échantillons a) hypertrempé, b) 500A, c) 700A, d) 700B, non-irradiés

Les résultats de la proportion surfacique de phase cc sont donnés dans le Tableau 15 et, on peut noter des valeurs comparables à celles obtenues avec le Feritscope avec des valeurs toutefois supérieures de quelques pourcents (exception faite de l'échantillon hypertrempé) obtenues par MEB. Cela tend à montrer que la phase cc identifiée au MEB est essentiellement de la martensite de déformation α' (structure quadratique centrée), et que sa proportion est avant tout déterminée par le taux de laminage. Le FeritScope permet ainsi de déterminer une approximation de la quantité de phase cc. On observe cependant des écarts importants sur certaines mesures, notamment concernant l'échantillon 700A. Cela peut être dû au fait que l'analyse MEB ne s'attache à caractériser qu'une tranche du matériau, alors que le FeritScope sonde une épaisseur de l'ordre de 2 mm.

Tableau 15 : Proportion surfacique de phase cc et taux évalués au FeritScope

Etat métallurgique	Proportion surfacique de cc (MEB)	Conversion en taux de martensite α' (%) (FeritScope)
Hypertrempé	1,3%	$2,5 \pm 0,1$
500A	12,5%	$8,2 \pm 0,3$
700A	12,2%	$5,5 \pm 0,5$
700B	21,4%	$17,1 \pm 1,5$

3.3.3.4 Caractérisation des phases dans les échantillons irradiés

Après irradiation, on observe dans certains cas particuliers des zones de petits grains faiblement déformés. Ce phénomène concerne les nuances 700A-IRR600 et 700B-IRR600 et est observable sur la Figure 54 qui présente les cartographies de similarité d'orientation (Orientation Similarity Map ou OSM). Ce type de cartographie est novatrice et permet de représenter une cartographie EBSD en niveaux de gris en fonction de la similarité d'orientation d'un pixel par rapport à ses voisins : un pixel blanc est fortement similaire à ses voisins et traduit une zone d'orientation uniforme tandis qu'un pixel noir est représentatif d'une zone d'orientation hétérogène [132]. Ce résultat se base sur la méthode du Dictionary Indexing (voir Annexe 3), et compare les N meilleurs clichés de diffraction associés à un pixel de la cartographie EBSD aux N meilleurs clichés de diffraction associés aux pixels voisins pour déterminer leur similarité d'orientation. Expérimentalement, le résultat est stable lorsque N est supérieur à 5. Cette méthode a été choisie dans un premier temps pour exploiter la robustesse du Dictionary Indexing.

Ces résultats sont particulièrement frappants pour la nuance 700B-IRR600, comme illustré Figure 54 b), sur laquelle on observe plusieurs zones spécifiques, entourées en rouge, où les grains ont tous la même orientation. On peut envisager qu'une transformation de phase ou une recristallisation a eu lieu dans ces zones.

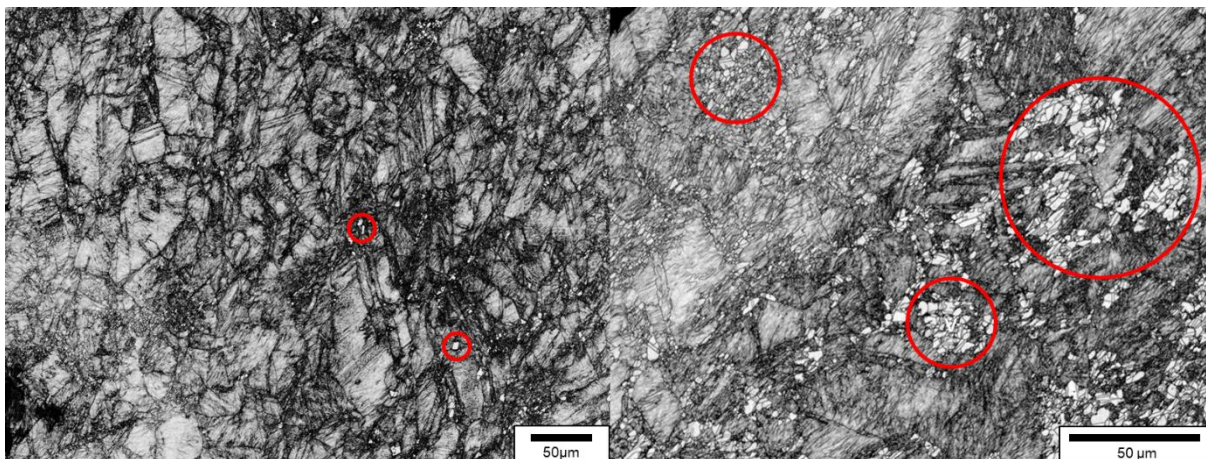


Figure 54 : Cartographie de similarité d'orientation des échantillons a) 700A-IRR600, et b) 700B-IRR600 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV

Afin d'avoir un élément de comparaison, la cartographie KAM (Kernel Average Misorientation) est présentée Figure 55. Ce type de cartographie permet de choisir deux bornes pour représenter la désorientation entre un pixel et ses voisins. Sur cette figure, les désorientations varient de 0° à 1° , entre un pixel et ses huit voisins directs. On observe que les zones où les grains ont une orientation homogène sont les mêmes que sur la cartographie OSM.

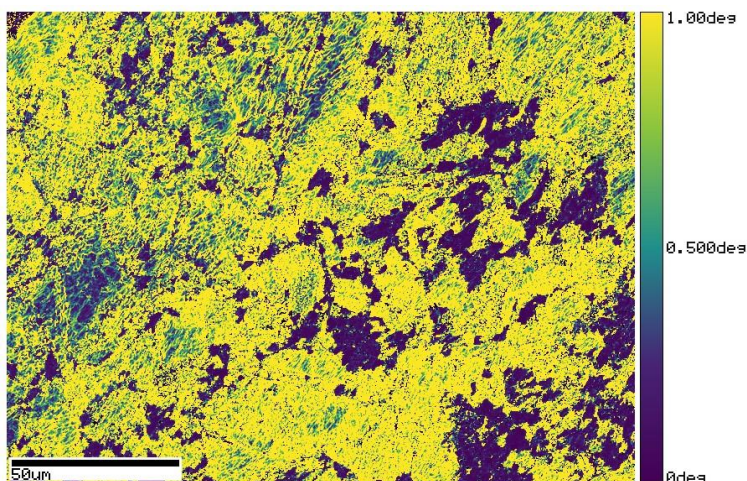


Figure 55 : Cartographie KAM (Kernel Average Misorientation) de l'échantillon 700B-IRR600

Cette transformation pourrait être attribuée à une forte densité de dislocations engendrée par le laminage des matériaux mais nous n'avons pas pu mener les travaux nécessaires pour vérifier cette hypothèse.

La Figure 56 et la Figure 57 illustrent les contrastes de phases des échantillons irradiés respectivement à 550°C et 600°C, superposés aux contrastes de bandes, qui indiquent la qualité de l'indexation des patterns EBSD. Les zones où le contraste de bande est le plus sombre sont les zones moins bien indexées, ce qui peut être attribué à une déformation locale plus importante.

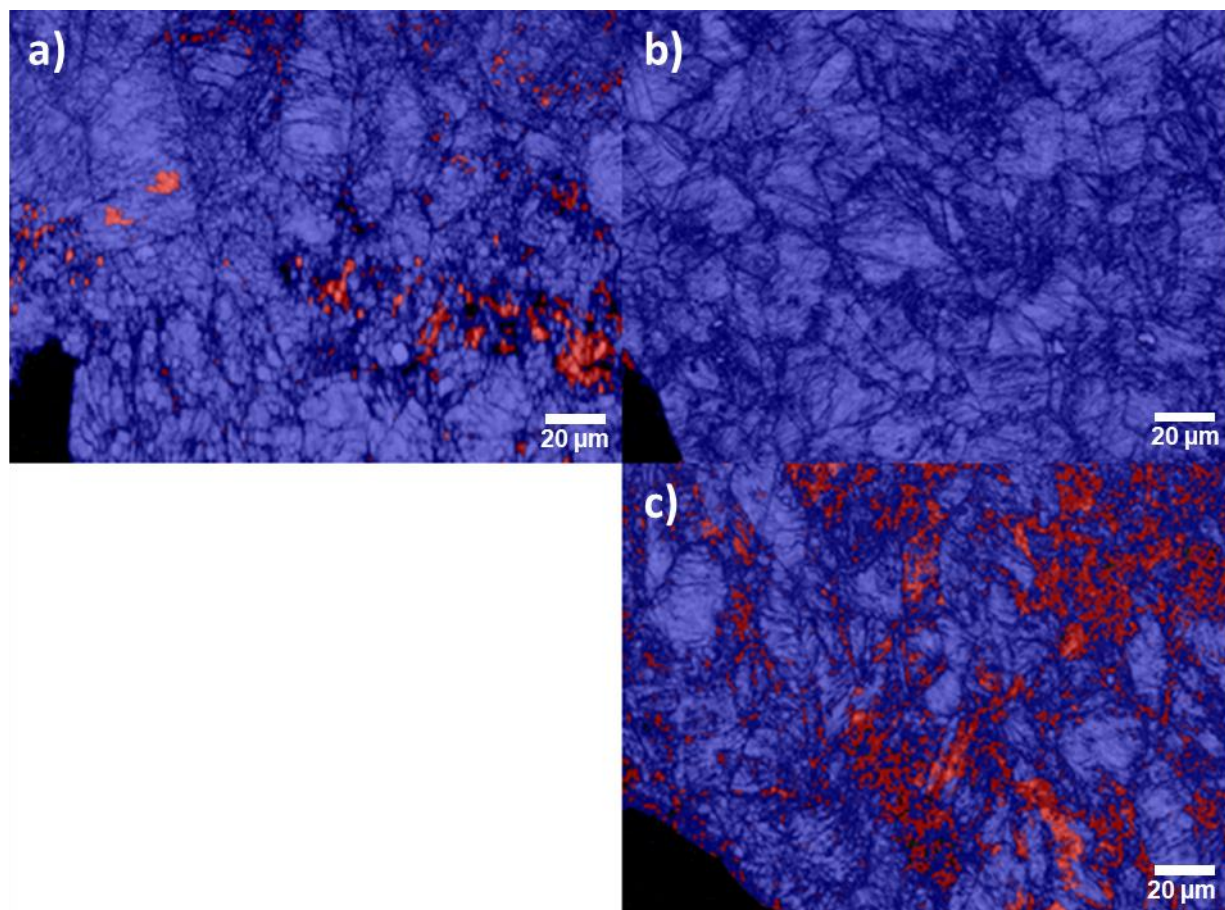


Figure 56 : Image MEB du contraste de phase obtenu en EBSD des échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, c) 700B-IRR550, irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV ; en bleu, la phase cfc, en rouge la phase cc

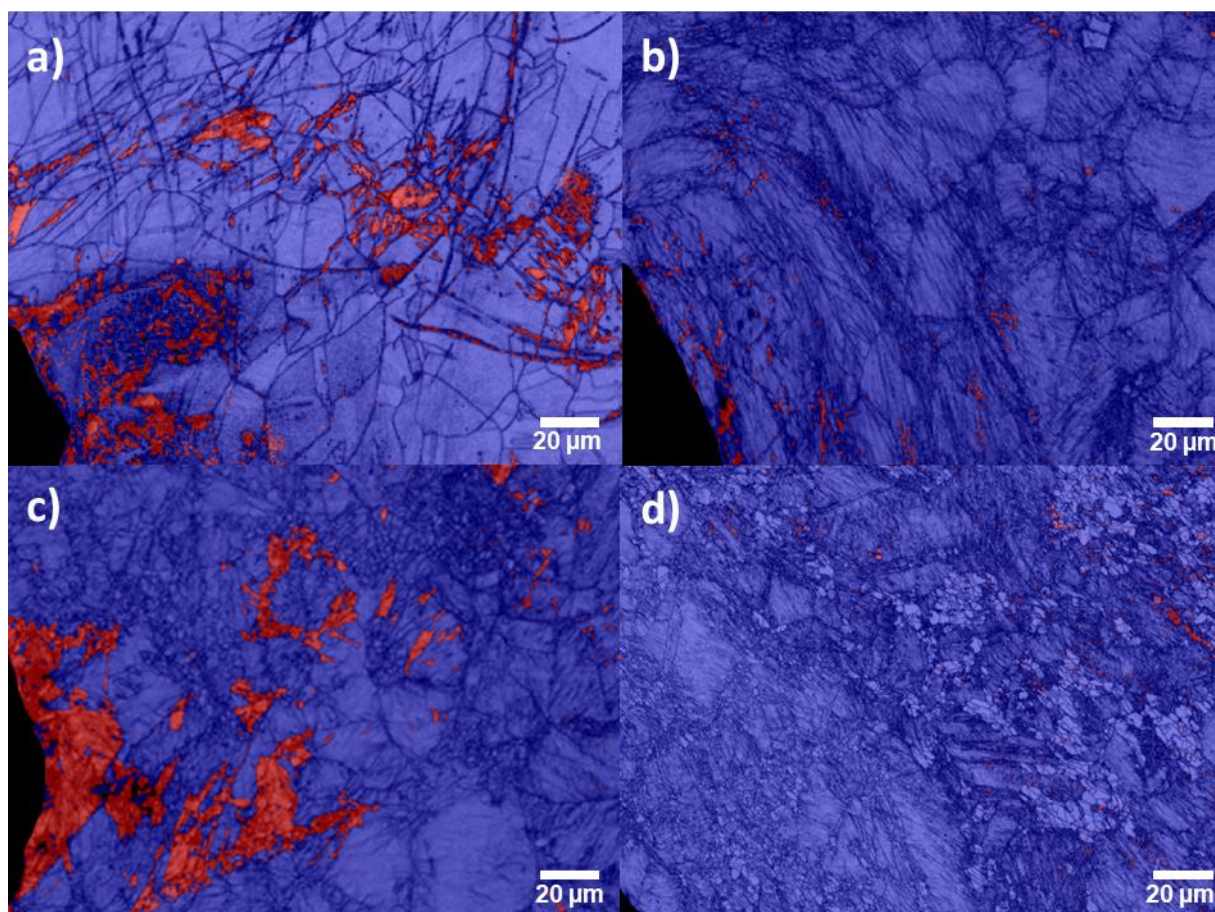


Figure 57 : Image MEB du contraste de phase obtenu en EBSD des échantillons a) hypertrempé, b) 500A-IRR600, c) 700A-IRR600, d) 700B-IRR600, irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV ; en bleu, la phase cfc, en rouge la phase cc

Bien que l'on observe pour l'échantillon hypertrempé irradié à 600°C une augmentation de la proportion de phase cubique centrée, les autres nuances irradiées présentent une tendance inverse (en proportion surfacique). Les proportions surfaciques de phase cc observée sur les cartographies EBSD sont répertoriées dans le Tableau 16.

Tableau 16 : Proportion surfacique de phase cubique centrée pour les différents échantillons

Proportion surfacique de phase cubique centrée par rapport à la phase cubique faces centrées

Echantillon	Non-Irradié	Irradié 550°C	Irradié 600°C
Hypertrempé	1,3%	-	8,2%
500A	12,5%	7,1%	1,3%
700A	12,2%	0,9%	3,6%
700B	21,4%	19,1%	0,8%

On peut noter dans un premier temps l'augmentation considérable de proportion surfacique de phase cc dans l'échantillon hypereutecté post-irradiation. Deux mécanismes ont été proposés par Hoffman et al. [133] pour expliquer ce phénomène. Le premier suppose une augmentation de la mobilité du nickel sous irradiation, qui aurait alors tendance à migrer vers les joints de grains. Les zones alors appauvries en nickel présentent ainsi une composition chimique favorable à la formation de ferrite. Le deuxième mécanisme, identifié par les auteurs comme étant majoritaire, en particulier dans le cas d'une irradiation aux ions, est lié au champ de déformation des interstitiels ainsi des ions Fe implantés qui provoqueraient un champ de déformation dans la matrice favorisant l'adoption d'une structure martensitique ϵ (hexagonale compacte), se relaxant en martensite α' (tétraogonale compacte, mais identifiable comme cubique centrée), puis en partie en ferrite α (cubique centrée).

Pour autant, les échantillons traités thermomécaniquement présentent tous une diminution de la présence de la phase cc post-irradiation. Cet effet est également observé après traitements thermiques sur des aciers austénitiques laminés : comme présenté Figure 58, lors des traitements thermiques, les auteurs observent dans un premier temps la restauration des grains d'austénite aux températures de recuit inférieures à 600°C, suivie de la réversion de la martensite créée lors du laminage et de la recristallisation de l'austénite à des températures supérieures à 600°C [134].

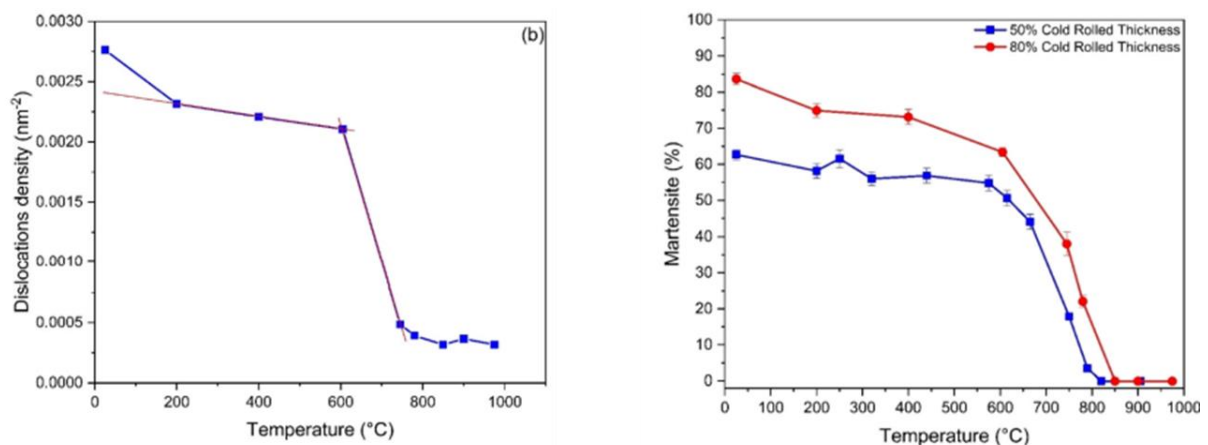


Figure 58 : A gauche, la densité de dislocation (en nm⁻²) dans un acier 304 laminé à 80%, pour différentes températures de recuit ; à droite la fraction massique de martensite dans un acier 304, laminé à 50% (en bleu) et 80% (en rouge), pour différentes températures de traitement thermique [134]

De même, Panov et al. [135] observent une recristallisation totale de l'acier 321 à des températures de l'ordre de 700°C, mais les structures lamellaires y sont toujours présentes, similaires à celles observées dans la zone irradiée de l'échantillon 700B-IRR600 (Figure 54). La température d'irradiation dans notre étude étant inférieure à celle des traitements étudiés dans la littérature, il semble ainsi possible que l'irradiation puisse en partie induire la recristallisation entre autres en augmentant la diffusion. Le phénomène de recristallisation sous irradiation a été observé par Vaidya et al. [136] qui attribuent un rôle moteur à la sursaturation de lacunes. En revanche, la phase nouvellement formée étant un puits de lacunes, le gonflement devrait être retardé par ce phénomène.

3.3.4 Nano-précipitation des TiC

3.3.4.1 Caractérisation des échantillons non-irradiés

L'observation au MET (JEOL 2100), proche de l'axe de zone [011] et en conditions de diffraction 2-ondes, des différents états métallurgiques permet de mettre en évidence la présence de TiC, mais uniquement dans les nuances ayant subi un recuit à 700°C. La Figure 59 présente un cliché des échantillons 500A et 700A, non-irradiés, sur lesquels sont observés des TiC (encerclés en rouge), caractérisés par leurs franges de Moiré. Ces dernières apparaissent en conditions de diffraction 2-ondes lorsque les paramètres de maille de la matrice et du précipité sont très proches. En particulier, le cliché de l'échantillon 500A (à gauche) ne présente pas de tels précipités, au contraire de l'échantillon 700A (à droite).

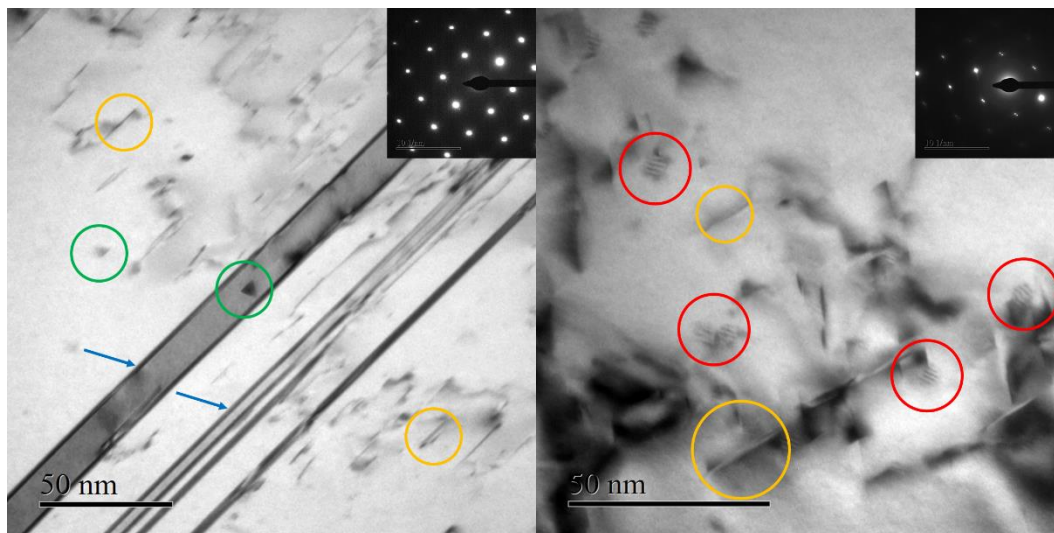


Figure 59 : Micrographies MET (champs clair axe de zone [011]) des échantillons 500A (gauche) et 700A (droite), non-irradiés – les carbures de titane TiC sont encerclés en rouge dans l'échantillon 700A, les dislocations en jaune, les fautes d'empilement (SFT ou Stacking Fault Tetrahedra) en vert, et les macles sont indiquées par des flèches bleues dans l'échantillon 500A

On peut également observer des macles (indiquées par des flèches bleues sur la figure de gauche), des dislocations (encerclées en jaune) ainsi que des contrastes, triangulaires, attribués à des tétraèdres de fautes d'empilement (encerclées en vert sur la figure de gauche). Ces derniers n'ont cependant pas été caractérisés en champ sombre. La Figure 60 montre le cliché de diffraction de l'échantillon 500A, non-irradié, sur lequel on peut observer le dédoublement des spots dû aux macles.

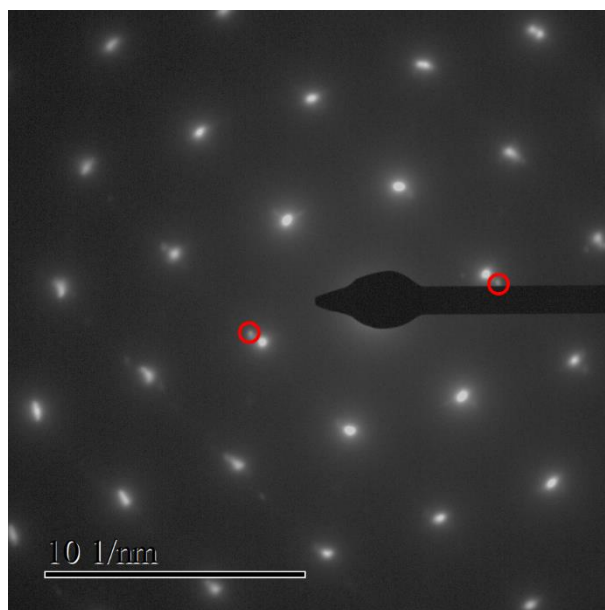


Figure 60 : Figure de diffraction de la micrographie de l'échantillon 500A représentée Figure 53 ; des spots de diffraction dédoublés en raison de la présence de macles sont encerclés en rouge

Les micrographies réalisées attestent d'une taille de précipités de quelques nanomètres à une dizaine de nanomètres pour les TiC, ce qui est un résultat cohérent avec les observations SAXS présentées en partie 3.2.4 (Caractérisation de la nano-précipitation par Diffusion des Rayons X aux Petits Angles). Cette méthode de caractérisation évalue du rayon des TiC de 8,7 nm dans l'échantillon 700A. Leur répartition est toutefois éparse ce qui témoigne d'une densité faible, et qui reste cohérente, en ordre de grandeur, avec la faible densité ($3,6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$) mise en évidence par les observations SAXS.

3.3.4.2 Caractérisation des échantillons irradiés

Les échantillons irradiés à 550°C ont également été observés au MET. Les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 présentent une zone en bord de trou trop épaisse pour pouvoir caractériser leurs microstructures respectives.

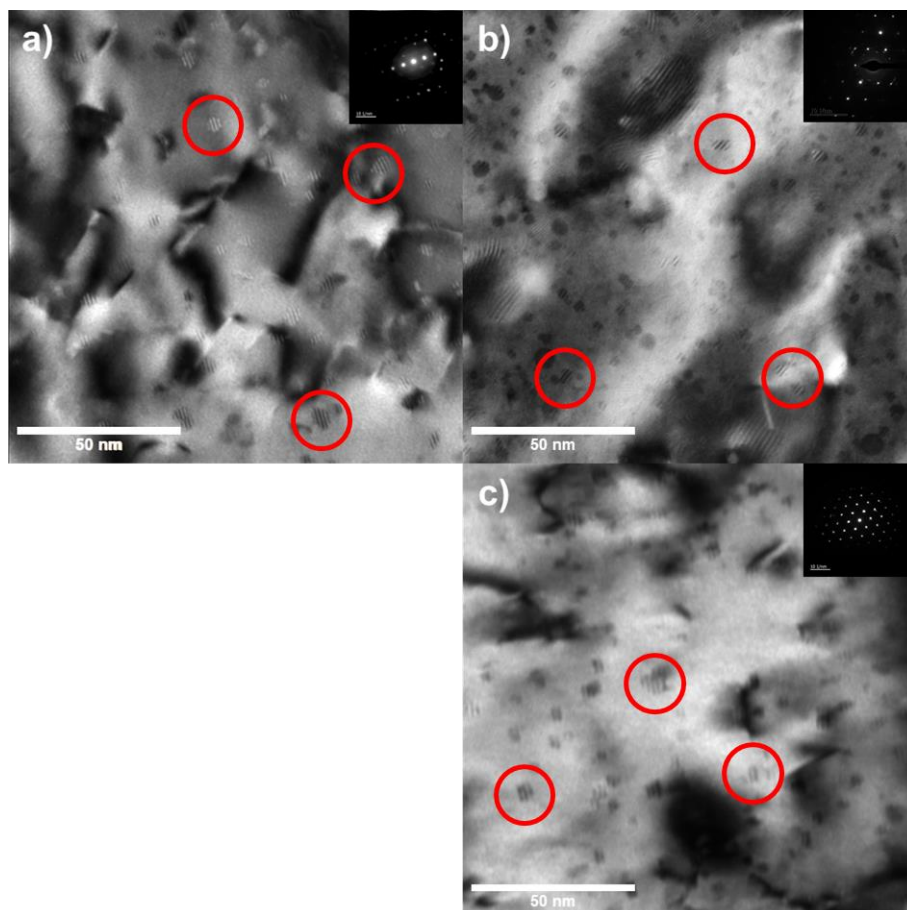


Figure 61 : Micrographies MET (axe de zone $[011]$; $g = [200]$) des états a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550 et c) 700B-IRR550 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV ; les TiC sont entourés en rouge

Plusieurs phénomènes intéressants ont pu être observés : la formation de cavités ainsi que la présence de plusieurs types de précipités. La Figure 61 présente les clichés MET (axe de zone $[011]$; $g = [200]$) des échantillons irradiés à $550^{\circ}C$ sur lesquels les TiC, entourés en rouge, sont repérables par leurs franges de Moiré. La comparaison avec la Figure 59, qui présente les échantillons 500A et 700A avant irradiation, démontre que les TiC sont beaucoup plus nombreux dans les échantillons irradiés. A partir de ces clichés, il est possible de dénombrer les TiC et de mesurer leur taille. En connaissant le libre parcours de diffusion inélastique λ (la distance moyenne que parcourt un électron dans un solide), l'épaisseur de la lame t peut être calculée. Cette valeur est obtenue à partir de t/λ , l'épaisseur relative, mesurée en EELS. Pour une énergie de 200 kV, dans l'acier, λ a ici une valeur calculée de 109,9 nm. Concernant l'échantillon 500A-IRR550, le cliché fait apparaître des TiC. Leur densité volumique est estimée, à partir des images MET, à $4,1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ (86 précipités comptés), pour une épaisseur calculée de 110 nm ($t/\lambda=1,0$) à partir de la mesure de perte d'énergie des électrons.

D'autre part, les clichés des échantillons 700A-IRR550 et 700B-IRR550 montrent la présence d'une population de précipités plus importante qu'avant irradiation. L'échantillon 700A-IRR550 présente une densité volumique de précipités de $5,1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ (89 précipités comptés), pour une épaisseur locale calculée de la lame de 100 nm ($t/\lambda = 0,91$) alors qu'elle n'était que de $3,6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ avant irradiation. L'échantillon 700B-IRR550 présente une densité volumique de précipités qui est, pour une épaisseur locale calculée de la lame de 135 nm ($t/\lambda = 1,23$), de $1,2 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ (156 précipités comptés), soit presque dix fois plus élevée qu'avant irradiation (densité de $1,6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$).

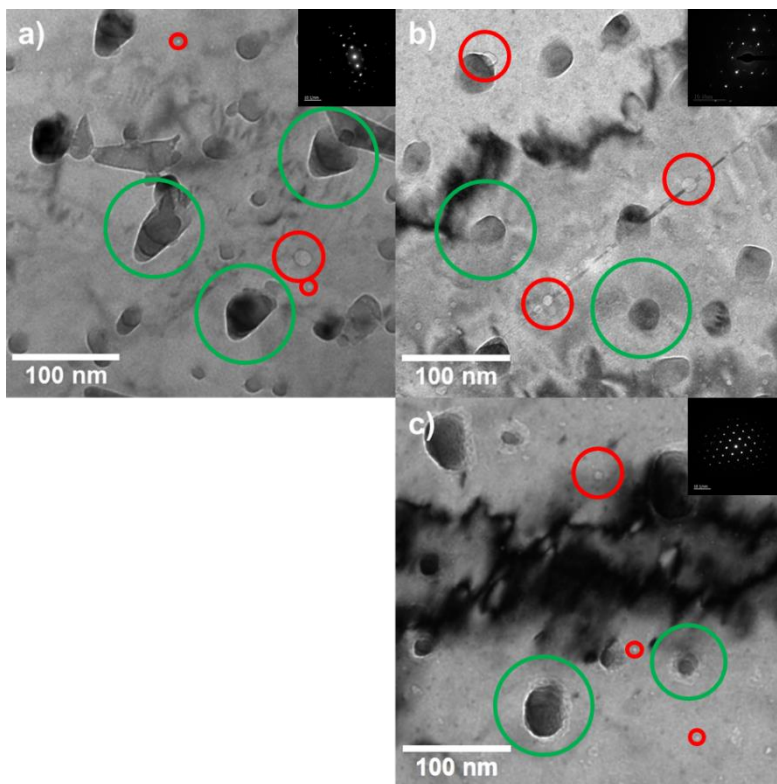


Figure 62 : Clichés MET (champs clairs ; axe de zone [011]) des échantillons a) 500A-IRR550, b) 700A-IRR550, c) 700B-IRR550 irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, les précipités grossiers sont entourés en vert, les cavités en rouge

En plus des TiC, des précipités plus grossiers sont observés sur les trois échantillons irradiés à 550°C. La Figure 62 présente les clichés (champs clairs ; axe de zone [011]) de chacun des trois états métallurgiques étudiés. Ils montrent la présence de ces précipités, entourés en vert, dans chacun des échantillons, ainsi que des cavités entourées en rouge. En raison de la faible taille des cavités, celles-ci peuvent être confondues avec le grain de l'image, le gonflement n'a donc pas été calculé au MET. La comparaison de cette figure avec la Figure 61 met également en évidence l'absence de cavités dans les zones riches en TiC, alors qu'elles sont plus abondantes dans les zones où la précipitation est grossière.

L'analyse en STEM-EDX de l'échantillon 700A-IRR550 fait apparaître la chimie des précipités grossiers observés. Les images de cette analyse sont présentées Figure 63. Celle-ci fait apparaître un gros précipité Ti(C,N), ainsi qu'une population de plus petits précipités contenant manganèse, chrome et oxygène, qui correspond aux précipités grossiers observés Figure 62.

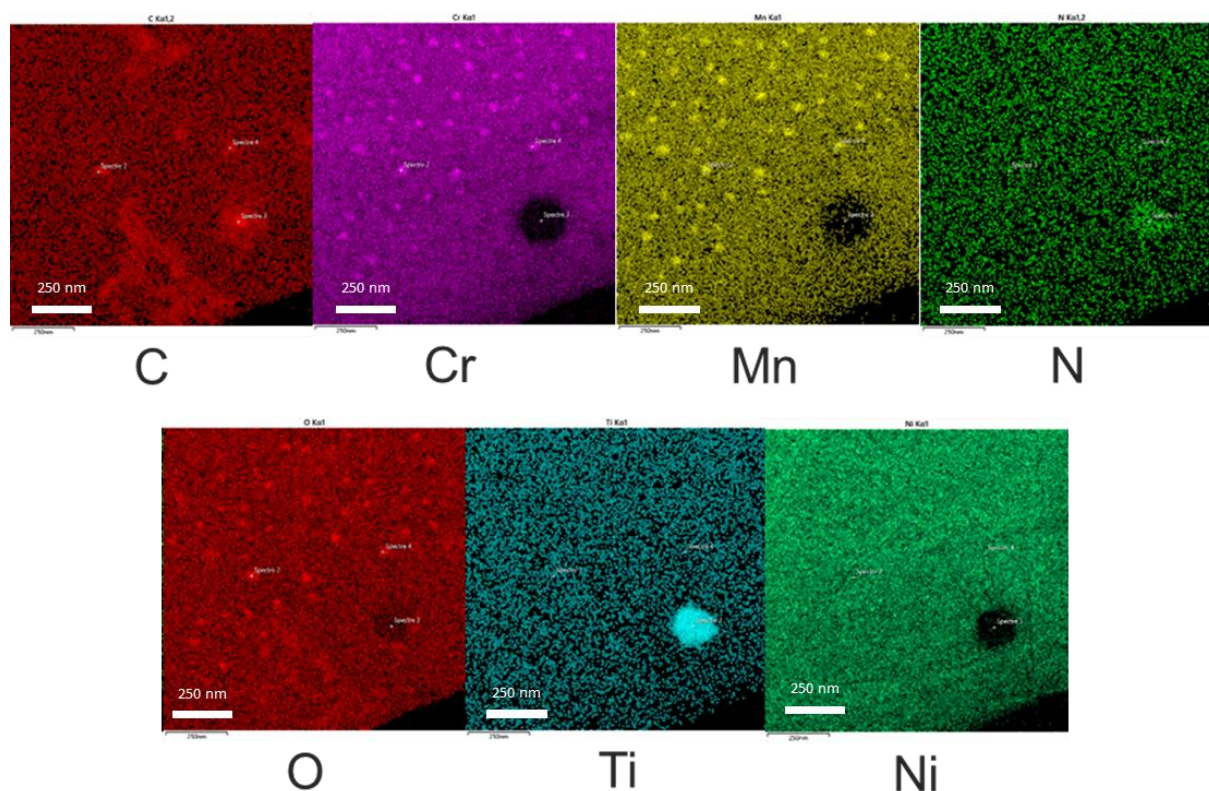


Figure 63 : Cartographies chimiques de l'échantillon 700A-IRR550 irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV

Il est à noter que les signaux du chrome et du manganèse sont convolués lors de l'analyse EDX. Il est difficile d'identifier précisément la nature de ces précipités. Au vu des données issues de la littérature, il est vraisemblable que ces précipités soient des $M_{23}C_6$ intragranulaires[137], [138] ou bien de la précipitation d'une phase enrichie en Cr non-identifiée[139].

L'échantillon hypereutecté irradié à 600°C et l'échantillon 500A-IRR600 ont également été observés au MET. La Figure 64 présente des clichés des populations de TiC observés dans ces deux échantillons.

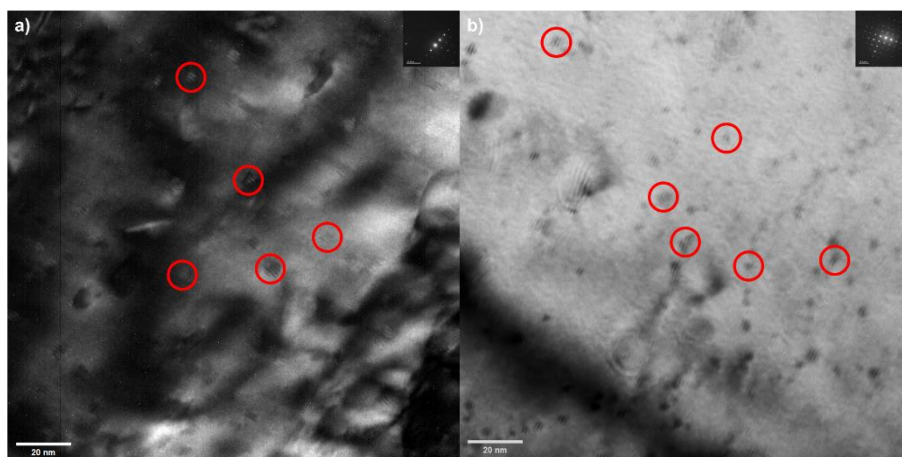


Figure 64 : Clichés MET des échantillons a) hypertrempé (axe de zone [011] ; $g = [200]$) et b) 500A-IRR600 (axe de zone [001] ; $g = [020]$) irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C ; sur les deux clichés des TiC sont entourés en rouge

Le comptage des précipités TiC pour ces états métallurgiques donne des valeurs de densité volumique de $2,5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ pour l'échantillon hypertrempé (56 précipités comptés) et $5,7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ pour l'échantillon 500A-IRR600 (154 précipités comptés). Des précipités grossiers ne sont pas observés dans ces échantillons. Les résultats des calculs de densité volumique sont synthétisés dans le Tableau 17. La comparaison des densités volumiques montre une augmentation d'un ordre de grandeur entre les échantillons non-irradiés et les échantillons irradiés à 550°C.

Seul l'échantillon 500A permet de comparer la précipitation sous irradiation lors des deux campagnes. La précipitation observée dans cet échantillon est du même ordre de grandeur que lors de la campagne réalisée à 600°C.

Comme attendu, l'état hypertrempé irradié à 600°C présente sensiblement moins de nano-précipités que l'échantillon 500A-IRR600, alors que ce dernier est supposé présenter plus de sites de germination pour les précipités. Enfin, la densité de précipités est susceptible d'être moins importante dans les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600, étant donné la potentielle recristallisation de ces derniers. La densité volumique des différents échantillons est répertoriée Tableau 17 ; des incertitudes de 10% sur le nombre de précipités et sur l'épaisseur de l'échantillon ont été considérées pour calculer l'incertitude totale sur la densité volumique de précipité.

Tableau 17 : Densités volumiques de précipités TiC dans les échantillons non-irradiés et irradiés

Echantillon	Densité volumique de TiC (m ⁻³)– Non-Irradié	Densité volumique de TiC (m ⁻³)- Irradié 550°C	Densité volumique de TiC (m ⁻³)- Irradié 600°C
Hypertrempé	-	-	$2,5.10^{22} \pm 3.10^{21}$
500A	-	$4,5.10^{22} \pm 6.10^{21}$	$5,7.10^{22} \pm 7.10^{21}$
700A	$3,6.10^{21}$	$5,1. 10^{22} \pm 7.10^{21}$	-
700B	$1,6.10^{21}$	$1,7.10^{22} \pm 1.10^{21}$	-

La taille moyenne des précipités ainsi que l'écart-type standard sont présentés Tableau 18. En raison du manque de statistique, ces valeurs ne sont pas indiquées pour les échantillons non-irradiés 700A et 700B. Pour les échantillons irradiés le diamètre moyen estimé est de 3,5 à 4,6 nm.

Tableau 18 : Diamètres moyens des précipités TiC dans les échantillons irradiés

Echantillon	Diamètre moyen de TiC (nm)- Irradié 550°C	Diamètre moyen de TiC (nm)- Irradié 600°C
Hypertrempé	-	$4,6 \pm 2,3$
500A	$4,0 \pm 2,1$	$4,3 \pm 2,1$
700A	$3,5 \pm 1,5$	-
700B	$3,6 \pm 1,9$	-

3.3.5 Solution solide pour les états irradiés aux ions Fe⁵⁺, 5 MeV, à 600°C

Des analyses SAT ont par ailleurs été menées sur les échantillons 500A-IRR600 et 700B-IRR600, dont les résultats pour différents éléments chimiques sont présentés Figure 65. Les échantillons ont été analysés sur une sonde LEAP 4000XHR, en mode LASER avec 40pJ d'impulsion. En l'absence de pôle cristallographique, la reconstruction a été réalisée avec des paramètres classiques sur cette machine. $M+1 = 1,6$ et k compris entre 3,8 et 4. Le volume étudié représente environ 1 µm de profondeur prélevée à partir de 50 nm sous la surface de la face avant.

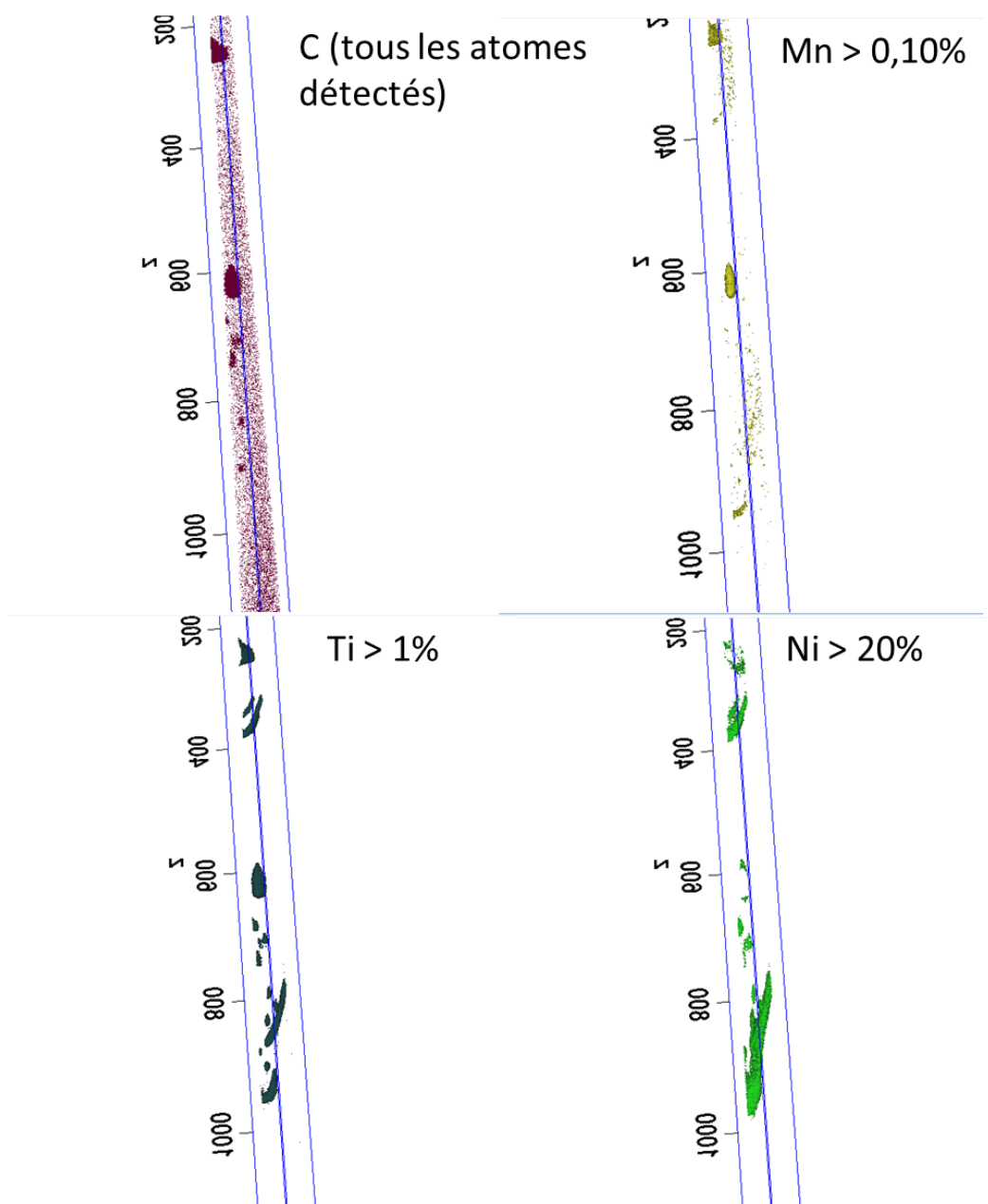


Figure 65 : Reconstruction SAT de l'échantillon 700B-IRR600 irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, pour le C, Mn, Ti et Ni. Pour le Mn, Ti, Ni, les volumes montrent des isosurfaces aux valeurs indiquées. Pour les autres éléments, l'ensemble des ions/atomes analysés sont représentés.

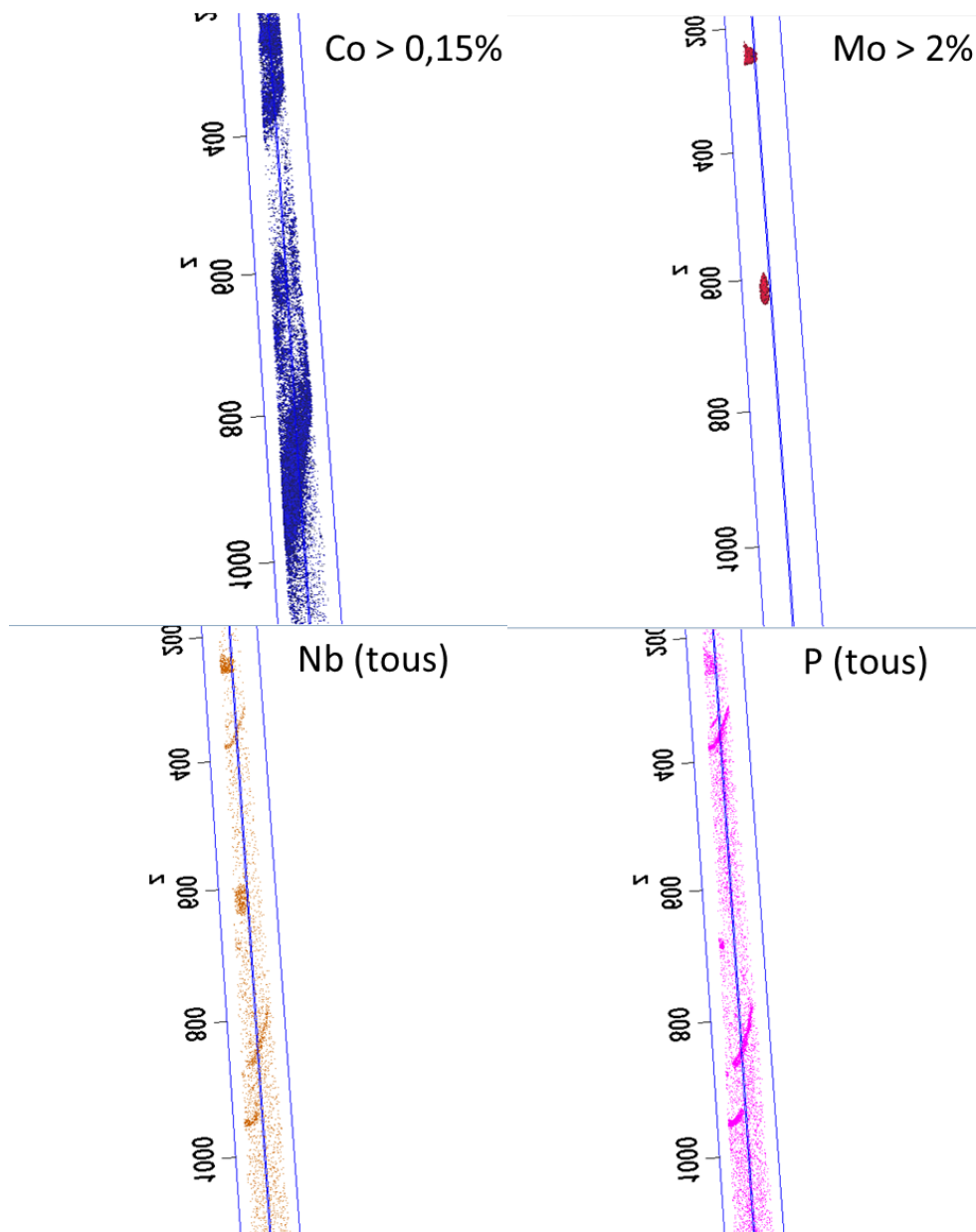


Figure 66 : Reconstruction SAT de l'échantillon 700B-IRR600 irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, pour le Co, Mo, Nb et P. Pour le Co et Mo, les volumes montrent des isosurfaces aux valeurs indiquées. Pour les autres éléments, l'ensemble des ions/atomes analysés sont représentés.

Les résultats issus de ces analyses témoignent bien de la présence des nano-précipités MC, dont la chimie est de la forme $(\text{Ti}, \text{Mo}, \text{Mn})\text{C}$. Cette analyse SAT n'a par ailleurs pas permis de mettre en évidence la précipitation grossière dans les échantillons irradiés à 600°C , ni de mettre en évidence des différences de composition chimique dans la profondeur de l'échantillon. Les analyses SAT des échantillons 500A-IRR600 et 700B-IRR600 montrent des concentrations faibles du Ti en solution solide. Comme indiqué dans le Tableau 19, la concentration de Ti en solution solide dans l'échantillon 500A-IRR600 est de 0,054% massique, tandis qu'elle est de 0,079% massique pour l'échantillon 700B-IRR600. En revanche la concentration relevée en C dans l'échantillon 700B-IRR600 est de 0,118%, ce qui est environ deux fois supérieure à la concentration donnée par Bureau Veritas, et presque

trois fois supérieure à la composition chimique fournie par le constructeur, ce qui laisse craindre une implantation de C lors des campagnes d'irradiation. Ainsi, la concentration de carbone ne serait pas limitante pour la précipitation des TiC.

Tableau 19 : Concentrations moyennes de Ti dans la solution solide et dans le volume d'analyse

Echantillon	Volume analysé	Ti en solution solide (% massique)	Ti moyen dans le volume analysé (% massique)
500A	3,4.10 ⁶ ions	0,054	0,260
700B	80.10 ⁶ ions	0,079	0,299

3.4 Conclusion

Les échantillons ont été caractérisés avant et après irradiations aux ions Fe^{5+} , 5 MeV à 550°C et 600°C. Les échantillons non-irradiés ont pu être analysés par plusieurs méthodes adaptées à des échantillons massifs, ainsi que par microscopie électronique, afin de tester la fiabilité de chacune. La mesure de la taille de grains donne des ordres de grandeurs similaires, mais la méthode des intercepts a tendance à donner des résultats plus élevés que l'EBSD. De même, la ferritométrie et les cartographies de phases ne donnent pas des quantifications incohérentes quant à la mesure de la martensite, quoique les valeurs de proportions de martensite puissent être assez différentes pour l'échantillon 700A. La SAXS et le comptage des TiC au MET donnent des résultats proches. Enfin le PTE ne permet d'obtenir qu'une approximation de l'évolution de la composition de la solution solide, tandis que la SAT renvoie une quantification des éléments présents dans la solution solide. Les échantillons non-irradiés n'ayant pas pu être caractérisés en SAT, il n'a pas été possible de corroborer les deux méthodes.

Après irradiation la proportion de phase cc diminue dans les états traités thermomécaniquement, ce qui est cohérent avec les observations tirées de la littérature. Lors de l'irradiation à 600°C, les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 ont possiblement subi une transformation de phase $\alpha' \rightarrow \gamma$, voire une recristallisation. La littérature indique que lors de ces transformations de phase la densité de dislocations dans le matériau diminue, ce qui est susceptible de limiter la résistance au gonflement du matériau. Cependant, la faible statistique des observations MEB ne permet pas une conclusion définitive quant à ce point. D'autre part, la taille de grains mesurée semble avoir diminué pour tous les échantillons lors de l'irradiation, exception faite de l'échantillon hypereutecté, mais la taille mesurée pour tous les échantillons ($>10 \mu\text{m}$) ne devrait pas interférer avec le gonflement des échantillons.

Les irradiations ont également favorisé l'apparition d'une nano-précipitation des TiC. On observe une augmentation d'un ordre de grandeur de la densité de précipités post-irradiation. Cela est cohérent avec les résultats SAT qui tendent à indiquer une diminution du Ti en solution solide. Il est toutefois prématuré d'essayer de dégager des tendances, étant donné le manque d'informations sur la précipitation d'une partie de la gamme d'échantillons qui n'ont pu être caractérisés.

Chapitre 4 : Caractérisation du gonflement dans l'alliage 321 irradié aux ions Fe^{5+} à 550°C et 600°C

4.1 Introduction

Afin de dénombrer les cavités sur des zones de plusieurs microns, une méthode d'analyse basée sur des caractérisations MEB a été développée durant les thèses d'Adrien Vaugoude[24] et Martin Madelain[140] et complétée dans ce travail. Cette analyse, repose sur un processus d'intelligence artificielle, et nécessite un traitement particulier des données obtenues. Les parties suivantes détaillent la méthode utilisée, illustrée par un exemple simplifié.

4.2 Présentation de la méthode MEB-IA pour caractériser le gonflement

La méthode utilisée dans ce travail pour caractériser le gonflement repose sur une méthode initiée par A. Vaugoude et M. Madelain dans le cadre de leurs thèses. Il s'agit de réaliser une image au MEB en électrons secondaires (SE) de haute résolution afin de compter directement les cavités dites « débouchantes », c'est-à-dire les cavités qui ont été intersectées par l'électropolissage. A partir de ces clichés, Vaugoude et Madelain obtiennent des cartes heatmap indiquant les hautes et basses densités de cavités dans leurs échantillons, tel que représenté Figure 67.

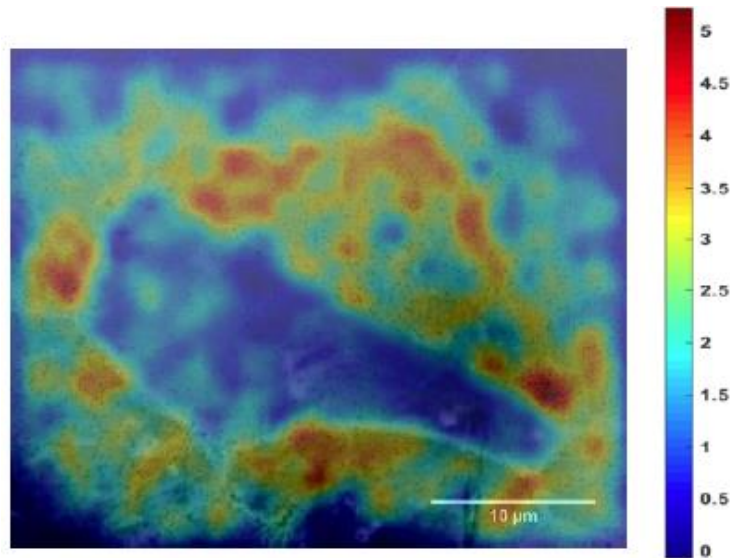


Figure 67 : Carte de type heatmap permettant de visualiser les densités de cavités sur un échantillon irradié [24]

L'objectif dans cette thèse est de compléter cette méthode en employant la stéréologie, qui est un domaine des mathématiques visant à donner des résultats 3D à partir d'observations 2D. L'utilisation de la stéréologie permettra d'exploiter différents aspects du gonflement, tels que la densité de cavités et le volume de celles-ci de manière statistique, et d'obtenir une quantification du gonflement.

4.2.1 Dédire les caractéristiques d'une population de sphères à partir de leur intersection avec un plan grâce à la stéréologie

Pour obtenir les paramètres liés au gonflement (rayon des cavités, nombre de cavités, et pourcentage de gonflement), nous avons utilisé la stéréologie. Ce paragraphe introduit cette notion en l'adaptant à nos besoins. Dans notre problème, on observe une population de cercles, de densité surfacique, θ_2 , dont les rayons suivent une loi en nombre de densité f_2 et une fonction de répartition F_2 . A partir de ces informations, on souhaite retrouver une population de sphères de densité volumique, θ_3 , dont les rayons suivent une loi en nombre de densité f_3 et une fonction de répartition F_3 . Ce problème est appelé problème de Wicksell [141], et est résolu pour des sphères [142]. La Figure 68 présente une visualisation du problème, avec une population de cercles sur une surface S , représentée par un rectangle de longueur L et de largeur l .

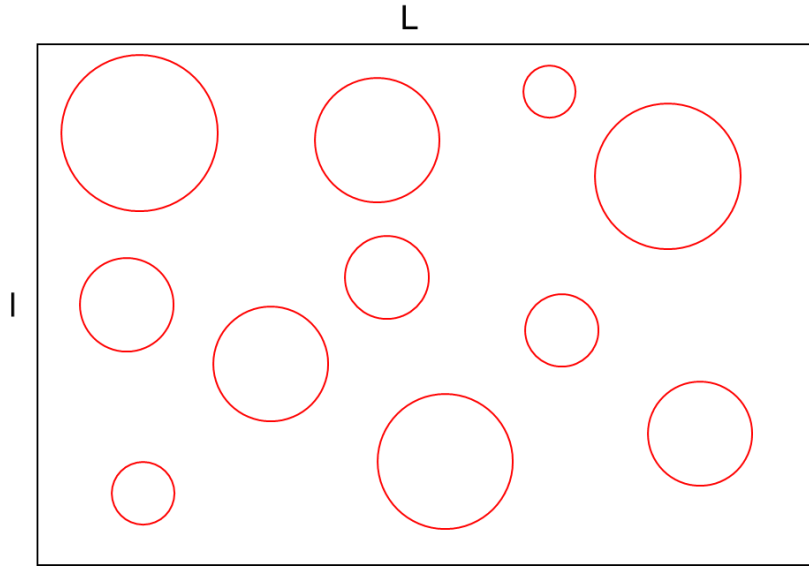


Figure 68 : Schéma d'une population de sphères intersectées par une surface

Le Tableau 20 répertorie les différents cercles et leurs diamètres :

Tableau 20 : Diamètre des cercles

Cercle	C1	C2	C3	C4	C5	C6	C7	C8	C9	C10	C11
Diamètre (cm)	1	1,2	1,4	1,6	1,8	2	2,2	2,4	2,6	2,8	3

Pour $n = 11$ cavités et une surface $S = L.l = 15 \times 10 = 150 \text{ cm}^2$, on obtient une densité surfacique de cavités de $\theta_2 = \frac{n}{S} = \frac{11}{150} = 0,073 \text{ cm}^{-2}$. A partir des formules de Matheron [142], (présentées par Etienne Castelier lors d'une communication personnelle), on obtient ainsi l'expression de la densité volumique de cavités θ_3 en fonction de la densité surfacique de cavités, θ_2 , et des rayons des cavités, R_2 :

$$\theta_3 = \frac{\theta_2}{\pi} E \left[\frac{1}{R_2} \right] = 0,026 \text{ cm}^{-3}$$

Où $E \left[\frac{1}{R_2} \right]$ est l'espérance de l'inverse des rayons des cercles.

A partir des grandeurs θ_2 et θ_3 , il est possible d'obtenir les valeurs de gonflement et le volume moyen de cavités en fonction de la profondeur. Sur une zone donnée, le gonflement G est égal à la densité surfacique θ_2 multipliée par la surface moyenne des cavités S_m , ou à la densité volumique θ_3 multipliée par le volume moyen des cavités V_m . Cela correspond à l'équation stéréologique suivante :

$$G = \theta_2 S_m = \theta_3 V_m = 25\%$$

A partir de cette équation, on obtient finalement le volume moyen :

$$V_m = \frac{G}{\theta_3} = \frac{0,25}{0,026} = 9,7 \text{ cm}^3$$

4.2.2 Passer d'une image 2D à un gonflement 3D : Application de la stéréologie à l'étude de l'alliage 321 irradié aux ions Fe^{5+}

Suite à la préparation des échantillons, la première étape est de réaliser un cliché en MEB-SE de la zone proche du trou percé. Le dommage étant peu profond (moins de $2 \mu\text{m}$ de profondeur par rapport à la face avant), l'essentiel du profil de dommage dû à l'irradiation est observé à quelques dizaines de microns du trou.

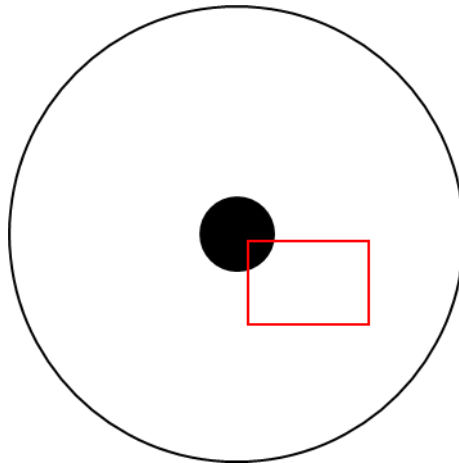


Figure 69 : Schéma d'un cliché MEB réalisé aux abords du trou

L'avantage de l'imagerie MEB est qu'elle permet d'avoir une vue globale de l'endommagement par rapport au MET qui en donne une perception très locale. Cependant le choix du grandissement doit permettre de visualiser les cavités comme illustré Figure 70. C'est pourquoi le cliché qui montre les cavités est réalisé avec une résolution élevée (12288x9216 pixels). La zone totale observée (figure de gauche) est de $76,2 \times 57,2 \mu\text{m}^2$. Certaines cavités sont indiquées sur la partie agrandie (figure de droite) par des flèches rouges, et sont reconnaissables à leur contraste sombre liseré de blanc.

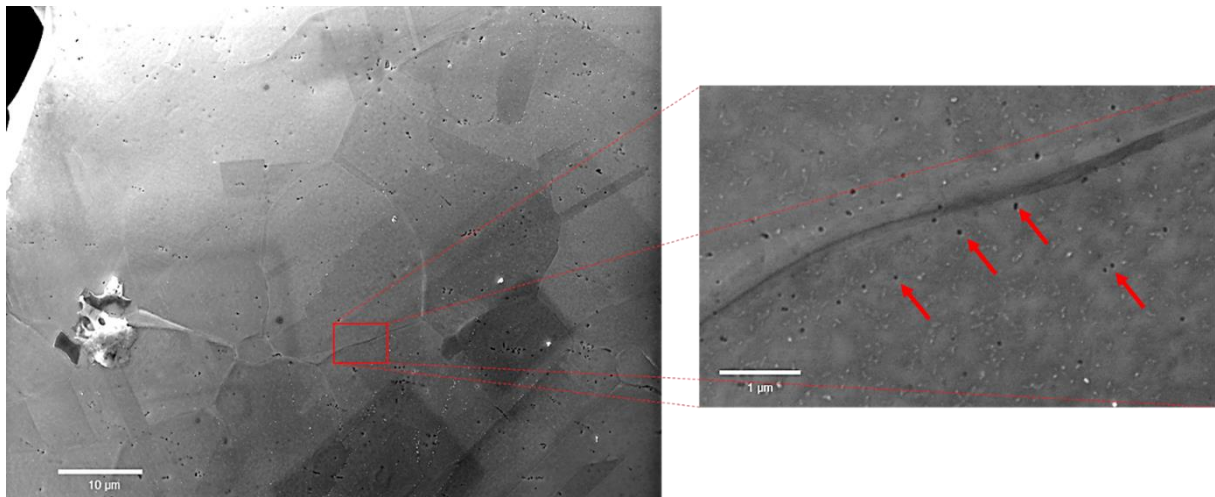


Figure 70 : Micrographie MEB, en électrons diffusés de l'acier 321 hypere trempé irradié aux ions Fe^{5+} à 600°C ; à droite, l'image agrandie du rectangle rouge fait apparaître les cavités (indiquées par les flèches rouges)

Suite à la prise du cliché, le comptage des cavités se fait par un algorithme de segmentation par apprentissage automatique, qui fonctionne grâce à la méthode Random Forest. La segmentation d'une image consiste en la ségrégation des différents éléments de l'image dans différentes catégories (par exemple, sur la micrographie, on peut différencier les cavités, les précipités, ou encore les impuretés). L'apprentissage automatique par la méthode Random Forest repose sur l'identification de caractéristiques graphiques de ces éléments. Pour cela, il faut indiquer à l'intelligence artificielle certaines des cavités parmi les éléments présents sur le cliché. L'algorithme réalise un arbre décisionnel qui lui permet d'attribuer à chaque élément de la micrographie une catégorie. Il indique ensuite les éléments ressemblant aux cavités. Cette méthode présente l'avantage d'accélérer la recherche des cavités sur le cliché, ainsi que d'éviter les oublis, de par l'automatisation de la recherche.

La Figure 71 est l'image renvoyée par l'algorithme après l'apprentissage. Sur celle-ci chaque point noir correspond à une cavité, comme celles visibles sur la Figure 70. Le rectangle rouge ($100\text{ }\mu\text{m} \times 20\text{ }\mu\text{m}$) est la zone à partir de laquelle le gonflement sera estimé. Il est orienté de façon à être le plus possible perpendiculaire au trou (en haut à gauche de l'image) et ainsi refléter l'évolution du dommage d'irradiation.

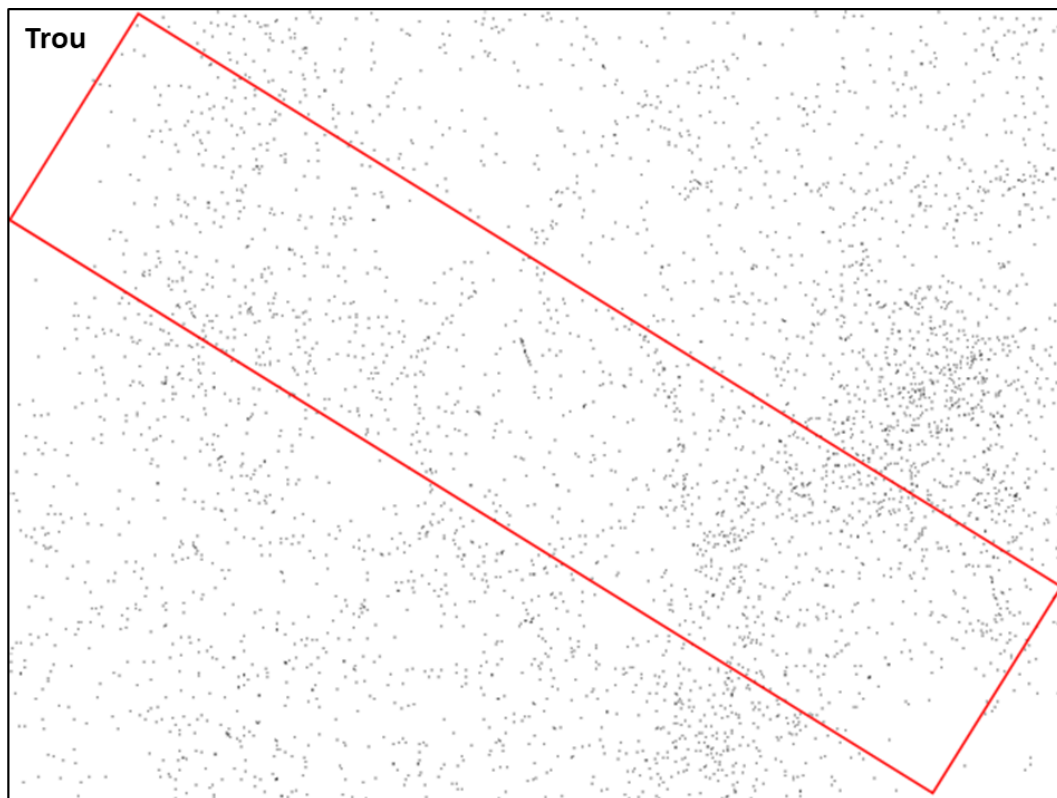


Figure 71 : Segmentation du cliché SE de l'acier 321 hypere trempé irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C

La segmentation de l'image MEB permet d'obtenir le profil de cavités en fonction de la distance au trou. Cependant, l'objectif de l'étude est de mesurer le gonflement en fonction de la profondeur et non de la distance au trou. La comparaison n'est pas immédiate car l'électropolissage n'est pas une méthode de préparation d'échantillon reproductible à l'identique pour chaque état métallurgique. La distribution des cavités étant plus étalée si l'angle de polissage est faible, il faut rapporter le dommage évalué pour chaque échantillon à son profil géométrique. Une étude a été menée au profilomètre sur les échantillons d'intérêt pour tenter d'obtenir cette précision mais les résultats obtenus par cette méthode sont incohérents avec la géométrie de la lame. Malgré ces résultats peu concluants, il pourrait être intéressant d'optimiser cette méthode.

La Figure 72 représente le schéma d'une lame irradiée et percée, vue en perspective. On peut y observer que le dommage est beaucoup plus étalé sur la face arrière, électropolie, que sur l'échantillon en profondeur. L'hypothèse est faite que la pente est constante proche du trou. Des mesures au profilomètre ont été réalisées pour valider cette hypothèse. Malgré des profils similaires d'une lame à une autre, la résolution du profilomètre n'était pas satisfaisante pour exploiter ces résultats. Pour tenter de calculer formellement le lien entre les cavités observées sur la face arrière de la lame MET et le gonflement dans la profondeur de la lame MET, une lame FIB a été réalisée sur l'échantillon hypere trempé irradié à 600°C, perpendiculairement à la face avant de la lame MET. Les observations réalisées sur celle-ci sont présentées en Annexe 4.

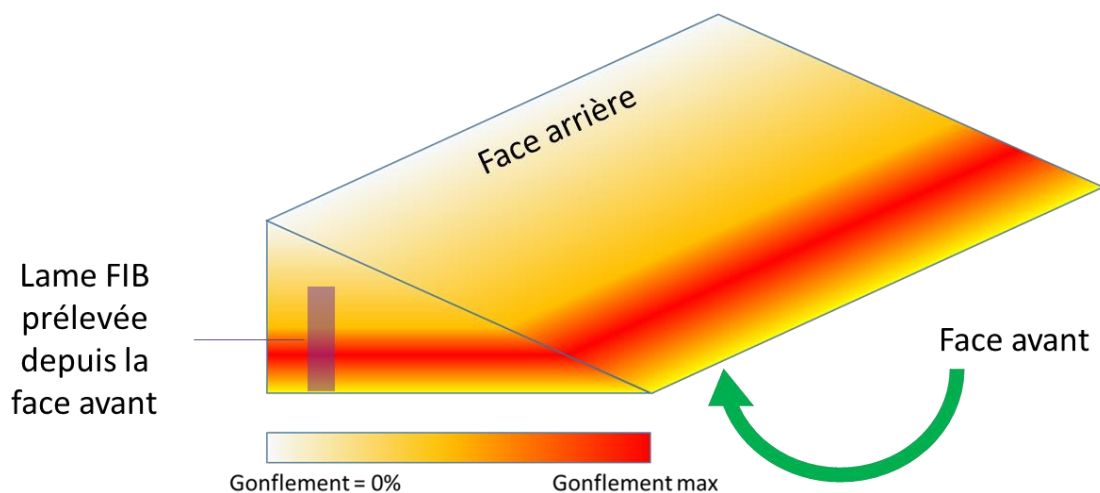


Figure 72 : Vue schématique de trois-quarts d'une lame irradiée

La littérature indique, pour des aciers austénitiques de composition similaire et irradiés dans des conditions proches, que les cavités ne sont plus observées à des profondeurs allant de $\sim 1,2$ à $\sim 1,8$ μm [143], [144], [145], [146], [147]. En particulier sur un acier 316 irradié aux ions Fe^{2+} , 5 MeV, Jiang et al. [148] n'observent plus de gonflement après 1,5 μm de profondeur ; pour des aciers 304 et 321 irradiés aux ions Ni, 5 MeV, Johnston [149] n'observe plus de gonflement en-deçà de 1,4 μm de profondeur. Une bonne mesure d'épaisseur permettrait de mieux recaler le dommage, mais au vu de la composition du matériau irradié et des conditions d'irradiations, on considèrera que cette dernière est de 1,4 μm . Le volume total utilisé pour le calcul du gonflement sera donc de $100 \times 20 \times 1,4$ μm^3 (surface du rectangle rouge Figure 71 x profondeur du dommage), soit 2800 μm^3 .

Ce profil de cavités, tiré de la Figure 71, est représenté Figure 73, avec le trou de la lame MET situé à gauche. Au vu de l'hypothèse réalisée précédemment (pas de cavités à plus de 1,4 μm de la surface irradiée), on peut déterminer une pente dans cette zone et ainsi retrouver la profondeur de chaque point du profil. Pour cela, nous considérons que l'électro polissage induit un biseau caractérisé par une pente constante de $0,86^\circ$ du trou jusqu'à 1,4 μm de profondeur. Nous considérons qu'il s'agit là d'une bonne approximation sachant que la même méthode sera utilisée pour chaque échantillon et que l'erreur commise sera identique pour chaque lame.

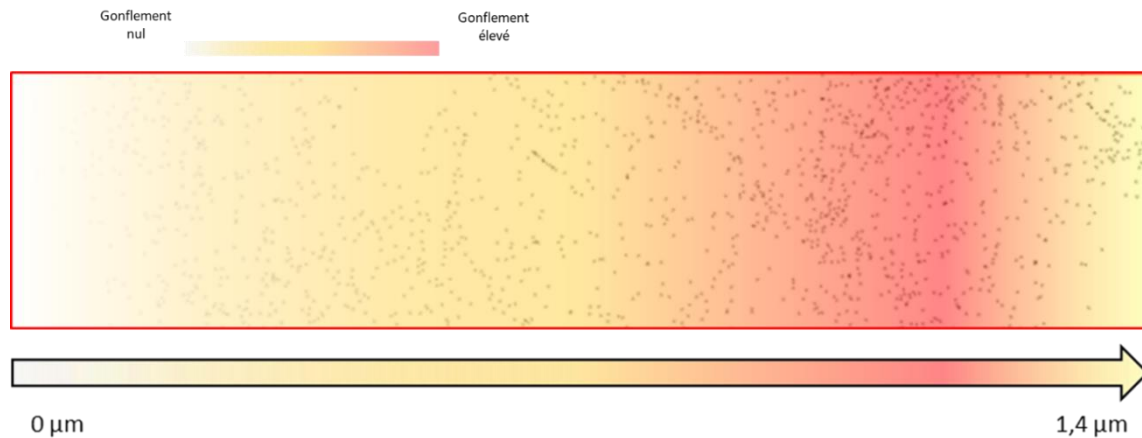


Figure 73 : Profil de cavités de l'échantillon d'acier 321 hypotrempe irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV à 600°C ; la flèche indique la profondeur correspondant à la distance au trou.

En comptabilisant le nombre de cavités par tranche de 0,05 μm , on obtient la densité surfacique de cavités en fonction de la profondeur. Cette quantification permet de déduire une densité volumique, un volume moyen et le gonflement localement.

La méthode utilisée dans l'exemple de stéréologie du paragraphe 4.2.1 est applicable dans le cadre de cette étude, puisque l'on observe une population de cercles résultant de l'intersection d'une population de sphères par un plan. A partir de l'évaluation du volume de gonflement en fonction de la profondeur, on est ainsi en mesure de comparer le profil d'irradiation pour chaque état métallurgique, mais aussi d'identifier la profondeur où la densité de cavités est la plus importante que nous considérerons également comme celle où le gonflement est le plus important. Ainsi la tranche de 0,1 μm où le gonflement est maximal, comme indiqué Figure 74, sera considérée pour comparer les différents échantillons deux à deux.

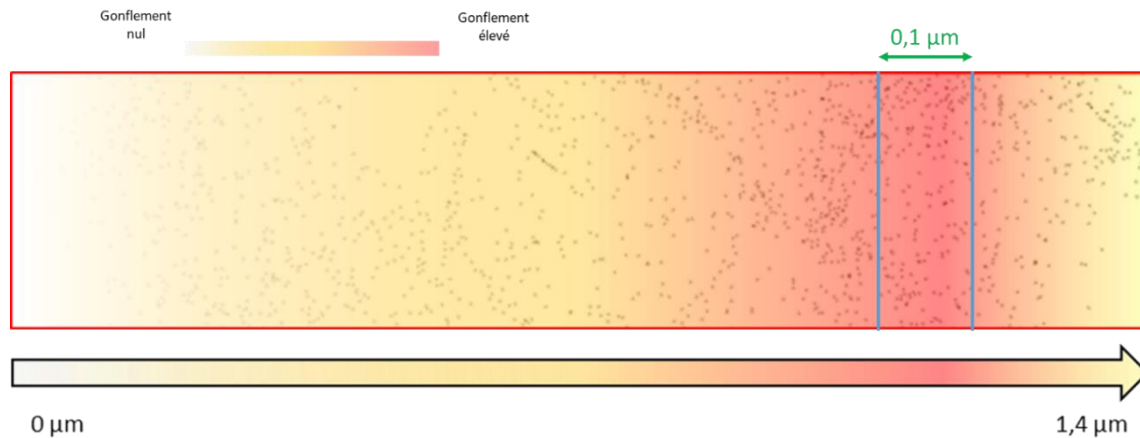


Figure 74 : Profil de cavités de l'échantillon d'acier 321 hypertrempé irradié à 600°C ; le maximum de gonflement est considéré avoir lieu entre les segments bleus.

De ce profil on peut aussi extraire les histogrammes de la densité volumique de cavités θ_3 , et du volume moyen des cavités V_m , en fonction de la profondeur. La Figure 75 présente l'évolution de la densité volumique de cavités en fonction de la profondeur dans l'échantillon hypertrempé irradié à 600°C. Celle-ci est très variable mais on distingue un pic de densité proche de 100 cavités/ μm^3 , à 1 μm de profondeur.

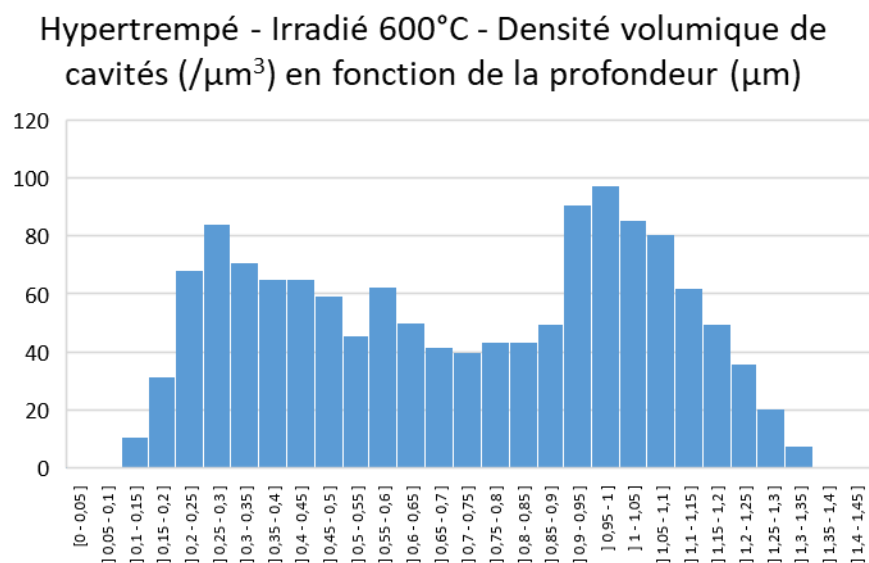


Figure 75 : Evolution de la densité volumique de cavités en fonction de la profondeur, dans l'acier 321 hypertrempé irradié à 600°C

La Figure 76 représente quant à elle l'évolution du volume moyen des cavités en fonction de la profondeur, tel qu'observé sur l'échantillon hypertrempé irradié à 600°C. Au vu de ces valeurs les cavités semblent considérablement plus petites lorsqu'elles sont proches de la surface, et leur taille augmente lorsqu'on s'approche du pic de dommage, vers 1 μm de profondeur.

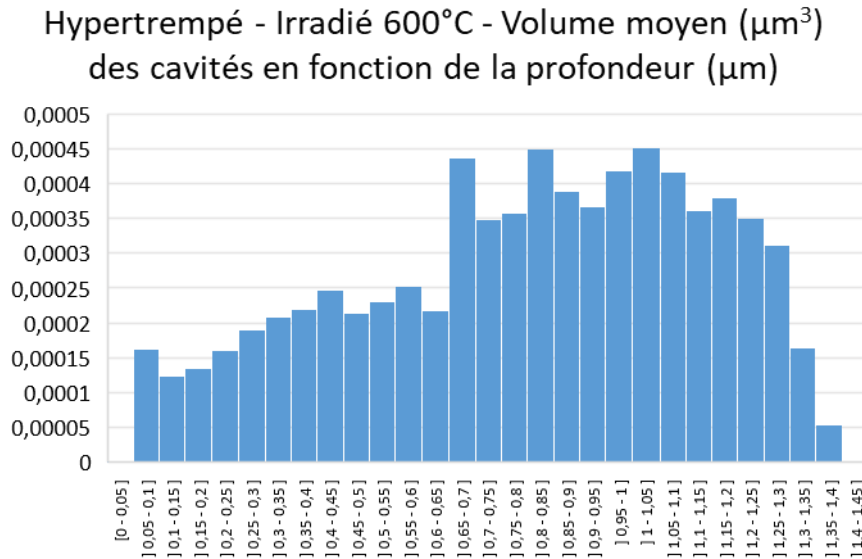


Figure 76 : Evolution du volume moyen des cavités en fonction de la profondeur, dans l'acier 321 hypertrempé irradié à 600°C

A partir du produit de ces deux grandeurs, il est finalement possible d'obtenir la valeur de gonflement de l'échantillon hypertrempé irradié à 600°C en fonction de la profondeur. Celui-ci est représenté Figure 77. On observe un maximum de gonflement de 2% vers 1 μm de profondeur.

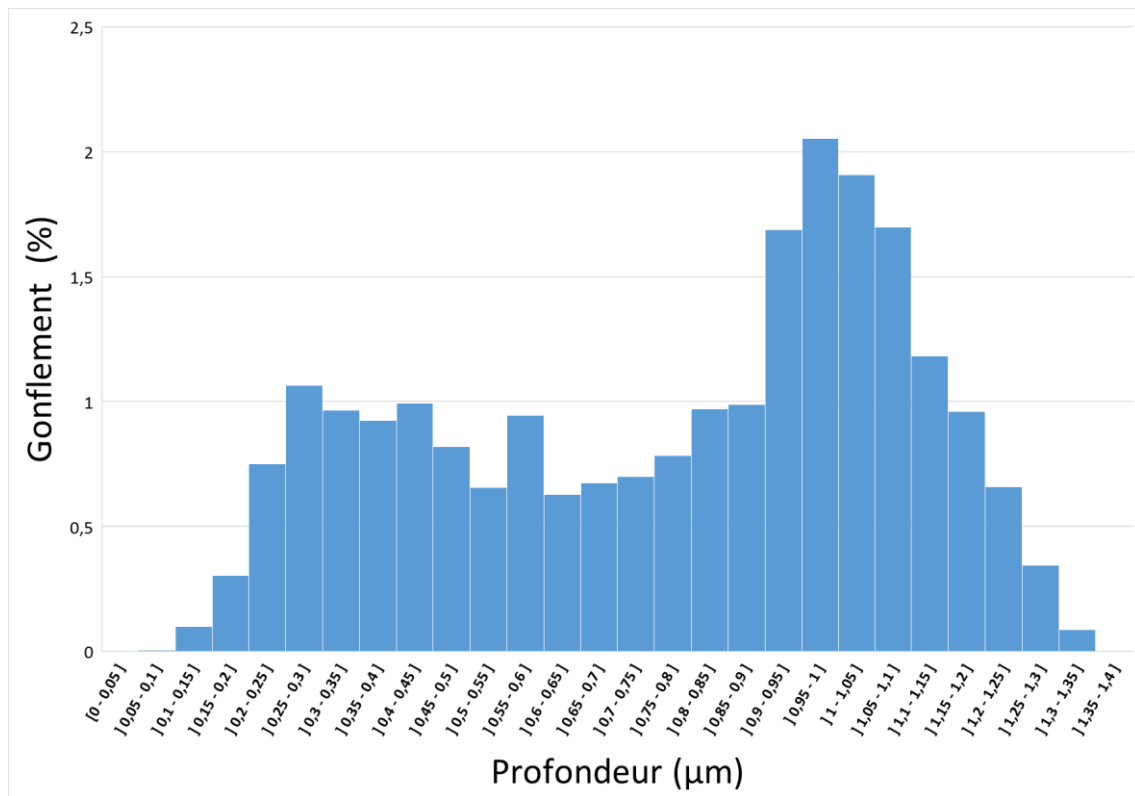


Figure 77 : Evolution du gonflement en fonction de la profondeur dans l'acier 321 hypere trempé irradié à 600°C

4.2.3 Limites de la méthode

Cette méthode présente des avantages : elle offre notamment une grande statistique pour l'étude des cavités, et elle permet de visualiser le gonflement sur toute la zone irradiée. Elle présente cependant un certain nombre de limites :

- La quantification de la profondeur et du maximum de gonflement repose ici sur une hypothèse forte sur la pente du biseau, et par extension sur la reproductibilité du perçage, qui est susceptible de varier d'une lame à l'autre ;
- L'algorithme est susceptible de ne pas identifier toutes les cavités, ou d'identifier comme des cavités des objets qui n'en sont pas ;
- La résolution de la micrographie apporte également une incertitude sur la taille des cavités segmentées ;
- La résolution du problème de Wicksell suppose un grand nombre de cavités, et il est possible que le calcul du gonflement ne soit pas juste sur des matériaux qui gonflent peu.

Ces paramètres étant autant de sources d'erreur, l'incertitude sur le gonflement a été calculée avec une tolérance de 10% sur la valeur du biseau, 10% sur le nombre de cavités comptées, et de 10% sur le nombre de pixels de comptabilisés dans les cavités.

4.3 Evaluation du dommage caractérisé par la méthode MEB-IA pour la gamme d'états métallurgique étudiée

Cette partie présente le gonflement observé pour les différentes nuances d'intérêt. Le maximum de gonflement a été calculé selon la méthodologie présentée auparavant. Les graphiques suivants présentent différentes grandeurs, correspondant au maximum de gonflement.

4.3.1 Résultats des calculs de gonflement

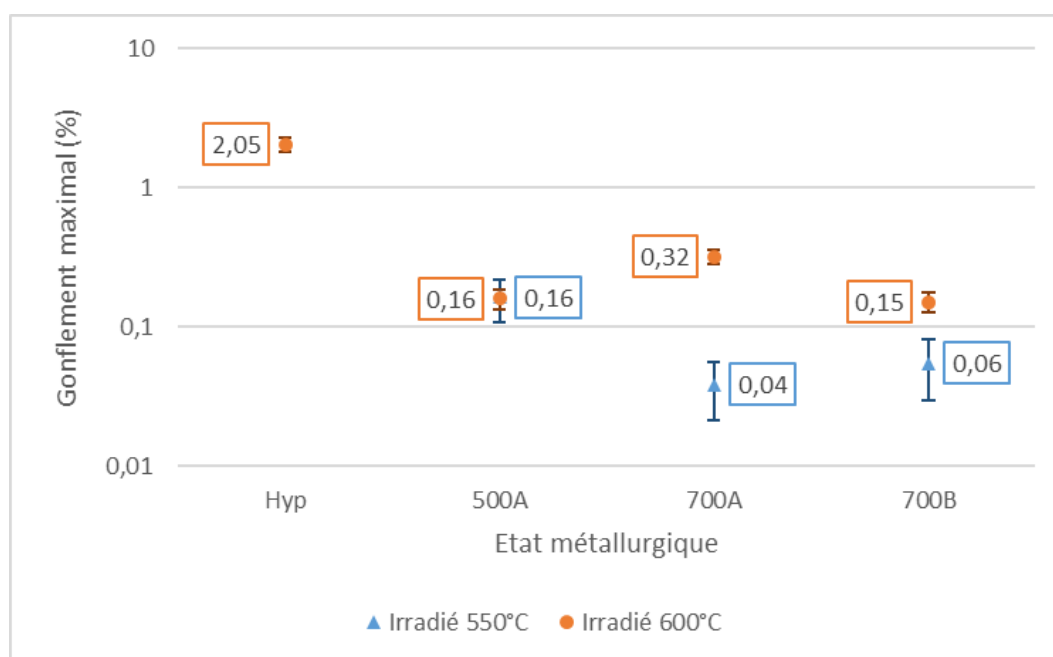


Figure 78 : Gonflement (%) maximal observé pour différents états métallurgiques de l'acier 321 irradié aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 550°C et 600°C

La Figure 78 présente les résultats de gonflement ; ces valeurs sont représentées en échelle logarithmique pour une meilleure lisibilité. Les échantillons irradiés lors de la campagne à 550°C présentent un gonflement faible qui a tendance à diminuer entre l'échantillon 500A-IRR550 et 700A-IRR550 passant de 0,16 à 0,04%. En ce qui concerne les échantillons 700A-IRR550 et 700B-IRR550, le gonflement est similaire entre ces deux échantillons et proche de 0,1%. Pour les échantillons irradiés à 600°C, en revanche, on observe une très nette baisse entre l'état hypereutecté (gonflement de 2%) et les états traités, avec un minimum atteint pour les états 500A-IRR600 et 700B-IRR600 à ~0,15%.

4.3.2 Comparaison avec la littérature

Les résultats de la première campagne d'irradiation, réalisée à 550°C, avec taux de dommage $1,8 \cdot 10^{-3}$ dpa/s, témoignent d'un gonflement faible ($<0,2\%$), ce qui tend à montrer que l'irradiation n'a pas été réalisée à la température du pic de gonflement. Les calculs IRADINA réalisés au chapitre 2 permettent une estimation de la dose maximale à 165 dpa.

A titre de comparaison, sur un échantillon d'acier 304, irradié aux ions Ni, 5MeV, Johnston et al. [91] trouvent un gonflement de 0,6% à 67 dpa, lors d'une irradiation à 550°C, pour un taux de dommage de $2 \cdot 10^{-2}$ dpa/s. Bien que le taux de dommage plus élevé rende plus difficile le gonflement, la nuance 304 n'est pas renforcée au Ti (donc plus sensible au gonflement) ce qui peut expliquer que la variation de volume soit supérieure à celle observée dans l'échantillon 500A-IRR550 (qui a le plus fort gonflement des échantillons étudiés), alors que la dose maximale atteinte dans l'étude de Johnston est plus de deux fois plus faible que celle calculée dans le cadre de la présente campagne. Cette observation conforte la capacité du Ti à réduire le gonflement. Il apparaît donc que l'étude d'une nuance sans Ti conjointement à l'étude d'un matériau optimisé soit de rigueur pour une analyse complète de l'influence des traitements thermomécaniques.

Bien que les gonflements des échantillons irradiés lors de la deuxième campagne soient supérieurs d'environ un facteur deux à ceux de la première, il apparaît, au vu des résultats, que le gonflement reste faible.

Lors de la deuxième campagne, le pic de dommage est estimé à une valeur de l'ordre de 200 dpa. Pour des irradiations réalisées sur des nuances 304 et 321 laminé à 20% et dans des conditions proches (625°C ; ions Ni 5 MeV ; $1,9 \cdot 10^{-2}$ dpa/s ; $5 \cdot 10^{16}$ ion/cm²) Johnston et al. [149] notent un gonflement au pic de 12% à ~ 1 μ m de profondeur dans la lame, pour l'acier 321 hypere trempé, dans lequel 15 appm d'hélium ont été préimplantés. Cette valeur de gonflement est supérieure d'un facteur 6 à celle obtenue pour la nuance hypere trempée de cette étude, tandis que, pour les états traités, cette valeur est inférieure d'un facteur 10 à 40 comparée à celle de l'état hypere trempé. De ce fait, le gonflement est en partie tributaire de la présence d'hélium dans la lame. La pré-implantation d'He permet donc une meilleure simulation du dommage d'irradiation en intégrant la production d'hélium par les réactions nucléaires ; elle pourrait donc être privilégiée dans des études futures. Les irradiations pourraient également être réalisées avec un double faisceau (dont un d'hélium) pour simuler le phénomène de production d'He.

4.3.3 Influence des microstructures sur le gonflement

4.3.3.1 Précipitation

Bien que les échantillons 500A-IRR550 et 700A-IRR550 présentent une densité volumique de précipités similaire, de surcroît plus élevée que celle de l'échantillon 700B-IRR550, c'est ce dernier qui présente le gonflement le plus faible. La précipitation des TiC pourrait contribuer à la réduction du gonflement de l'échantillon 700A-IRR550 par rapport au 500A-IRR550 mais elle ne permet pas d'expliquer seule le faible gonflement de l'échantillon 700B-IRR550 par rapport aux deux autres.

4.3.3.2 Cas des échantillons 700A et 700B, irradiés à 600°C (Fe^{5+} , 5 MeV)

A cela s'ajoute un phénomène, possiblement de la recristallisation ou un changement de phase, dont l'observation à l'EBSA a été caractérisée dans la sous-partie 3.3.3, du Chapitre 3. Il est encore incertain si le phénomène en question est une recristallisation ou un changement de phase. Afin d'explorer cette hypothèse, il serait utile de déterminer la dose (en dpa) à partir de laquelle le matériau commence à recristalliser. Cette démarche semble toutefois difficile à mettre en place expérimentalement. Cependant, la Figure 78 indique que, lors de l'irradiation à 600°C, les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 ont gonflé respectivement de 0,32% et 0,15%, tandis que l'échantillon 500A-IRR600 qui n'a pas recristallisé a gonflé de 0,16%. Or, lors de l'irradiation à 550°C, les échantillons 700A-IRR550 et 700B-IRR550, ont présenté un gonflement moindre que l'échantillon 500A (0,04% et 0,06% contre 0,16% respectivement). La présence de ce changement important de microstructure semble ainsi délétère à la résistance au gonflement.

4.3.3.3 Solution solide

Enfin l'étude des échantillon 500A-IRR600 et 700B-IRR600 à la SAT, présentée dans la partie 3.3.5 Solution solide pour les états irradiés aux ions Fe^{5+} , 5 MeV, à 600°C du Chapitre 3, a permis une première évaluation de l'influence de la solution solide sur le gonflement. Au vu des valeurs de gonflement de 0,16% pour l'échantillon 500A-IRR600 et de 0,15% pour l'échantillon 700B-IRR600, il ne semble pas y avoir de corrélation entre la concentration en titane de la solution solide et le gonflement, bien que l'on s'attende à ce que le gonflement soit moins fort lorsque la présence de titane est importante. Toutefois, bien que les valeurs de concentration dans les volumes d'analyse soient en accord avec les valeurs de concentration fournies par Bureau Veritas, le volume d'analyse de l'échantillon 500A-IRR600 est faible devant celui de l'échantillon 700B-IRR600 - rapport de 23,5 – ce qui ne permet donc pas de conclure catégoriquement sur l'influence de la teneur en titane de la solution solide.

Ainsi, la comparaison de nos échantillons irradiés tend à montrer le caractère bénéfique des traitements thermiques sur la nuance d'acier. Il est en revanche délicat de déterminer un état métallurgique particulier qui serait plus résistant que les autres au gonflement sous irradiation.

4.4 Conclusion

Plusieurs éléments sont à souligner dans le cadre de cette étude. Une méthode a été utilisée et enrichie à partir des travaux de A. Vaugoude et M. Madelain, afin de déterminer le gonflement de l'acier austénitique 321 irradié. L'objectif du déploiement de cette méthode sur une gamme d'états métallurgique d'une nuance d'acier austénitique industrielle était de déterminer une microstructure optimisée pour la résistance au gonflement desdits aciers en réacteur. Malgré la sélection d'une nuance d'acier à priori encline au gonflement, les états traités ont tous montré une faible sensibilité au gonflement, rendant difficile la comparaison deux à deux de l'influence des traitements thermomécaniques.

Certaines tendances sont toutefois notables. Lors de l'irradiation à 600°C, si les échantillons 700A-IRR600 et 700B-IRR600 ont effectivement subi une recristallisation partielle, la densité de dislocations dans le matériau devrait diminuer et ainsi augmenter leur sensibilité au gonflement. La taille de grains relativement plus faible de l'échantillon 700B-IRR600 semble avoir limité le gonflement. Avec une taille de grains comparable avec l'état 700A-IRR600, c'est l'état 500A-IRR600 qui présente le gonflement le plus faible de la gamme irradiée à 600°C.

Concernant la précipitation des TiC, il apparaît qu'une plus grande densité volumique de précipités n'est pas nécessairement synonyme de réduction plus importante du gonflement. Comme en témoignent les échantillons irradiés à 550°C, et plus particulièrement l'état 700B-IRR550, cette étude met en valeur l'intérêt d'identifier les valeurs optimales de Ti précipité par rapport au Ti en solution solide. De plus, les premiers résultats obtenus à la SAT tendent à indiquer qu'un rapport trop en faveur du Ti en solution solide n'est également pas souhaitable. Toutefois, il n'a pas été possible de réaliser de calcul de densité volumique de TiC dans l'échantillon 700B-IRR600 faute de zone mince dans la lame MET, sachant que la pointe SAT de l'échantillon 500A-IRR600 ne permet pas d'obtenir des résultats statistiquement représentatifs. Parmi les pistes de réflexion à étudier, se pose la question de s'intéresser à des traitements thermomécaniques identiques sur un acier 304 (de composition identique à l'acier 321, mais sans le titane), pour isoler l'effet du Ti.

Au vu de ces résultats, il semble qu'une déformation trop importante n'est pas souhaitable puisque l'échantillon 700B qui contient jusqu'à 20% de phase cc avant l'irradiation pourrait être sujet à la recristallisation lors des irradiations à 600°C. On peut signaler, qu'en réacteur, ce risque a été souligné. Dans ce cas on ne maîtrise plus la microstructure et on risque d'avoir un gonflement important. L'échantillon 700A-IRR600 est également susceptible de recristalliser et ainsi de devenir moins résistant au gonflement. Quant à la campagne à 550°C, l'échantillon 700A-IRR550 présente un gonflement similaire à l'échantillon 700B-IRR550, ce qui tend à indiquer que l'intérêt d'un re-laminage à 20% est discutable. De plus, l'analyse des clichés MET des échantillons irradiés à 550°C semble indiquer que la précipitation est du même ordre de grandeur pour les états 500A-IRR550 et 700A-IRR550, pour un gonflement plus faible pour l'état 700A-IRR550. Ce phénomène pourrait être expliqué par l'épinglage des dislocations par les TiC précipités avant l'irradiation. Il semble donc que parmi les échantillons étudiés, la précipitation pré-irradiation est importante. Une gamme de traitements thermomécaniques se composant d'un premier laminage à 10%, d'un recuit à au moins 700°C, et d'un deuxième laminage pourrait être approprié pour limiter le gonflement.

L'échantillon 700A-IRR600 présente un bon compromis. Une piste pour limiter le phénomène de recristallisation que l'on suspecte, serait d'utiliser une nuance plus riche en Ti, et d'obtenir une plus grande densité volumique de TiC avant irradiation, atteignable en soumettant l'échantillon à un recuit de 700°C, pendant plusieurs heures, plutôt qu'une demi-heure, ou bien à une température plus élevée (les TiC précipitent jusqu'à ~900°C). Il faudrait alors étudier les paramètres du traitement thermique.

Conclusion

L'objectif de la présente étude était l'optimisation des traitements thermomécaniques sur les aciers austénitiques utilisables comme aciers de gaines de combustible pour les réacteurs de quatrième génération.

Le premier chapitre a été consacré au cadrage de l'étude et aux causes du problème à résoudre, à savoir le besoin de nuances d'aciers austénitiques plus résistantes au gonflement sous irradiation dans les RNR-Na. Cela a permis de justifier l'utilité des nuances austénitiques, et d'établir l'importance de la microstructure dans la réponse aux dommages d'irradiation.

Le deuxième chapitre s'est attaché à déterminer quelle nuance d'acier industriel pouvait le mieux répondre au cahier des charges imposé par le premier chapitre, et quelles pouvaient être les conditions d'irradiation optimales pour faire gonfler ledit matériau au maximum et ce afin de pouvoir discriminer plus facilement l'utilité de chaque suite de traitements thermomécaniques. Le choix de l'acier s'est porté sur l'acier 321 dont la composition chimique doit favoriser un gonflement important sous irradiation. De plus une gamme de traitements thermomécaniques jugée appropriée a été présentée.

Le troisième chapitre a permis, dans un premier temps de présenter les traitements thermomécaniques appliqués sur l'acier 321, puis les caractérisations du matériau avant l'irradiation. En particulier, la taille des grains, la microdureté, la quantité de martensite ainsi que la précipitation avant irradiation ont été mesurées. Les deux campagnes d'irradiation, ainsi que l'évaluation du dommage par IRADINA ont également été présentées à la fin de ce chapitre. Il en ressort un dommage maximal de l'ordre de 165 dpa pour la campagne réalisée à 550°C et de 200 dpa pour la campagne réalisée à 600°C.

Enfin, le quatrième et dernier chapitre a été en premier lieu dédié à la présentation d'une méthode novatrice de quantification du gonflement d'un matériau irradié ainsi qu'à la présentation des résultats de gonflement des différents échantillons étudiés. Cette méthode dite MEB-IA, déjà utilisée par Adrien Vaugoude et Martin Madelain, a été complétée par des calculs de stéréologie. De cette manière le gonflement peut être étudié sur une seule lame tout en tenant compte des valeurs de dommage calculées (il faut alors tenir aussi compte des effets de surface et d'implantation), et pourrait être utilisée pour corroborer des résultats obtenus en simulation par dynamique d'amas.

Pour mettre en perspective ces valeurs de gonflement, les caractéristiques étudiées dans le chapitre 3 (taille des grains, microdureté, ferrite/martensite, précipitation) ont été évaluées dans les matériaux irradiés pour comparaison. La précipitation des carbures de titane, notamment, est beaucoup plus importante après irradiation. D'autres phénomènes sont observés, comme une phase qui n'a pas été identifiée, ainsi que la transformation de phase ou la recristallisation sous irradiation de certains échantillons.

A ce titre il semblerait qu'un échantillon laminé – recuit à 700°C – re-laminé à 10% présente un bon compromis. Une interrogation peut néanmoins subsister quant à l'écrouissage, et il pourrait être intéressant de réaliser plusieurs échantillons à partir d'un seul état métallurgique afin de vérifier son homogénéité. Des améliorations de la gamme de traitements pourraient également être essayées, ou bien d'étudier ces traitements sur un acier 304 (de composition identique à l'acier 321, mais sans le titane), ce qui pourrait permettre d'isoler l'effet du Ti, ou bien une nuance plus riche en Ti que le 321, ou encore d'étudier un échantillon simplement écroui, afin d'évaluer l'effet du seul traitement mécanique.

Toutefois, le modeste gonflement des échantillons ayant subi des traitements thermomécaniques impose d'améliorer la démarche expérimentale. Malgré des informations sur les transformations de phase et le comportement de la nuance 321 sous irradiation, l'utilisation d'une nuance plus sensible au gonflement que l'AIM1 reste complexe à étudier. Il serait peut-être préférable d'utiliser l'AIM1 directement avec des conditions d'irradiation optimisées.

L'optimisation des conditions d'irradiation pour obtenir un gonflement plus important est capitale. Peut-être serait-il préférable de ne pas chercher à être représentatif des dégâts d'irradiation en réacteur mais de chercher plutôt à maximiser le seul gonflement, ce qui permettrait d'établir des conditions d'utilisation plutôt conservatrices. Une première option serait de réaliser les irradiations à des énergies plus faibles. Ainsi le dommage d'irradiation reste localisé proche de la surface, en conséquence de quoi les interstitiels s'annihilent plus facilement à la surface du matériau et les lacunes ne peuvent plus se recombinaison. Il pourrait également être envisagé de réaliser des campagnes d'irradiation en double faisceau avec un faisceau d'hélium, afin de stabiliser les cavités formées sous irradiation. Par exemple, la thèse de Mikael Kountchou[1] a permis de montrer que l'implantation d'He à raison de 1appm/dpa permet d'obtenir une densité moyenne de cavités supérieure d'un ordre de grandeur par rapport à un échantillon sans implantation ($\sim 1.10^{22}$ contre $\sim 1.10^{21}$ sans implantation).

Dans le cas où le gonflement serait suffisant, l'application des traitements thermomécaniques optimisés sur l'AIM1 pourrait alors être réalisée.

Bibliographie

- [1] M. Kountchou Tawokam, "Gonflement sous irradiation d'un acier de structure pour un réacteur de quatrième génération," Normandie Université, 2018. [Online]. Available: <https://theses.hal.science/tel-02003160>
- [2] WMO, "L'OMM confirme que 2023 bat le record mondial de températures." Accessed: Oct. 03, 2025. [Online]. Available: <https://wmo.int/fr/news/media-centre/lomm-confirme-que-2023-bat-le-record-mondial-de-temperatures>
- [3] WMO, "L'OMM confirme que 2024 est l'année la plus chaude jamais enregistrée, avec une température supérieure d'environ 1,55 °C aux valeurs préindustrielles." Accessed: Dec. 03, 2025. [Online]. Available: <https://wmo.int/fr/news/media-centre/lomm-confirme-que-2024-est-lannee-la-plus-chaude-jamais-enregistree-avec-une-temperature-superieure>
- [4] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), Ed., *Climate Change 2022 - Mitigation of Climate Change: Working Group III Contribution to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 1st ed. Cambridge University Press, 2023. Accessed: Aug. 01, 2024. [Online]. Available: <https://www.cambridge.org/core/product/identifier/9781009157926/type/book>
- [5] IEA, "Greenhouse Gas Emissions from Energy Data Explorer." Accessed: Dec. 03, 2025. [Online]. Available: <https://www.iea.org/data-and-statistics/data-tools/greenhouse-gas-emissions-from-energy-data-explorer>
- [6] RTE, "Futurs énergétiques 2050," Feb. 2022.
- [7] ADEME, "Transitions 2050," Mar. 2024.
- [8] Ministère de la Transition Ecologique, "Chiffres clés de l'énergie." Accessed: Dec. 03, 2025. [Online]. Available: <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/edition-numerique/chiffres-cles-energie-2021/6-bilan-energetique-de-la-france>
- [9] EDF, "Produire une énergie respectueuse du climat." Accessed: Dec. 03, 2025. [Online]. Available: <https://www.edf.fr/groupe-edf/produire-une-energie-respectueuse-du-climat>
- [10] RTE, "Bilan prévisionnel : édition 2025," Résumé exécutif, 2025. Accessed: Jun. 04, 1999. [Online]. Available: <https://assets.rte-france.com/prod/public/2025-12/2025-12-09-BP2025-resume-executif-synthese.pdf>
- [11] G. Locatelli, M. Mancini, and N. Todeschini, "Generation IV nuclear reactors: Current status and future prospects," *Energy Policy*, vol. 61, pp. 1503–1520, Oct. 2013, doi: 10.1016/j.enpol.2013.06.101.
- [12] D. Buckthorpe, "Introduction to Generation IV nuclear reactors," in *Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors*, Elsevier, 2017, pp. 1–22. Accessed: Jul. 31, 2024. [Online]. Available: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B978008100906200001X>
- [13] Joël Guidez, Bernard Bonin, *Réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, CEA Saclay; Groupe Moniteur. in E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire. CEA Saclay; Groupe Moniteur, 2014. [Online]. Available: <https://cea.hal.science/cea-01152795>
- [14] C. Cawthorne and E. J. Fulton, "Voids in Irradiated Stainless Steel," *Nature*, vol. 216, no. 5115, pp. 575–576, Nov. 1967, doi: 10.1038/216575a0.
- [15] J.-L. Séran and M. Le Flem, "Irradiation-resistant austenitic steels as core materials for Generation IV nuclear reactors," in *Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors*, Elsevier, 2017, pp. 285–328. Accessed: Jun. 17, 2022. [Online]. Available: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B9780081009062000082>
- [16] J.L Séran, "Synthèse des études sur le gonflement des alliages austénitiques développés au CEA pour le gainage du combustible RNR-Na," *NT CEA*, 2013.
- [17] P. Dubuisson, "Le gonflement des aciers austénitiques," *Rev. Métallurgie*, vol. 108, no. 1, pp. 33–37, 2011, doi: 10.1051/metal/2010019.
- [18] B. Rouxel, "Thèse de doctorat : Développement d'aciers austénitiques avancés résistants au gonflement sous irradiation," Thèse de doctorat, Université de Lille 1, 2016.
- [19] P. Yvon, M. Le Flem, C. Cabet, and J. L. Seran, "Structural materials for next generation nuclear systems: Challenges and the path forward," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 294, pp. 161–169, Dec. 2015, doi: 10.1016/j.nucengdes.2015.09.015.
- [20] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, "An experimental survey of swelling in commercial Fe-Cr-Ni alloys bombarded with 5 MeV Ni ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 54, no. 1, pp. 24–40, Nov. 1974, doi: 10.1016/0022-3115(74)90073-7.

- [21] J. M. Leitnaker, E. E. Bloom, and J. O. Stiegler, "The effect of minor constituents on swelling in stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 49, no. 1, pp. 57–66, Nov. 1973, doi: 10.1016/0022-3115(73)90061-5.
- [22] N. Igata, Y. Kohno, N. Tanabe, F. Rotman, and H. Tsunakawa, "Effects of nitrogen and carbon on void swelling in austenitic stainless steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 219–223, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90599-3.
- [23] E. E. Bloom, J. M. Leitnaker, and J. O. Stiegler, "Effect of neutron irradiation on the microstructure and properties of titanium-stabilized 316 stainless steels," *Oak Ridge Natl. Lab.*, no. ORNL-TM-4731, p. 23, 1975.
- [24] A. Vaugoude, "Thèse de doctorat : Contribution au développement d'aciers austénitiques avancés résistants au gonflement sous irradiation," Université de Lille, 2019.
- [25] B. Rouxel, C. Bisor, Y. De Carlan, A. Courcelle, and A. Legris, "Influence of the austenitic stainless steel microstructure on the void swelling under ion irradiation," *EPJ Nucl. Sci. Technol.*, vol. 2, p. 30, 2016, doi: 10.1051/epjn/2016023.
- [26] C. R. F. Azevedo, "Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors," *Eng. Fail. Anal.*, vol. 18, no. 8, pp. 1943–1962, Dec. 2011, doi: 10.1016/j.engfailanal.2011.06.010.
- [27] M. Otter, "Study of reactions between nuclear fuel and cladding (316 stainless steel) in reactors Influence of oxygen," France, 1980. [Online]. Available: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:12599028
- [28] J. Decours, J. C. Decugis, R. Demay, M. Pelras, and G. Turluer, "Austenitic stainless steels: assessment of progress in materials performance for reprocessing applications," International Atomic Energy Agency (IAEA), 1987. [Online]. Available: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:18098324
- [29] M USSEGLIO, et al, "NF EN 10020, Definition and classification of grades of steel," 2000, AFNOR.
- [30] P. Thibaux, "Comportement mécanique d'un acier C-Mn lors du laminage intercritique," 2001.
- [31] J.-O. Andersson and B. Sundman, "Thermodynamic properties of the Cr-Fe system," *Calphad*, vol. 11, no. 1, pp. 83–92, Jan. 1987, doi: 10.1016/0364-5916(87)90021-6.
- [32] J. R. Davis (Ed.), *ASM Specialty Handbook: Stainless Steels*. Materials Park, Ohio, USA: ASM International, 1994.
- [33] M. Impéror-Clerc, "Three-dimensional periodic complex structures in soft matter: investigation using scattering methods," *Interface Focus*, vol. 2, no. 5, pp. 589–601, Oct. 2012, doi: 10.1098/rsfs.2011.0081.
- [34] M. Leger, "Predicting and Evaluating Ferrite Content in Austenitic Stainless Steel Castings," in *Stainless Steel Castings*, A. Melilli, Ed., 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1982, pp. 105-105–21. Accessed: Feb. 16, 2022. [Online]. Available: <http://www.astm.org/doiLink.cgi?STP28439S>
- [35] M. A. Martorano, C. F. Tavares, and A. F. Padilha, "Predicting Delta Ferrite Content in Stainless Steel Castings," *ISIJ Int.*, vol. 52, no. 6, pp. 1054–1065, 2012, doi: 10.2355/isijinternational.52.1054.
- [36] E. M. Mahla and N. A. Nielsen, "Passivation of Stainless Steel," *Trans Electrochem Soc*, vol. 89, pp. 167–194, 1946.
- [37] G. Blanc, P. Lacombe, B. Baroux, and G. Beranger, "Stainless Steels-Les Editions de la Physique Les Ulis," *Paris Fr.*, pp. 595–611, 1993.
- [38] T. Allen, H. Burlet, R. K. Nanstad, M. Samaras, and S. Ukai, "Advanced Structural Materials and Cladding," *MRS Bull.*, vol. 34, no. 1, pp. 20–27, Jan. 2009, doi: 10.1557/mrs2009.8.
- [39] P.T. Lovejoy, "Chapter 6: Structure and constitution of wrought martensitic stainless steels," in *Handbook of stainless steels*, McGraw-Hill., New York: D. Peckner, I.M. Bernstein, 1977, pp. 1–23.
- [40] T. Masumura and T. Tsuchiyama, "Effect of Carbon and Nitrogen on Work-hardening Behavior in Metastable Austenitic Stainless Steel," *ISIJ Int.*, vol. 61, no. 2, pp. 617–624, Feb. 2021, doi: 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-535.
- [41] T. Sourmail, "Precipitation in creep resistant austenitic stainless steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 17, no. 1, pp. 1–14, Jan. 2001, doi: 10.1179/026708301101508972.
- [42] C. G. Panait, A. Zielińska-Lipiec, T. Koziel, A. Czyrska-Filemonowicz, A.-F. Gourgues-Lorenzon, and W. Bendick, "Evolution of dislocation density, size of subgrains and MX-type precipitates in a P91 steel during creep and during thermal ageing at 600C for more than 100,000h," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 527, no. 16–17, pp. 4062–4069, Jun. 2010, doi: 10.1016/j.msea.2010.03.010.

- [43] F. C. Hull, "Effects of Composition on Embrittlement of Austenitic Stainless Steels," *Weld. Res. Counc. Bull.*, pp. 104–113, 1973.
- [44] H. R. Brager, "The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 57, no. 1, pp. 103–118, Jul. 1975, doi: 10.1016/0022-3115(75)90184-1.
- [45] P. J. Maziasz and D. N. Braski, "Improved swelling resistance for PCA austenitic stainless steel under HFIR irradiation through microstructural control," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 311–316, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90616-0.
- [46] T. Okita, W. G. Wolfer *, F. A. Garner, and N. Sekimura, "Effects of titanium additions to austenitic ternary alloys on microstructural evolution and void swelling," *Philos. Mag.*, vol. 85, no. 18, pp. 2033–2048, Jun. 2005, doi: 10.1080/14786430412331331871.
- [47] I. M. Neklyudov and V. N. Voyevodin, "Radiation swelling of modified austenitic steels," *Russ. Phys. J.*, vol. 51, no. 4, pp. 400–413, Apr. 2008, doi: 10.1007/s11182-008-9063-9.
- [48] D. Gilbon, L. le Naour, G. Didout, and V. Levy, "Influence de la concentration en silicium et en titane sur le gonflement d'aciers du type 316 Ti irradiés par des électrons de 1 MeV," *J. Nucl. Mater.*, vol. 100, no. 1–3, pp. 253–265, Sep. 1981, doi: 10.1016/0022-3115(81)90535-3.
- [49] R. M. Boothby and T. M. Williams, "The effects of silicon and titanium on void swelling and phase transformations in neutron irradiated 12Cr-15Ni steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 152, no. 2–3, pp. 123–138, May 1988, doi: 10.1016/0022-3115(88)90318-2.
- [50] R. C. de Sousa, J. C. C. Filho, A. A. Tanaka, A. C. S. de Oliveira, and W. E. I. Ferreira, "Effects of solution heat treatment on grain growth and degree of sensitization of AISI 321 austenitic stainless steel," *J. Mater. Sci.*, vol. 41, no. 8, pp. 2381–2386, Apr. 2006, doi: 10.1007/s10853-006-2468-3.
- [51] D. Hull and D. J. Bacon, "Dislocations in Face-centered Cubic Metals," in *Introduction to Dislocations*, Elsevier, 2011, pp. 85–107. Accessed: Jan. 19, 2023. [Online]. Available: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B9780080966724000050>
- [52] T.-H. Lee, C.-S. Oh, S.-J. Kim, and S. Takaki, "Deformation twinning in high-nitrogen austenitic stainless steel," *Acta Mater.*, vol. 55, no. 11, pp. 3649–3662, Jun. 2007, doi: 10.1016/j.actamat.2007.02.023.
- [53] Yannick Balcaen, "Thèse de doctorat : Etude des mécanismes de déformation du titane T40 en formage incrémental. Génie mécanique [physics.class-ph]. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2013. Français. (NNT :). (tel-00934317)," Institut National Polytechnique de Toulouse, 2013. [Online]. Available: <https://theses.hal.science/tel-00934317>
- [54] A. F. Padilha and P. R. Rios, "Decomposition of Austenite in Austenitic Stainless Steels," *ISIJ Int.*, vol. 42, no. 4, pp. 325–337, 2002.
- [55] F. C. Hull, "Delta Ferrite and Martensite Formation in Stainless Steels," *Weld. Res. Counc. Bull.*, no. 179, pp. 193–203, 1973.
- [56] D. Xu, X. Wan, J. Yu, G. Xu, and G. Li, "Effect of Cold Deformation on Microstructures and Mechanical Properties of Austenitic Stainless Steel," *Metals*, vol. 8, no. 7, p. 522, Jul. 2018, doi: 10.3390/met8070522.
- [57] H. A. Rezaei, M. S. Ghazani, and B. Eghbali, "Effect of post deformation annealing on the microstructure and mechanical properties of cold rolled AISI 321 austenitic stainless steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 736, pp. 364–374, Oct. 2018, doi: 10.1016/j.msea.2018.09.012.
- [58] Z. Ni, Y. Sun, F. Xue, J. Bai, and Y. Lu, "Microstructure and properties of austenitic stainless steel reinforced with in situ TiC particulate," *Mater. Des.*, vol. 32, no. 3, pp. 1462–1467, Mar. 2011, doi: 10.1016/j.matdes.2010.08.047.
- [59] W. Kesternich and D. Meertens, "Microstructural evolution of a Titanium-stabilized 15Cr-15Ni steel," *Acta Metall.*, vol. 34, no. 6, pp. 1071–1082, Jun. 1986, doi: 10.1016/0001-6160(86)90217-8.
- [60] N. Cautaerts, R. Delville, E. Stergar, D. Schryvers, and M. Verwerft, "Characterization of (Ti,Mo,Cr)C nanoprecipitates in an austenitic stainless steel on the atomic scale," *Acta Mater.*, vol. 164, pp. 90–98, Feb. 2019, doi: 10.1016/j.actamat.2018.10.018.
- [61] W. Kesternich, "Dislocation-controlled precipitation of TiC particles and their resistance to coarsening," *Philos. Mag. A*, vol. 52, no. 4, pp. 533–548, Oct. 1985, doi: 10.1080/01418618508237645.
- [62] A. F. Padilha, D. J. M. Aguiar, and R. L. Plaut, "Duplex Stainless Steels: A Dozen of Significant Phase Transformations," *Defect Diffus. Forum*, vol. 322, pp. 163–174, Mar. 2012, doi: 10.4028/www.scientific.net/DDF.322.163.
- [63] M. Chabaud-Reytier, "Etude de la fissuration différée par relaxation d'un acier inoxydable austénitique stabilisé au titane," Ecole Nationale Supérieure Des Mines de Paris, 1999.

- [64] V. Moura, A. Y. Kina, S. S. M. Tavares, L. D. Lima, and F. B. Mainier, "Influence of stabilization heat treatments on microstructure, hardness and intergranular corrosion resistance of the AISI 321 stainless steel," *J. Mater. Sci.*, vol. 43, no. 2, pp. 536–540, Jan. 2008, doi: 10.1007/s10853-007-1785-5.
- [65] J. C. Farmer, R. D. McCright, "Degradation of Stainless Steel Structural Material," Mar. 2000. [Online]. Available: <https://www.nrc.gov/docs/ML0037/ML003721326.pdf>
- [66] Smola, B., "Precipitation and hardening mechanisms in the AISI 321 steel," *Acta Univ. Carol. Math. Phys.*, vol. 31, no. 1, pp. 27–46, 1990.
- [67] A. Pardo, M. C. Merino, A. E. Coy, F. Viejo, M. Carboneras, and R. Arrabal, "Influence of Ti, C and N concentration on the intergranular corrosion behaviour of AISI 316Ti and 321 stainless steels," *Acta Mater.*, vol. 55, no. 7, pp. 2239–2251, Apr. 2007, doi: 10.1016/j.actamat.2006.11.021.
- [68] G. S. Was, *Fundamentals of radiation materials science: metals and alloys*. Berlin ; New York: Springer, 2007.
- [69] F. W. Wiffen and E. E. Bloom, "Effect of High helium Content on Stainless-Steel Swelling," *Nucl. Technol.*, vol. 25, no. 1, pp. 113–123, Jan. 1975, doi: 10.13182/NT75-A24354.
- [70] K. Farrell, "Experimental effects of helium on cavity formation during irradiation—a review," *Radiat. Eff.*, vol. 53, no. 3–4, pp. 175–194, Jan. 1980, doi: 10.1080/00337578008207114.
- [71] H. Ullmaier and W. Schilling, *Radiation damage in metallic reactor materials*. IAEA., 2024.
- [72] C. Race, "A Radiation Damage Cascade," in *The Modelling of Radiation Damage in Metals Using Ehrenfest Dynamics*, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2011, pp. 9–13. Accessed: Apr. 10, 2025. [Online]. Available: https://link.springer.com/10.1007/978-3-642-15439-3_2
- [73] M. Desormeaux *et al.*, "Development of radiation damage during in-situ Kr++ irradiation of Fe Ni Cr model austenitic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 475, pp. 156–167, Jul. 2016, doi: 10.1016/j.jnucmat.2016.04.012.
- [74] C. Dai *et al.*, "Atomistic structure and thermal stability of dislocation loops, stacking fault tetrahedra, and voids in face-centered cubic Fe," *J. Nucl. Mater.*, vol. 563, p. 153636, May 2022, doi: 10.1016/j.jnucmat.2022.153636.
- [75] N. Cautaerts *et al.*, "The role of Ti and TiC nanoprecipitates in radiation resistant austenitic steel: A nanoscale study," *Acta Mater.*, vol. 197, pp. 184–197, Sep. 2020, doi: 10.1016/j.actamat.2020.07.022.
- [76] R. Sizmann, "The effect of radiation upon diffusion in metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 69–70, pp. 386–412, Feb. 1978, doi: 10.1016/0022-3115(78)90256-8.
- [77] A. Hishinuma and K. Fukai, "Effect of Solute Titanium on Void Swelling in 316 Stainless Steel," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 20, no. 8, pp. 668–673, Aug. 1983, doi: 10.1080/18811248.1983.9733448.
- [78] W. G. Johnston, T. Laurantzen, J. H. Rosolowski, and A. M. Turkalo, "The effect of metallurgical variables on void swelling," *Corposrate Res. Dev.*, no. 76CRD019, p. 51, 1976.
- [79] N. Sekimura, F. A. Garner, and J. W. Newkirk, "Silicon's role in determining swelling in neutron-irradiated Fe–Ni–Cr–Si alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 191–194, pp. 1244–1247, Sep. 1992, doi: 10.1016/0022-3115(92)90673-9.
- [80] L. K. Mansur and M. H. Yoo, "The effects of impurity trapping on irradiation-induced swelling and creep," *J. Nucl. Mater.*, vol. 74, no. 2, pp. 228–241, Jun. 1978, doi: 10.1016/0022-3115(78)90362-8.
- [81] H. Venker and K. Ehrlich, "Relation between partial diffusion coefficients in alloys and their swelling behaviour under fast neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 60, no. 3, pp. 347–349, Jun. 1976, doi: 10.1016/0022-3115(76)90152-5.
- [82] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, and R. E. Stoller, "Dose dependence of the microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 206, no. 2–3, pp. 266–286, Nov. 1993, doi: 10.1016/0022-3115(93)90128-L.
- [83] C. David *et al.*, "A study of the effect of titanium on the void swelling behavior of D9 steels by ion beam simulation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 383, no. 1–2, pp. 132–136, Dec. 2008, doi: 10.1016/j.jnucmat.2008.08.049.
- [84] S. S. Kasana and O. P. Pandey, "Effect of heat treatment on microstructure and mechanical properties of boron containing Ti-Stabilized AISI-321 steel for nuclear power plant application," *Mater. Today Commun.*, vol. 26, p. 101959, Mar. 2021, doi: 10.1016/j.mtcomm.2020.101959.
- [85] E. H. Lee, L. K. Mansur, and A. F. Rowcliffe, "The effect of phosphorus on the swelling and precipitation behavior of austenitic stainless steels during irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 299–304, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90614-7.

- [86] H. Watanabe, T. Muroga, and N. Yoshida, "The influence of combined addition of phosphorus and titanium on void swelling of austenitic Fe-Cr-Ni alloys at 646–700 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 212–215, pp. 503–508, Sep. 1994, doi: 10.1016/0022-3115(94)90112-0.
- [87] G. S. Was and R. S. Averback, "Radiation Damage Using Ion Beams," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 195–221. Accessed: Jul. 19, 2024. [Online]. Available: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B9780080560335000070>
- [88] L. Shao *et al.*, "Effect of defect imbalance on void swelling distributions produced in pure iron irradiated with 3.5 MeV self-ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 453, no. 1–3, pp. 176–181, Oct. 2014, doi: 10.1016/j.jnucmat.2014.06.002.
- [89] G. S. Was and T. Allen, "Radiation-induced segregation in multicomponent alloys: Effect of particle type," *Mater. Charact.*, vol. 32, no. 4, pp. 239–255, Jun. 1994, doi: 10.1016/1044-5803(94)90101-5.
- [90] C. Abromeit, "Aspects of simulation of neutron damage by ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 216, pp. 78–96, Oct. 1994, doi: 10.1016/0022-3115(94)90008-6.
- [91] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, "Nickel ion bombardment of type 304 stainless steel: Comparison with fast reactor swelling data," *J. Nucl. Mater.*, vol. 47, no. 2, pp. 155–167, Jun. 1973, doi: 10.1016/0022-3115(73)90097-4.
- [92] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, "Nickel-ion bombardment of annealed and cold-worked type 316 stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 48, no. 3, pp. 330–338, Oct. 1973, doi: 10.1016/0022-3115(73)90029-9.
- [93] A. Bhattacharya and S. J. Zinkle, "Cavity Swelling in Irradiated Materials," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2020, pp. 406–455. Accessed: Feb. 23, 2026. [Online]. Available: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B9780128035818115991>
- [94] A. S. Kalchenko, V. V. Bryk, N. P. Lazarev, I. M. Neklyudov, V. N. Voyevodin, and F. A. Garner, "Prediction of swelling of 18Cr10NiTi austenitic steel over a wide range of displacement rates," *J. Nucl. Mater.*, vol. 399, no. 1, pp. 114–121, Apr. 2010, doi: 10.1016/j.jnucmat.2010.01.010.
- [95] F. A. Garner, "Recent insights on the swelling and creep of irradiated austenitic alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 459–471, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90641-X.
- [96] K. Nakata, Y. Katano, I. Masaoka, and K. Shiraishi, "Effects of nitrogen and carbon on void swelling in electron-irradiated austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 639–643, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90673-1.
- [97] H. Ji, P. Zhang, G. Li, M. Wei, Y. Wang, and T. Zou, "The synergistic interaction of interstitial carbon/oxygen, alloying Cr/Ni and vacancy in dilute austenitic iron alloys," *Mater. Today Commun.*, vol. 41, p. 110853, Dec. 2024, doi: 10.1016/j.mtcomm.2024.110853.
- [98] F. Ye, K. Tong, Y. K. Wang, Z. Li, and F. Zhou, "First-principles study of interaction between vacancies and nitrogen atoms in fcc iron," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 149, pp. 65–72, Jun. 2018, doi: 10.1016/j.commatsci.2018.03.007.
- [99] H. Kawanishi and S. Ishino, "Characterization of microstructure at 673 K in neutron-irradiated Fe-16Ni-15Cr with the addition of C, Ti and Nb," *J. Nucl. Mater.*, vol. 179–181, pp. 534–537, Mar. 1991, doi: 10.1016/0022-3115(91)90143-U.
- [100] T. Kimoto and H. Shiraishi, "Void swelling and precipitation in a titanium-modified austenitic stainless steel under proton irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 132, no. 3, pp. 266–276, Jul. 1985, doi: 10.1016/0022-3115(85)90371-X.
- [101] H. Watanabe, T. Muroga, and N. Yoshida, "The effects of oversized solute addition on microstructural evolution in Fe-Cr-Ni alloys during electron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 239, pp. 95–98, Dec. 1996, doi: 10.1016/S0022-3115(96)00415-1.
- [102] T. Muroga, K. Araki, Y. Miyamoto, and N. Yoshida, "Void swelling in high purity Fe-Cr-Ni and Fe-Cr-Ni-Ti alloys irradiated in JOYO," *J. Nucl. Mater.*, vol. 155–157, pp. 1118–1122, Jul. 1988, doi: 10.1016/0022-3115(88)90479-5.
- [103] N. Sekimura and S. Ishino, "The effect of titanium addition on microstructural evolution in austenitic steel irradiated with fast neutrons in FFTF," *J. Nucl. Mater.*, vol. 179–181, pp. 542–545, Mar. 1991, doi: 10.1016/0022-3115(91)90145-W.
- [104] H. Kawanishi and S. Ishino, "Microstructure of Fe-16Ni-15Cr alloys irradiated in JOYO," *J. Nucl. Mater.*, vol. 155–157, pp. 806–809, Jul. 1988, doi: 10.1016/0022-3115(88)90420-5.
- [105] A. F. Rowcliffe and M. L. Grossbeck, "The response of austenitic steels to radiation damage," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 181–190, May 1984, doi: 10.1016/0022-3115(84)90593-2.
- [106] A.-B. Du *et al.*, "Effects of Titanium and Silicon on the Swelling Behavior of 15–15Ti Steels by Heavy-Ion Beam Irradiation," *Acta Metall. Sin. Engl. Lett.*, vol. 30, no. 11, pp. 1049–1054, Nov. 2017, doi: 10.1007/s40195-017-0581-8.

- [107] M. Vasudevan, S. Venkadesan, and P. V. Sivaprasad, "Influence of Ti/(C+6/7N) ratio on the recrystallization behaviour of a cold worked 15Cr-15Ni-2.2Mo-Ti modified austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 231, no. 3, pp. 231–241, Aug. 1996, doi: 10.1016/0022-3115(96)00377-7.
- [108] I. Shibahara, N. Akasaka, S. Onose, H. Okada, and S. Ukai, "Swelling of advanced austenitic stainless steels developed for the environment of heavy neutron exposure," *J. Nucl. Mater.*, vol. 212–215, pp. 487–491, Sep. 1994, doi: 10.1016/0022-3115(94)90109-0.
- [109] F. A. Garner and W. G. Wolfer, "The effect of solute additions on void nucleation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 102, no. 1–2, pp. 143–150, Nov. 1981, doi: 10.1016/0022-3115(81)90554-7.
- [110] H. Watanabe, F. A. Garner, T. Muroga, and N. Yoshida, "The influence of silicon and phosphorus additions on neutron induced microstructural evolution of FeCrNi ternary alloys at 646–703 K," *J. Nucl. Mater.*, vol. 225, pp. 76–84, Aug. 1995, doi: 10.1016/0022-3115(94)00442-0.
- [111] ASTM Standard A01.17, "Standard Specification for Chromium and Chromium-Nickel Stainless Steel Plate, Sheet, and Strip for Pressure Vessels and for General Applications," ASTM, West Conshohocken, PA, 10.1520/A0240_A0240M-24, 2024. [Online]. Available: www.astm.org/a0240_a0240m-24.html
- [112] J. W. Corbett, L. C. Ianniello, and Voids Helium, "RADIATION-INDUCED VOIDS IN METALS. Proceedings of the 1971 International Conference Held at Albany, New York, June 9–11, 1971.," CONF-710601, 4694493, Jan. 1972. Accessed: Jun. 18, 2025. [Online]. Available: <http://www.osti.gov/servlets/purl/4694493-lvch5P/>
- [113] F. Garner and L. Thomas, "Production of Voids in Stainless Steel by High-Voltage Electrons," in *Effects of Radiation on Substructure and Mechanical Properties of Metals and Alloys*, ASTM International 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 1973, pp. 303–323. Accessed: Jun. 18, 2025. [Online]. Available: <https://asmedigitalcollection.asme.org/astm-ebooks/book/1164/chapter/27780872/Production-of-Voids-in-Stainless-Steel-by-High>
- [114] Pedro Rupf Pereira Viana, Luiza Venturini, and Yasmin Siqueira Souza, "Intergranular Corrosion of AISI 304 Heat Treated at 800 °C Varying Range Times," *J. Chem. Chem. Eng.*, vol. 9, no. 4, Apr. 2015, doi: 10.17265/1934-7375/2015.04.004.
- [115] M. . Lewis and B. Hattersley, "Precipitation of M₂₃C₆ in austenitic steels," *Acta Metall.*, vol. 13, no. 11, pp. 1159–1168, Nov. 1965, doi: 10.1016/0001-6160(65)90053-2.
- [116] F. A. Garner, J. F. Bates, and M. A. Mitchell, "The strong influence of temper annealing conditions on the neutron-induced swelling of cold-worked austenitic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 189, no. 2, pp. 201–209, Jul. 1992, doi: 10.1016/0022-3115(92)90533-Q.
- [117] W. Reick, M. Pohl, and A. F. Padilha, "Recrystallization-Transformation Combined Reactions during Annealing of a Cold Rolled Ferritic-Austenitic Duplex Stainless Steel," *ISIJ International*.
- [118] N. Cautaerts, R. Delville, E. Stergar, D. Schryvers, and M. Verwerft, "Tailoring the Ti-C nanoprecipitate population and microstructure of titanium stabilized austenitic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 507, 2018, doi: 10.1016/j.jnucmat.2018.04.041.
- [119] E. . Bloom, J. . Stiegler, A. . Rowcliffe, and J. . Leitnaker, "Austenitic stainless steels with improved resistance to radiation-induced swelling," *Scr. Metall.*, vol. 10, no. 4, pp. 303–308, Apr. 1976, doi: 10.1016/0036-9748(76)90081-8.
- [120] M. S. Ghazani and B. Eghbali, "Characterization of the hot deformation microstructure of AISI 321 austenitic stainless steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 730, pp. 380–390, Jul. 2018, doi: 10.1016/j.msea.2018.06.025.
- [121] A. S. Grot and J. E. Spruiell, "Microstructural stability of titanium-modified type 316 and type 321 stainless steel," *Metall. Trans. A*, vol. 6, no. 11, pp. 2023–2030, Nov. 1975, doi: 10.1007/BF03161827.
- [122] Lefort, "Thèse de doctorat : Impact des conditions d'irradiation aux ions sur les microstructures irradiées : application à la transférabilité des ions aux neutrons," Université Paris Saclay, 2025. [Online]. Available: <https://doi.org/10.70675/c4dd6106zae4ez4b4eza253zc2f01bd2b3f4>
- [123] C. Borschel and C. Ronning, "Ion beam irradiation of nanostructures – A 3D Monte Carlo simulation code," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 269, no. 19, pp. 2133–2138, Oct. 2011, doi: 10.1016/j.nimb.2011.07.004.
- [124] J.-P. Crocombette and C. Van Wambeke, "Quick calculation of damage for ion irradiation: implementation in Iradina and comparisons to SRIM," *EPJ Nucl. Sci. Technol.*, vol. 5, p. 7, 2019, doi: 10.1051/epjn/2019003.

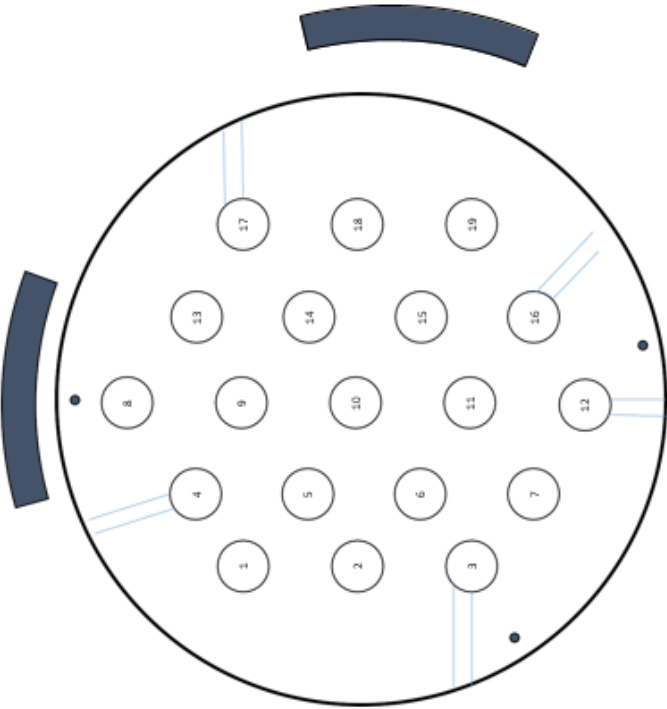
- [125] J. M. Rodelas, M. C. Maguire, and J. R. Michael, "Martensite Formation in the Metallographic Preparation of Austenitic Stainless Steel Welds," *Microsc. Microanal.*, vol. 19, no. S2, pp. 1748–1749, Aug. 2013, doi: 10.1017/S1431927613010738.
- [126] J. Talonen, P. Aspegren, and H. Hänninen, "Comparison of different methods for measuring strain induced α -martensite content in austenitic steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 20, no. 12, pp. 1506–1512, Dec. 2004, doi: 10.1179/026708304X4367.
- [127] Gabriel Spartacus, "Thèse de doctorat : Évolution des nano-oxydes et de la microstructure au cours du procédé de fabrication d'aciers renforcés par dispersion d'oxydes," GRENOBLE ALPES, 2016.
- [128] R. Carabes, H. Carreón, M. L. Carreon, M. Salazar, and P. Hernández, "Evaluation of the Precipitation Process of a Clad Pipe by the Thermoelectric Potential Technique," *Metals*, vol. 9, no. 12, p. 1274, Nov. 2019, doi: 10.3390/met9121274.
- [129] Emma Kruck, "Thèse de doctorat : Evaluation du cold spray pour la fabrication additive d'ODS ferritiques," Université de Technologie de Troyes, 2025.
- [130] A. F. Padilha, J. C. Dutra, and V. Randle, "Interaction between precipitation, normal grain growth, and secondary recrystallisation in austenitic stainless steel containing particles," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 15, no. 9, pp. 1009–1014, Sep. 1999, doi: 10.1179/026708399101506850.
- [131] L. V. Radionova, D. V. Perevozchikov, A. N. Makoveckii, V. N. Eremin, A. M. Akhmedyanov, and S. V. Rushchits, "Grain Growth during Mechanical Processing of Austenitic Stainless Steel AISI 321," *Metals*, vol. 13, no. 8, p. 1421, Aug. 2023, doi: 10.3390/met13081421.
- [132] S. Singh, F. Ram, and M. De Graef, "Application of forward models to crystal orientation refinement," *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 50, no. 6, pp. 1664–1676, Dec. 2017, doi: 10.1107/S1600576717014200.
- [133] A. Hoffman *et al.*, "Enhanced Resistance to Irradiation Induced Ferritic Transformation in Nanostructured Austenitic Steels," *Materialia*, vol. 13, p. 100806, Sep. 2020, doi: 10.1016/j.mtla.2020.100806.
- [134] M. Bachani, A. Hayoune, J. Fajoui, and P.-A. Dubos, "Phase transformations in cold-rolled 304L stainless steel by dilatometry," *Bull. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 2, Mar. 2024, doi: 10.1007/s12034-024-03163-x.
- [135] D. Panov *et al.*, "Mechanisms of the Reverse Martensite-to-Austenite Transformation in a Metastable Austenitic Stainless Steel," *Metals*, vol. 11, no. 4, p. 599, Apr. 2021, doi: 10.3390/met11040599.
- [136] W. V. Vaidya and K. Ehrlich, "Radiation-induced recrystallization, its cause and consequences in heavy-ion irradiated 20% cold-drawn steels of type 1.4970," *J. Nucl. Mater.*, vol. 113, no. 2–3, pp. 149–162, Jan. 1983, doi: 10.1016/0022-3115(83)90137-X.
- [137] S. Jin, L. Guo, F. Luo, Z. Yao, S. Ma, and R. Tang, "Ion irradiation-induced precipitation of Cr23C6 at dislocation loops in austenitic steel," *Scr. Mater.*, vol. 68, no. 2, pp. 138–141, Jan. 2013, doi: 10.1016/j.scriptamat.2012.10.002.
- [138] M. A. Tunes, C. G. Schön, and G. Greaves, "Radiation-induced precipitation with concurrent bubbles formation in an austenitic stainless steel (AISI-348)," *Materialia*, vol. 7, p. 100408, Sep. 2019, doi: 10.1016/j.mtla.2019.100408.
- [139] M. A. Tunes *et al.*, "Thermodynamics of an austenitic stainless steel (AISI-348) under in situ TEM heavy ion irradiation," *Acta Mater.*, vol. 179, pp. 360–371, Oct. 2019, doi: 10.1016/j.actamat.2019.08.041.
- [140] Martin Madelain, "Thèse de doctorat : Intérêt de la fabrication additive d'alliages à base de nickel pour les réacteurs à sels fondus : étude du comportement sous irradiation et en corrosion aux sels fondus," Université Paris Saclay, 2023.
- [141] S. D. Wicksell, "THE CORPUSCLE PROBLEM. A MATHEMATICAL STUDY OF A BIOMETRIC PROBLEM," *Biometrika*, vol. 17, no. 1–2, pp. 84–99, 1925, doi: 10.1093/biomet/17.1-2.84.
- [142] G. Matheron, *Éléments pour une théorie des milieux poreux / par G. Matheron*. Paris: Masson et Cie, 1967.
- [143] C. Sun *et al.*, "Superior radiation-resistant nanoengineered austenitic 304L stainless steel for applications in extreme radiation environments," *Sci. Rep.*, vol. 5, no. 1, Jan. 2015, doi: 10.1038/srep07801.
- [144] C. Sun, F. A. Garner, L. Shao, X. Zhang, and S. A. Maloy, "Influence of injected interstitials on the void swelling in two structural variants of 304L stainless steel induced by self-ion irradiation at 500 °C," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 409, pp. 323–327, Oct. 2017, doi: 10.1016/j.nimb.2017.03.070.

- [145] H. Kim, J. G. Gigax, J. Fan, F. A. Garner, T.-L. Sham, and L. Shao, "Swelling resistance of advanced austenitic alloy A709 and its comparison with 316 stainless steel at high damage levels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 527, p. 151818, Dec. 2019, doi: 10.1016/j.jnucmat.2019.151818.
- [146] G. Meric de Bellefon, K. M. Bertsch, M. R. Chancey, Y. Q. Wang, and D. J. Thoma, "Influence of solidification structures on radiation-induced swelling in an additively-manufactured austenitic stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 523, pp. 291–298, Sep. 2019, doi: 10.1016/j.jnucmat.2019.06.012.
- [147] A. J. French, "PhD Thesis : STUDYING THE CORRELATION BETWEEN SWELLING, RADIATION DAMAGE RATE, AND TEMPERATURE IN NUCLEAR REACTOR MATERIALS USING ION IRRADIATIONS," Texas A&M University, 2022.
- [148] L. Jiang *et al.*, "A comparison study of void swelling in additively manufactured and cold-worked 316L stainless steels under ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 551, p. 152946, Aug. 2021, doi: 10.1016/j.jnucmat.2021.152946.
- [149] W. G. Johnston, J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, and T. Lauritzen, "The depth distribution of void swelling produced by 5 MeV Ni ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 62, no. 2–3, pp. 167–180, Nov. 1976, doi: 10.1016/0022-3115(76)90014-3.

Annexe 1

Cette annexe présente les compte-rendu d’irradiation pour chacune des campagnes. Pour chacune d’entre elles la disposition des échantillons sur le porte-échantillons est d’abord présentée. Puis les éléments techniques, ainsi que les retours d’expérience pour chaque irradiation sont présentés.

Positions	Échantillon
1	Ni 718
2	ABD 900
3	500A
4	500A
5	500B
6	500B
7	550A
8	550B
9	600A
10	600B
11	650A
12	650B
13	700A
14	700A
15	700B
16	700B
17	T63
18	T63 M1
19	DS3



COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 221128E Date : 28/11/2022
Demandeur : DeCarlan Action : 22-025
Matériau(x) : Austenitic/base Ni
Nombre et type d'échantillons : 19 Lames IMET
Opérateurs : P. BILLAUD / C. BERNARD / B. RIDARD - D. BOSSU



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre 3F Angle d'incidence: 15°
Accélérateur Epiméthée
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,47 tours
Gaz porteur: Néant
Extraction : 18 kV 0,296 mA FOC-1 : 12,82 kV
E X B : 1,1917 / -1,633 kV FOC-2 : 6,039 kV
Atténuateur : 90,02 % Tension continue : -0,03 kV
Déflexion ES-T1: 0 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0,982 MV Corona : 315 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec line 1 barre de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	6,401 / 5,522 kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	0,259 kV	Courant E0-1	25,9 µA
Aimant 30°	4079,3 Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0 / 0 kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±5 / ±18 mm	Courant E0-2	8,7 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5,9 / 5,95 A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0 / -0,336 kV	Courant E0-3	8,4 µA
Aimant 15°	5343,3 Gauss	Courant E4-1	8,6 µA
Collimateur E4-1 X/Y	±10 / ±10 mm		
Triplet magnétique MQ-E4-1 X-Y	5,21 / 5,21 A		
Déflexion ES-E4-1 X/Y	-0,141 / -0,302 kV	Courant E4-2	7,2 µA
Balayage X/Y	2,2 / 2,3 kV		
Collimateur E4-2 X/Y	±10 / ±10 mm		

Température

550 °C Vide 1,00E-07 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Lot irradié**Durée d'irradiation**

304 mn

Fluence1,80E+16 ions.cm⁻² (+/-25%)*Courant moyen*

20,77 nA

Flux9,87E+11 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%)*Puissance thermique*0,79 W.cm⁻²**Observations :****Contrôle d'activité radiologique :** Inférieur au bruit de fond.*Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignées du contrôle commande des accélérateurs.**Lorsque les valeurs consignées ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.***RETOUR D'EXPERIENCE**

Accélérateur

Epiméthée

Ident. 221128E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	++	Quelques pics d'extraction Faisceau stable
Flux, dose Epiméthée	++	Flux conforme à la demande : 9.87E11 ions/cm ² /s (excepté cage n°3 : 7.4E11ions/cm ² /s) Imoyen : 20.8nA
Contrôle température	++	Suivi par rapport à la moyenne de TC 1,2 et 3
Contrôle vide	++	Début 2E-7T, Fin 1E-7T
Autres		Tentative pour homogénéiser, sans trop de réussite

COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 221129E Date : 29/11/2022
Demandeur : DeCarlan Action : 22-025
Matériau(x) : Austenitic/base Ni
Nombre et type d'échantillons : 19 Lames IMET
Opérateurs : P. BILLAUD / C. BERNARD / B. RIDARD - D. BOSSU



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre 3F Angle d'incidence: 15°
Accélérateur Epiméthée
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,47 tours
Gaz porteur: Néant
Extraction : 18 kV 0,302 mA FOC-1 : 12,77 kV
E X B : 1,2346 / -1,585 kV FOC-2 : 6,141 kV
Atténuateur : 90,97 % Tension continue : -0,04 kV
Déflexion ES-T1: 20,7 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0,982 MV Corona : 315 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec line 1 barre de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	6,563 / 5,599 kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	0,26 kV	Courant E0-1	27,2 µA
Aimant 30°	4088,8 Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0 / 0 kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±5 / ±18 mm	Courant E0-2	8,8 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5,49 / 5,56 A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0 / -0,237 kV	Courant E0-3	8,6 µA
Aimant 15°	5385,9 Gauss	Courant E4-1	8,7 µA
Collimateur E4-1 X/Y	±5 / ±5 mm		
Triplet magnétique MQ-E4-1 X-Y	5,25 / 5,45 A		
Déflexion ES-E4-1 X/Y	0,992 / -0,13 kV	Courant E4-2	8,5 µA
Balayage X/Y	2,5499 / 1,6001 kV		
Collimateur E4-2 X/Y	±10 / ±10 mm		

Température

550 °C Vide <2E-7 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Lot irradié**Durée d'irradiation**

278 mn

Fluence2,00E+16 ions.cm⁻² (+/-25%)*Courant moyen*

25,30 nA

Flux1,20E+12 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%)*Puissance thermique*0,96 W.cm⁻²**Observations :****Contrôle d'activité radiologique :** Inférieur au bruit de fond.*Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignes du contrôle commande des accélérateurs.**Lorsque les valeurs consignes ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.***RETOUR D'EXPERIENCE**

Accélérateur

Epiméthée

Ident. 221129E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	+	Quelques pics d'extraction Faisceau stable
Flux, dose Epiméthée	++	Flux conforme à la demande : 1.2E12 ions/cm ² /s Imoyen : 25.3nA
Contrôle température	++	Suivi par rapport à la moyenne de TC 1,2 et 3
Contrôle vide	++	Début 2E-7T, Fin 8E-8T
Autres		4h pour régler le faisceau sur cage 3F Difficulté à régler ce faisceau (homogénéité) Suite manip 28/11/22

COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 221130E Date : 30/11/2022
Demandeur : DeCarlan Action : 22-025
Matériau(x) : Austenitic/base Ni
Nombre et type d'échantillons : 19 Lames IMET
Opérateurs : P. BILLAUD / C. BERNARD / B. RIDARD - D. BOSSU



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre 3F Angle d'incidence: 15°
Accélérateur Epiméthée
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,47 tours
Gaz porteur: Néant
Extraction : 18 kV 0,305 mA FOC-1 : 12,53 kV
E X B : 1,1123 / -1,695 kV FOC-2 : 6,379 kV
Atténuateur : 91,26 % Tension continue : -0,04 kV
Déflexion ES-T1: 42,3 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0,982 MV Corona : 315 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec line 1 barre de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	6,545 / 5,594 kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	0,186 kV	Courant E0-1	31,1 µA
Aimant 30°	4077,7 Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0 / 0 kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±5 / ±18 mm	Courant E0-2	9,1 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5,41 / 5,29 A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0 / -0,308 kV	Courant E0-3	8,8 µA
Aimant 15°	5372,8 Gauss	Courant E4-1	8,9 µA
Collimateur E4-1 X/Y	±5 / ±5 mm		
Triplet magnétique MQ-E4-1 X-Y	5,45 / 5,4 A		
Déflexion ES-E4-1 X/Y	0,89 / 0,35 kV	Courant E4-2	8,8 µA
Balayage X/Y	2,5 / 2,3 kV		
Collimateur E4-2 X/Y	±10 / ±10 mm		

Température

550 °C Vide <8E-8 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Lot irradié**Durée d'irradiation**

312 mn

Fluence1,80E+16 ions.cm⁻² (+/-25%)*Courant moyen*

20,22 nA

Flux9,59E+11 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%)*Puissance thermique*0,768 W.cm⁻²**Observations :****Contrôle d'activité radiologique :** Inférieur au bruit de fond.*Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignes du contrôle commande des accélérateurs.**Lorsque les valeurs consignes ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.***RETOUR D'EXPERIENCE**

Accélérateur

Epiméthée

Ident. 221130E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	+	Quelques pics d'extraction Difficulté à régler le faisceau, une fois démarré : faisceau stable
Flux, dose Epiméthée	++	Flux conforme à la demande : 9.6E11 ions/cm ² /s Imoyen : 20.2nA
Contrôle température	++	Suivi par rapport à la moyenne de TC 1,2 et 3
Contrôle vide	++	Début 1.7E-7T, Fin 8E-8T
Autres		4h pour régler le faisceau sur cage 3F Difficulté à régler ce faisceau (homogénéité) Suite manip 28-29/11/22

COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 221201E Date : 01/12/2022
Demandeur : DeCarlan Action : 22-025
Matériau(x) : Austenitic/base Ni
Nombre et type d'échantillons : 19 Lames IMET
Opérateurs : P. BILLAUD / C. BERNARD / B. RIDARD - D. BOSSU



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre 3F Angle d'incidence: 15°
Accélérateur Epiméthée
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,47 tours
Gaz porteur: Néant
Extraction : 18 kV 0,297 mA FOC-1 : 13,63 kV
E X B : 1,0803 / -1,639 kV FOC-2 : 4,443 kV
Atténuateur : 88,96 % Tension continue : -0,03 kV
Déflexion ES-T1: -15,7 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0,981 MV Corona : 315 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec line 1 barre de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	6,468 / 5,538 kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	0,121 kV	Courant E0-1	26 µA
Aimant 30°	4084,5 Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0 / -0,581 kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±3 / ±3 mm	Courant E0-2	8 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5,63 / 5,64 A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0 / -0,378 kV	Courant E0-3	7,8 µA
Aimant 15°	5386,1 Gauss	Courant E4-1	7,9 µA
Collimateur E4-1 X/Y	±5 / ±5 mm		
Triplet magnétique MQ-E4-1 X-Y	5,58 / 5,7 A		
Déflexion ES-E4-1 X/Y	0,255 / 0,445 kV	Courant E4-2	7,4 µA
Balayage X/Y	2,5 / 2 kV		
Collimateur E4-2 X/Y	±10 / ±10 mm		

Température

550 °C Vide <1E-7 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Lot irradié**Durée d'irradiation**

386 mn

Fluence2,40E+16 ions.cm⁻² (+/-25%)*Courant moyen*

21,79 nA

Flux1,03E+12 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%)*Puissance thermique*0,827 W.cm⁻²**Observations :****Contrôle d'activité radiologique :** Inférieur au bruit de fond.*Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignes du contrôle commande des accélérateurs.**Lorsque les valeurs consignes ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.***RETOUR D'EXPERIENCE**

Accélérateur

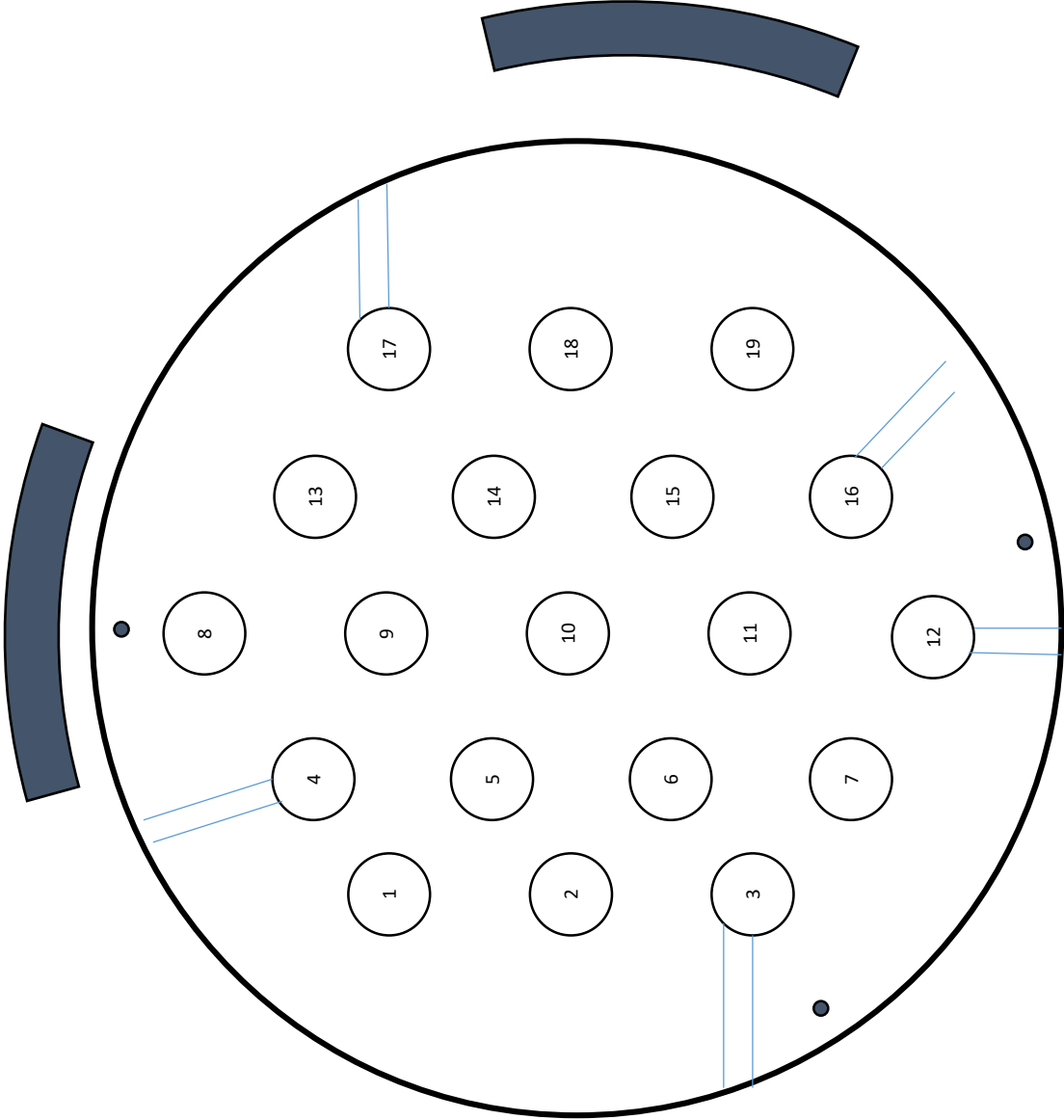
Epiméthée

Ident. 221201E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	+	Quelques pics d'extraction Difficulté à régler le faisceau, une fois démarré : faisceau stable
Flux, dose Epiméthée	++	Flux conforme à la demande : 1.0E12 ions/cm ² /s Fluence totale Jour4 : 2.4E16ions/cm ² Imoyen : 21.79nA
Contrôle température	++	Suivi par rapport à la moyenne de TC 1,2 et 3
Contrôle vide	++	Début 1.7E-7T, Fin 8E-8T
Autres		4h pour régler le faisceau sur cage 3F Difficulté à régler ce faisceau (homogénéité) Suite manip 28-29-30/11/22

Campagne 2



Positions	Échantillon
1	500A
2	500B
3	550A
4	550B
5	600A
6	600B
7	316L LTMEX1 (risque d'ombrage)
8	650B
9	700A
10	700B
11	RECEPTION
12	ECROUI 20%
13	T63
14	T63M1
15	NiMo ADRIEN
16	316L REF
17	316L LTMEX1
18	316L TURBULA
19	650A

COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 20230705E Date : 05/07/2023
Demandeur : De Carlan Action : 23-011
Matériau(x) : 316L
Nombre et type d'échantillons : 19 lames MET
Opérateurs : Equipe JANNuS



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre **E3** Angle d'incidence: 0°
Accélérateur **Epiméthée**
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,45 tours
Gaz porteur: Néant FOC-1 : 13.284 kV
Extraction : 18.000 kV 0.672 mA FOC-2 : 4.629 kV
E X B : 0.0000 / -2.3955 kV Tension continue : -0.030 kV
Atténuateur : 87.83 % Déflexion ES-T1: -21.6 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0.982 MV Corona : 320 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec liner 1 barres de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	7.365	/ 6.575	kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	1.297		kV	Courant E0-1	11,4 µA
Aimant 30°	4020.0		Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0.000	/ 0.000	kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±5	/ ±5	mm	Courant E0-2	3,6 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5.56	/ 5.47	A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0.027	/ -0.217	kV	Courant E0-3	3,5 µA
Aimant 15°	30.5		Gauss	Courant E2-1	3,5 µA
Collimateur E3-1 X/Y	±5	/ ±5	mm		
Triplet magnétique MQ-E3-1 X-Y	5.84	/ 5.87	A		
Déflexion ES-E3-1 X/Y	0.016	/ 0.000	kV	Courant E2-2	3,5 µA
Balayage X/Y	1.1000	/ 0.8000	kV		
Collimateur E3-2 X/Y	±18	/ ±18	mm		

Température

600 °C Vide 2,00E-07 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Durée d'irradiation

15,633333 h
Fluence 4,64E+16 ions.cm⁻² (+/-25%) **Courant moyen** 16,73 nA
Flux 8,15E+11 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%) **Puissance thermique** 0,65 W.cm⁻²
Dégradeur:

Observations : Arrêt faisceau pendant 1h30 au bout de 15h38 d'irradiation.

Contrôle d'activité radiologique : Inférieur au bruit de fond.

Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignes du contrôle commande des accélérateurs.

Lorsque les valeurs consignées ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.

RETOUR D'EXPERIENCE

Accélérateur

Epiméthée

Ident.

20230705E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	--	Instabilités sources. Faisceau peu stable
Flux, dose Epiméthée	+	Flux conforme à la demande le premier jour. Fluence avant arrêt: 4,64E16 ions/cm²
Contrôle température	++	OK
Contrôle vide	++	OK
Autres	le 04/07/23	Dégazage 200°C pendant 1h. Pic au chauffage 5,6E-8 Torr

COMPTE RENDU D'IRRADIATION

F2-DMN-SRMP-PR-XX

Identification: 20230705E Date : 07/07/2023
Demandeur : De Carlan Action : 23-011
Matériau(x) : 316L
Nombre et type d'échantillons : 19 lames MET
Opérateurs : Equipe JANNuS



CONDITIONS D'IRRADIATION

Chambre **E3** Angle d'incidence: 0°
Accélérateur **Epiméthée**
Ions incidents Fe⁵⁺ 5 MeV

Source ECR

Gas source : FeC10H10 9,45 tours
Gaz porteur: Néant FOC-1 : 11.484 kV
Extraction : 15.000 kV 0.911 mA FOC-2 : 3.498 kV
E X B : 0.0000 / -2.2795 kV Tension continue : -0.033 kV
Atténuateur : 87.12 % Déflexion ES-T1: 114.0 V

Accélérateur Epiméthée

Accélération (MV) 0.985 MV Corona : 320 mm 20 µA
Régulation en mode gvm avec liner 1 barres de court-circuit

Lignes de faisceau

Triplet électrostatique EQ-01 X/Y	6.730	/ 5.763	kV		
Déflexion ES-E0-1 Y	0.738		kV	Courant E0-1	8,06 µA
Aimant 30°	4008.9		Gauss		
Déflexion ES-02 X/Y	0.000	/ 0.000	kV		
Collimateur E0-2 X/Y	±5	/ ±5	mm	Courant E0-2	2,34 µA
Triplet magnétique MQ-E0-1 X-Y	5.56	/ 5.47	A		
Déflexion ES-E0-3 X/Y	0.136	/ -0.231	kV	Courant E0-3	2,32 µA
Aimant 15°	30.5		Gauss	Courant E2-1	2,34 µA
Collimateur E3-1 X/Y	±5	/ ±5	mm		
Triplet magnétique MQ-E3-1 X-Y	5.91	/ 5.84	A		
Déflexion ES-E3-1 X/Y	0.016	/ 0.000	kV	Courant E2-2	2,27 µA
Balayage X/Y	1.0500	/ 0.8000	kV		
Collimateur E3-2 X/Y	±18	/ ±18	mm		

Température

600 °C **Vide** 2,00E-07 Torr
Surface irradiée Ø > 20 mm

Durée d'irradiation

22,166667 h
Fluence 4,85E+16 ions.cm⁻² (+/-25%) **Courant moyen** 12,37 nA
Flux 6,08E+11 ions.cm⁻².s⁻¹ (+/-25%) **Puissance thermique** 0,49 W.cm⁻²
Dégradeur:

Observations :

Contrôle d'activité radiologique : Inférieur au bruit de fond.

Nota : les valeurs indiquées sont les valeurs consignes du contrôle commande des accélérateurs.
Lorsque les valeurs consignes ne sont pas disponibles, les valeurs renseignées sont celles de relecture.

RETOUR D'EXPERIENCE

Accélérateur Epiméthée Ident. 20230705E

Évaluation des opérateurs JANNUS

	Evaluation	Commentaires
Faisceau Epiméthée	+	Faisceau stable
Flux, dose Epiméthée	+	Flux inférieur à la demande. Fluence moyenne inférieure à la demande. Total 9,49E16 ions/cm²
Contrôle température	++	OK
Contrôle vide	++	OK
Autres	le 04/07/23	Dégazage 200°C pendant 1h. Pic au chauffage 5,6E-8 Torr

ANNEXE 2¹

La géométrie des lames MET utilisées rend difficile leur caractérisation en EBSD. Leur topologie en forme de cuvette a pour conséquence que le focus n'est pas le même à tout endroit de la cartographie et nuit à la formation de clichés de diffractions de bonne qualité. Ceux-ci peuvent alors être fortement dégradés comme le montre la figure ci-dessous.

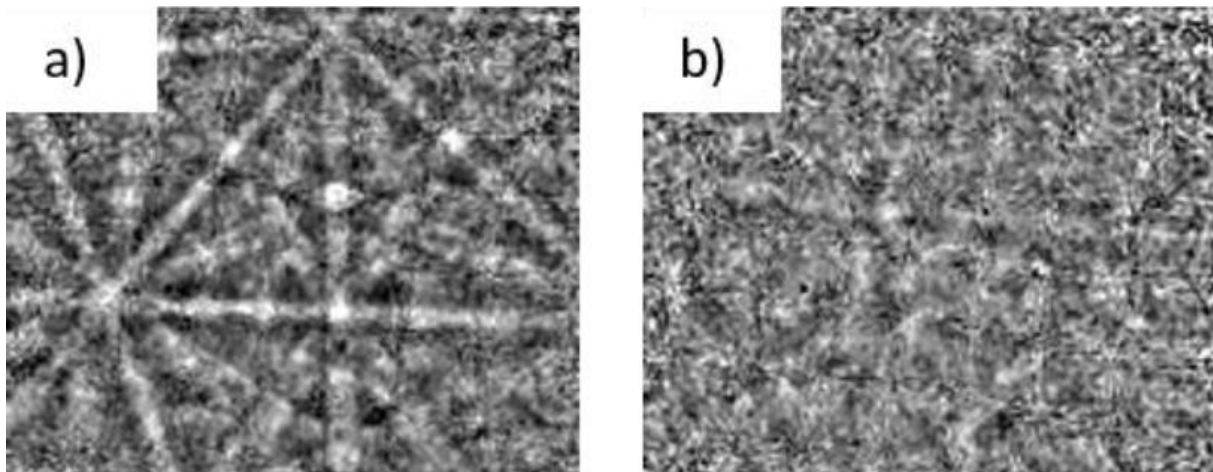


Figure 1 : Cliché de diffraction de bonne qualité (a), dégradé (b).

Dans le cas où le cliché est dégradé, l'indexation des orientations par transformée de Hough peut se montrer insuffisante. Cette méthode consiste à comparer les positions des bandes Kikuchi correctement détectées avec une base de données précalculée. C'est ce procédé qui est utilisé dans le logiciel d'acquisition de cartographie EBSD. Comme le montre l'image suivante, seulement quelques grains ont été correctement indexés, beaucoup de zones restent non indexées (pixels noirs), ce qui ne permet pas d'avoir une bonne visualisation de la microstructure.

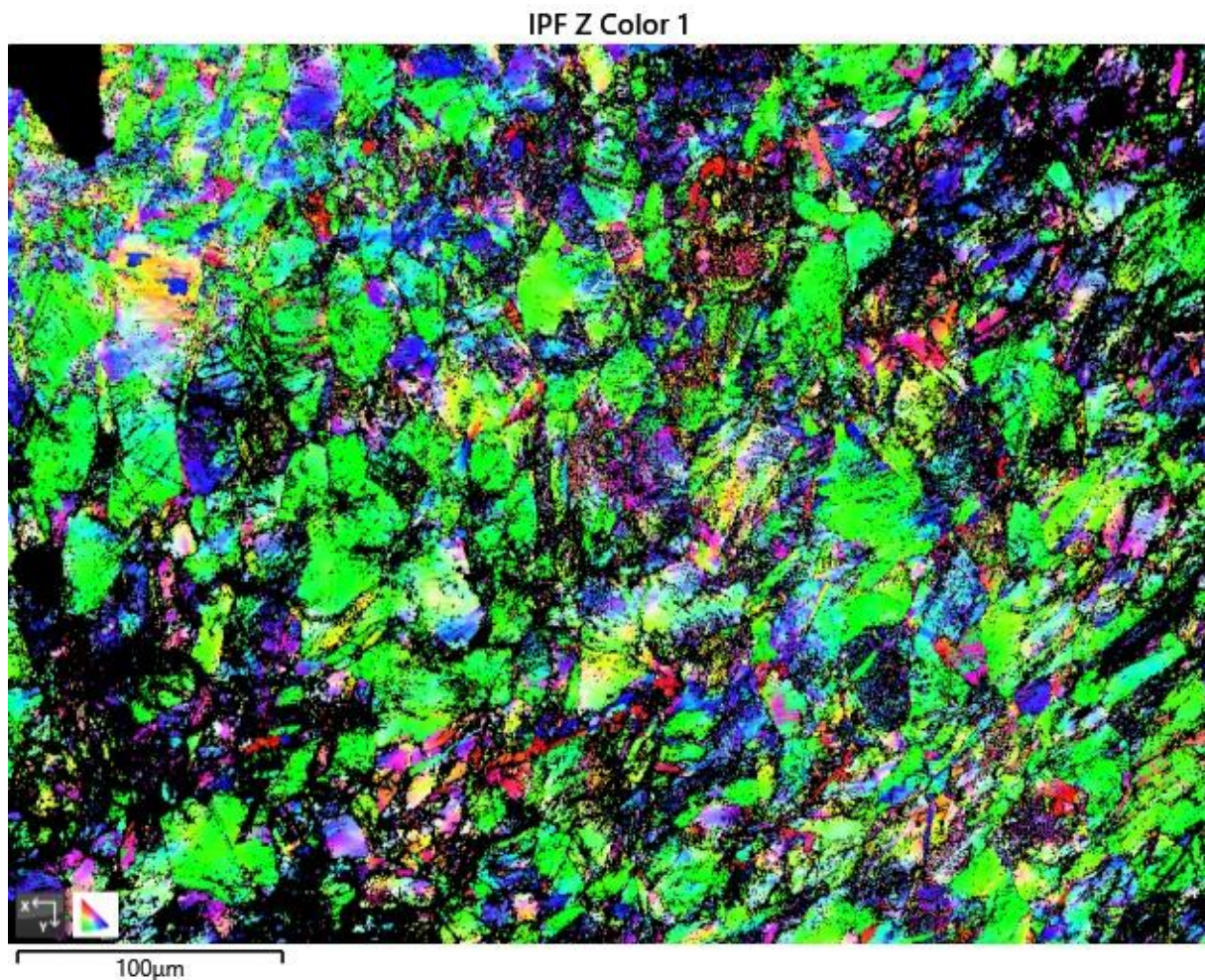


Figure 2 : Cartographie EBSD après indexation par transformée de Hough

Pour déterminer l'orientation cristallographique des grains, une nouvelle indexation a été réalisée en utilisant le *Dictionary Indexing* (DI) couplé à un post-traitement des motifs EBSD expérimentaux par la méthode *Non-Local Pattern Averaging and Reindexing* (NLPAR). Ces deux méthodes sont décrites dans la suite de l'annexe. Ces quelques paragraphes ont pour but de parcourir les méthodes utilisées. Pour plus de détails, il est possible de se référer aux articles qui seront indiqués.

Le « Dictionary Indexing » est une méthode d'indexation des orientations basée sur la reconnaissance de motifs. Dans une cartographie EBSD, composée de N pixels, chaque pixel de la zone analysée est associé à un cliché de diffraction expérimental. Pour chaque pixel, le motif expérimental est comparé à une base de données de motifs théoriques, calculés à partir de la diffraction dynamique des électrons. Contrairement à la méthode utilisant la transformée de Hough, où seule la position des bandes de Kikuchi détectées sont comparées à une base de données, le DI compare chaque pixel du cliché de diffraction. Cette approche se distingue par sa robustesse face au bruit, permettant ainsi d'indexer efficacement les matériaux hautement déformés. Pour plus d'informations sur la méthode, il est possible de se référer aux travaux de Marc De Graef « A dictionary indexing approach for EBSD »².

Pour améliorer encore plus la robustesse de cette approche par rapport au bruit, une étape préliminaire de traitement des motifs expérimentaux a été appliquée : la méthode « Non-Local Pattern Averaging and Reindexing » (NLPAR). Cette approche est basée sur un moyennage intelligent des clichés de diffraction. A chaque pixel de la cartographie EBSD est associé un cliché de diffraction. Autour du pixel i , une fenêtre de recherche est fixée afin de trouver une similitude avec d'autres clichés de diffraction. Un coefficient est alors attribué aux clichés de diffractions en fonction de leur similarité avec celui du pixel i . Le cliché résultant associé au pixel i est alors le résultat de la moyenne pondérée de tous les clichés de diffraction qui étaient présents dans la fenêtre de recherche. Cette méthode permet d'augmenter le rapport signal / bruit bien que la résolution angulaire soit quelque peu dégradée. La figure suivante issue de de l'article « NLPAR: Non-local smoothing for enhanced EBSD pattern indexing » de David J. Rowenhorst *et al.* illustre le principe de fonctionnement.

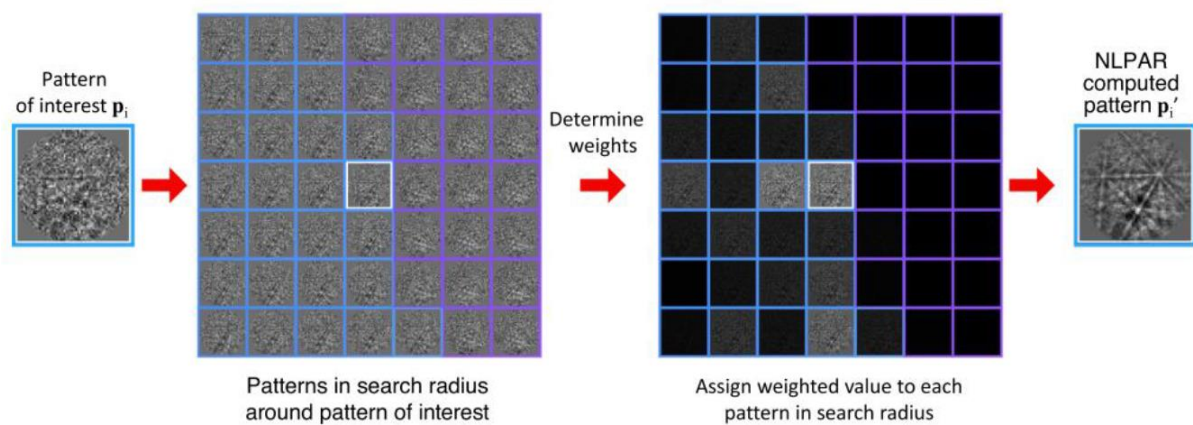


Figure 3 : Schéma de la ré-indexation par moyennage pondéré des clichés de diffraction (NLPAR) ³

Au cours de ces travaux de thèse, la ré-indexation des grains par Dictionary Indexing puis NLPAR a été nécessaire. Cette méthode a été appliquée aux cartographies des chapitre 3 et 4 : Figure 4 (Cartographies IPFZ des échantillons d'acier 321 a) hypertrempé, b) 500A, c) 700A, et d) 700B), Figure 5 (Cartographies IPFZ des échantillons a) 500A, b) 700A, et c) 700B, irradiés à 550°C) et Figure 62 (Cartographies IPFZ des échantillons a) hypertrempé, b) 500A, c) 700A, d) 700B, irradiés à 600°C).

1. Emma Kruck (2025). Thèse de doctorat : Evaluation du cold spray pour la fabrication additive d'ODS ferritiques.
2. De Graef, M. (2020). A dictionary indexing approach for EBSD. IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng. 891, 12009. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/891/1/012009>.
3. Brewick, P.T., Wright, S.I., and Rowenhorst, D.J. (2019). NLPAR: Non-local smoothing for enhanced EBSD pattern indexing. Ultramicroscopy 200, 50–61. <https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2019.02.013>.

ANNEXE 3 : ETUDE D'UNE LAME MINCE POUR MESURER LA PROFONDEUR MAXIMALE DU GONFLEMENT

Un cliché (champ clair ; axe de zone [011]) MET de la lame FIB est représenté Figure 1. Les cavités sont encerclées en rouge, la face avant de la lame (qui est irradiée par le flux d'ions symbolisé par la flèche violette) est indiquée par la ligne verte, et la ligne bleue indique la profondeur au-delà de laquelle plus aucune cavité n'est observée. Cette profondeur est, sur cet échantillon, de 2,8 μ m. Ceci est en contradiction avec les simulations réalisées avec IRADINA qui prédisent une profondeur maximale pour le dommage d'irradiation (en dpa) de 2 μ m pour l'échantillon hyperefflué, avec un pic de dommage (en dpa) à ~1,2 μ m, et un maximum d'implantation d'ions à ~1,4 μ m. Il y a clairement un problème dans l'imagerie MET qui n'a pas pu être expliquée à ce jour. Le profil de dommage est qualitativement identifié mais on ne peut pas utiliser l'image MET obtenue pour le quantifier.

En outre, la mesure des plus grandes cavités observées sur le cliché donne des diamètres de 120 et 150 nm. Or la mesure des diamètres des cavités au MEB indique que 95% des cavités font moins de 100 nm, et que la taille maximale observée est de l'ordre de 120 nm. La distribution en taille des cavités est donnée Figure 2 : les barres bleues représentent le nombre de cavités de la taille considérée et la ligne orange représente le pourcentage de cavités dont le diamètre est inférieur à la taille considérée. La formation de la cavité observée sur la lame FIB semble donc peu probable au regard des résultats MEB. Il est donc également possible qu'il s'agisse d'un précipité déchaussé. Quant aux petites cavités encerclées en rouge, on ne peut pas écarter le fait qu'il puisse s'agir de dégâts d'irradiation provoqués par le prélèvement de la lame FIB. Pour l'analyse du gonflement après irradiation c'est essentiellement le MEB qui a été utilisé pour sa puissance statistique.

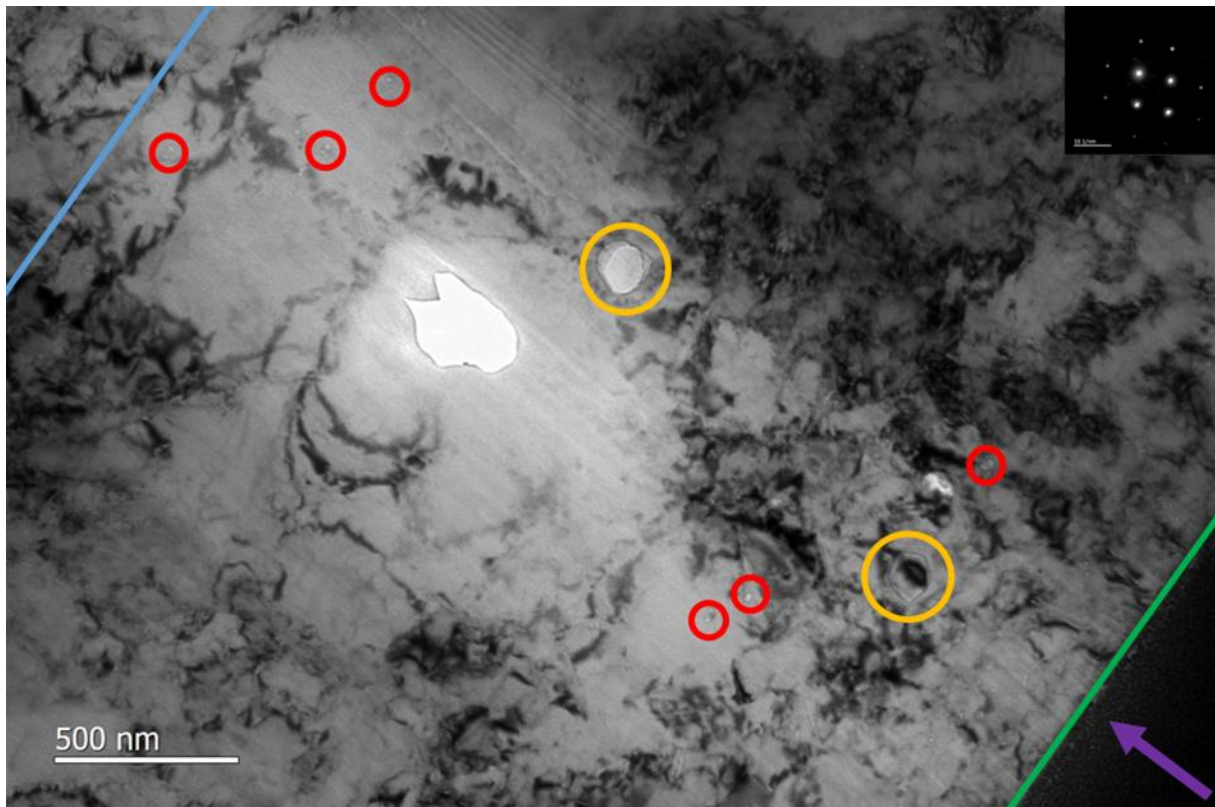


Figure 1 : Cliché MET obtenu à partir d'une lame FIB de l'état hypertrempé irradié 600°C (champs clair ; axe de zone [011])

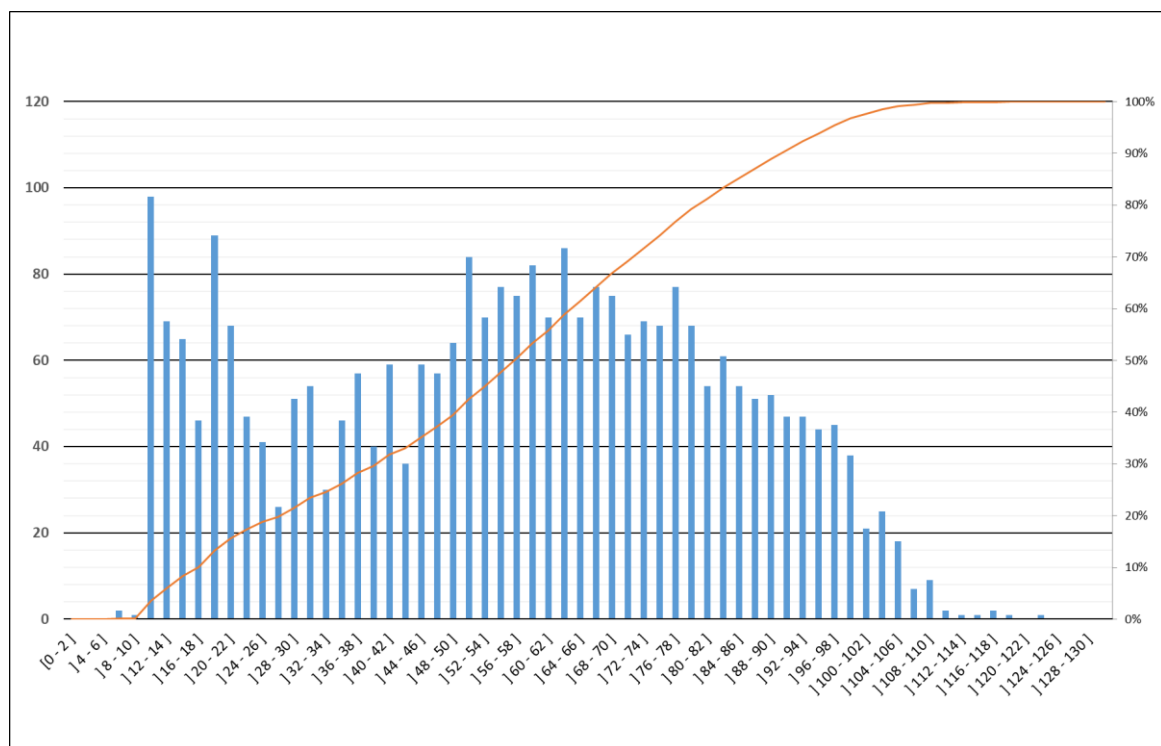


Figure 2 : Distribution du diamètre des cavités en nm observées en MEB-SE dans l'échantillon hypertrempé irradié à 600°C pour une dose maximale de 190 dpa. La ligne rouge indique le cumul. Ainsi par exemple 50% des cavités ont une taille inférieure à 58 nm.

Finalement, pour pouvoir comparer les échantillons entre eux, le choix a été fait de s'appuyer sur les données issues de la littérature et de nos calculs IRADINA pour déterminer la profondeur maximale à laquelle il est possible de retrouver les cavités dans l'échantillon.