

Étude du comportement sous irradiation des matériaux nucléaires : apport de la plateforme JANNUS

Quelle que soit l'application nucléaire considérée, les phénomènes physico-chimiques générés par l'irradiation au sein d'un matériau vont bouleverser son architecture atomique, faire évoluer sa microstructure et sa composition chimique. Ces modifications entraîneront des changements du comportement mécanique, des propriétés physiques, comme la conduction thermique et la densité, et de la tenue à la corrosion.

En dépit des avancées de la science des matériaux au cours du dernier demi-siècle, il est impossible de prévoir l'effet d'une irradiation sur le comportement des matériaux en fonction des paramètres de l'irradiation (nature des particules, dureté du spectre, flux, dose...). Par contre, ces progrès permettent d'expliquer le comportement du matériau à partir des caractéristiques et des propriétés de sa microstructure et de l'évolution de cette dernière sous sollicitation : d'où l'intérêt d'examiner en détail des évolutions de

microstructures provoquées par des irradiations parfaitement définies. Couplées à des développements théoriques et à des modélisations numériques à l'échelle atomique, ces études tentent de donner une base physique plus sûre aux codes de prévision du comportement des matériaux sous irradiation, afin de tirer un meilleur profit du retour d'expérience. Les faisceaux de particules chargées autorisent de telles approches sur des petits échantillons, dans des conditions d'irradiation totalement maîtrisées. C'est un moyen expérimental léger, souple et performant. Une fois le lien établi entre l'endommagement par irradiation à l'échelle atomique et les modifications de comportement du matériau qui en découlent, il devient possible d'extrapoler ou d'interpoler le résultat en fonction des conditions d'irradiation, en particulier le passage à l'irradiation neutronique, dont l'effet ne peut être connu que grâce à des expériences d'irradiation en réacteur, beaucoup plus lourdes.



P. Siroppa/CEA

Accélérateur Pelletron™ tandem Japet. Sa source délivre des faisceaux d'ions d'éléments électronégatifs tels que le chlore ou l'iode, ou encore des faisceaux d'ions métalliques comme le silicium ou l'or.

Les chercheurs sont alors en mesure de simuler expérimentalement le comportement d'un matériau sous irradiation neutronique, en le bombardant par un ou plusieurs faisceaux d'ions accélérés et en suivant *in situ* ou *ex situ* l'évolution de sa microstructure, de sa composition chimique et de ses propriétés thermiques, mécaniques ou électriques.

Les accélérateurs de JANNUS

La plateforme JANNUS (Jumelage d'accélérateurs pour les nanosciences, le nucléaire et la simulation) se compose de deux ensembles expérimentaux, dont l'un se situe à Saclay et l'autre à Orsay (Essonne) au Centre de spectrométrie nucléaire et de spectrométrie de masse, rattaché à la tutelle commune CNRS-IN2P3 et Université Paris-Sud.

L'installation de Saclay constitue l'un des outils majeurs du programme Recherche scientifique et technologique de base (RSTB) de la Direction de l'énergie nucléaire du CEA. Elle couple trois accélérateurs électrostatiques de particules : un Pelletron™ simple étage de 3 MV (Épiméthée), un Pelletron™ tandem de 2 MV (Japet) et un Van de Graaff simple étage de 2,5 MV (Yvette) autour d'une chambre d'expériences commune. Épiméthée est équipé d'une source d'ions multi-chargés de type RCE, qui produit des ions dans des états de charge élevés à partir de gaz ou de composés organométalliques volatils. Japet est doté d'une source d'ions à échange de charge avec une vapeur de césium. Cette source délivre des faisceaux



P. Siroppa/CEA

Chambre d'expériences triple-faisceau de la plateforme JANNUS à Saclay. La ligne de faisceau issue d'Épiméthée est située dans le plan horizontal à l'avant et celle provenant de Japet à l'arrière. La ligne de faisceau d'Yvette est visible dans le plan inférieur au centre. La première expérience d'irradiation en mode triple-faisceau a été conduite avec succès en mars 2010.

SIMULER EXPÉRIMENTALEMENT



Lignes de faisceau de Japet (à gauche), d'Yvette (au centre) et d'Épiméthée (à droite) convergeant vers la chambre d'expériences triple-faisceau localisée derrière le mur.

d'ions d'éléments électronégatifs tels que le chlore ou l'iode, impossibles à obtenir avec la source RCE, ou encore des faisceaux d'ions d'éléments comme le silicium ou l'or, pour lesquels les composés utilisables dans la source RCE ne conviennent pas. L'accélérateur Yvette est pourvu d'une source d'ions radiofréquence capable de fournir des faisceaux de protons ($^1\text{H}^+$), de deutérons ($^2\text{H}^+$), d'hélium-3 ($^3\text{He}^+$) et d'hélium-4 ($^4\text{He}^+$).

L'installation d'Orsay comprend un accélérateur mixte de 2 MV (Aramis) et un implantateur ionique de 190 kV (Irma) couplés à un microscope électronique à transmission de 200 kV. Ce dispositif permet d'observer *in situ* l'évolution de la microstructure de l'échantillon pendant son irradiation en configuration simple ou double-faisceau.

Comment les ions simulent les neutrons

Une expérience-type d'irradiation en configuration triple-faisceau répond, par exemple, aux exigences imposées par les applications dans le domaine de la fusion. Le faisceau d'ions lourds multichargés d'Épiméthée simule les déplacements d'atomes créés dans le matériau par les neutrons. Yvette apporte l'hélium (^4He) et Japet l'hydrogène (^1H) générés par les réactions nucléaires (n, α) et (n, p). Ces irradiations permettent d'étudier indépendamment le rôle du taux d'endommagement ou fluence, de la vitesse d'endommagement ou flux, de la température d'irradiation, de la concentration totale de gaz introduit (^4He et ^1H) et du parcours des ions au sein du matériau.

La caractérisation

Une étape-clé de l'étude consiste à caractériser aussi finement que possible l'échantillon irradié. Cette caractérisation – structurale, chimique ou encore mécanique – peut être menée pendant l'irradiation

(*in situ*) ou bien immédiatement à son issue (*ex situ*). La science des matériaux dispose aujourd'hui d'un arsenal de techniques d'analyse physicochimique très complet telles la microscopie électronique, la sonde atomique tomographique, la diffraction et l'absorption des rayons X... Les faisceaux d'ions légers – protons ($^1\text{H}^+$), deutérons ($^2\text{H}^+$), hélium-3 ($^3\text{He}^+$) et hélium-4 ($^4\text{He}^+$) – offrent également la possibilité de caractériser *in situ* des profils de concentration par rétrodiffusion Rutherford⁽¹⁾, recul élastique⁽²⁾ ou réaction nucléaire.

Le comportement sous irradiation de deux matériaux avancés

Deux exemples illustrant l'apport de la plateforme JANNUS à la compréhension du comportement sous irradiation des matériaux nucléaires sont présentés. Le premier se rapporte au carbure de silicium hexagonal (6H-SiC) et le second à un alliage ODS ferritique/martensitique de composition pondérale Fe-16Cr renforcé par une dispersion de nanoparticules d'oxyde d'yttrium (Y_2O_3) à hauteur de 0,37%.

Le monocristal 6H-SiC a été irradié par un faisceau d'ions nickel ($^{58}\text{Ni}^+$) de 0,92 MeV à température ambiante à une dose supérieure au seuil d'amorphisation. La figure 1

- (1) Rétrodiffusion Rutherford (en anglais RBS, *Rutherford Backscattering Spectrometry*) : cette technique consiste à analyser la rétrodiffusion d'hélium-4 envoyés sur un échantillon. Elle permet d'accéder à la composition locale de l'échantillon au voisinage de sa surface.
- (2) Recul élastique (en anglais ERDA, *Elastic Recoil Detection Analysis*) : cette technique consiste à analyser le recul des atomes d'une surface consécutivement à leur collision avec des hélium-4. Elle permet d'accéder à la composition locale de l'échantillon au voisinage de sa surface.

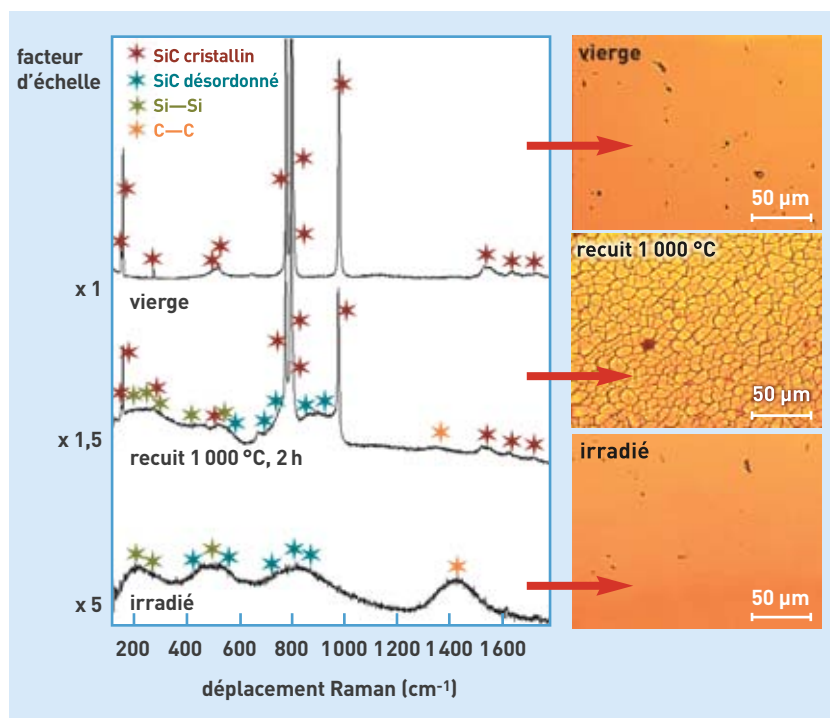


Figure 1. Spectres Raman et micrographies d'un monocristal 6H-SiC irradié par un faisceau d'ions nickel (Ni^+) de 0,92 MeV à température ambiante à une dose supérieure au seuil d'amorphisation, du monocristal vierge et de l'échantillon recuit à 1000 °C pendant 2 heures. Ce travail est le fruit d'une collaboration entre les trois services du Département des matériaux pour le nucléaire (J.-M. Costantini, L. Gosmain et S. Miro).



Poste de conduite et de surveillance des trois accélérateurs de la plateforme JANNUS.

montre les **spectres Raman** du monocristal vierge, de l'échantillon irradié et de l'échantillon **recuit** à 1 000 °C pendant 2 heures. Après irradiation, les bandes caractéristiques du SiC **cristallin** disparaissent totalement et des bandes correspondant aux liaisons Si-Si et C-C apparaissent. Le recuit conduit à une restauration du système cristallin initial caractérisée par la réapparition des bandes Si-C et une diminution de l'intensité des bandes Si-Si et C-C. De plus, cette **recristallisation** s'accompagne d'un phénomène de « fragmentation » de la surface.

L'alliage ODS, quant à lui, a été irradié à 425 °C en mode double-faisceau par des ions fer ($^{56}\text{Fe}^{8+}$) de 24 MeV et par des hélium-4 ($^4\text{He}^+$) dispersés en énergie entre 1,7 et 1,1 MeV grâce à des films minces de **graphite**. Le taux d'endommagement est de 30 **dpa** et la concentration d'hélium introduit de 0,0025 % atomique/dpa. Les images de microscopie électronique à transmission de la figure 2 mettent en évidence la formation d'une distribution bimodale (à deux composantes en taille) de bulles d'hélium dans une zone de faible densité en nanoparticules d'oxyde d'yttrium. En outre, il est manifeste

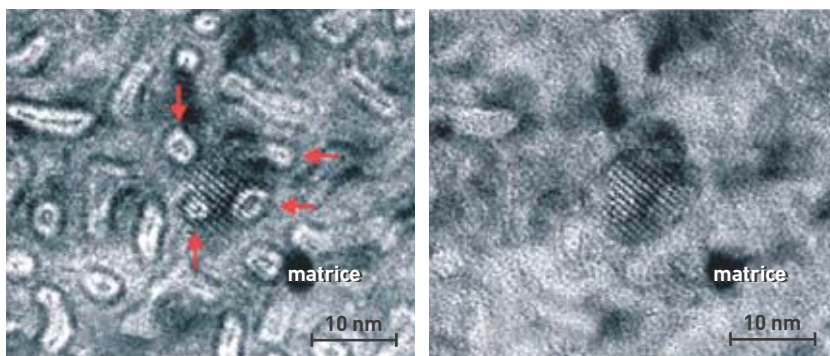


Figure 2. Images de microscopie électronique à transmission montrant la distribution des bulles d'hélium dans un acier ODS Fe-16Cr irradié en mode double-faisceau. L'image de gauche révèle la présence de 4 bulles d'hélium (3 à 5 nm de diamètre) associées à un grain d'oxyde de 10 nm de diamètre visible sur l'image de droite. Les cavités de forme allongée, quant à elles, résultent de la **coalescence** de bulles de plus petite taille. Ce travail est le fruit d'une collaboration entre le Lawrence Livermore National Laboratory, États-Unis (L. Hsiung, M. Fluss, S. Tumey, J. Kuntz, B. El Dasher, M. Wall, W. Choi), l'Université de Kyoto, Japon (A. Kimura) et le CEA.

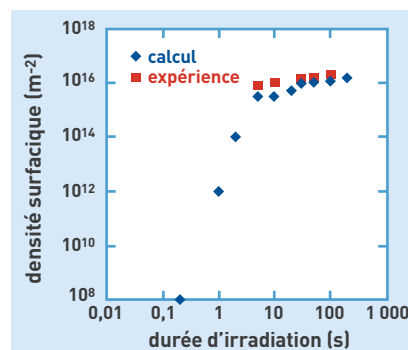


Figure 3. Variation de la densité surfacique des boucles d'interstitiels formées dans du tungstène de haute pureté irradié par des hélium-4 en fonction du temps. La comparaison entre la densité calculée (losanges) et les mesures expérimentales (carrés) montre un excellent accord. Ce travail est le fruit d'une collaboration entre les universités japonaises de Kyushu et de Kyoto (Y. Watanabe, H. Iwakiri, N. Yoshida, K. Morishita et A. Kohyama).

que les nanoparticules d'oxyde jouent le rôle de piège vis-à-vis des bulles d'hélium.

Confronter l'expérience et la simulation numérique

Les études de ce type ont un double but : comprendre le comportement des matériaux sous irradiation, et tester la capacité des théories et de la modélisation multi-échelle à rendre compte des observations expérimentales. La figure 3 donne un exemple significatif de la confrontation entre expérience et simulation numérique dans le cas de la formation de **boucles d'interstitiels** dans du tungstène (W) de haute pureté, irradié par des hélium-4 ($^4\text{He}^+$) de 8 keV à la température ambiante avec un flux de $2,6 \cdot 10^{13}$ ions/cm²/s. Afin de calculer la densité surfacique de boucles d'interstitiels, il est nécessaire d'ajuster le paramètre correspondant à l'énergie de liaison d'un atome **interstitiel** de tungstène avec une paire constituée d'un atome d'hélium et d'une **lacune** de tungstène. Lorsque la valeur de ce paramètre est fixée à 0,7 eV, comme le suggèrent des calculs de **dynamique moléculaire** publiés antérieurement, l'accord entre observations expérimentales et simulation devient excellent.

► **Patrick Trocellier, Sandrine Miro et Yves Serruys**

Département des matériaux pour le nucléaire
Direction de l'énergie nucléaire
CEA Centre de Saclay