

CEA-CONF--213

C. E. A. - C. E. N. SACLAY

Notice 276

SMG/72/1600

D. M. E. C. N.

Département de Technologie
Service de Recherches Métallurgiques Appliquées
Section de Métallurgie Générale

25 septembre 1972

ILNF
INIS
NSA

Journées Métallurgiques d'Automne
Chatenay-Malabry, 2-5 oct. 1972

**ETUDE DE LA FORMATION DES CAVITES DANS LE NICKEL
ET QUELQUES ACIERS AUSTENITIQUES IRRADIES
PAR DES IONS LOURDS DE MOYENNE ENERGIE**

Noël AZAM* et Lucien LE NAOUR*

* Agents C. E. A. , Ingénieurs au DTech/SRMA/SMG, C. E. N. Saclay

ETUDE DE LA FORMATION DES CAVITES DANS LE NICKEL
ET QUELQUES ACIERS AUSTENITIQUES IRRADIES
PAR DES IONS LOURDS DE MOYENNE ENERGIE

Noel AZAM et Lucien LE NAOUR

Le gonflement des métaux sous irradiation, dû à la formation de cavités par agglomération de lacunes, se traduit par une augmentation de volume et une diminution de densité. Ce phénomène constitue un obstacle important au développement des réacteurs surrégénérateurs. Le bombardement ionique qui permet d'obtenir en quelques heures des effets comparables à ceux qui sont observés en pile après plusieurs années représente un moyen d'étude d'un intérêt particulier.

I - MECANISMES DU GONFLEMENT

L'essentiel des phénomènes conduisant au gonflement peut se schématiser ainsi : lorsqu'un atome est frappé par un projectile qui lui communique une énergie suffisante, il est éjecté de sa position initiale et se retrouve dans le cristal en position d'interstitiel. On a ainsi une paire lacune-interstitiel. Le long de sa trajectoire le projectile incident crée un certain nombre de paires, formant ce qu'on appelle une cascade. Les lacunes et interstitiels suffisamment proches les uns des autres se recombinent et s'annulent sans laisser de traces. Un certain nombre d'interstitiels peuvent se réunir pour former un amas. Ceux-ci sont visibles au microscope électronique sous forme de points noirs dès qu'ils atteignent des dimensions de 10 à 15 Å. A un stade un peu plus avancé l'amas peut s'effondrer en donnant une boucle de dislocation.

La boucle peut croître, en absorbant de nouveaux interstitiels, atteindre les limites du cristal et disparaître en laissant un plan d'atomes supplémentaires. Pour les lacunes deux voies sont possibles :

- d'une part une évolution parallèle à celle des interstitiels au signe près : formation d'amas, de boucles et disparition aux limites du cristal avec élimination d'un plan d'atomes :

- d'autre part une transformation des amas en cavités dont la taille augmente par capture de nouvelles lacunes.

Il y a donc formation de vides à l'intérieur du cristal et aux lacunes ainsi utilisées correspond une réduction du nombre de boucles de lacunes. Aux limites du cristal il y a excédent d'arrivée de boucles d'interstitiels apportant leur plan supplémentaire d'atomes, la compensation ne se fait plus exactement et les dimensions du cristal augmentent.

Ce mécanisme schématique ne fait intervenir aucun atome étranger, impureté solide ou gaz et il n'aborde pas, en particulier, les questions de germination des amas et des cavités.

I - CONDITIONS D'IRRADIATION

Nous avons irradié du nickel de haute pureté et des aciers austénitiques avec des ions nickel. Ceux-ci sont produits au moyen de l'accélérateur électrostatique du C. E. N. Fontenay-aux-Roses (M. LOTT). On obtient des courant d'ions Ni^+ de 0,1 μA environ, accélérés avec des tensions de 200 à 500 kV et focalisés sur un diamètre de 7 à 8 mm, ce qui permet l'irradiation simultanée de plusieurs échantillons. Avec les flux d'ions obtenus, de l'ordre de 10^{12} ions/cm²/s, chaque atome est déplacé environ dix fois en une heure, ce qui correspond sensiblement à une dose de 10^{22} neutrons/cm², ne pouvant être obtenue en pile qu'en un an environ.

La tension d'accélération de 500 kV qui a été la plus utilisée donne une profondeur de pénétration de 1 500 Å. Cette valeur, identique à l'épaisseur des lames minces, est particulièrement bien adaptée aux possibilités de la microscopie électronique par transmission qui semble du reste le seul moyen d'étude utilisable. Les échantillons sont préparés sous forme soit de lames minces soit de disques de 2,3 mm de diamètre et de 50 à 60 μ d'épaisseur. Dans ce dernier cas l'amincissement électrolytique doit être réalisé à partir d'une seule face du disque.

Les valeurs du gonflement sont déterminées à partir des histogrammes de taille obtenus avec un compteur Zeiss. L'observation systématique de plusieurs échantillons irradiés dans des conditions très voisines minimise l'effet des causes d'erreur assez nombreuses.

III - RESULTATS

1 - Effet de la température

a) Nickel

Dans le nickel pur on observe des gonflements très importants. Les figures 1 à 6 donnent une idée de l'évolution du nombre et de la dimension des cavités au fur et à mesure de l'élévation de la température. La courbe de la figure 7 montre l'importance du maximum de gonflement qui se situe vers 620°C et atteint des valeurs de l'ordre de 18 %.

b) Acier 316

D'une façon générale les aciers présentent un gonflement nettement moins important que le nickel. Les clichés n° 8 et 9 et la courbe de la figure 10 montrent l'évolution du gonflement en fonction de la température. A 680°C et 700°C les cavités sont devenues très rares ($3 \cdot 10^{12}/\text{cm}^3$) et la mesure du gonflement, devenu très faible, n'a pu être effectuée.

2 - Effet d'un chargement préalable en hélium

Pour se rapprocher des conditions d'irradiation en pile où l'on a formation de gaz (He) par réaction nucléaire et pour tenter d'en préciser le rôle, un certain nombre d'échantillons ont été préalablement chargés en hélium à des teneurs voisines de 10 ppm. Ce chargement a été effectué au cyclotron au moyen de particules α .

a) Nickel

Les clichés et les histogrammes des figures 11 et 12 montrent les résultats obtenus. Le nombre des cavités est nettement augmenté en présence d'hélium. Leur diamètre décroît fortement et le gonflement est diminué : il passe de 2,9 % à 0,66 % à 500°C et de 6,05 % à 3,4 % à 550°C.

b) Aciers

Dans le cas des aciers l'influence de l'hélium ne se manifeste pas de façon aussi claire et demande une étude plus précise qui n'est pas encore terminée. A partir des résultats actuellement dépouillés on peut dire que contrairement à ce qui se passe avec le nickel le gonflement augmente en présence d'hélium. L'effet sur le nombre ou la dimension des cavités apparaît moins nettement (Fig. 13).

3 - Effet de la dose

Cet effet a d'abord été étudié sur le nickel avec des mesures effectuées à 2,5, 10 et 40 déplacements d'atomes par atome. Les résultats sont résumés et illustrés par les clichés et les courbes des figures 14, 15 et 16. On notera la variation linéaire du gonflement et l'augmentation très rapide dès le début de l'irradiation du nombre et de la taille des cavités.

L'obtention de doses élevées est rendue malaisée par la faiblesse des flux et la durée de vie limitée des sources. Dans quelques cas nous avons pu effectuer des irradiations de 18 heures correspondant à environ 200 dpa ou $\sim 2 \cdot 10^{23}$ n/cm². A 600°C l'acier 316 gonfle de $\sim 3,5$ % sans hélium et $\sim 5,5$ % avec hélium. Des précipitations intragranulaires se produisent sans qu'il semble y avoir une quelconque relation dans la distribution des cavités et des précipités. Les échantillons témoins chauffés pendant le même temps à la même température ne présentent aucune précipitation. La figure 17 compare l'acier 316 sans hélium irradié à 40 et à 200 dpa.

4 - Comparaison de diverses nuances d'aciers

Nous avons effectué quelques essais sur des aciers de type 304 et 347 à la température de 600°C et avec une dose de 40 dpa. Ces deux matériaux ont un gonflement nettement supérieur à celui d'un acier 316 :

316 L	0,2 %
347	0,6 %
304	2 %

Nous avons d'autre part comparé à l'acier 316 précédent, qui contient 270 ppm de carbone, des nuances du même acier mais à 210, 335 et 535 ppm de carbone. Les trois nuances à 210, 270 et 335 ppm ont un comportement assez voisin. Au contraire l'acier 316 à 535 ppm de carbone gonfle beaucoup moins : 0,005 % contre 0,2 à 0,25 %. L'implantation d'hélium augmente le gonflement de ces diverses nuances. Cette augmentation est plus spectaculaire sur l'acier à 535 ppm de carbone mais leur classement n'est pas changé.

5 - Cas particuliers : glissements, déplacements de joints

Les clichés n° 18 et 19 montrent la possibilité de glissements en présence de cavités. Dans le premier (acier 316) le glissement s'est produit sur un seul plan (111) ; les cavités intersectées par ce plan ont

été cisailées. Le déplacement relatif des deux morceaux donne l'amplitude du glissement qui est ici de 220 \AA correspondant au passage de 85 dislocations environ. Dans le deuxième (nickel) les glissements ont eu lieu sur une succession de plans (111). Les cavités situées dans cette zone se sont trouvées déformées par translation des tranches successives correspondant aux glissements.

Le cliché n° 20 montre l'effet du déplacement d'un joint de grain et d'un joint de macule incohérent (nickel). Immédiatement en arrière du joint il y a une zone dénudée et dans toute la partie balayée par le joint les cavités sont moins nombreuses mais plus grosses et le gonflement est nettement plus important.

IV - CONCLUSION

L'intérêt essentiel du bombardement d'ions est la rapidité avec laquelle on arrive à des gonflements importants. La comparaison de nos résultats avec ceux qui ont été obtenus par irradiation en pile indique que qualitativement les phénomènes sont tout à fait semblables. Des différences apparaissent cependant au point de vue quantitatif. Par exemple la température du maximum de gonflement est de 100 à 200°C plus élevée que dans le cas des neutrons. Ce déplacement peut s'expliquer par la vitesse de production des défauts plus grande de plusieurs ordres de grandeur dans le cas des ions. Il y a là une difficulté sérieuse si l'on veut prévoir le gonflement d'un matériau en pile à une température donnée.

Une autre difficulté est la détermination des équivalences de doses entre ions et neutrons. On dispose pour cela de théories qui permettent de déterminer le nombre d'atomes déplacés par un ion et par un neutron, néanmoins le passage de l'un à l'autre reste toujours un peu délicat. De plus dans le cas des ions de moyenne énergie que nous avons utilisés la distance de pénétration des ions est faible (quelques milliers

d'angströms) et une fraction non négligeable de défauts doit disparaître à la surface de l'échantillon, ce qui complique encore le problème des équivalences.

On a vu l'importance du gaz dans la germination des cavités. Dans le cas du bombardement d'ions on implante dans les échantillons avant irradiation de faibles quantités d'hélium. Mais cette façon de procéder ne reproduit que de façon imparfaite ce qui se passe en pile où le gaz est formé au cours de l'irradiation même.

Malgré toutes ces difficultés et toutes ces réserves nous pensons que le bombardement d'ions reste un outil intéressant pour étudier l'influence de certains paramètres sur le gonflement (taux d'écrouissage, éléments d'addition, existence de précipités...) et pour comparer la résistance au gonflement de différents matériaux.

Les possibilités du bombardement d'ions ne se limitent d'ailleurs pas à l'étude du gonflement. On peut dire qu'à priori tout effet d'irradiation peut être simulé et étudié de cette manière ; peut-être faudra-t'il selon le problème changer la nature et l'énergie des ions. La précipitation que nous avons observée dans les aciers austénitiques après simulation de doses élevées met en évidence la possibilité d'étudier l'évolution structurale sous irradiation.

Nickel

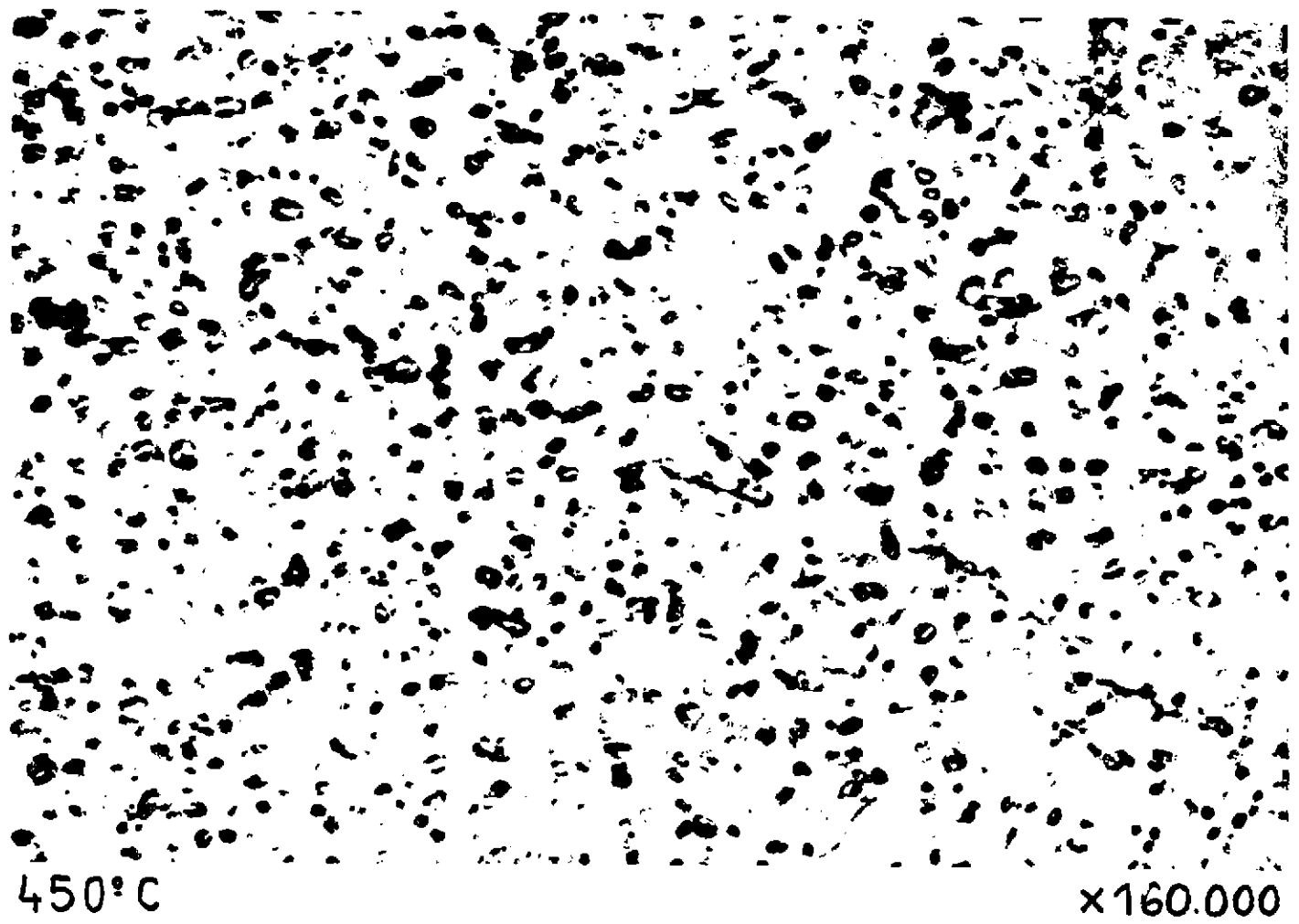


Fig 1

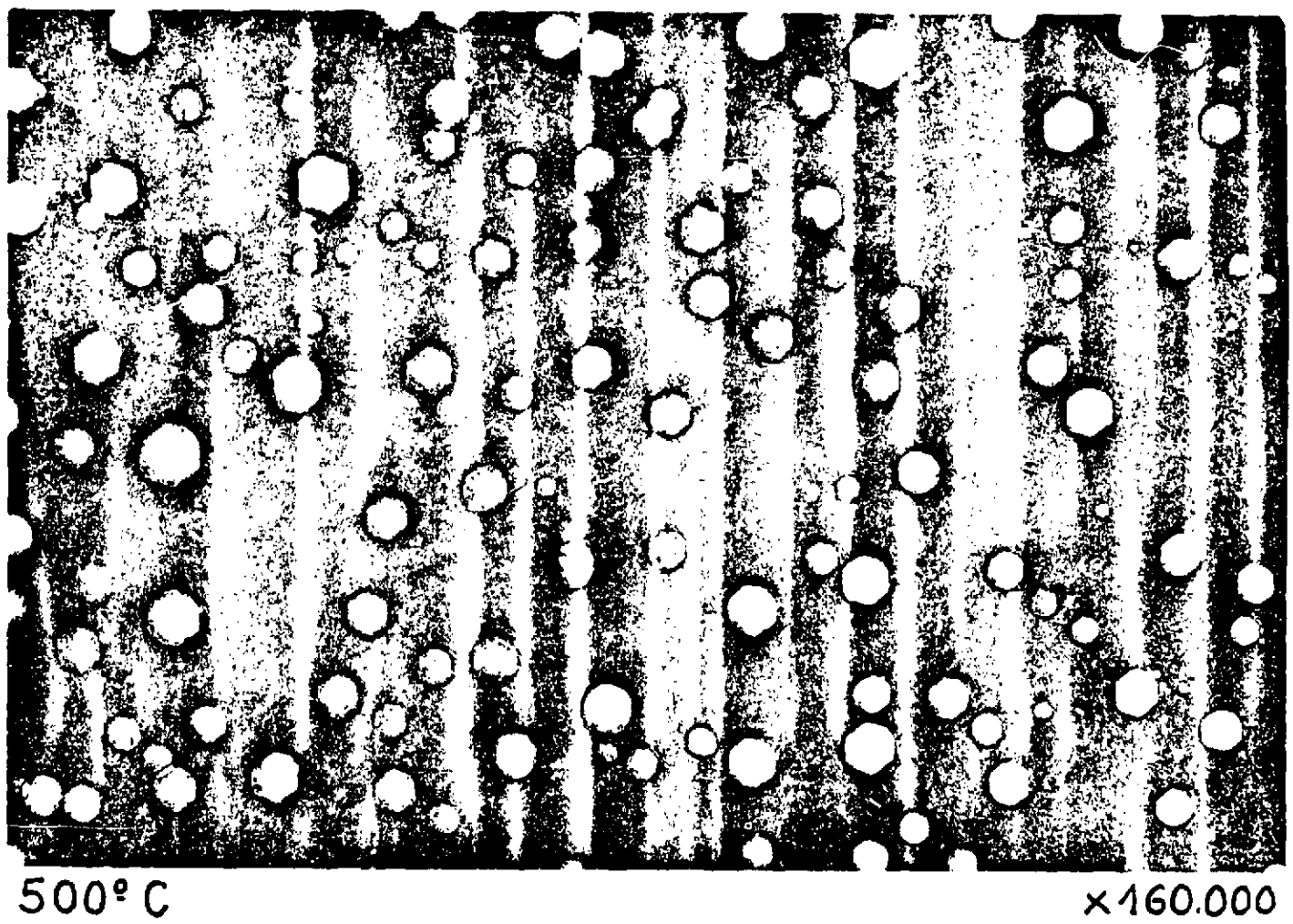
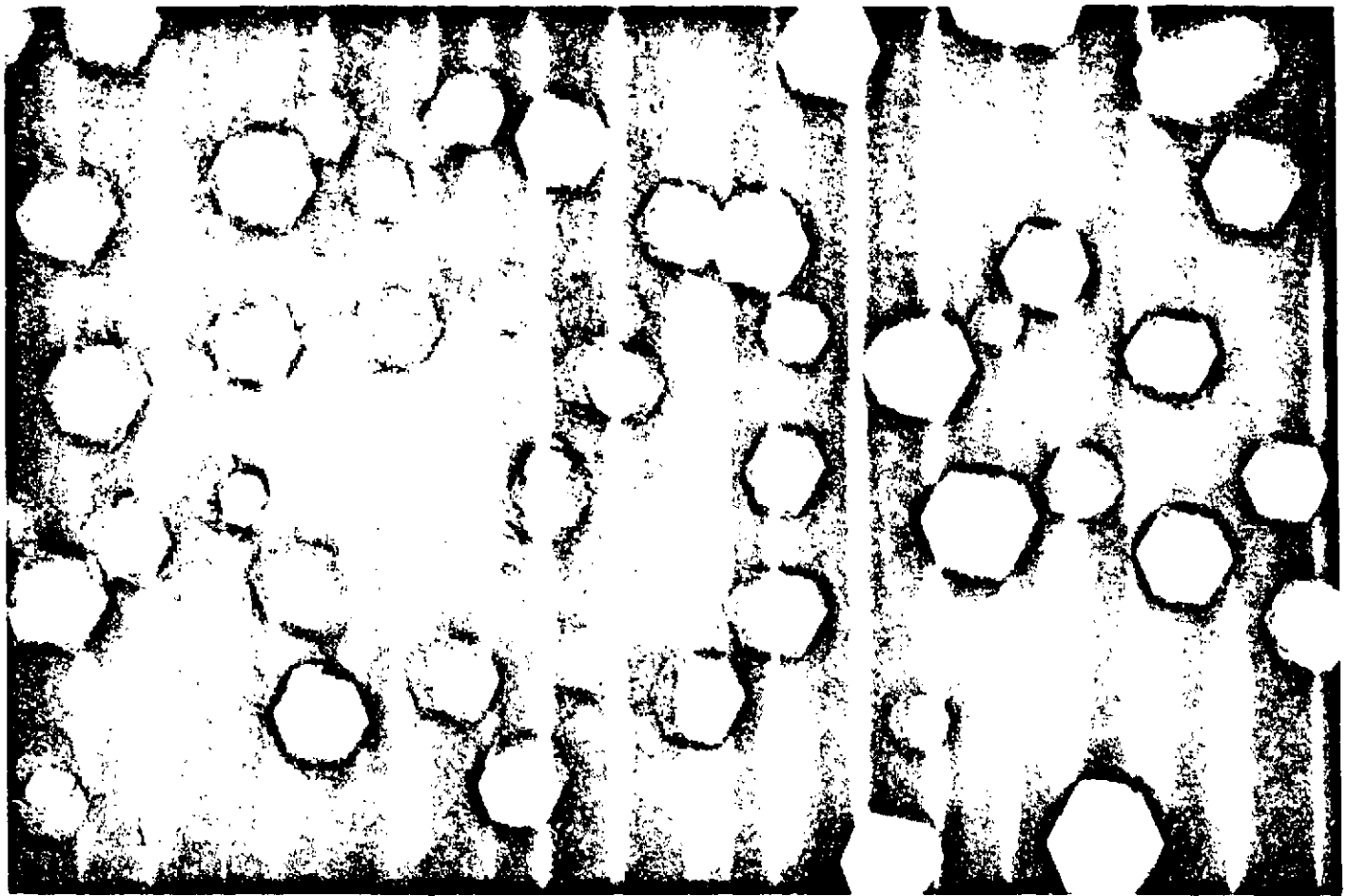


Fig 2

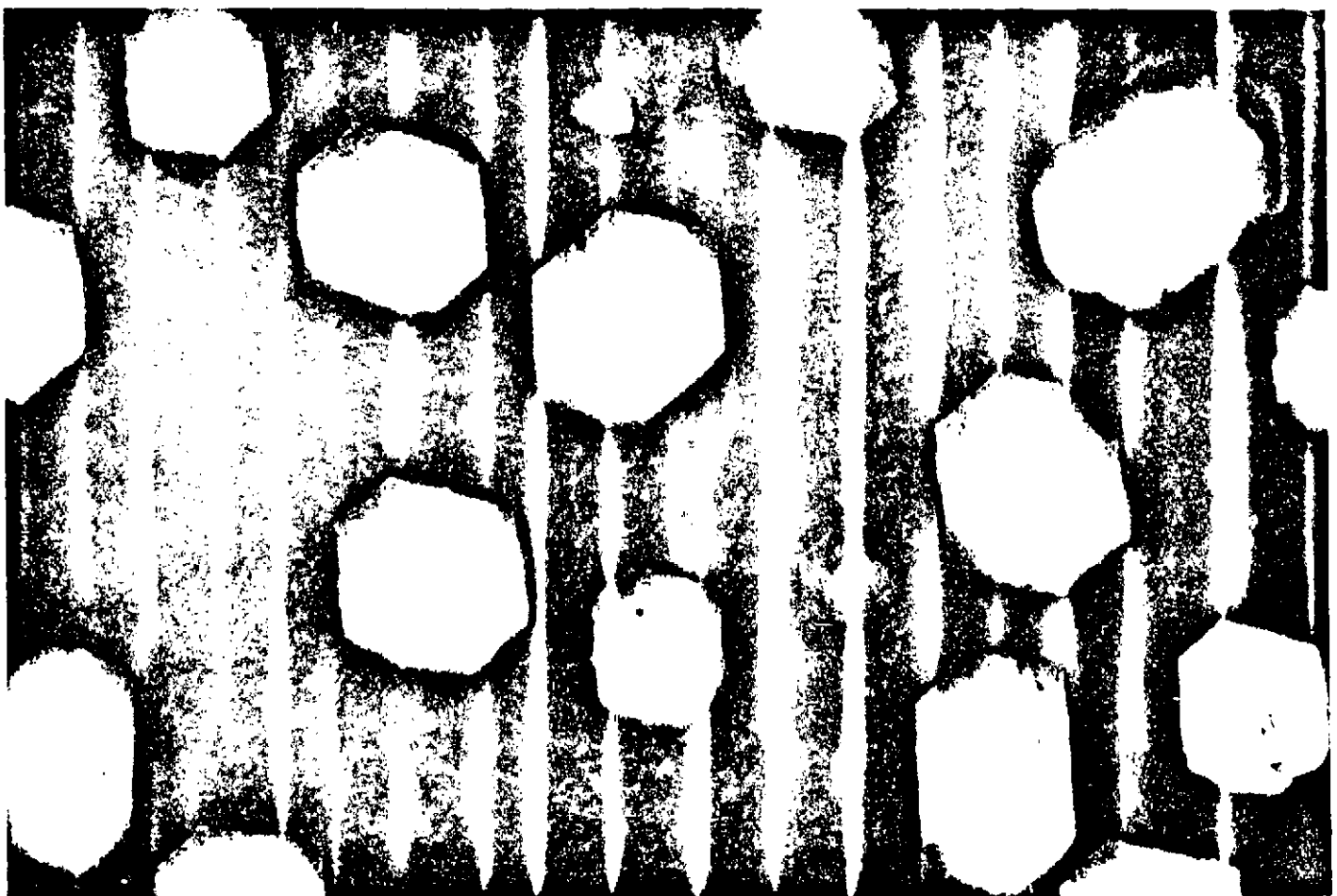
Nickel



550° C

× 160.000

Fig 3

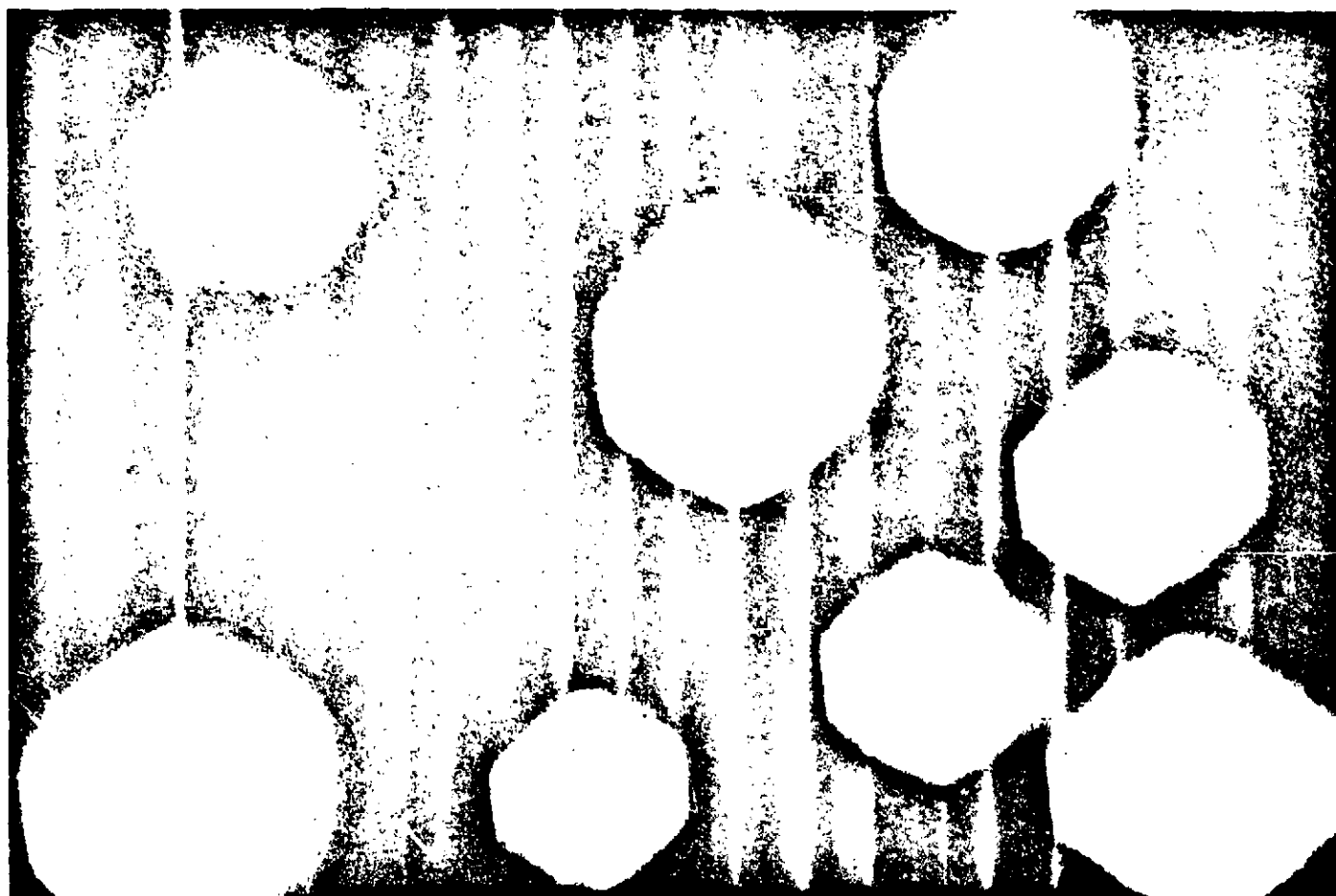


600° C

× 160.000

Fig 4

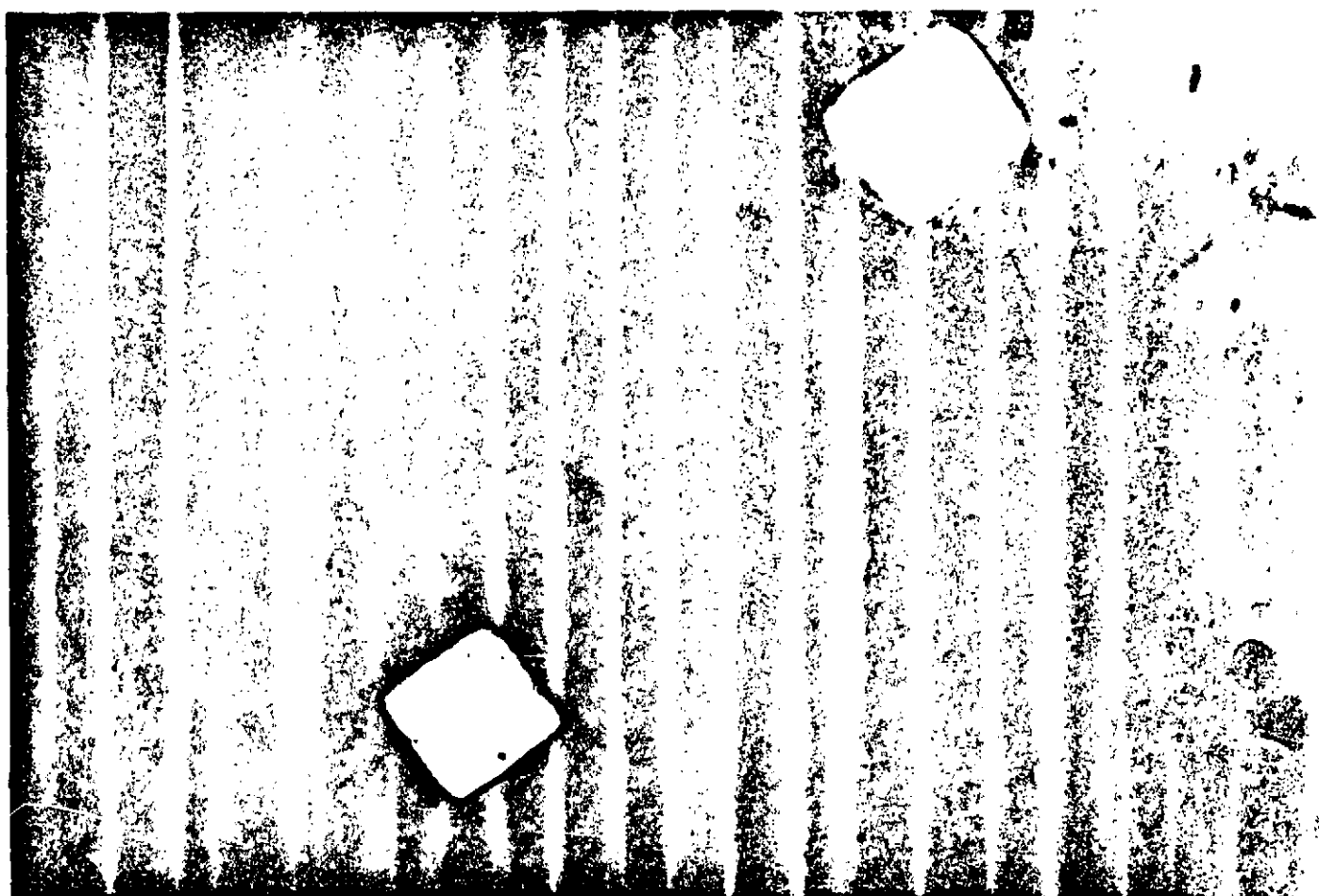
Nickel



650°C

x 160.000

Fig 5



700°C

x 160.000

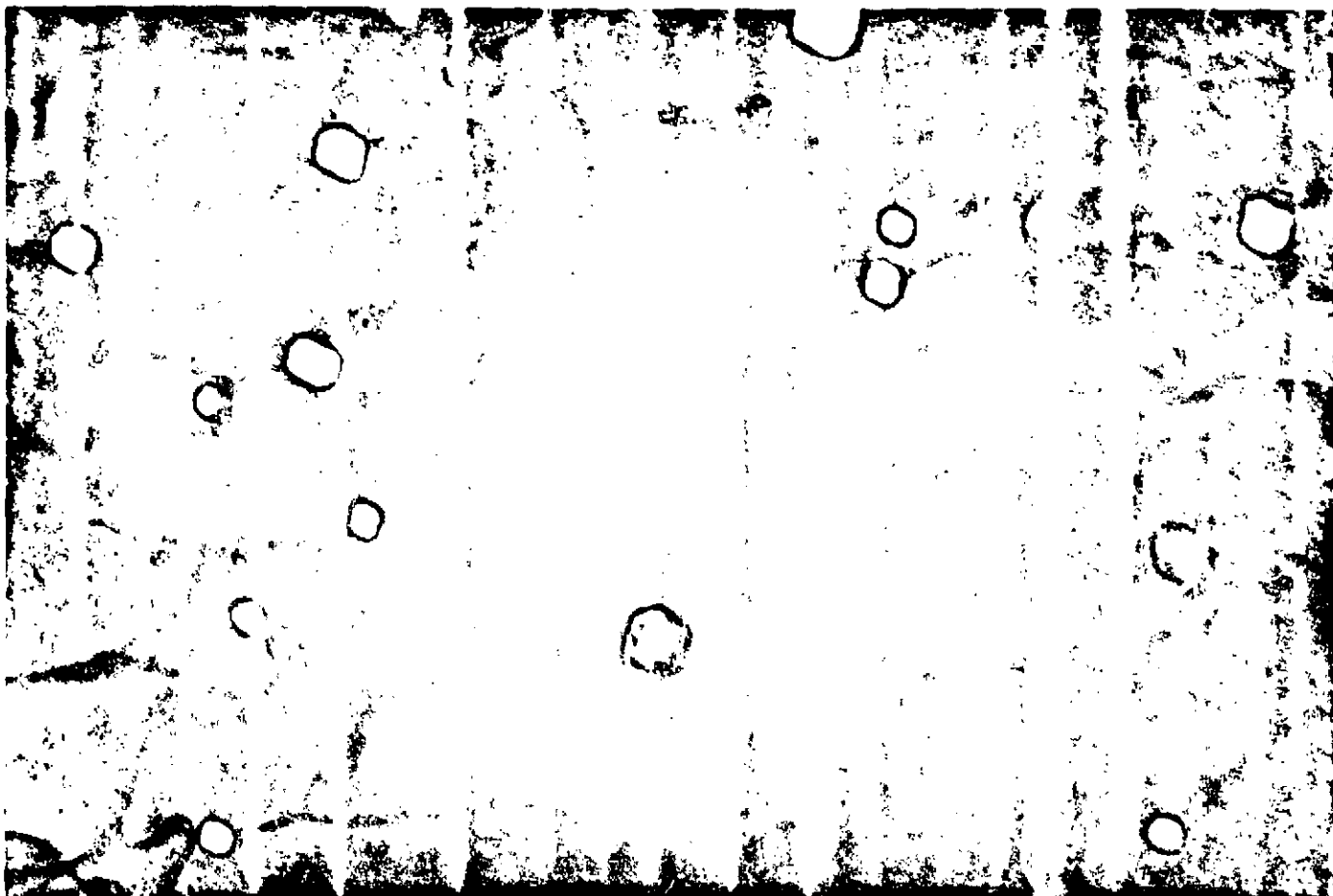
Fig 6



Fig 7

Figure 2

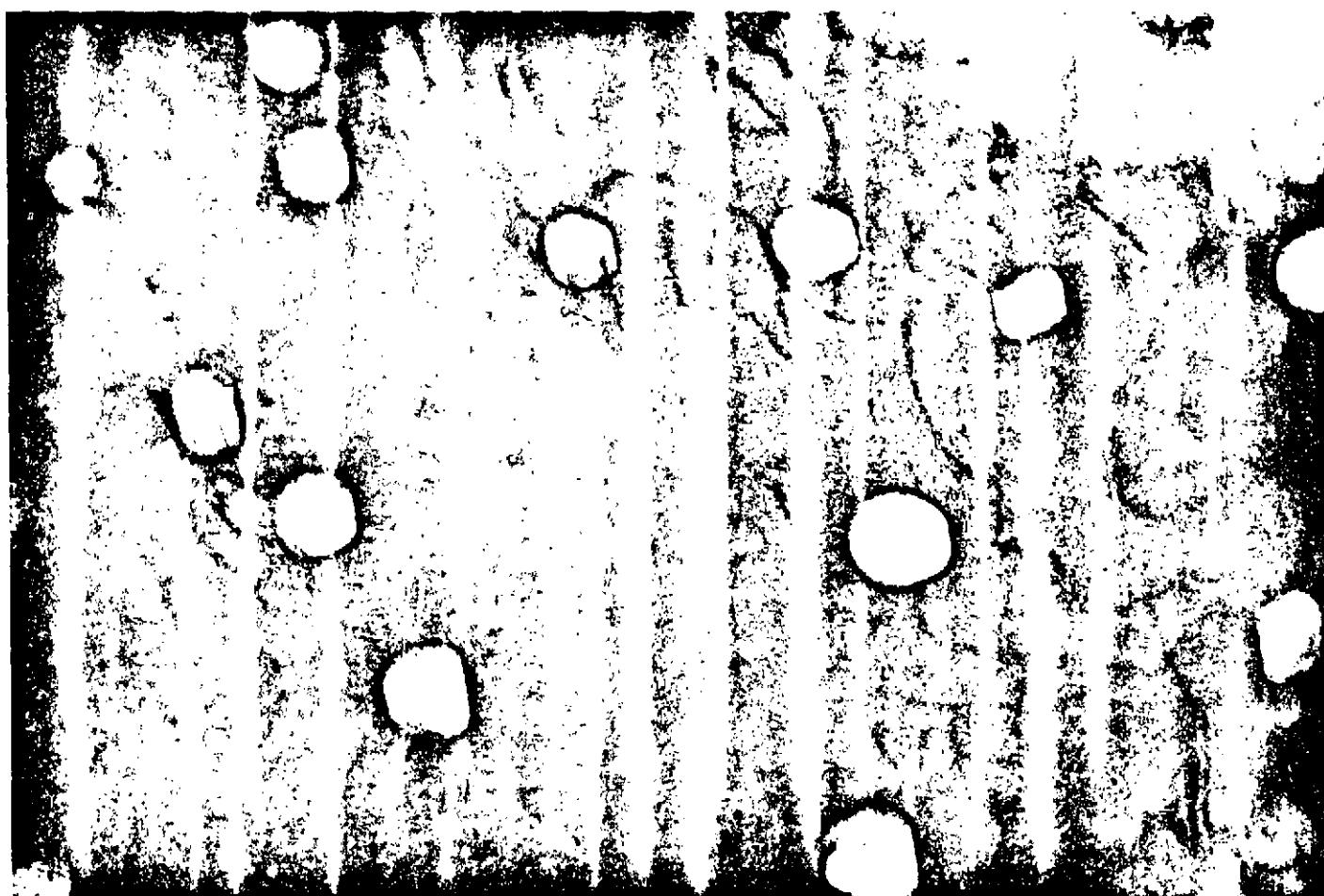
Acier 316



600°C

x160.000

Fig 8



650°C

x160.000

Fig 9

Fig 10

0.5%

1%

1.5%

Atmospheric

Temperature (°C)

Relative Humidity (%)

Wind Speed (km/h)

50%

Atmospheric Pressure (hPa)

30h

30h

30h

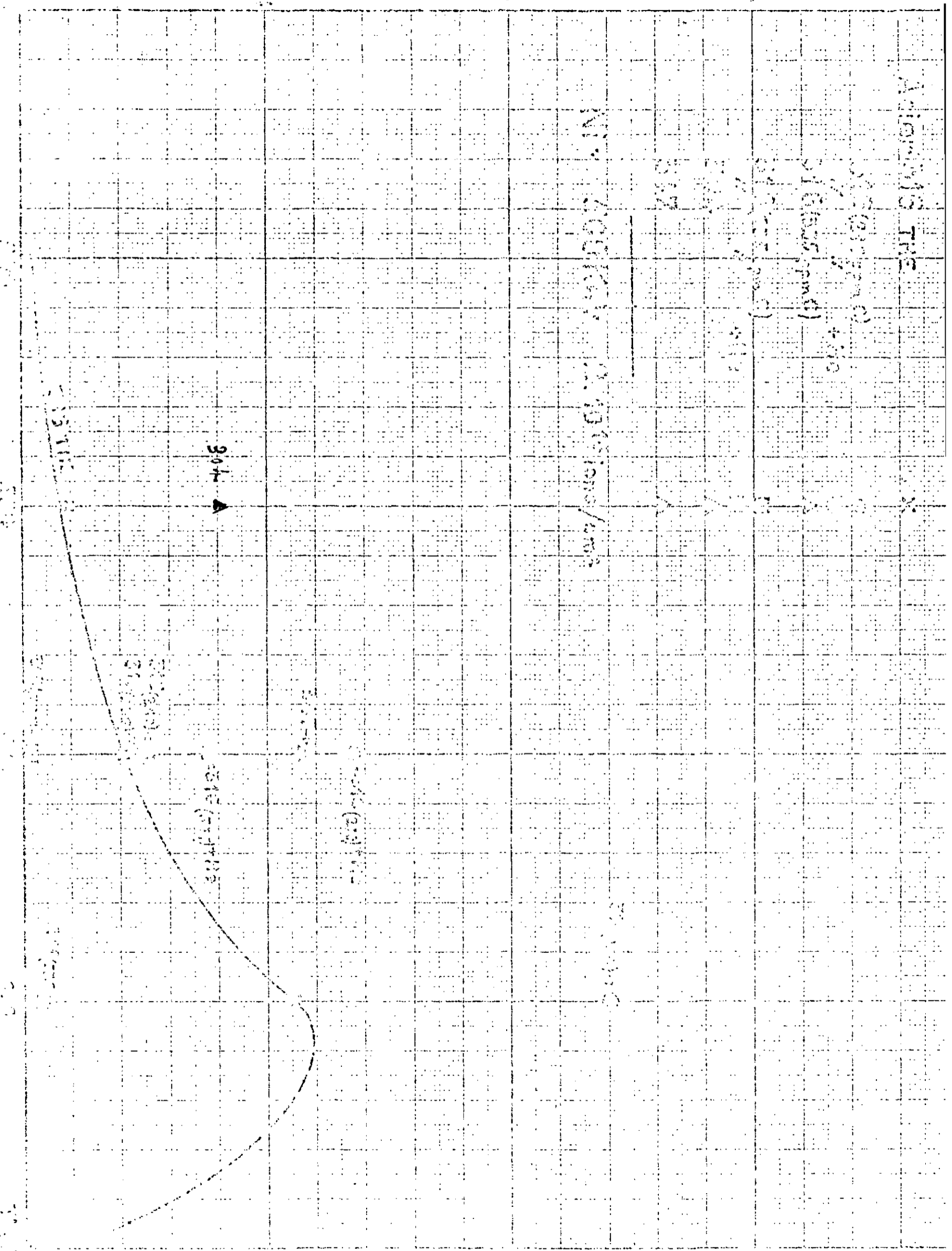
15h

30h

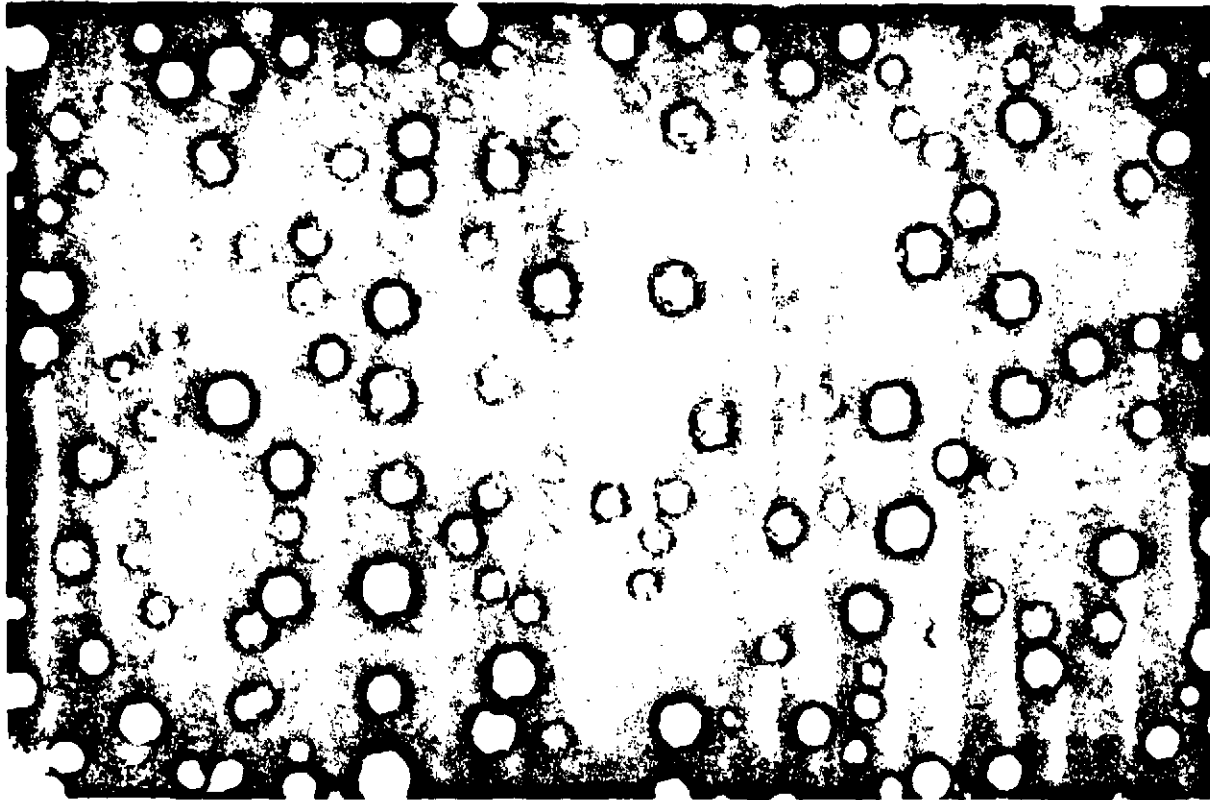
30h

30h

30h



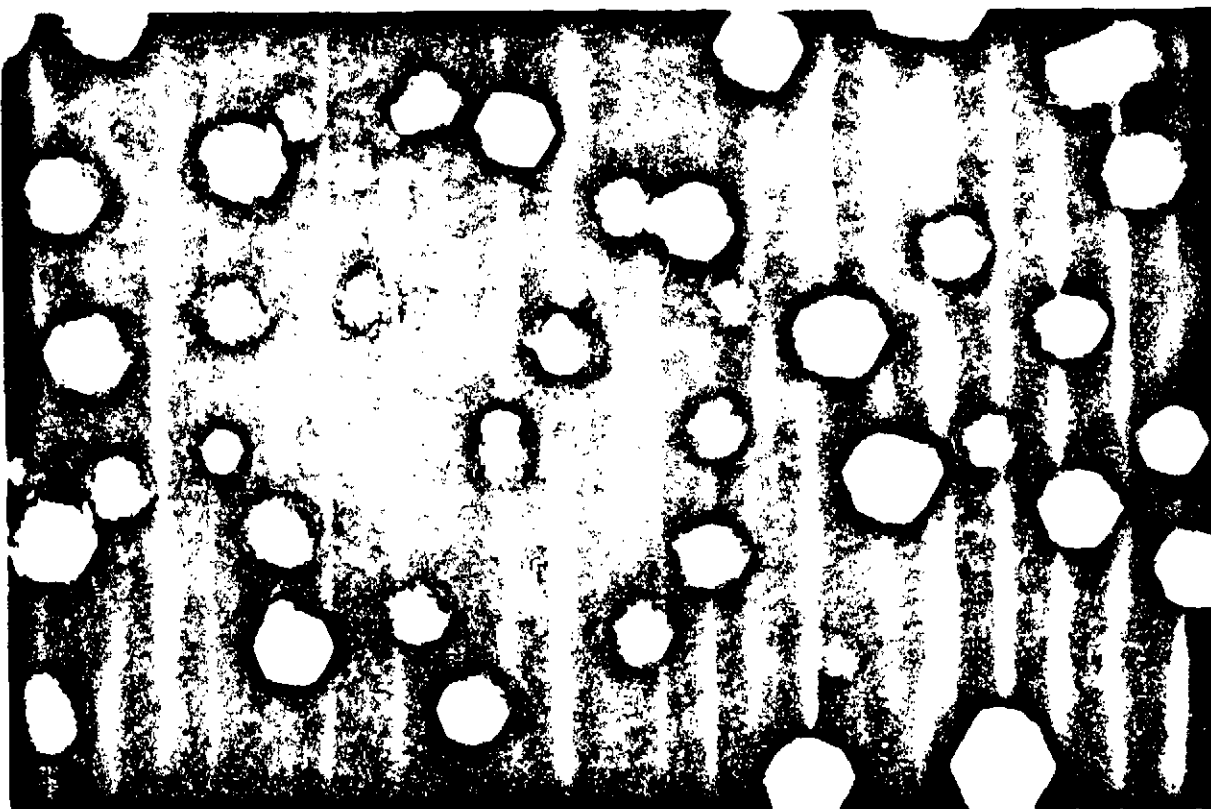
Nickel 550° C



avec
He

40 dpa

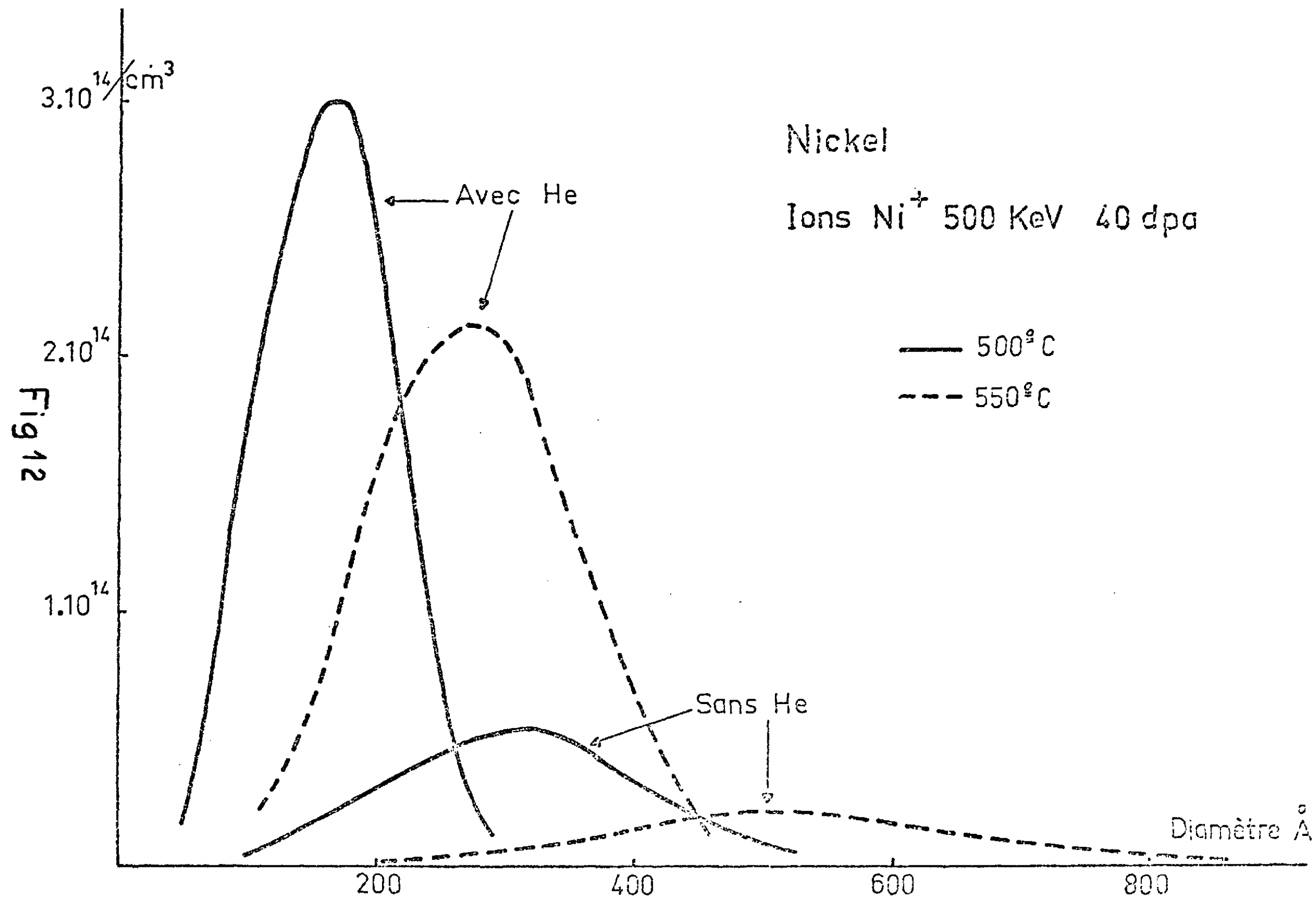
0,1 μ



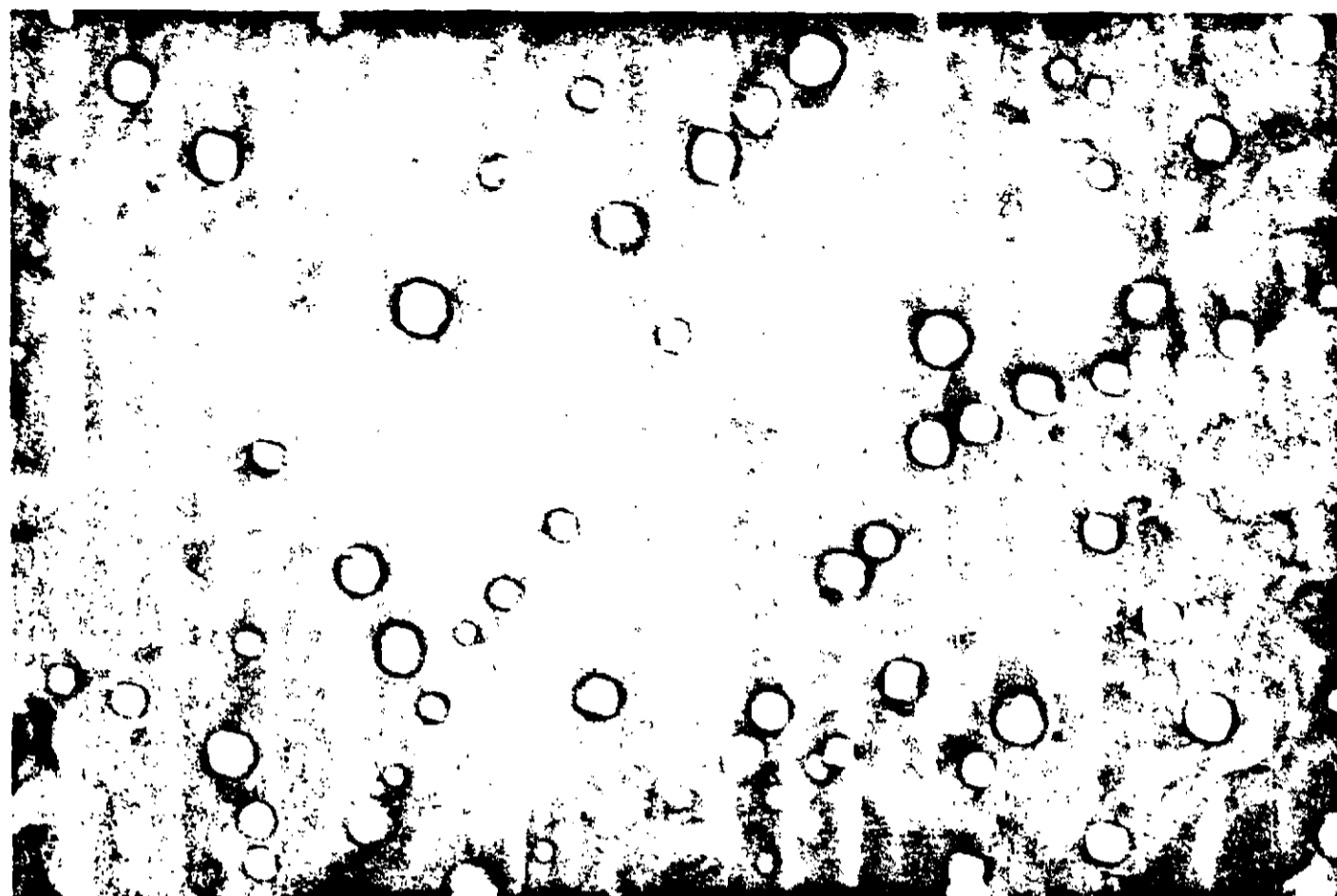
sans
He

40 dpa

Fig 11



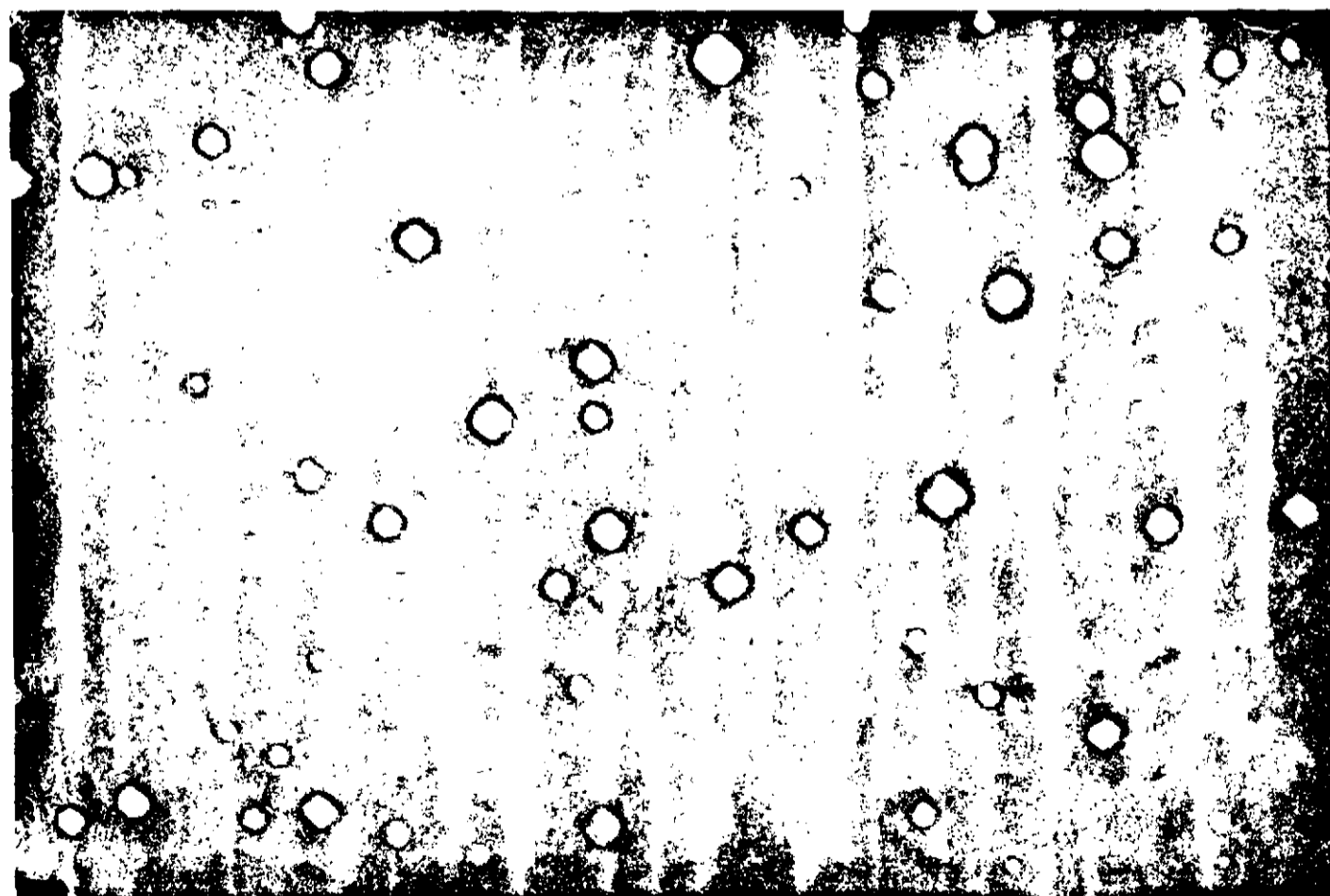
Acier 316



600° C

Avec He

x 160.000



600° C

Sans He

x 160.000

Fig 13

Nickel 550° C

2,5 dpa



10 dpa

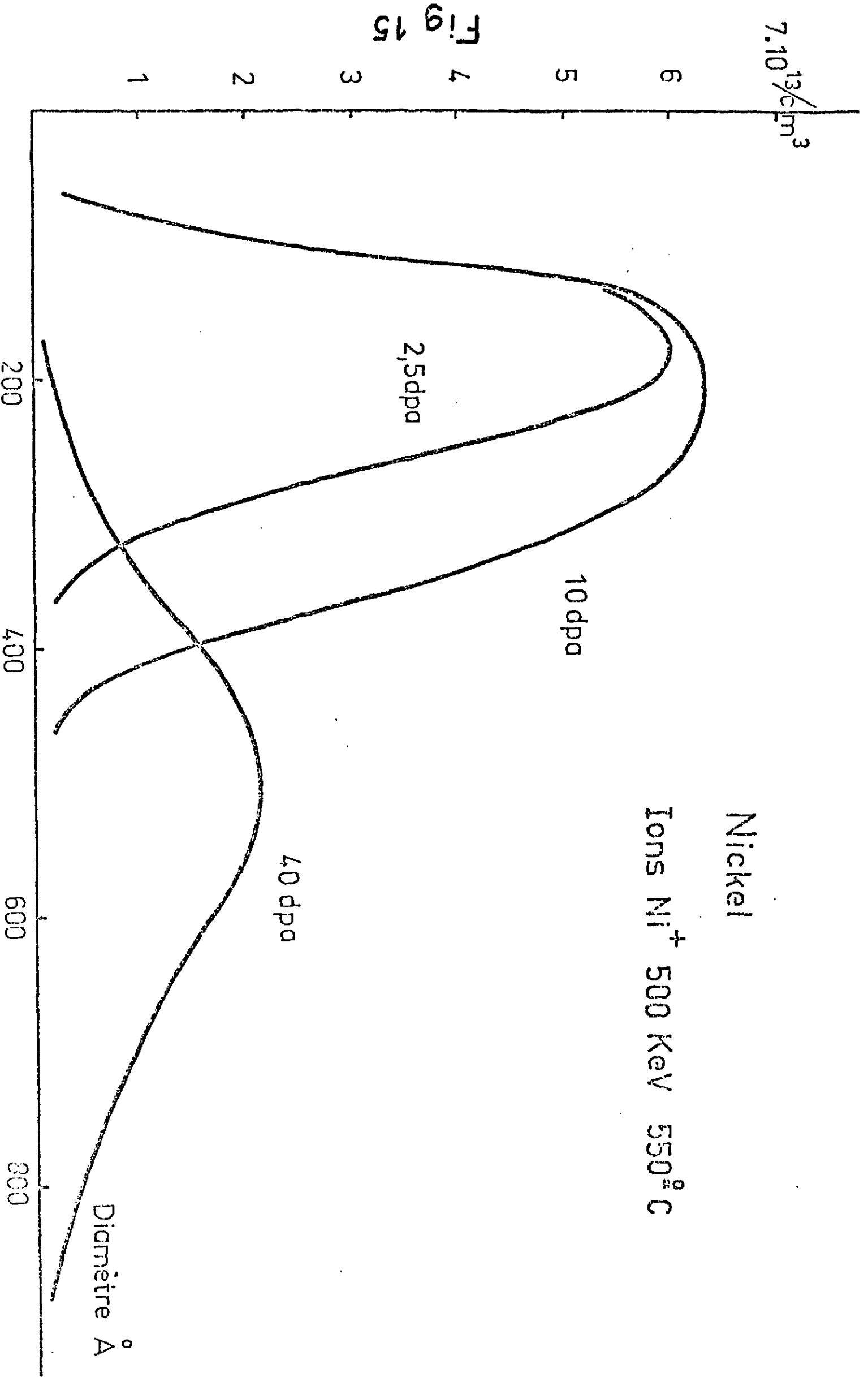


40 dpa



Fig 14

0,1μ



Nickel

Ions Ni^+ 500 KeV 550°C

Fig 15

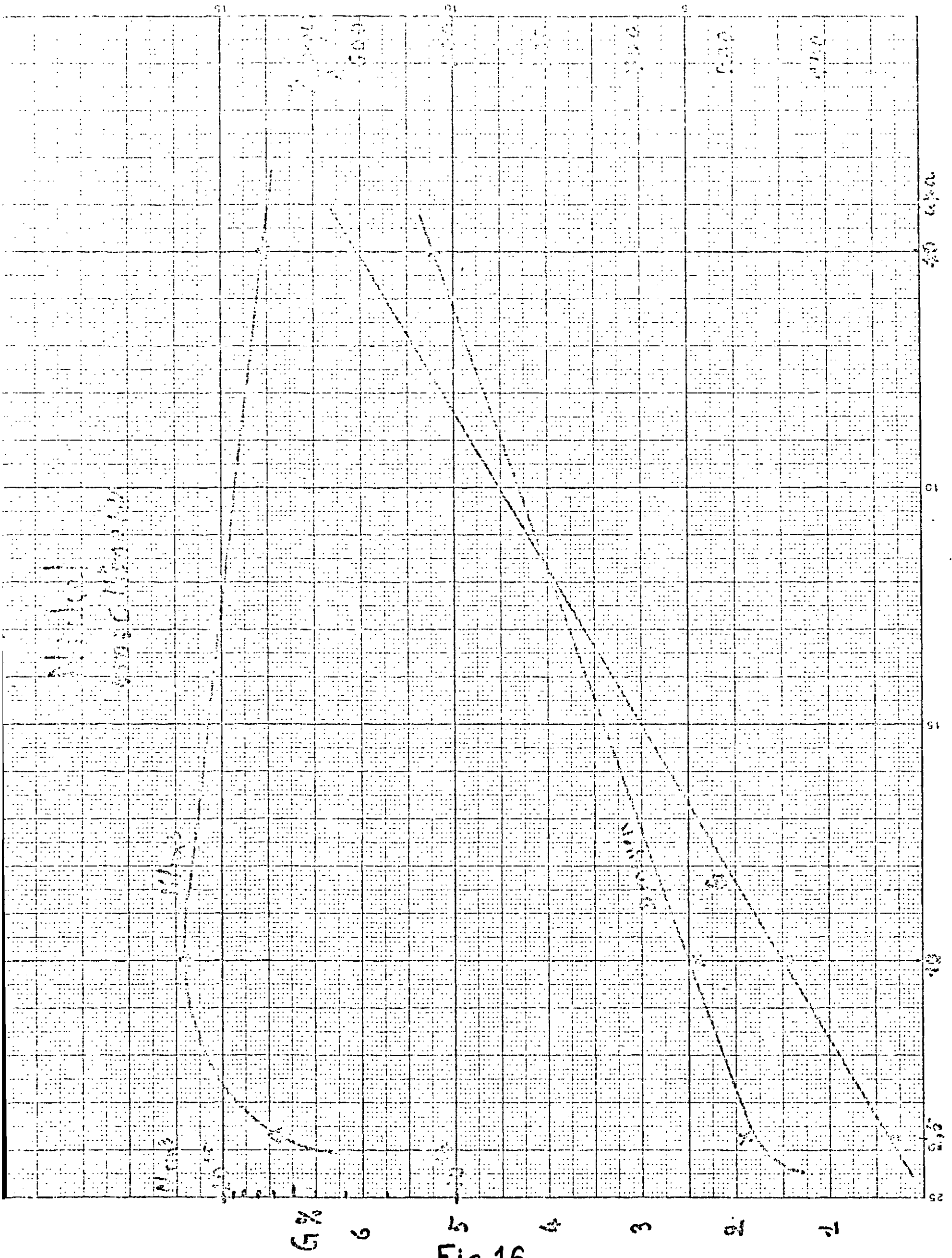
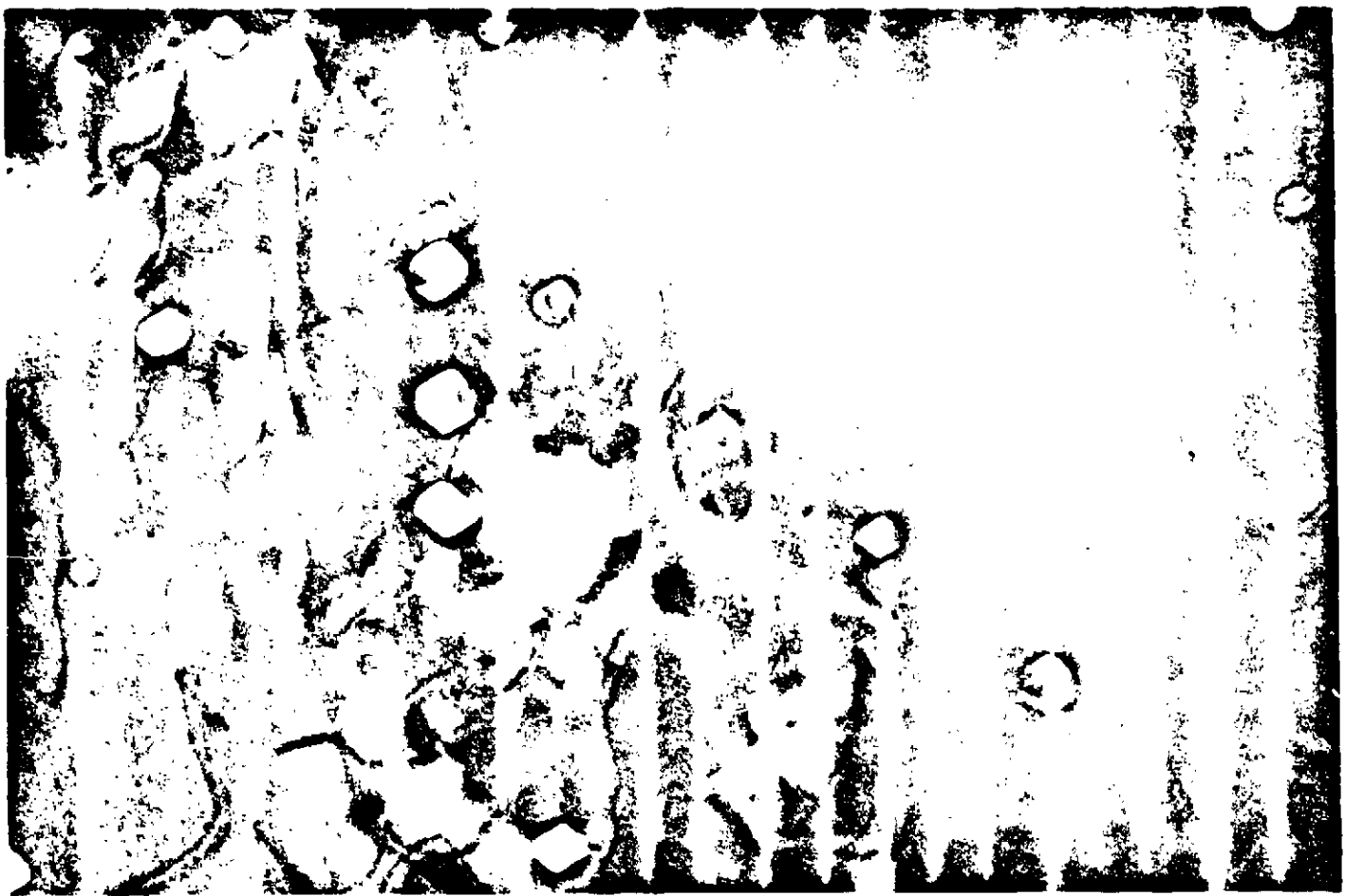


Fig 16

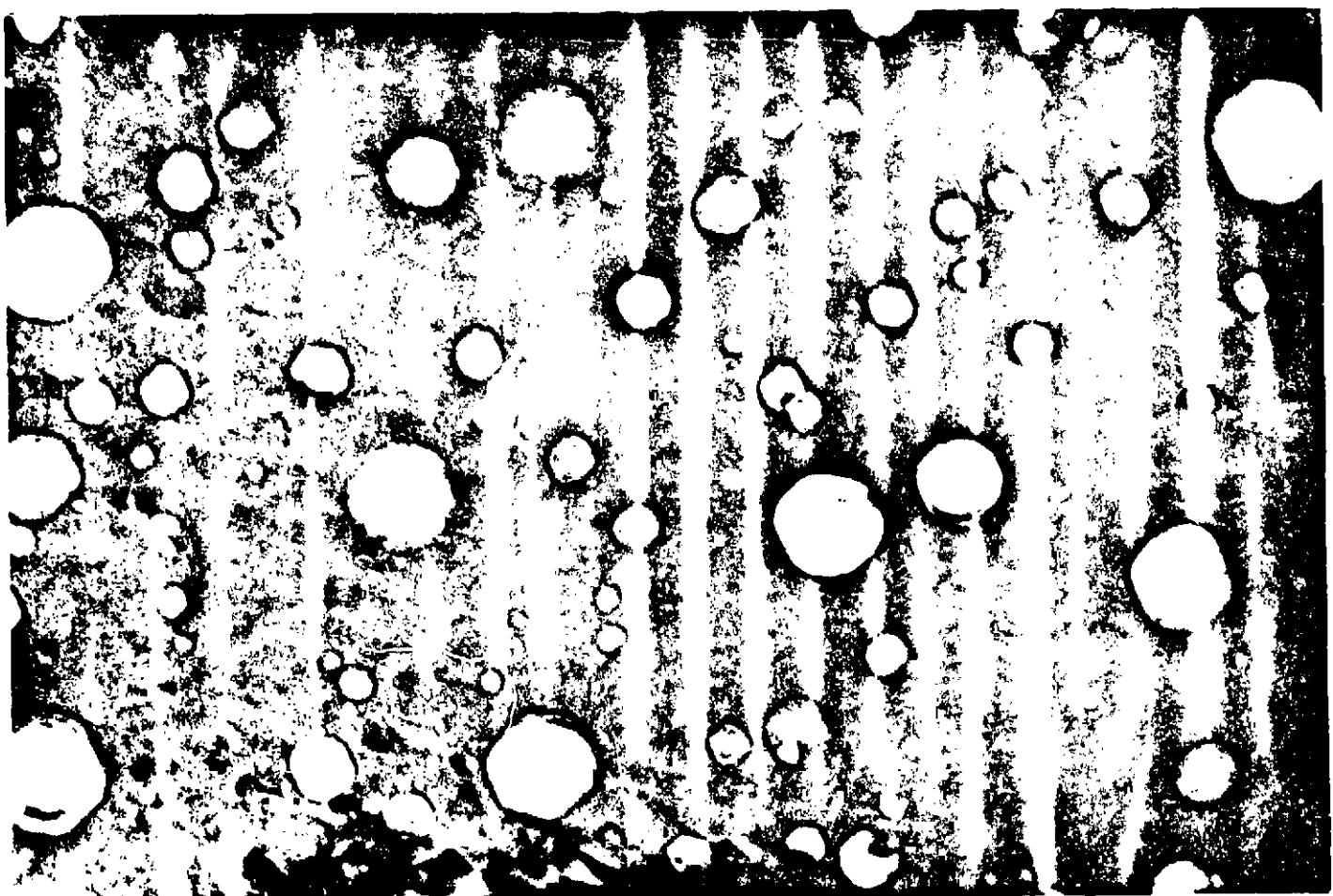
Acier 316



600°C

40 dpa

x 160.000



600°C

200 dpa

x 160.000

Fig 17

Acier 316

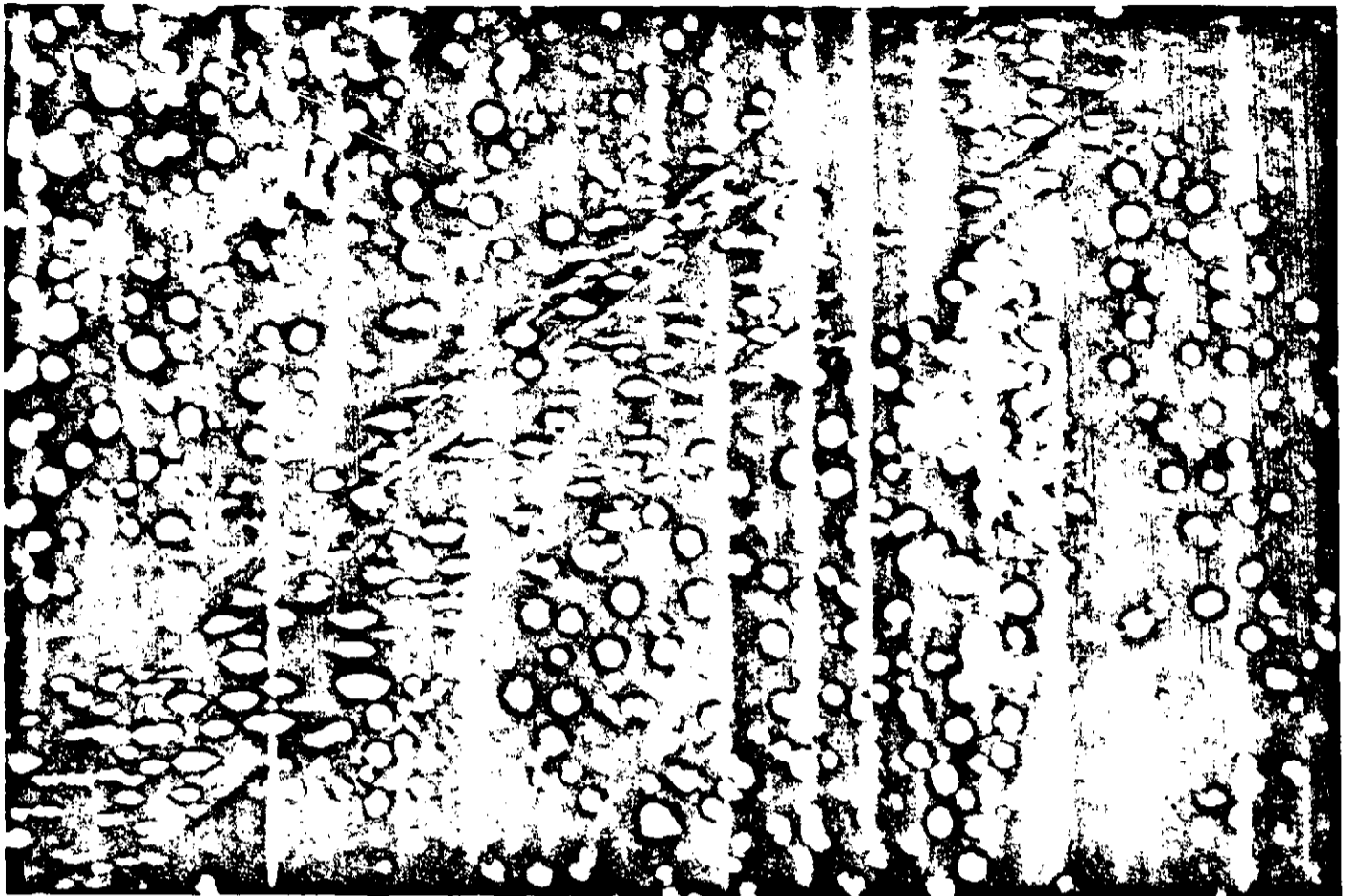


Cavités cisillées

x 240.000

Fig 18

Nickel



Glissement

x 50.000

Fig 19



Déplacement de joints

x 25.000

Fig 20