

## Les outils de validation expérimentale

Comme dans toutes les branches de la Physique, la modélisation et la simulation des matériaux doivent s'accompagner d'une validation, par confrontation à l'expérience. Les observables sont nombreuses, et la panoplie des outils expérimentaux variée :

- Le physicien des matériaux dispose depuis longtemps des outils classiques de caractérisation mécanique des matériaux permettant de réaliser des essais de traction, de fluage, d'éclatement, d'impact, de ténacité, d'indentation, nécessaires pour obtenir des caractéristiques telles que module élastique, limite élastique, résistance à rupture, dureté...
- dans le domaine de la caractérisation microstructurale des matériaux, l'utilisation de plusieurs techniques combinées, associée à l'augmentation significative des performances des outils d'analyse, ces dix dernières années, permet de fournir des éléments essentiels à cette validation expérimentale. Nous citerons, à titre d'exemple, la **Microscopie Électronique en Transmission\*** qui peut désormais atteindre une résolution inférieure à 0,1 nm et la **Sonde Atomique Tomographique\*** permettant d'analyser des volumes de plus en plus grands, grâce à l'augmentation de la fréquence d'évaporation. Autre domaine concerné par ces fortes évolutions, les **techniques de diffraction/spectroscopie des rayons X\***, où l'utilisation plus courante du **rayonnement synchrotron\*** a permis d'accéder, grâce à la qualité des faisceaux de photons (flux, résolution spatiale et en énergie...)

à des informations chimiques et cristallographiques très locales sur des quantités de matière extrêmement réduites.

À ce stade de l'énumération, les outils cités ne sont pas du tout spécifiques des matériaux du nucléaire. Pour ces derniers, des questions supplémentaires surgissent, en particulier celle de la tenue des matériaux sous rayonnement. Ces questions appellent des expériences d'irradiation. Les irradiations aux neutrons sont les plus représentatives, car c'est principalement à ces derniers que sont exposés les matériaux de structure des réacteurs. Malheureusement, ce sont aussi les expériences les moins nombreuses, car les neutrons sont rares et chers, tout particulièrement s'il s'agit de neutrons rapides. C'est là toute la raison d'être des réacteurs d'irradiation des matériaux, comme par exemple le **réacteur OSIRIS\***, à Saclay, ou son remplaçant le **réacteur Jules Horowitz\***, en construction à Cadarache (voir la monographie « Les réacteurs expérimentaux », 2012). Le problème de la rareté des neutrons devient encore plus aigu concernant le test des matériaux pour les réacteurs de fusion : il est même envisagé de construire un accélérateur dédié pour produire les neutrons de 14 MeV spécifiques de ces réacteurs.

Les matériaux irradiés sont, en général, actifs et ne peuvent être manipulés sans précaution, c'est pourquoi les réacteurs d'irradiation sont accompagnés de « **labos chauds\*** ». Les expériences représentatives sont de longue durée et le retour d'expérience est très lent. En complément des irradiations aux

neutrons, les chercheurs ont recours à des irradiations avec des particules chargées (ions et électrons) qui permettent de faire varier de manière souple et bien contrôlée les paramètres expérimentaux (tels que la température, la vitesse d'endommagement, etc.), sans rendre actifs les échantillons. Même si elle n'est pas parfaitement représentative des irradiations en réacteur, l'utilisation des particules chargées est particulièrement pertinente pour l'étude expérimentale des effets d'irradiation, la compréhension des phénomènes élémentaires et la validation des modèles.

## Les outils de caractérisation microscopique

Il existe un grand nombre de techniques de caractérisation de la microstructure d'un matériau. L'objectif n'est pas ici d'en faire une liste exhaustive, mais de présenter de façon synthétique quelques techniques particulièrement pertinentes pour la caractérisation de matériaux d'intérêt nucléaire, qu'ils soient ou non à l'état irradié.

Comme détaillé ci-après, ces techniques (la diffraction des rayons X et des neutrons, la microsonde électronique et nucléaire, la microscopie électronique en transmission et la sonde atomique tomographique...) permettent d'obtenir une grande richesse d'information qui pourra être mise à profit pour la modélisation physique des matériaux. Parmi les données obtenues, nous pouvons citer : la répartition spatiale des différents éléments d'alliage, la densité et la distribution des tailles de particules de phases constitutives du matériau, ainsi que la composition chimique, la nature et la texture cristallographique de ces phases, ou encore la nature des défauts contenus dans le matériau (amas de défauts ponctuels, dislocations, microdéformations, contraintes résiduelles, etc.) qui résultent du procédé d'élaboration et des conditions d'emploi du matériau soumis à diverses sollicitations (contraintes thermomécaniques, irradiation...).

Ces techniques présentent différentes valeurs de résolution et de volume caractéristique analysé. C'est pourquoi elles sont le plus souvent associées pour caractériser un matériau. Elles nécessitent, en outre, le recours à des échantillons de géométrie et de dimension très spécifiques, qui sont obtenus grâce à des techniques de nanousinage de pointe, comme la sonde ionique focalisée (FIB) décrite ci-après.

### La diffraction des rayons X et des neutrons

La **Diffraction des Rayons X\*** (DRX) ou des neutrons est une technique très couramment utilisée pour identifier la nature et la structure de matériaux cristallisés. Elle s'appuie sur l'interaction d'un rayonnement de longueur d'onde suffisamment faible avec l'arrangement périodique des plans cristallins donnant alors lieu au phénomène de diffraction. Différentes applications de cette méthode peuvent être mises en œuvre : identification et affinement des structures (détermination des groupes de symétries et des paramètres de maille...), quantifications des phases en présence, analyse des textures cristallographiques et contraintes résiduelles. Cette technique

connaît, depuis quelques années, et notamment grâce à l'utilisation de plus en plus répandue des sources de rayonnement synchrotron, un nouvel élan bénéficiant notamment des progrès techniques récents faits sur les optiques, détecteurs et environnement échantillon (analyses *in situ*).

Pour des applications nucléaires, il est capital de déterminer avec une grande précision les paramètres structuraux des phases en présence, qui évoluent en température et sous sollicitation mécanique, mais aussi sous un flux d'irradiation de neutrons. **Cela a été mis en œuvre sur un alliage de zirconium irradié en réacteur : les phases secondaires minoritaires ont été analysées sur la ligne MARS<sup>21</sup> (fig. 58) du Synchrotron SOLEIL (dédiée à l'étude de matériaux radioactifs).** Après irradiation, on observe (fig. 59) la disparition de la phase  $Zr(Fe, Nb)_2$ , ainsi que le décalage et l'élargissement de la raie relative à la phase  $\beta$ -Nb, traduisant une modification en termes de taille et de composition des précipités [1].

La diffraction de rayons X permet également d'accéder aux défauts aux échelles pertinentes pour la modélisation : du polycristal au monocristal, ces défauts étant responsables d'états de contrainte/déformation, d'évolutions chimiques

21. Ligne de lumière développée avec un partenariat entre SOLEIL et le CEA (DEN et DAM).

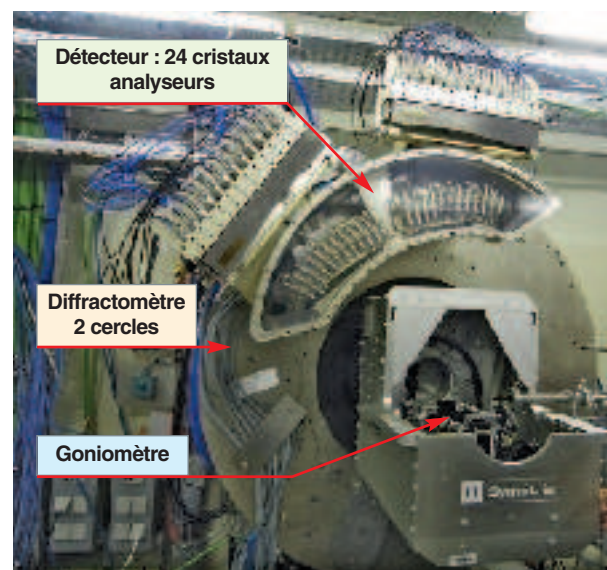


Fig. 58. Diffractomètre haute résolution de la ligne MARS (*Multi Analysis on Radioactive Sample*) dédiée aux échantillons radioactifs sur le Synchrotron SOLEIL.

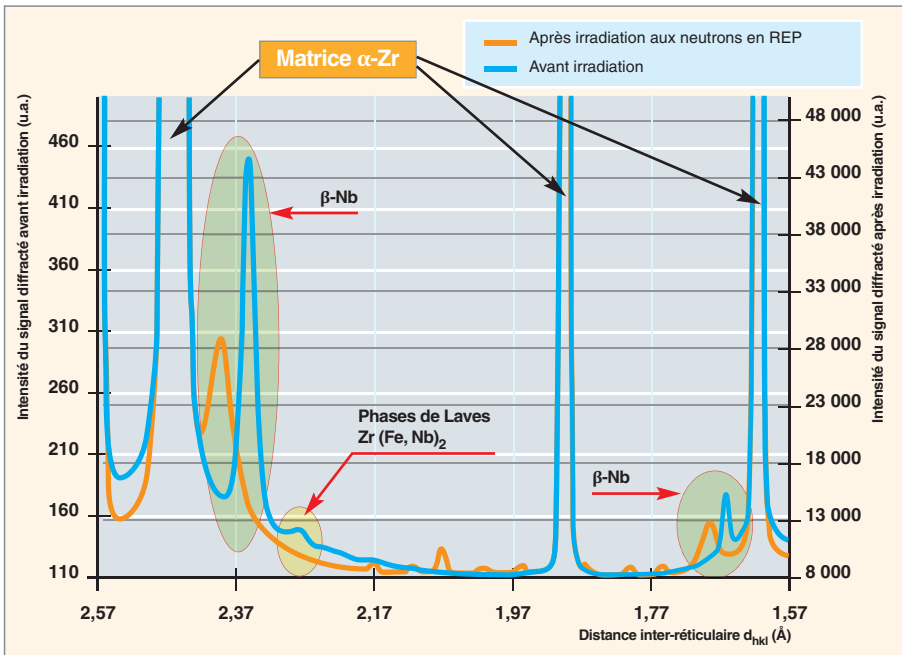


Fig. 59. Diffractogramme d'un alliage de Zr avant (en bleu) et après (en orange) irradiation en réacteur : disparition de la phase  $Zr(Fe, Nb)_2$ , ainsi que décalage et élargissement de la raie relative à la phase  $\beta-Nb$ .

quantifiables, notamment en fonction des conditions d'irradiation. Cela a pu être mis en évidence, dans le cadre d'études sur l'oxydation des gaines de crayons combustibles en alliage de zirconium, grâce à l'analyse en DRX en incidence rasante d'une zircone irradiée aux particules chargées (où seule la couche superficielle est affectée) [2]. Nous avons ainsi montré qu'à partir d'une certaine dose d'irradiation, la zircone passait progressivement d'une structure cristalline monoclinique à tétragonale, ce qui a une forte incidence sur les propriétés de la zircone (fig. 60).

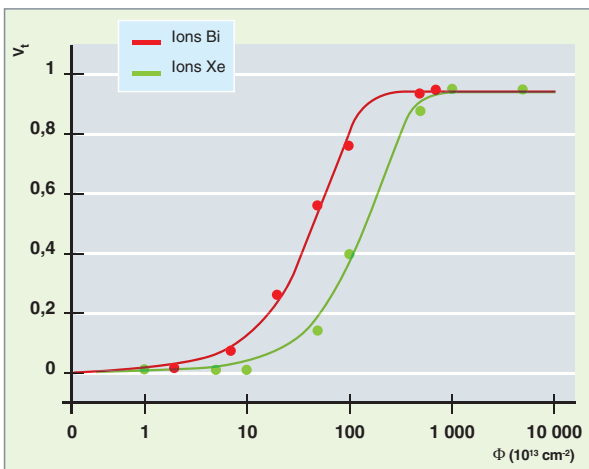


Fig. 60. Évolution de la fraction volumique de zircone tétragonale en fonction de la fluence (de 100 % monoclinique à fluence nulle à 100 % tétragonale à fluence max.), après irradiation aux ions Bi (rouge) et Xe (vert).

Toutes ces données « physiques » sont des éléments d'entrée pour la modélisation multi-échelles, voire dans certains cas des grandeurs permettant de valider les modélisations par comparaison avec l'expérience. L'exemple donné ci-dessous s'appuyant sur l'utilisation des neutrons du réacteur Orphée au Laboratoire Léon Brillouin (analyse en volume grâce à la forte pénétration des neutrons) a permis d'accéder, sur un alliage base Zr, à la texture moyenne (fig. 61) sur une éprouvette de  $\sim 1\text{cm}^3$

puis aux déformations résiduelles d'origine élastique après un essai de fluage (une méthode d'analyse de la **texture\*** locale, l'**EBSD\*** (*Electron Backscatter Diffraction*), à l'échelle sub-micronique, sera détaillée par la suite).

Nous montrons ainsi que la carte de déformation (explorant différentes orientations de la **figure de pôles\*** : angles  $(\chi, \varphi)$  simulée à partir de méthodes d'homogénéisation est en excellent accord avec les mesures expérimentales (fig. 62), cela validant ici le modèle employé [3].

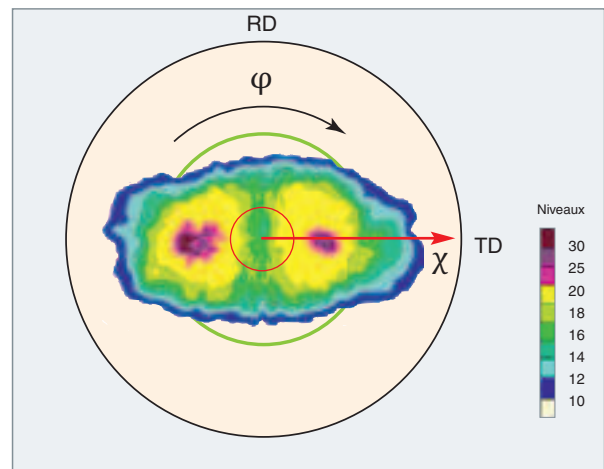


Fig. 61. Figures de pôles  $\{0002\}$  représentant la texture cristalline d'un alliage de Zy-4 déformé en fluage à  $400\text{ °C}$ .

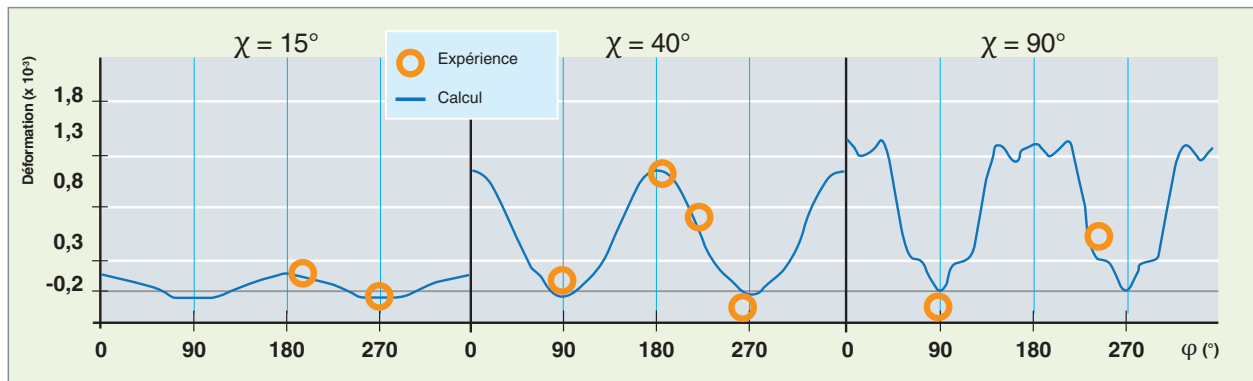


Fig. 62. Cartes de déformation résiduelle après fluage pour différentes orientations sur la figure de pôles. (Voir *supra*, la figure 61 : angles  $[\chi, \varphi]$ ).

### La diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD : *Electron Backscatter Diffraction*)

La technique EBSD (diffraction des électrons rétrodiffusés) permet, dans un microscope électronique à balayage, de déterminer l'orientation cristalline locale (à l'échelle sub-micro-nique), afin de réaliser des cartographies de phases (par exemple, austénite [cfc] ferrite [cc], acier biphasé : voir fig. 63)

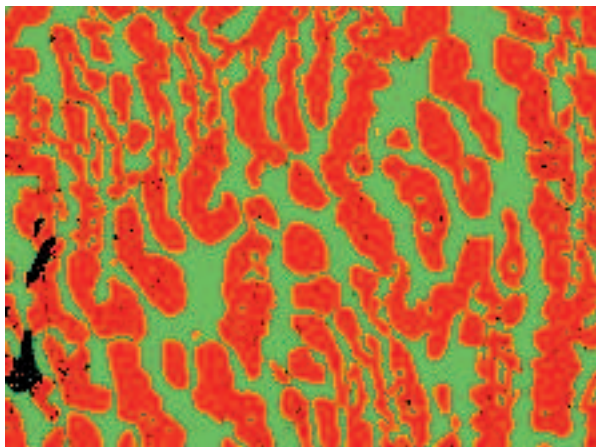


Fig. 63. Acier biphasé. En rouge la phase ferritique, en vert l'austénite.

La position de la caméra et du détecteur à  $90^\circ$  du faisceau incident, ainsi que l'inclinaison de l'échantillon à  $70^\circ$  permettent la collection des électrons rétrodiffusés diffractés sur un écran de phosphore (fig. 64).

Après une préparation spécifique de l'échantillon (surface et géométrie plane), l'EBSP (*Electron BackScatter Pattern*) obtenu sur l'écran qui contient les bandes de Kikuchi, constitue l'image de départ pour la détermination de l'orientation cristalline locale (fig. 65).

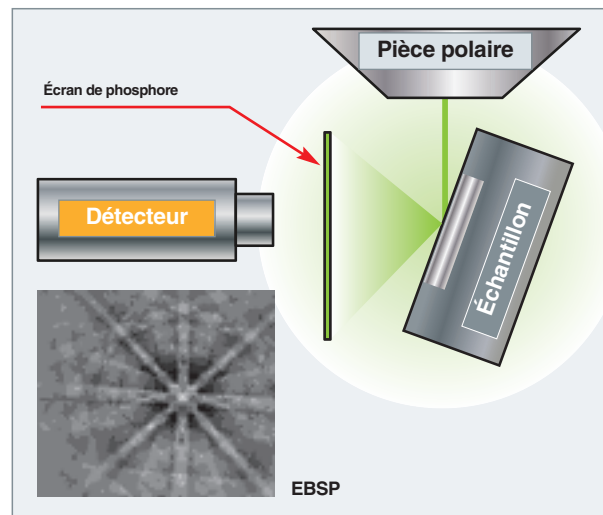


Fig. 64. Schéma de principe de l'EBSD.

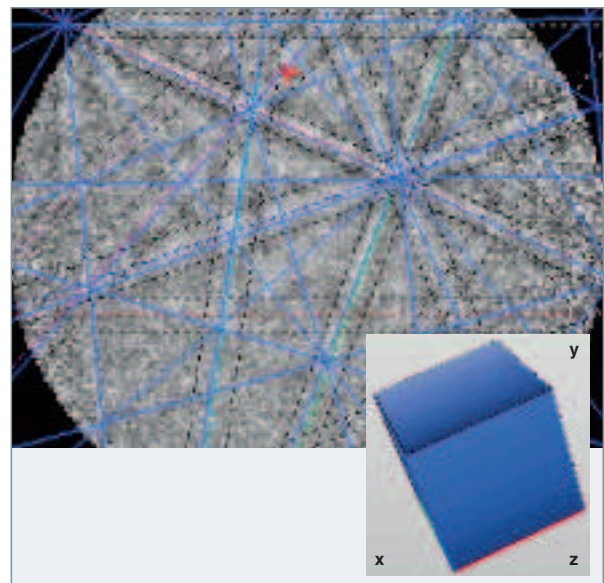


Fig. 65. EBSP obtenu sur l'écran de phosphore avec les bandes de Kikuchi permettant de remonter à l'orientation du cristal, ici de structure cubique.



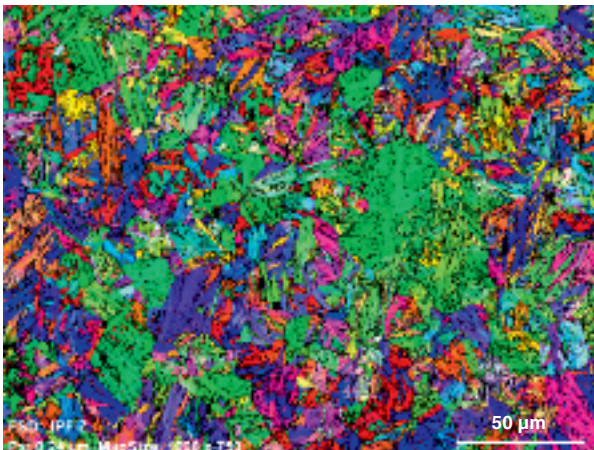


Fig. 66. Cartographie d'orientation cristalline obtenue sur un acier martensitique, chaque couleur représentant une orientation particulière du cristal [5].

En effet, à partir des bandes caractéristiques des plans diffractants (définis par leurs indices de MILLER) nous pouvons remonter à l'orientation cristalline locale du grain analysé [4].

Les données obtenues permettent de réaliser des cartographies d'orientations cristallines (fig. 66), des figures de pôles et de calculer la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC).

## La microsonde électronique et nucléaire

Compte tenu du caractère multi-allié des matériaux d'intérêt nucléaire et des hétérogénéités de répartition microchimique au sein de leur microstructure, la **microsonde électronique dite « de Castaing »\*** est couramment utilisée pour caractériser et quantifier la répartition des différents éléments chimiques d'addition ou impuretés à une échelle micronique. Son principe repose sur l'analyse spectrométrique en longueur

d'onde (« WDS » pour « *Wave Dispersion Spectrometry* ») des photons X issus des interactions entre un faisceau d'électrons accéléré sous haute tension et la surface de l'échantillon. En revanche, à la différence des systèmes d'analyse de type « EDS\* » (« *Energy Dispersion Spectrometry* » disponible dans un MEB ou un MET), l'analyse « WDS » permet, en général, un gain en sensibilité et une quantification plus précise, notamment pour l'analyse des éléments légers à partir du béryllium (l'automatisation des analyses permet, en outre, une très bonne statistique de mesure). Néanmoins, quand il s'agit de doser précisément certains éléments légers non atteignables par WDS, on fait appel à la **Sonde Nucléaire\*** (SN). Le principe repose sur la détection et la spectrométrie des rayonnements émis par l'interaction, électronique ou nucléaire, d'un microfaisceau d'ions légers produits par un **accélérateur Van de Graaff\*** avec les atomes de l'échantillon. On peut ainsi doser et cartographier, notamment, la répartition de l'hydrogène.

Les domaines d'application de ces techniques sont vastes et couvrent la plupart des matériaux d'intérêt nucléaire, depuis les céramiques jusqu'aux alliages métalliques. Grâce à la nucléarisation de ce type d'appareillage, il est possible d'étendre ces analyses aux matériaux irradiés (p. ex. ligne CASIMIR pour la sonde nucléaire du LEEL au CEA). On peut ainsi étudier différentes problématiques rencontrées en métallurgie, comme la détermination des compositions chimiques respectives des différentes phases, les ségrégations majeures d'éléments chimiques, les phénomènes de diffusion préférentielle, etc.

À titre d'exemple, nous nous sommes intéressés à la microstructure d'une gaine de combustible REP en alliage de zirconium à l'issue d'un transitoire à haute température simulant des conditions accidentelles de type « APRP » (Accident par Perte de Réfrigérant Primaire) ; elle représente des cartographies de la répartition des éléments chimiques (oxygène, fer et hydrogène) et illustre la complémentarité des analyses réa-

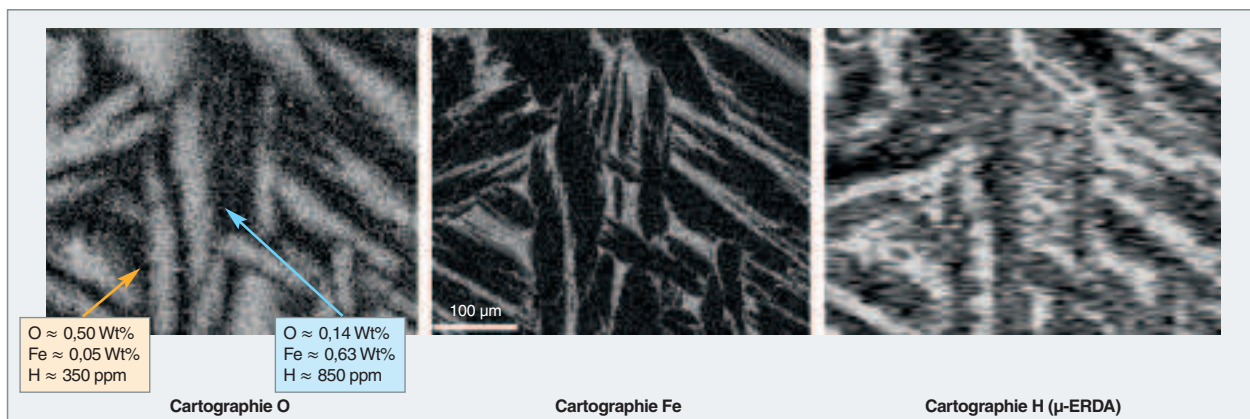


Fig. 67. Cartographies X de l'oxygène et du fer obtenues à la microsonde électronique et de l'hydrogène obtenue à la microsonde nucléaire illustrant la répartition de ces éléments au sein de la structure d'un tronçon de gaine en Zircaloy-4 ayant subi un transitoire de perte de réfrigérant primaire « APRP ».

lisées sur une même plage, à la microsonde électronique, d'une part, et nucléaire (via la technique « **Micro-ERDA**\* »), d'autre part. Il apparaît clairement (fig. 67) qu'en raison du changement de phases *Alpha* => *Bêta* qui s'opère lors du refroidissement, les éléments chimiques se concentrent dans certaines zones au sein de la microstructure (selon leurs affinités thermodynamiques respectives vis-à-vis de chacune des deux phases allotropiques de l'alliage de zirconium), le caractère « microcomposite » de telles microstructures impactant alors directement les propriétés de la gaine du combustible.

## La Microscopie Électronique en Transmission (MET)

Le **Microscope Électronique en Transmission\*** (MET) est un outil d'analyse structurale et chimique des matériaux. Les appareils actuellement les plus performants permettent d'atteindre une résolution inférieure à l'Ångström. Il permet d'obtenir l'image projetée en deux dimensions de la structure interne d'un matériau préparé sous la forme d'une lame mince de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres d'épaisseur. Pour cela, un faisceau d'électrons est envoyé sur la zone à analyser. Il est transmis à travers l'échantillon et diffracté par les plans du cristal. Des exemples d'application sont donnés sur des matériaux d'intérêt technologique pour le nucléaire.

Le MET permet de visualiser des défauts d'irradiation tels que des boucles de dislocation (fig. 68a) ou des bulles de gaz (fig. 68b). Les premières correspondent à des regroupements d'atomes déplacés lors des chocs balistiques produits pendant l'irradiation. Ces défauts peuvent entraîner des évolutions des propriétés mécaniques du matériau ou des variations dimensionnelles, sous la forme de gonflement, notamment.

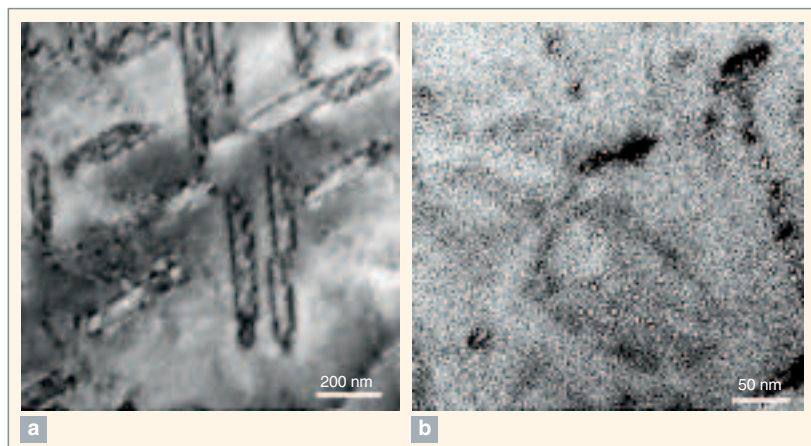


Fig. 68. Exemples d'images de microscopie en transmission.  
a) Contraste de diffraction : défauts d'irradiation (contrastes noirs) formés dans un alliage de Fe-5 at.%Cr irradié avec des ions à 500 °C jusqu'à 6 dpa (déplacements par atome) [6].  
b) Image défocalisée : bulles d'He (contrastes blancs) formées dans du fer pur irradié à 500 °C jusqu'à 1 dpa avec implantation simultanée d'hélium [7].

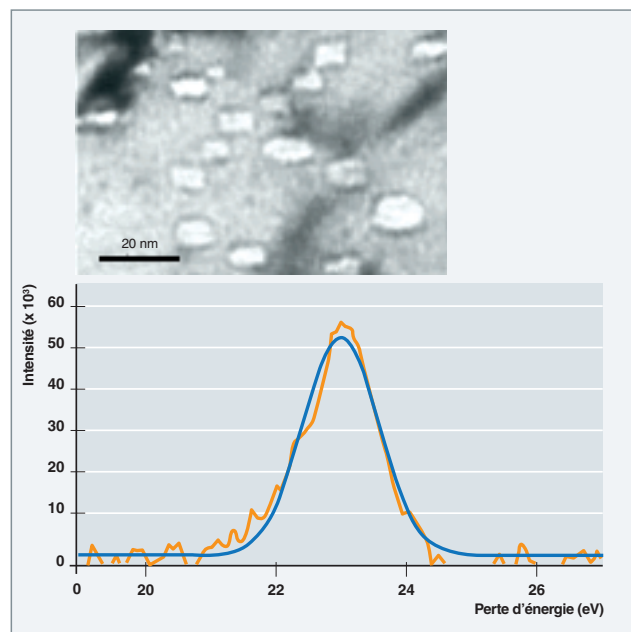


Fig. 69. Partie du spectre de perte d'énergie des électrons (EELS) enregistré au centre d'une bulle dans un acier martensitique EM10 implanté avec 0,5 at. % He à 550 °C. Le signal de l'hélium a été extrait (courbe orange) et ajusté par une gaussienne (courbe bleue) [8]. Une image MET des bulles (objets blancs) est donnée en encart.

Des informations chimiques sont également accessibles. La pression d'hélium à l'intérieur de bulles de gaz formées après implantation dans un acier martensitique de type EM10 (fig. 69) a ainsi été obtenue par spectrométrie de perte d'énergie d'électrons. Cette technique repose sur l'analyse de l'énergie perdue de manière inélastique par le faisceau d'électrons incident, lors de la traversée de l'échantillon. Celle-ci est caractéristique non seulement de la nature chimique des éléments en présence, mais également du type de liaison chimique entre les atomes, ainsi que de la réponse diélectrique du matériau.

Enfin, une analyse structurale peut être réalisée. La phase pyrochlore  $Y_2Ti_2O_7$  a ainsi été identifiée dans un alliage **ODS\*** (acier renforcé par dispersion d'oxydes) (fig. 70a) [9]. Sa forme cubique, ainsi que sa relation d'orientation avec la matrice ferrique (fig. 70b) ont ainsi été mises en évidence et ont permis d'estimer l'énergie d'interface particule/matrice. Ces informations permettent de comprendre la stabilité des nanoparticules dans ces matériaux.

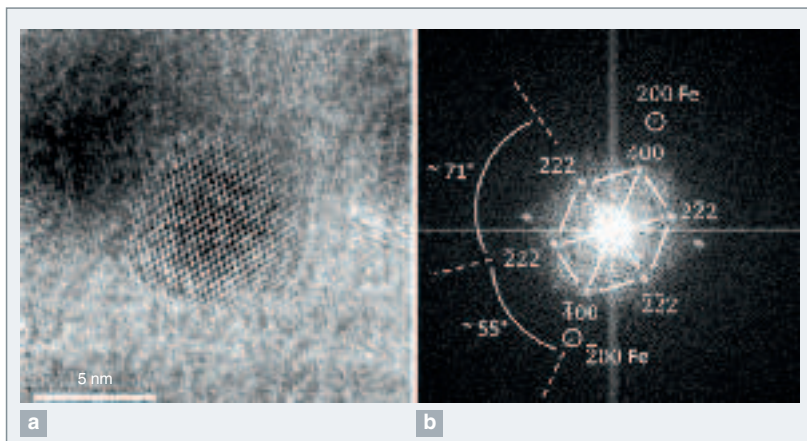


Fig. 70. Analyse structurale par Microscopie Électronique en Transmission (MET) :  
 a) Image haute résolution : particule cubique de type  $Y_2Ti_2O_7$  dans un alliage ODS développé au CEA [9].  
 b) Transformée de Fourier correspondant à l'image (a).

ou un précipité. Il permet également de réaliser des sections transverses ou d'analyser des matériaux pulvérulents (fig. 71). Dans la majorité des appareils actuels, la colonne ionique est associée à une colonne électronique. Cette dernière permet de contrôler la découpe ionique par imagerie MEB. Certains sont également équipés d'EBSD pour pouvoir sélectionner une orientation cristallographique particulière.

Cet appareil permet également de préparer des échantillons sous forme de pointes de quelques dizaines de nanomètres de rayon de courbure nécessaires aux analyses à la Sonde Atomique Tomographique (SAT).

### Un outil de préparation des échantillons : les faisceaux d'ions focalisés (FIB\*)

Pour être transparentes aux électrons, les lames minces de Microscopie Électronique à Transmission doivent avoir une épaisseur de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. Bien que le polissage électrolytique reste la technique la plus utilisée, du fait de sa rapidité et de sa simplicité, une nouvelle technique de nano-usinage a vu le jour, il y a une quinzaine d'années : les **faisceaux d'ions focalisés\*** (*Focussed Ion Beam*, FIB). Pour cela, un faisceau d'ions gallium de quelques dixièmes à quelques dizaines de keV est envoyé sur la zone à découper. La zone usinée est ensuite extraite à l'aide d'un micromanipulateur interne. Contrairement au polissage électrolytique, le FIB présente l'avantage de pouvoir sélectionner une zone d'intérêt, comme un joint de grains

### La Sonde Atomique Tomographique (SAT)

La **Sonde Atomique Tomographique\*** (SAT) est une technique d'analyse locale qui permet d'obtenir des informations chimiques et structurales. La structure interne d'un matériau peut être reconstruite à l'échelle atomique en trois dimensions. Le principe est donné dans l'encadré ci-après. Nous donnons des exemples obtenus sur des aciers ODS (renforcés par dispersion d'oxydes), matériaux de structure envisagés pour les réacteurs du futur.

Cette technique est particulièrement adaptée à l'étude de nano-objets dispersés dans une matrice. Elle permet d'obtenir leur densité, leur taille et leur composition. **Ainsi, elle a permis d'obtenir les caractéristiques des nano-précipités formés dans une poudre d'acier ODS synthétisée par broyage réac-**

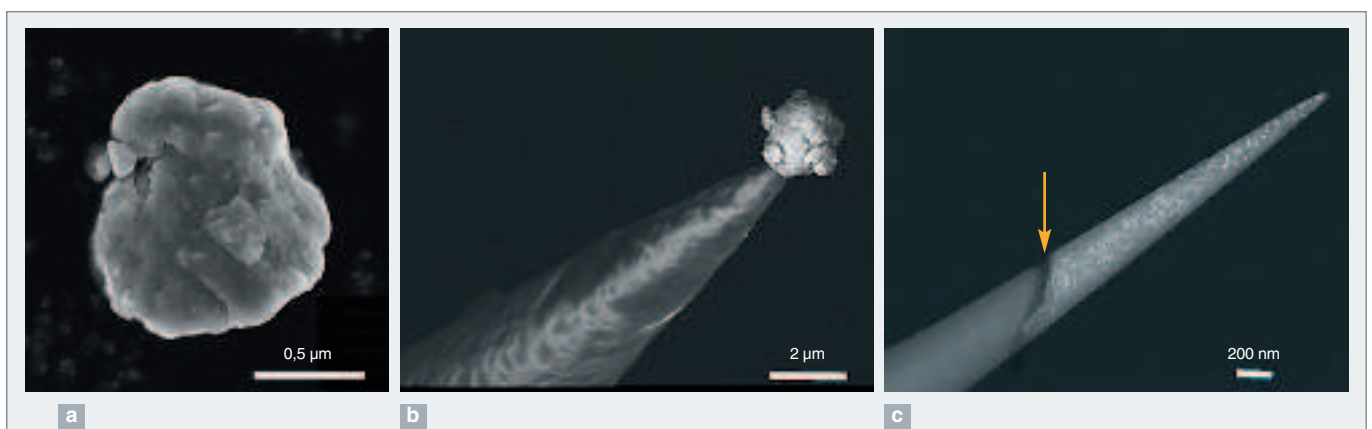


Fig. 71. a) Grain de poudre d'acier ODS synthétisée par broyage réactif.  
 b) Grain de poudre collé sur une pré-pointe.  
 c) Grain de poudre nano-usiné par FIB, la flèche indique la position de l'interface poudre-pré-pointe.



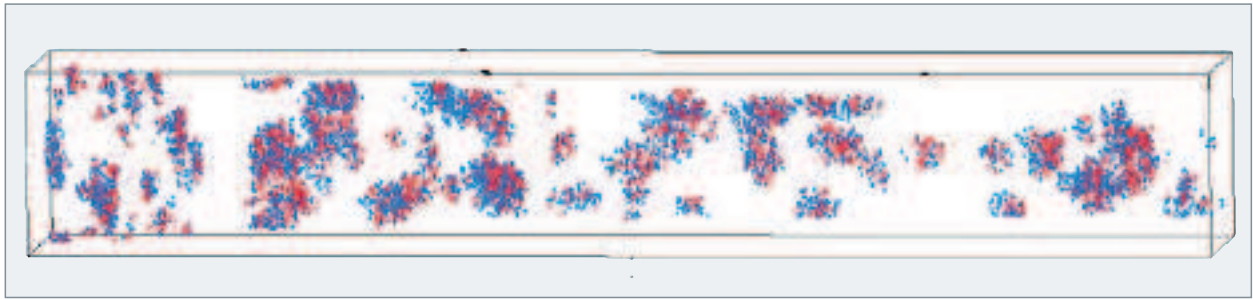


Fig. 72. Reconstitution en trois dimensions par Sonde Atomique Tomographique (SAT) d'une poudre d'acier ODS élaborée par broyage réactif et recuite cinq minutes à 800 °C. Seules les espèces Ti et TiO (bleu) et Y, YO et O (rouge) appartenant à des nano-objets sont représentées. Le volume total analysé est égal à 13x20x20 nm<sup>3</sup>. Les analyses ont été réalisées à l'université de Rouen [10].

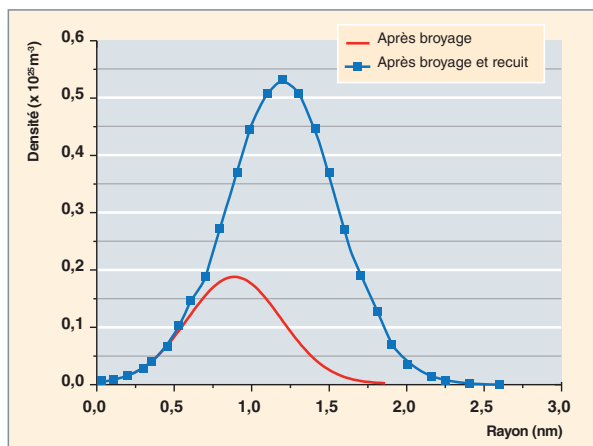


Fig. 73. Distribution en taille des amas mesurée par diffusion de neutrons aux petits angles (DNPA) dans une poudre d'acier ODS après broyage (courbe rouge) et après broyage et recuit (courbe bleue). Cette dernière correspond à la reconstitution SAT de la figure 72.

tif (fig. 72). Pour accroître la statistique des résultats, ceux-ci ont été confirmés par une technique d'analyse globale de **Diffusion de Neutrons aux Petits Angles (DNPA)\*** [fig. 73]. Cette étude a mis en évidence que, dans certaines conditions de broyage, la germination des nano-objets commençait dès l'étape de broyage et se poursuivait avec une cinétique très rapide pendant le recuit [10].

Par SAT, des mesures de ségrégation peuvent également être réalisées (fig. 74). Une déplétion en Cr a ainsi été mise en évidence au niveau d'un joint de grains dans un acier ODS irradié dans l'installation **JANNUS\*** Saclay à 500 °C jusqu'à 235 dpa [11]. Un profil en W est visible après irradiation (fig. 74d), en accord avec des calculs théoriques [12].

**Jean-Luc BÉCHADE, Jean HENRY,  
Estelle MESLIN et Joël RIBIS,**

*Département des matériaux pour le nucléaire*

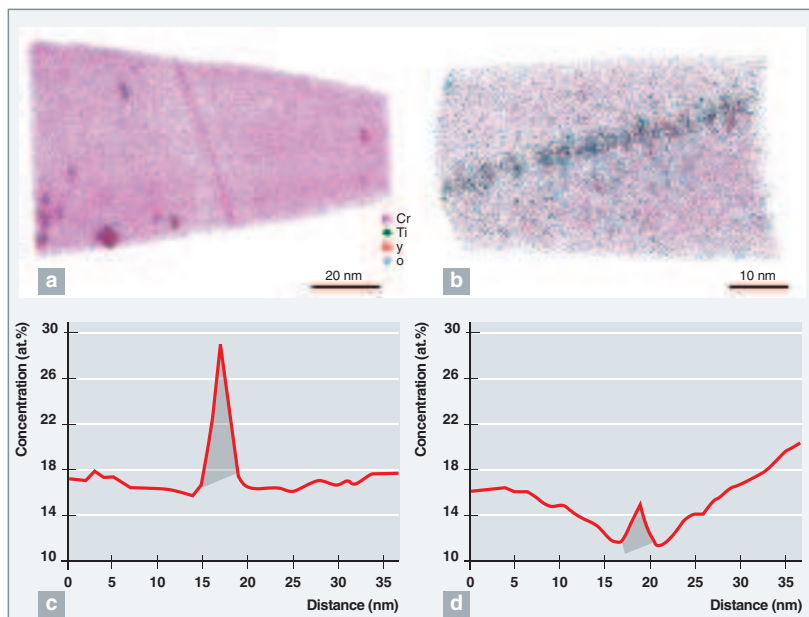


Fig. 74. Reconstitution en trois dimensions par Sonde Atomique Tomographique (SAT) d'un acier ODS Fe 18%Cr avant (a) et après irradiation (b). Profils respectifs en chrome au niveau du joint de grains (c) et (d) [11].

#### ► Références

- [1] J.L. BÉCHADE, D. MENUT, S. DORIOT, S. SCHLUTIG et B. SITAUD, « X-Ray Diffraction analysis of secondary phases in zirconium alloys before and after neutron irradiation at the MARS Synchrotron Radiation beamline », *Journal of Nuclear Materials*, **437** (2013), pp. 365-372.
- [2] D. SIMEONE, G. BALDINOZZI, D. GOSSET, S. LE CAËR et L. MAZEROLLES, « Impact of radiation defects on the structural stability of pure zirconia », *Physical Review B*, **70** (2004), pp. 134116-1-7.
- [3] N. LETOUZE, R. BRENNER, O. CASTELNAU, J.L. BÉCHADE et M.H. MATHON, « Residual strain distribution in Zircaloy-4 measured by neutron diffraction and estimated by homogenization techniques », *Scripta Materialia*, **47** (2002), pp. 595-599.

## Principe d'évaporation des atomes, lors d'une analyse à la Sonde Atomique Tomographique (SAT)

La **Sonde Atomique Tomographique\*** (SAT) repose sur le principe d'évaporation par effet de champ. En présence d'un champ électrique intense, un atome situé à la surface d'un métal peut être arraché et s'évaporer sous la forme d'un ion. Un tel champ électrique peut être obtenu à la surface d'un échantillon conducteur taillé sous la forme d'une pointe de faible rayon de courbure (quelques dizaines de nanomètres) par l'application d'un potentiel électrique de quelques kV. Les ions évaporés sont ensuite projetés vers un détecteur spatial. La position initiale de l'atome dans l'échantillon est ainsi obtenue par projection inverse. La nature de l'ion peut être déterminée par spectrométrie de masse à temps de vol. Une fraction du potentiel appliqué à l'échantillon l'est de manière impulsionnelle. Le temps de vol de l'ion correspond à l'intervalle de temps écoulé entre l'application de l'impulsion et l'arrivée de l'ion sur le détecteur. Lorsque l'échantillon étudié n'est pas conducteur, l'évaporation des atomes est réalisée grâce à des impulsions laser.

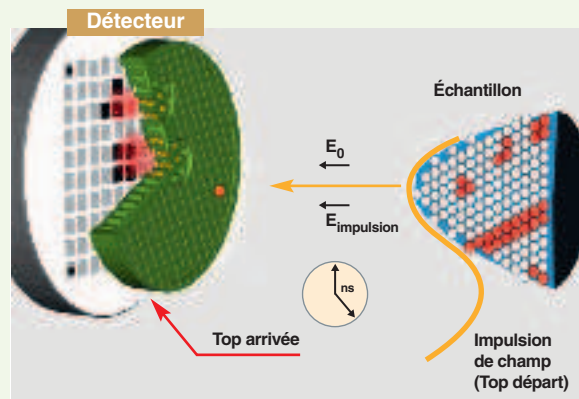


Fig. 75. Principe de fonctionnement de la Sonde Atomique Tomographique.

[4] D.J. DINGLEY and D.P. FIELD « Electron backscatter diffraction and orientation », *Materials Science and Technology*, **13** (1997), pp. 69-78.

[5] F. BARCELO, J.-L. BÉCHADE and B. FOURNIER, « Orientation relationship in various 9%Cr ferritic/martensitic steels-EBSD comparison between Nishiyama-Wassermann, Kurdjumov-Sachs and Greninger-Troiano », *Phase Transitions*, **83** (2010), pp. 601-614.

[6] D. BRIMBAL, E. MESLIN, J. HENRY, B. DECAMPS and A. BARBU, *Acta Mater.*, **61** [13] (2013), pp. 4757-4764.

[7] D. BRIMBAL, B. DÉCAMPS, A. BARBU, E. MESLIN and J. HENRY, « Dual-beam irradiation of alpha-iron: Heterogeneous bubble formation on dislocation loops », *Journal of Nuclear Materials*, **418** (2011), pp. 313-315.

[8] S. FRÉCHARD, M. WALLS, M. KOCIAK, J.P. CHEVALIER, J. HENRY and D. GORSE, « Study by EELS of helium bubbles in a martensitic steel », *Journal of Nuclear Materials*, **393** (2009), pp. 102-107.

[9] J. RIBIS et Y. DE CARLAN, « Interfacial strained structure and orientation relationships of the nanosized oxide particles deduced from elasticity-driven morphology in oxide dispersion strengthened materials », *Acta Materialia*, **60** (2012), pp. 238-252.

[10] M. BROCCQ, B. RADIGUET, S. POISSONNET, F. CUVILLY, P. PAREIGE et F. LEGENDRE, « Nanoscale characterization and formation mechanism of nanoclusters in an ODS steel elaborated by reactive inspired ball-milling and annealing », *Journal of Nuclear Materials*, **409** (2011), pp. 80-85.

[11] M.-L. LESCOAT, Thèse de doctorat, 2012, université de Lille 1.

[12] M. NASTAR, « Segregation at grain boundaries: from equilibrium to irradiation induced steady state », *Philosophical Magazine*, **85** (2005), pp. 641-647.

### ► Bibliographie

GAULT (B.), MOODY (M.P.), CAIRNEY (J.M.) and RINGER (S.P.), *Atom Probe Microscopy*, 2012, Springer Science.

HIRSH (P.B.), HOWIE (A.), NICHOLSON (R.B.), PASHLEY (D.W.) and Whelan, (M.J.), *Electron Microscopy of Thin Crystals*, 1969, New York : Robert E. Krieger.

MILLER (M.K.), *Atom probe tomography: analysis at the atomic level*, 2000 : Kluwer Academic/Plenum publishers.

WILLIAMS (D.B.) and CARTER (B.C.), *Transmission Electron Microscopy: A textbook for Materials Science*, 2009, Springer.

## Les outils de caractérisation mécanique

Les outils de caractérisation mécanique utilisés dans le domaine de l'énergie nucléaire visent à identifier les propriétés des matériaux, afin de déterminer leurs performances et de prévoir leur durée de vie en opération, en situation incidente ou accidentelle, ainsi qu'en transport ou en entreposage. Les résultats expérimentaux sont utilisés pour développer des lois de comportement des matériaux et des critères de rupture qui sont ensuite intégrés à des codes de calculs de structure. À l'échelle des objets ou composants utilisés dans l'industrie nucléaire, les caractérisations phénoménologiques intégrant les phénomènes tels que l'irradiation, les sollicitations thermomécaniques, les couplages avec le milieu sont le plus souvent suffisants pour fournir les propriétés d'usage des matériaux et démontrer l'intégrité des structures durant la vie des réacteurs. De plus, avec l'objectif d'accroître la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu, une démarche nécessitant l'étude des matériaux depuis l'échelle atomique jusqu'à l'échelle macroscopique du composant est aujourd'hui mise en œuvre. Cela se décline, pour les caractérisations mécaniques, par le développement et la mise au point d'essais mécaniques réalisés sur des échantillons de plus en plus petits, sur une échelle s'étendant aujourd'hui du micromètre à quelques centimètres. Ces essais permettent d'accéder à des propriétés de plus en plus locales et permettent d'expliquer des comportements observés à des échelles supérieures. L'utilisation d'échantillons aux dimensions de plus en plus faibles permet également d'accéder, pour un volume de matière donné, à un plus grand nombre d'essais et donc de données expérimentales. La variabilité expérimentale peut ainsi être mieux cernée, les gammes de conditions expérimentales étendues. Des essais miniaturisés conduisent aussi à une diminution des activités radiologiques manipulées et donc à une diminution des contraintes associées de protection radiologiques à mettre en œuvre pour la réalisation des essais.

Dans ce contexte, le CEA conçoit et développe des équipements expérimentaux innovants visant à disposer d'équipements scientifiques fiables et performants, afin de caractériser finement les matériaux dans des conditions les plus représentatives possibles des conditions en réacteur. Pour les matériaux irradiés, le développement de chaque nouvelle technique expérimentale comprend un processus de mise au point et de validation expérimentale « en froid », une validation des essais par calculs aux éléments finis (rendue le plus souvent nécessaire en raison de l'absence de normes applicables pour ces essais), et enfin une démarche de nucléarisation des

équipements avant implantation finale en laboratoire « chaud ».

Avec la complexité des essais mécaniques réalisés et l'accès ou non à certaines données selon l'instrumentation qu'il sera possible de mettre en œuvre (qui sera nécessairement limitée lorsqu'il s'agira de caractériser des matériaux irradiés), cette démarche nécessite de mettre en œuvre une approche combinant mesure expérimentale et simulation, approche permettant de s'assurer que les connaissances acquises permettent d'identifier les propriétés intrinsèques au matériau.

Ainsi, des essais de traction sur mini-éprouvettes, essais Charpy et mini-Charpy, essais *Small Punch Tests* (SPT), essais de nano-indentation, etc. sont réalisés dans les laboratoires du CEA. Avec l'objectif d'accroître la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu, leurs résultats sont confrontés à des observations microstructurales.

### Les essais mécaniques Charpy et mini-Charpy

L'essai Charpy est un essai de flexion par choc d'une éprouvette de longueur 55 mm et de section 10 mm x 10 mm comportant une entaille. Cet essai, du nom de son inventeur, est utilisé depuis près d'un siècle pour la détermination de la résistance au choc des matériaux, appelée « **résilience\*** ». Cette caractéristique est largement utilisée dans les spécifications des matériaux, car il s'agit d'un indicateur très sensible de leur fragilité. L'appareil employé pour obtenir la rupture de l'éprouvette est appelé un « mouton-pendule » car le marteau rompant l'éprouvette décrit un mouvement pendulaire (fig. 76). On mesure l'énergie absorbée par la rupture, ce qui permet de remonter à la résilience (énergie absorbée ramenée à la surface, exprimée en J/cm<sup>2</sup>) [fig. 77]. Lorsque le mouton-pendule est « instrumenté », c'est-à-dire équipé d'une électronique d'acquisition, il est possible d'accéder au taux de rupture fragile (ou cristallinité). La réalisation d'essais à différentes températures permet d'évaluer la **transition ductile/fragile\*** et la fragilisation des matériaux sous l'effet de l'irradiation ou du vieillissement thermique.

Au cours des dernières années, l'utilisation d'éprouvettes mini-Charpy s'est répandue. L'éprouvette mini-Charpy est une éprouvette Charpy de taille réduite par un facteur 2 à 3 environ. On peut prélever 12 éprouvettes mini-Charpy dans le

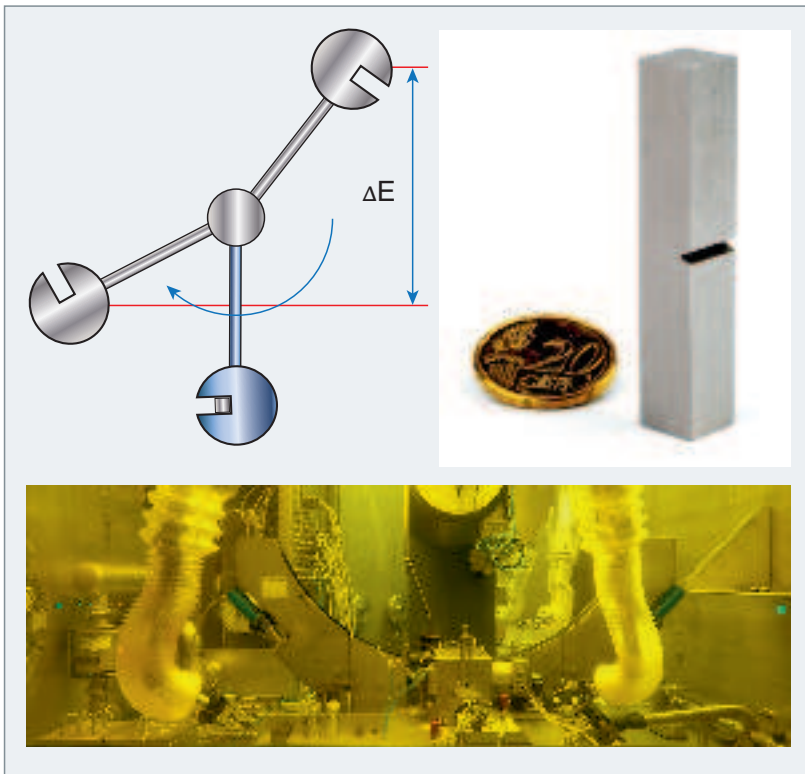


Fig. 76. Principe du mouton-pendule Charpy\* ; éprouvette Charpy conventionnelle et mouton-pendule Charpy instrumenté dans la cellule blindée M10 du LECI pour l'étude de la résilience des matériaux irradiés.



Fig. 78. Éprouvette mini-Charpy.

terie, internes...), puisque la taille maximale de défaut admissible, compte tenu des chargements appliqués, doit être évaluée en regard des dimensions de l'échantillon. Cette question présuppose un défaut de type fissure et un chargement thermomécanique quasi statique avec, de surcroît, une taille de composant telle que le confinement en pointe de la zone plastique soit assuré [1]. Or, dans l'essai Charpy classique, le chargement est dynamique (par choc). Le défaut est une entaille aiguë avec un rayon de fond d'entaille et non une fissure. La taille de l'éprouvette est insuffisante pour assurer un confinement de la zone plastique. Il existe donc une problématique de transférabilité de l'éprouvette à la structure qu'il est aujourd'hui possible d'appréhender empiriquement avec l'utilisation de méthodes de corrélations ou en mettant en œuvre des modélisations fines, permettant de démontrer la transférabilité de ces résultats à celles obtenues avec des approches de type mécanique de la rupture.

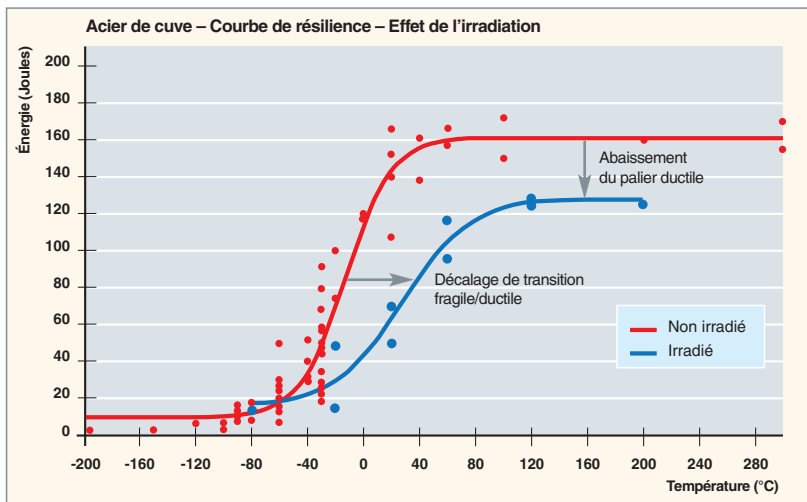


Fig. 77. Exemple du décalage de la Courbe de Transition en Résilience (CTR) obtenue sur le mouton-pendule de 300 Joules pour l'acier de cuve 16MND5.

volume d'une éprouvette Charpy traditionnelle. L'intérêt de cette évolution vers les petites éprouvettes est manifeste lorsque le matériau à caractériser est disponible en petite quantité ou que le produit qu'il constitue est de faible épaisseur (fig. 78).

L'utilisation des résultats d'essais Charpy n'est pas directe pour garantir l'intégrité des structures nucléaires (cuve, tuyau-

## Les essais de ténacité sur petites éprouvettes (CTR)

L'essai de **ténacité\*** permet de mesurer la résistance d'un matériau à la rupture fragile ou à la déchirure ductile. Pour déterminer expérimentalement la ténacité, on utilise une éprouvette pré-entallée (fig. 79). En exerçant sur cette éprouvette un système de forces appropriées, on soumet la fissure





Fig. 79. Éprouvettes de ténacité de type (a) CT-10, (b) CTR-5.

à un mode d'ouverture et on évalue l'énergie élastique libérée par la progression de la fissure. La ténacité est proportionnelle à la racine carrée de cette énergie. Cet essai va au-delà de l'essai de résilience, qui ne permet pas de prévoir de façon quantitative la rupture de pièces contenant une fissure de dimensions données. L'essai de ténacité permet d'obtenir des caractéristiques de ténacité (ou **facteur d'intensité de contrainte\*** critique) fragile et ductile telles que  $K_{IC}$  et  $J_{IC}$  [2, 3, 4], caractéristiques directement utilisables pour les calculs d'intégrité de structures (fig. 80). Selon le volume des composants disponibles, comme, par exemple, les vis d'internes de cuves de réacteur, les quantités de matière irradiée disponibles ne permettent pas de réaliser des essais de ténacité conventionnels. Il devient, dans ce cas, nécessaire de pouvoir tester de plus petites éprouvettes telles que des CTR-5, par exemple, éprouvettes prélevées dans des barres ou éléments de visserie.

De la même manière que les éprouvettes mini-Charpy, les éprouvettes CTR-5 doivent permettre de réaliser des essais de ténacité, la validité de ces essais, et en particulier celui de la transférabilité, devenant alors l'objet d'études détaillées, associant aux expériences une modélisation par calcul aux éléments finis.

### Les essais de flexion ou de traction sur mini-éprouvettes

De nombreux programmes nécessitent la mise en œuvre d'essais, de flexion ou de traction sur mini-éprouvettes. Dans la plupart des cas, les dimensions des échantillons se situent aujourd'hui à la limite de ce qu'il est possible de réaliser pour une caractérisation mécanique représentative du comportement macroscopique des matériaux (fig. 81).

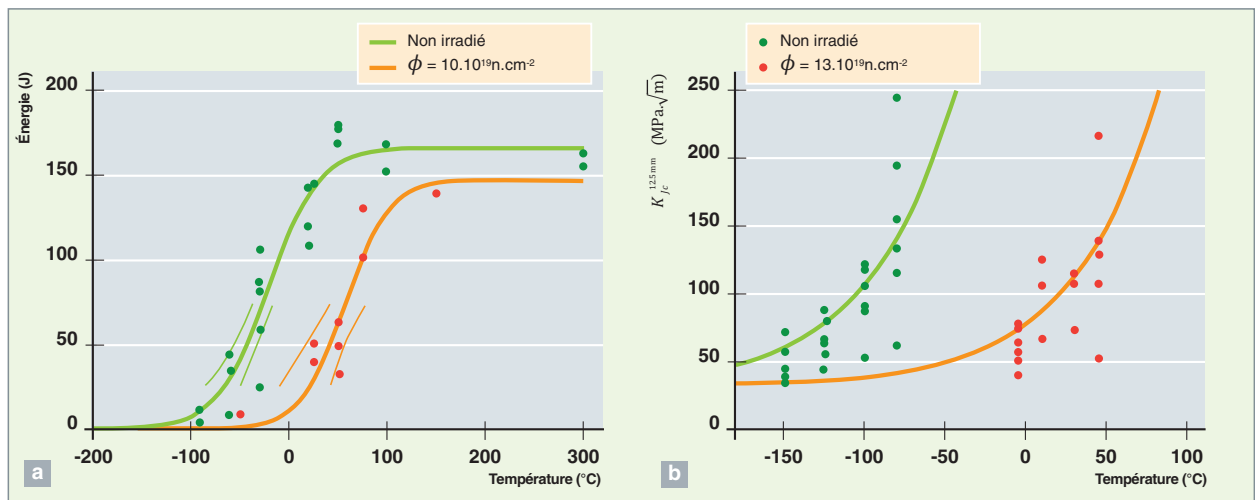


Fig. 80. Résilience et ténacité. a) Résilience obtenue à partir d'essais CTR-5, en fonction de la température pour un acier de cuve non irradié et irradié. (b) Ténacité quasi statique, en fonction de la température pour un acier de cuve non irradié et irradié (d'après J. HURE *et al.*).

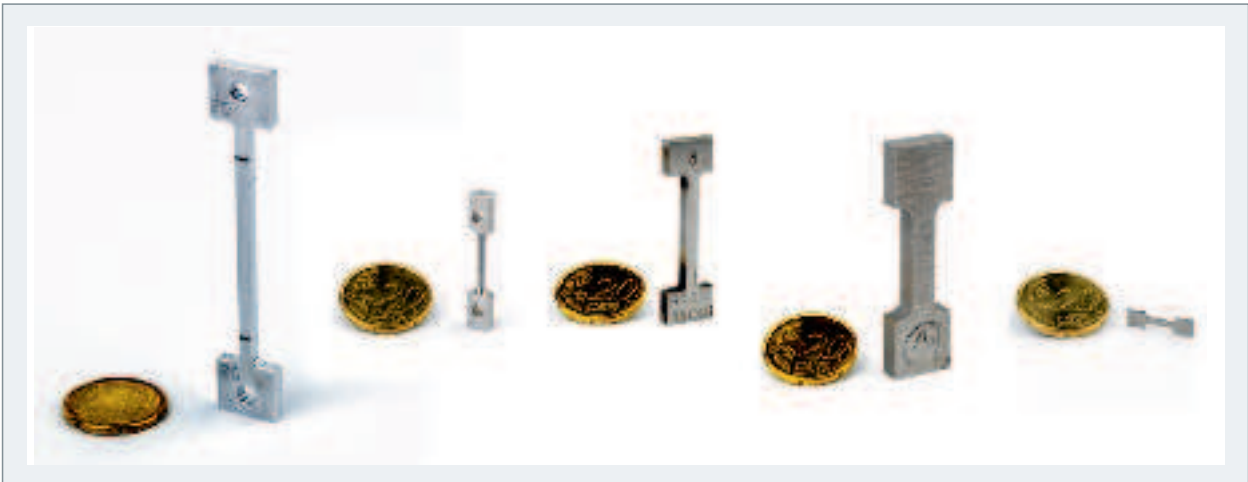


Fig. 81. Mini-éprouvettes de traction testées au LECL.

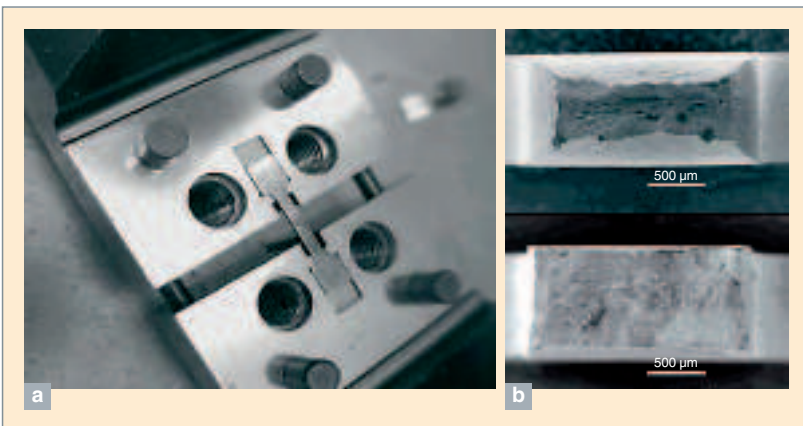


Fig. 82. a) Dispositif d'essai de traction pour éprouvettes miniature plate (épaisseur 1,0 mm,  $L_0 = 5$  cm).  
b) Faciès et striction à rupture (ductile avec striction significative en haut, fragile avec très peu de striction en bas).

De ce fait, elles nécessitent une mise au point expérimentale particulière, devant être validée sur des montages « froids » et sur des matériaux non irradiés, préalable à la caractérisation de matériaux irradiés en cellules blindées. Pour les géométries les plus petites et non axisymétriques comme les éprouvettes plates de traction (fig. 82), la simulation aux éléments finis 3D étant alors obligatoire pour interpréter les résultats expérimentaux.

### Les éprouvettes de traction entaillées (AE)

Les éprouvettes de traction entaillées (AE) sont aujourd'hui systématiquement utilisées pour caractériser la sensibilité des matériaux aux entailles et extraire ainsi des paramètres utiles aux modèles utilisés en mécanique de l'endommagement ou mécanique de la rupture (fig. 83). Cependant, la diminution en

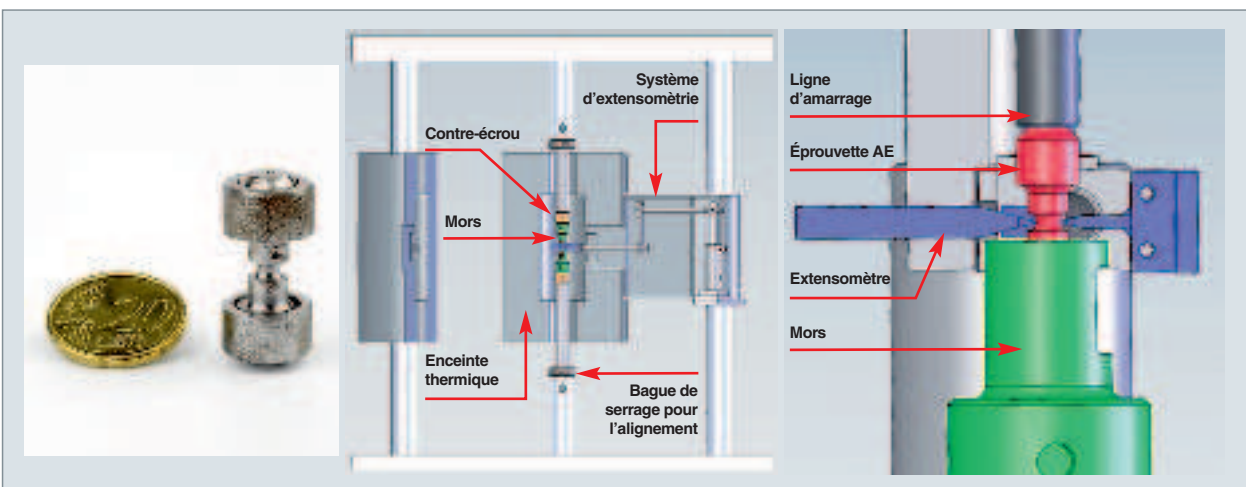


Fig. 83. Essais de traction et instrumentation de mini-éprouvettes entaillées de type AE.

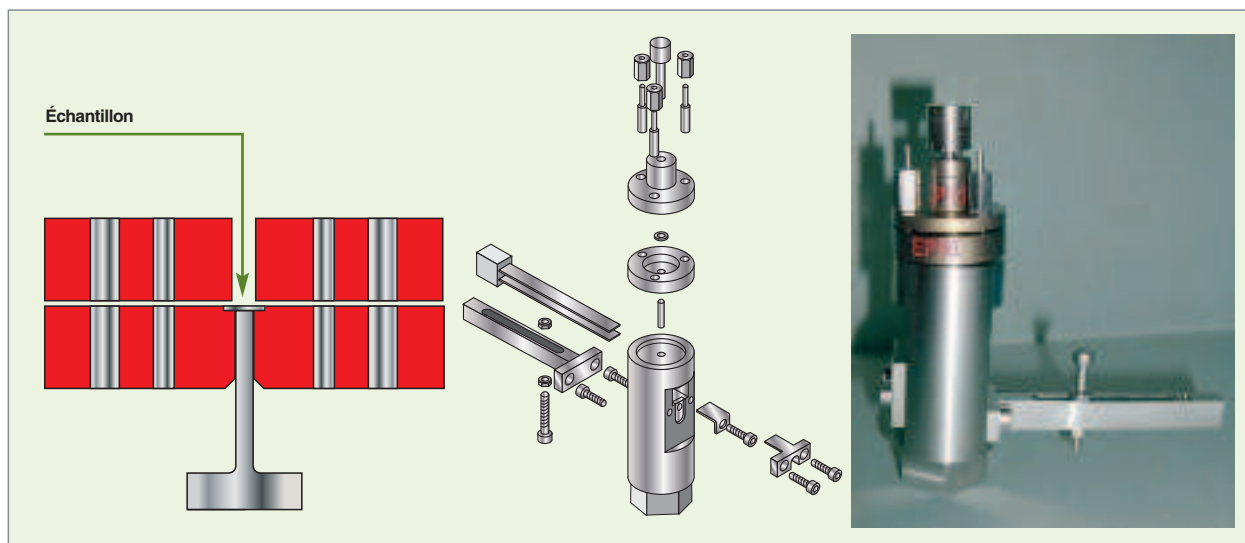


Fig. 84. Schémas de principe de l'essai de poinçonnement *Small Punch Test* et montage nucléarisé disponible au LECI.

taille de ce type d'éprouvette pose des problèmes d'usinage et d'extensométrie pour le suivi du diamètre minimal de l'éprouvette en cours d'essai. Ce type d'essai a pu être mis en œuvre en cellule blindée.

fin des années 2000 [5] ont conduit à la conception, la fabrication et la qualification d'un montage SPT nucléarisé, en vue de son introduction et de son utilisation dans les cellules blindées du CEA au **labo chaud\*** LECI (fig. 84).

### Les essais *Small Punch Test* (SPT)

L'essai *Small Punch Test* (SPT) consiste à poinçonner un petit disque de diamètre compris entre 3 à 6,4 mm et d'épaisseur 0,2 à 0,5 mm. Ce type d'essai présente le double intérêt de pouvoir identifier, à partir d'une très faible quantité de matière, la loi de comportement du matériau, mais aussi son énergie à rupture. Il est donc tout particulièrement attractif pour la caractérisation des matériaux irradiés pour lesquels les quantités de matière irradiées sont limitées. Ainsi, des travaux de développement importants de ce type d'essai réalisés vers la

De nombreux essais SPT ont été réalisés depuis et ont permis de vérifier, outre sa simplicité de mise en œuvre, sa pertinence et son intérêt. Il s'agit d'un essai quasi statique réalisable à différentes températures. Malgré des dimensions d'échantillons particulièrement réduites, le volume de matière sollicité est important, ce qui en constitue l'intérêt majeur. Les comportements mesurés s'avèrent peu sensibles aux conditions aux limites et peu sensibles aux phénomènes de friction mis en jeu durant l'essai. Les courbes force-déplacement ainsi mesurées sont donc pertinentes et s'avèrent utiles, lorsque peu de matière est disponible pour les caractérisations (fig. 85).

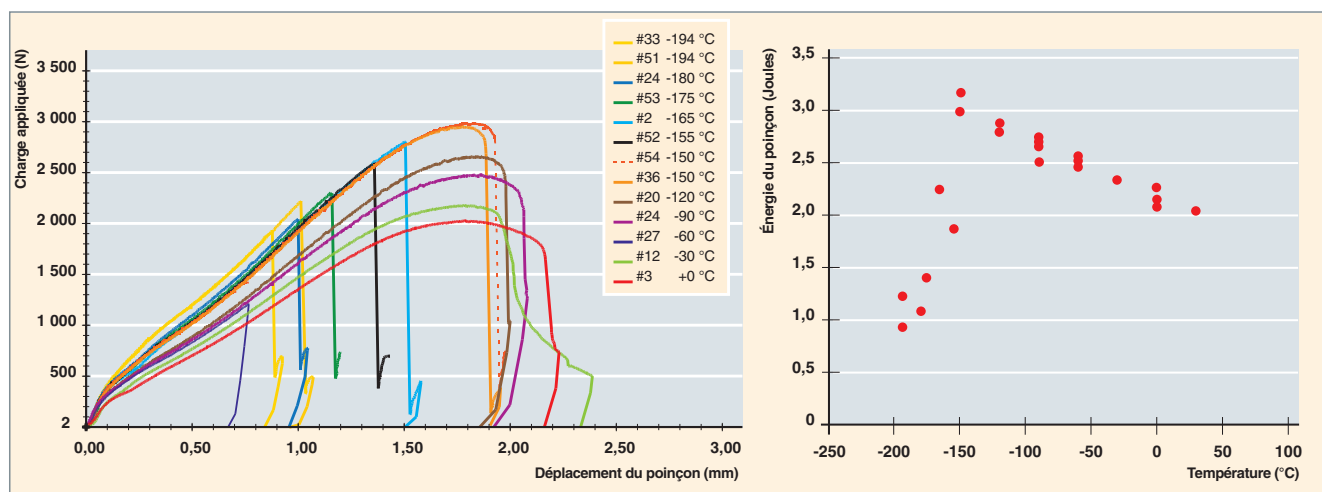


Fig. 85. Courbes force-déplacement et énergie à rupture en fonction de la température obtenues à partir d'essais de poinçonnement SPT sur un acier de cuve 16MND5.

## Les techniques de reconstitution d'éprouvettes

Les centrales nucléaires font l'objet d'un programme de surveillance visant à évaluer l'évolution du comportement des matériaux de la cuve de réacteur face à l'irradiation, provoquant une fragilisation. Ainsi, tous les réacteurs possèdent des capsules contenant notamment des éprouvettes de résilience Charpy. Cependant, leur quantité peut s'avérer insuffisante si une fragilisation plus importante que prévue est constatée ou si la durée de fonctionnement de la centrale est étendue. Ainsi, l'intérêt de pouvoir reconstituer [6] des éprouvettes réside dans la possibilité d'accroître la statistique expérimentale. En reconstituant des éprouvettes ou des mini-éprouvettes, il est possible de tripler la quantité de données disponibles à partir d'une éprouvette Charpy et obtenir ainsi 3 fois plus de données pour une même dose. Cette technique offre également la possibilité de reconstituer des échantillons en vue d'irradiations expérimentales complémentaires (fig. 86).

Le soudage par friction et le forgeage par fusion à l'arc sont des techniques qu'il est actuellement envisagé d'implanter en cellule blindées.

## Les essais de micro- ou nano-indentation

La micro-indentation et la nano-indentation sont des techniques d'indentation instrumentées permettant la détermination des propriétés mécaniques locales des matériaux. Elles peuvent aussi bien être appliquées aux matériaux massifs qu'aux revêtements ou couches minces. Ces techniques consistent à mesurer la profondeur d'enfoncement d'un indenteur de géométrie connue dans un matériau, dans le but d'obtenir ses propriétés élasto-plastiques ou de fluage. À partir d'un essai de micro-indentation instrumenté (permettant de mesurer la réponse charge-déplacement de l'indenteur), ainsi que la mise en œuvre de techniques de calculs inverses, il est possible d'en déduire une loi de comportement des matériaux locale, tout comme cela pourrait être fait à partir d'un essai de traction classique, mais de fait plus macroscopique. Un intérêt tout particulier de ce type d'essai réside également dans la confrontation entre la modélisation des essais réalisés à l'échelle macroscopique aux résultats expérimentaux obtenus par nano-indentation. La compréhension de ces phénomènes peut amener à franchir une échelle de modélisation et faire un lien micro-macro intéressant pour la relation entre défauts cristallographiques existants ou créés durant un essai mécanique et leur incidence sur les propriétés mécaniques macroscopiques.

## Les essais de compression par micro-piliers

La possibilité de prélever par érosion ionique au MEB-FIB des nano-échantillons irradiés ouvre la voie à des caractérisations nano-mécaniques de matériaux irradiés. Ainsi, des essais de compression de micro-piliers [7,8] sont envisagés (fig. 87).

## L'étude expérimentale du fluage d'irradiation par micro-machines (MEMS)

Les matériaux de structure utilisés dans le cœur des réacteurs nucléaires, comme par exemple les aciers austénitiques ou bien les alliages de zirconium, sont soumis à la fois à une forte irradiation neutronique et à divers chargements mécaniques. À l'échelle macroscopique, le comportement mécanique sous irradiation de ces matériaux est bien caractérisé. Cependant, à l'échelle

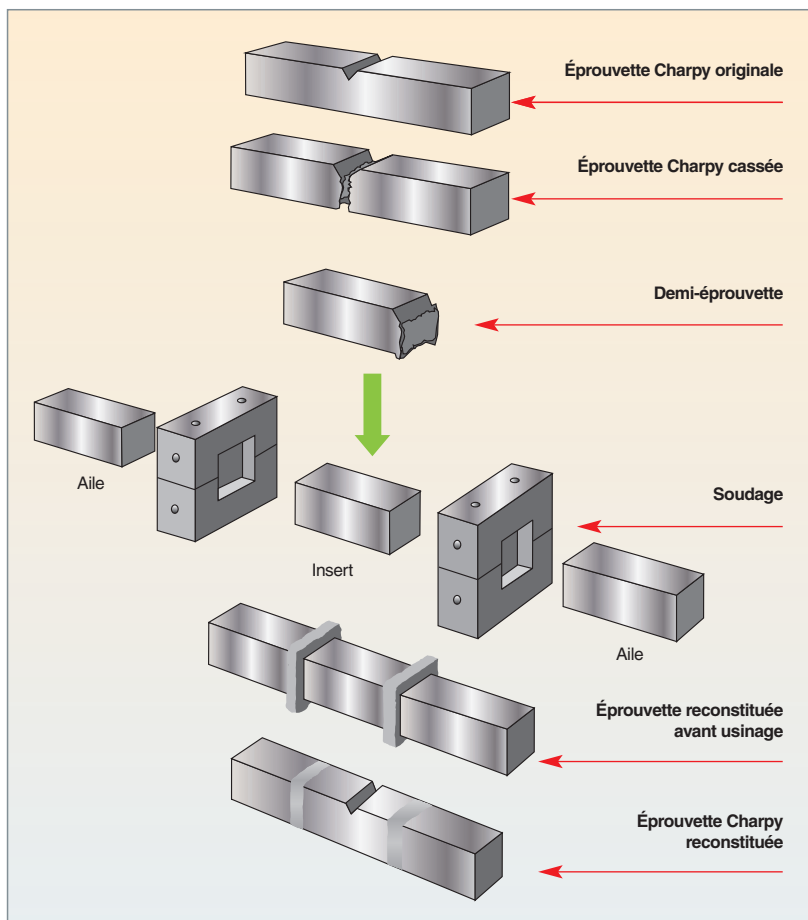


Fig. 86. Principe de reconstitution d'une éprouvette Charpy.



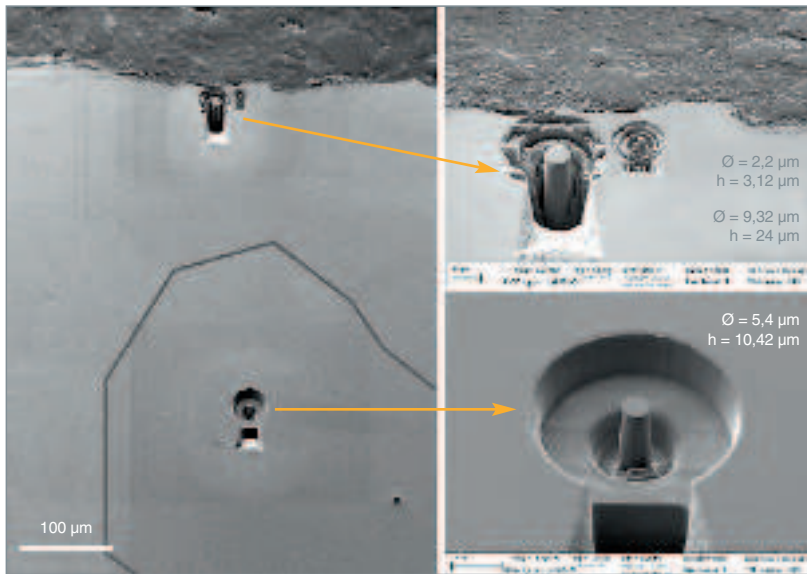


Fig. 87. Essais de compression des micro-piliers (d'après TUMBAJOY-SPINEL, 2014).

microscopique, les mécanismes de déformation sous irradiation restent encore mal connus. De nombreux mécanismes de fluage d'irradiation ont été envisagés du point de vue théorique, mais les données expérimentales existantes n'ont pu, pour l'heure, déterminer le mécanisme pertinent contrôlant la déformation. Une contribution à la compréhension des mécanismes de fluage d'irradiation des métaux et alliages est en cours de réalisation avec la mise en œuvre de méthodes expérimentales impliquant des échantillons minces. Les matériaux étudiés seront des alliages modèles, de cuivre notamment, déposés sous forme de couche mince. Le système comprend un actuateur avec des contraintes internes en tension, le matériau à étudier sous forme d'un film, et une couche sacrificielle. Lorsque cette dernière est retirée, l'actuateur se contracte sous l'effet du relâchement des contraintes internes en tension et permet la mise sous contrainte du film métallique (fig. 88). Cette méthode s'appuie sur la technologie MEMS (*Micro Electro Mechanical System*) lab-on-chip déve-

loppée par des équipes de l'université catholique de Louvain. Le couplage des irradiations aux ions et de la technologie MEMS permettra d'étudier le fluage d'irradiation et de déterminer quel mécanisme est actif sous différentes conditions d'irradiation.

### Les essais de traction miniaturisés « Mini-MécaSiC »

Les composites SiCf/SiC [9] à haute performance sont envisagés en tant que matériaux de structure et de gainage du combustible des réacteurs à neutrons rapides. Leur comportement mécanique complexe est actuellement étudié sur la base d'une approche multi-échelles, consistant à caractériser le comportement des différents consti-

tants du composite avant implémentation dans un code de calcul. Bien que les comportements mécanique et thermique post-irradiatoires du SiC aient fait l'objet de nombreux travaux, il n'existait pas de donnée de caractérisation *in situ* sous irradiation, représentative de l'environnement du cœur de réacteur. Une machine de traction miniaturisée, appelée « Mini-Mécasic », a donc été développée au CEA, afin de permettre la caractérisation du comportement mécanique de fibres de SiC pendant une irradiation aux ions (fig. 89). De par sa conception, cet équipement présente un faible encombrement et a ainsi pu être installé avec succès auprès de l'accélérateur d'ions lourds du GANIL et sur l'installation JANNUS.

Les premiers essais de traction à basse température sous flux ont été réalisés sur la ligne Épiméthée E3 de JANNUS, en utilisant un faisceau d'ions  $C^{3+}$  de 9 MeV ( $8,31 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>), puis  $C^{4+}$  de 12 MeV ( $4,78 \cdot 10^{16}$  et  $10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>). Le dispositif Mini-Mécasic a ensuite été implanté avec succès sur la ligne

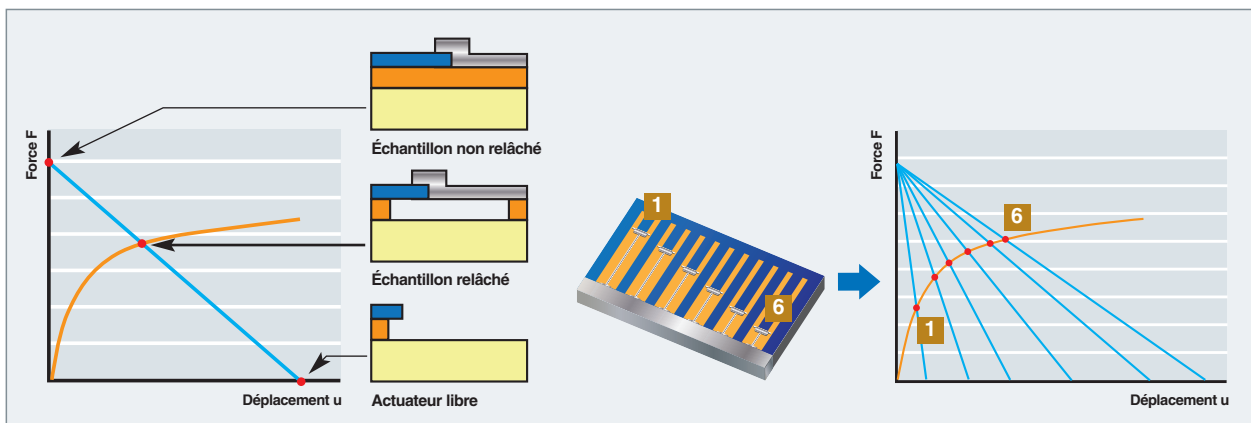


Fig. 88. Principe de réalisation d'essais par micro-machines MEMS (*Micro Electro Mechanical System*).

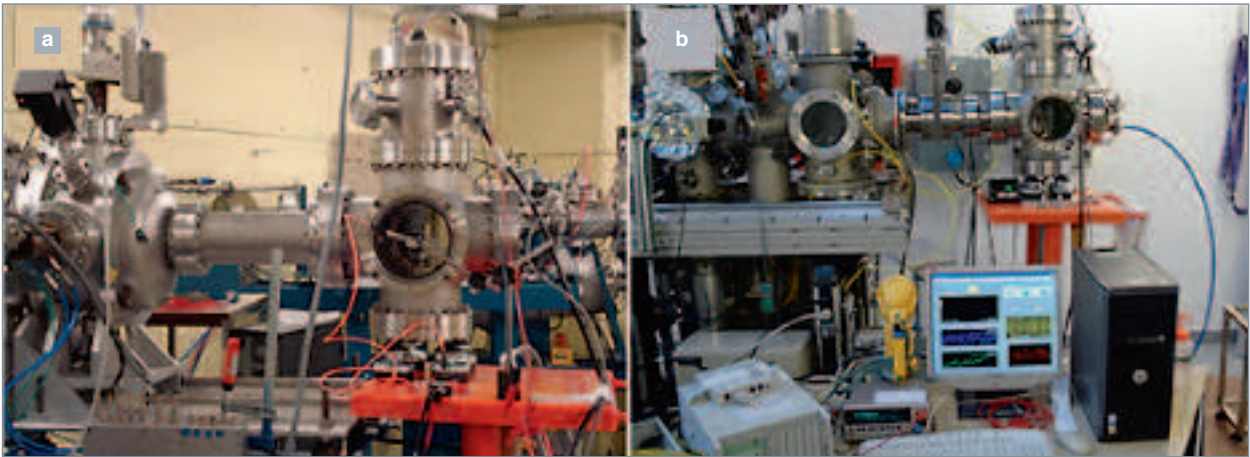


Fig. 89. Implantation de la machine Mini-MecaSiC sur les lignes Épiméthée E3 de l'installation JANNUS Saclay (a) et IRRSUD au GANIL (b).

IRRSUD du GANIL, à Caen. La déformation d'une fibre de SiC sous flux de Xe à 92 MeV a pu être observée en temps réel, jusqu'à une **fluence\*** de  $5.10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup>. Les irradiations réalisées au GANIL et à JANNUS sont complémentaires, en raison du très large éventail d'énergies, et accessibles. De cette façon, il est possible de faire évoluer la nature des endommagements (ratio électronique/nucléaire) et d'étudier leur impact sur les propriétés des matériaux, comme on peut le voir dans la figure 90, en confrontant le fluage thermique au fluage d'irradiation de fibres Tyranno SA3.

Des essais de traction *in situ* ont également été réalisés dans un MEB sur des mini composites SiC/SiC [10]. Ces mini-composites SiC/SiC sont des composites unidirectionnels

« modèles » élaborés à partir de fils de fibres SiC (500 fibres de diamètres  $\sim 12 \mu\text{m}$ ) identiques à ceux utilisés sous forme de tissage ou de tressage dans les composites « réels », dans des conditions d'élaboration similaires. Ces composites ont été sollicités sous MEB afin d'obtenir une description quantitative de l'endommagement non plus uniquement à l'échelle du comportement macroscopique mais aussi des mécanismes de fissuration. Ainsi, la cinétique d'apparition des fissures de la matrice a pu être caractérisée, de même que les ouvertures de ces fissures (fig. 91). En complément de ces observations de surface, un essai *in situ* sous tomographie X (ESRF, ligne ID19) a été mis en place afin d'étudier la propagation de la fissuration de la matrice et pour caractériser la rupture de fibres au cœur du mini-composite. L'ensemble de ces données a pu

être utilisé pour élaborer et valider, à différentes échelles, un modèle micromécanique d'endommagement du mini-composite.

**Christophe POUSSARD,**  
Département des matériaux pour le nucléaire

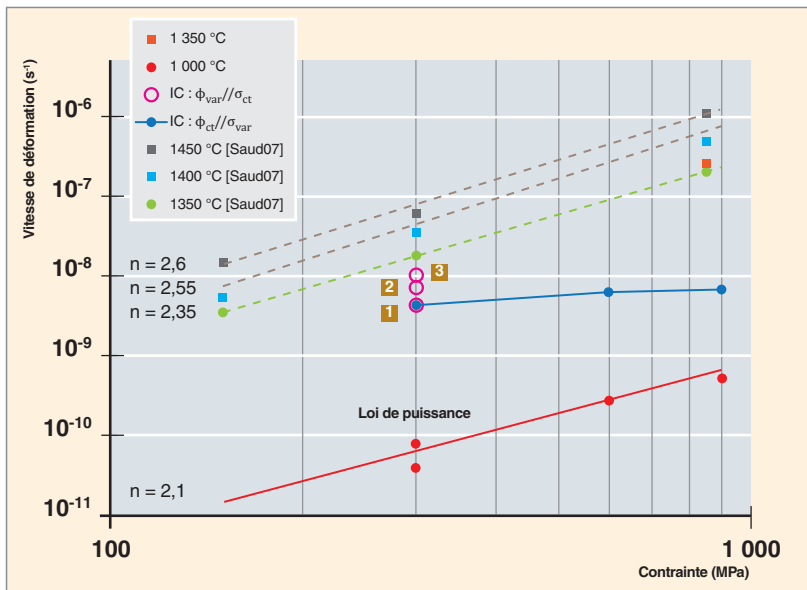


Fig. 90. Fluage thermique et d'irradiation de fibres de carbure de silicium Tyranno SA3. Les chiffres encadrés se rapportent aux conditions de fluage sous irradiation sous une contrainte de 300 MPa avec des ions Xe de 92 MeV sous un flux (1) de  $10^9$ , (2) de  $5 \times 10^9$ , et (3) de  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>

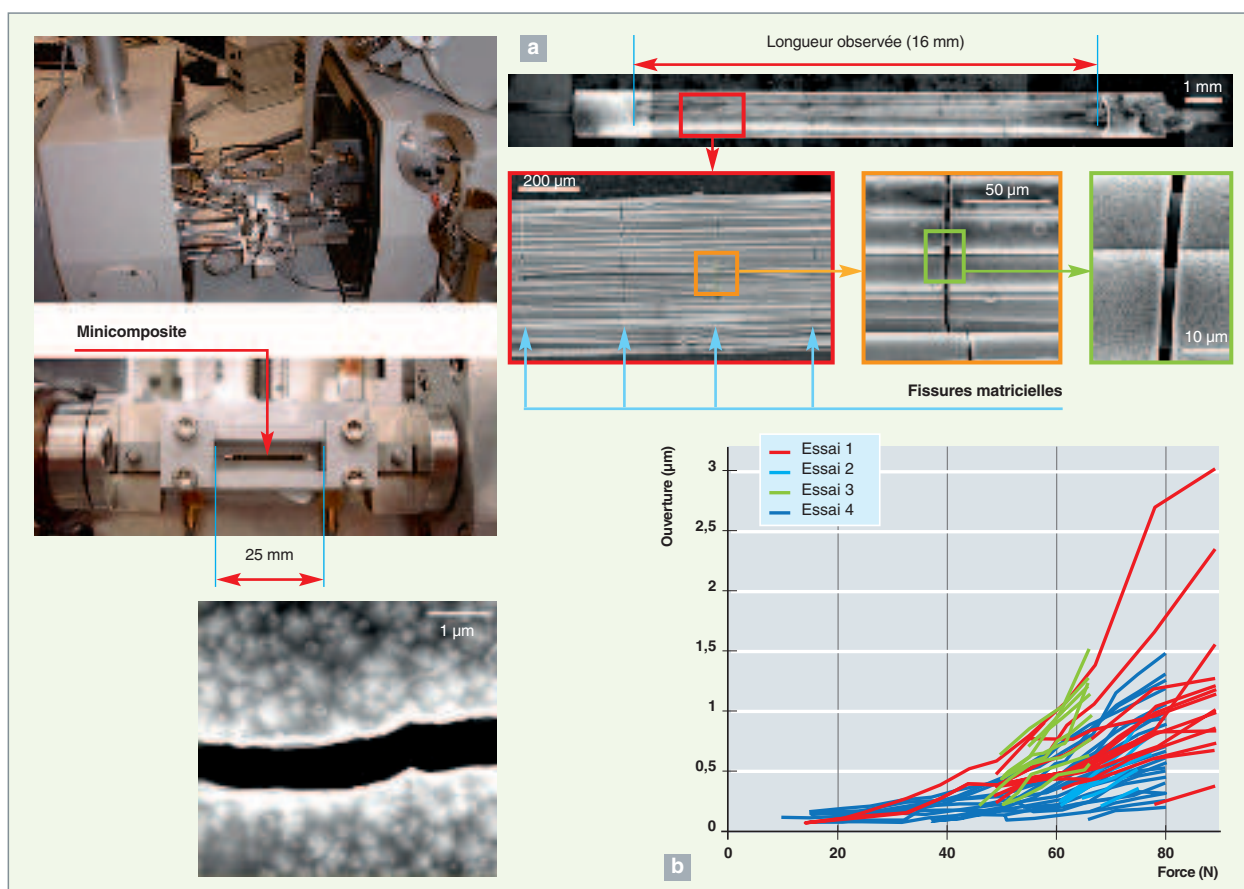


Fig. 91. : Essais de traction *in situ* dans un microscope électronique à balayage sur mini-composite SiC/SiC ; (a) dispositif et mini-composite étudié ; (b) évolution des ouvertures de fissure de la matrice, en fonction du chargement appliqué.

## ► Références

- [1] C. POUSSARD, C. SAINTE CATHERINE, P. FORGET and B. MARINI, « On the Identification of Critical Damage Mechanisms Parameters to Predict the Behavior of Charpy Specimens on the Upper Shelf », *Predictive Material Modeling: Combining Fundamental Physics Understanding, Computational Methods and Empirically Observed Behavior*, ASTM STP 1429, M. T. Kirk and M. Erickson Natishan, Eds., American Society for Testing Materials, West Conshohocken, PA, 2003.
- [2] J. HURE, C. VAILLE, P. WIDENT, D. MOINEREAU, C. LANDRON, S. CHAPULIOT, C. BENHAMOU and B. TANGUY, « Warm Pre Stress effect on highly irradiated Reactor Pressure Vessel Steel », *Journal of Nuclear Materials* (2014), pp. 1-22.
- [3] A. PARROT, A. DAHL, G. CHAS, F. CLÉMENDOT et B. TANGUY, « Evaluation of fracture toughness from instrumented Charpy impact tests for a Reactor Pressure Vessel steel using local approach to fracture : an application to the French surveillance program », *Proceedings of Fontevraud 7*, 26-20 september, 2010, France.
- [4] B. TANGUY, A. PARROT, F. CLÉMENDOT and G. CHAS, « Assessment of pressure vessel steel irradiation embrittlement up to 40 years using local approach to fracture modelling. Application to the French surveillance program », *Proceedings of the ASME 2011 Pressure Vessels and Piping Division Conference, PVP-2011*, July 17-21, Baltimore, Maryland, USA, 2011.
- [5] C. SAINTE CATHERINE, S. ROSINSKI, J. FOULDS, M. WU and M. MESSIER, « Small Punch Test (SPT): EPRI-CEA Finite Element Simulation Benchmark and Inverse Method for the Determination of Elastic Plastic Behavior », *ASTM 4th Symposium on Small Specimens Test techniques*, Reno, USA, 21-23 January, 2001.
- [6] B. BOURDILIAU, G-M. DECROIX, X. AVERTY, P. WIDENT and Y. BIENVENU, « Comparative study on Charpy specimen reconstitution techniques », *Nuclear Engineering and Design*, **241** (2011), pp. 2722-2731.
- [7] D. TUMBAJOY-SPINEL, « Mesure du gradient des propriétés mécaniques des zones hyper-déformées à partir des essais de nano-indentation et micro-compression de piliers », La complexité pour demain, Journées scientifiques de l'université de Lyon, 5 novembre 2014.
- [8] J. HUGUET-GARCIA, A. JANKOWIAK, S. MIRO, T. VANDENBERGHE, C. GRYGIEL, I. MONNET and J.-M. COSTANTINI, « *In situ* characterization of ion-irradiation enhanced creep of third generation Tyranno SA3 SiC fibers » *Journal of Materials Research* (2015), doi:10.1557/jmr.2014.412.
- [9] C. CHATEAU, L. GÉLÉBART, M. BORNERT, J. CRÉPIN, D. CALDEMAISON, and C. SAUDER, « Modeling of damage in unidirectional ceramic matrix composites and multi-scale experimental validation on third generation SiC/SiC minicomposites », *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **63** [0] (2014), pp. 298-319.

[10] C. CHATEAU, L. GÉLÉBART, M. BORNERT, J. CRÉPIN, E. BOLLER, C. SAUDER and W. LUDWIG, « *In situ* x-ray microtomography characterization of damage in SiCf/SiC minicomposites », *Composites Science and Technology*, **71** [6] (April 2011), pp. 916-924.

### ► Bibliographie

PINEAU (A.), TANGUY (B.), « Advances in cleavage fracture modelling in steels : micromechanical numerical and multiscale aspects », *C.R. Physique*, 2010.

SAINTE CATHERINE (C.), POUSSARD (C.), VODINH (J.), SCHILL (R.), HOURDEQUIN (N.), GALON (P.) and FORGET (P.), « Finite Element Simulations and Empirical Correlation for Charpy-V and Subsize Charpy Tests on an Unirradiated Low-Alloy RPV Ferritic Steel », *Small Specimen Test Techniques: Fourth Volume, ASTM STP 1418*, M. A. Sokolov, J. D. Landes, and G.E. Lucas, Eds, American Society for Testing Materials, West Conshohocken, PA, 2002.

SAINTE CATHERINE (C.), POUSSARD (C.), SCHILL (R.) and FORGET (P.), « Comparison of Charpy-V and Sub-size Charpy Test Results on an Un-irradiated and Low Alloy RPV Steel », From Charpy to Present Impact Testing: Proceeding of the Charpy Centenary Conference, 2-5 October; Poitiers, France, 2001.

SAINTE CATHERINE (C.), ROSINSKI (S.), FOULDS (J.), WU (M.) and MESSIER (J.), « Comparison of Charpy-V and Small Punch Transition region Fracture Behaviour for an Un-irradiated 16MND5 forging Material », CCC 2001 - Charpy Centenary Conference, Poitiers, October 2001, France.

TANGUY (B.), BOUCHET (C.), BUGAT (S.) and BESSON (J.), « Local approach to fracture based prediction of the  $\Delta T_{56J}$  and  $\Delta T_{KLc,100}$  shifts due to irradiation for an A508 pressure vessel steel », *Engineering Fracture Mechanics*, **73** (2006), pp. 191-206.



## Les réacteurs expérimentaux et les essais en pile

Les outils d'irradiation aux particules chargées permettent d'irradier de petits échantillons de façon parfaitement maîtrisée, donc d'observer et de quantifier les évolutions de leur microstructure, et ce de manière accélérée par rapport à l'irradiation neutronique telle qu'elle est présente en réacteur électrogène.

Cependant, la transposition à l'irradiation neutronique n'est pas immédiate, et une autre famille d'outils de validation expérimentale est ainsi couramment utilisée, en particulier pour les études en soutien aux industriels du nucléaire : il s'agit des réacteurs d'irradiations technologiques pour l'étude de la tenue sous irradiation des combustibles et matériaux (**MTR - Material Testing Reactor\***).

Les expériences menées en MTR sont, en général, des expériences longues et coûteuses, destinées à valider la modélisation ou à tester de nouvelles nuances industrielles dans des conditions les plus représentatives de la filière concernée et du phénomène étudié.

### Les principaux enjeux des expérimentations sous flux neutronique

Les deux principaux moyens pour augmenter le retour sur investissement des réacteurs électrogènes sont, d'une part, l'augmentation de leur durée de vie (prévue initialement d'une quarantaine d'années), et, d'autre part, l'optimisation de la gestion des assemblages combustibles (l'assemblage combustible constituant environ 25 % du coût du kWh), le tout en démontrant que la sûreté est préservée.

L'augmentation de la durée de vie nécessite une bonne connaissance des mécanismes de vieillissement des composants en conditions de service, et tout particulièrement pour les composants réputés non (ou difficilement) remplaçables, comme la cuve et les internes. Certains mécanismes de vieillissement des composants d'un réacteur (fatigue, corrosion sous contrainte) ne sont pas réservés au nucléaire. D'autres, comme le gonflement et la fragilisation, sont provoqués par l'irradiation neutronique. En outre, il peut exister une synergie entre les mécanismes classiques du vieillissement et l'irradiation (corrosion sous contrainte accélérée par l'irradiation).

L'optimisation de la gestion de l'assemblage combustible passe, quant à elle, par l'étude de la stabilité dimensionnelle sous flux des matériaux de gainage (croissance sous flux, fluage d'irradiation) et la bonne tenue mécanique du gainage en conditions nominales, incidentelles ou accidentelles.

Les réacteurs de recherche sur les matériaux ont donc été conçus afin de tester le comportement sous flux neutronique des matériaux, en fournissant l'environnement neutronique le plus représentatif des filières concernées. Des dispositifs plus ou moins évolués (du simple emplacement dans lequel se place un échantillon à la boucle qui permet de contrôler le milieu et le chargement thermomécanique) installés dans ces réacteurs permettent d'étudier, quant à eux, les mécanismes spécifiques d'endommagement.

### Les réacteurs de recherche sur les matériaux dans le monde

En 2012, l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) recense soixante-dix réacteurs dédiés aux irradiations de matériaux, distribués sur vingt-huit états membres, toutes puissances confondues (fig. 92) [voir aussi la monographie DEN intitulée « Les Réacteurs nucléaires expérimentaux », 2012]. Ce nombre se réduit à une quarantaine en ne considérant que les réacteurs d'une puissance supérieure à 5 MW (pour comparaison, le réacteur **OSIRIS\*** a une puissance de 70 MW).

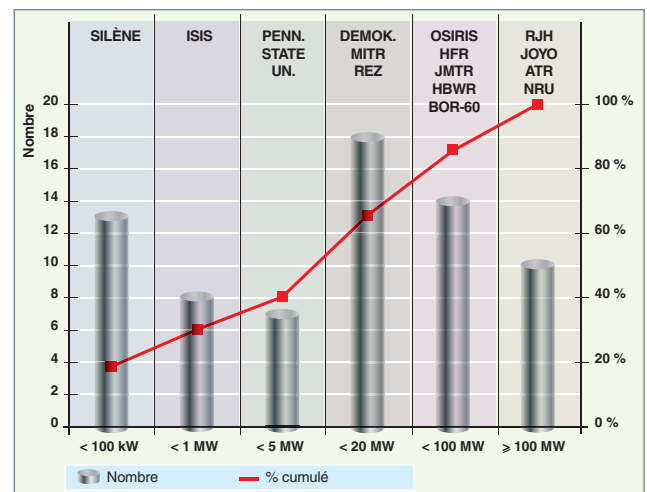


Fig. 92. Répartition en puissance des soixante-dix réacteurs de recherche utilisables pour des irradiations matériaux (au sens large) recensés par l'AIEA (source : *Reactor Research Data Base*, AIEA).

Tout comme les réacteurs électrogènes, les réacteurs de recherche peuvent être de types et de conceptions différents. Les quelques réacteurs de recherche fournissant des spectres rapides (Bor-60, JOYO) sont de conception relativement similaire (refroidis au sodium par convection forcée). En revanche, les autres réacteurs peuvent différer suivant la nature du modérateur et du réfrigérant employé (eau légère ou eau lourde), le type de convection (naturelle ou forcée), la nature des éléments combustibles et leur emplacement (piscine ouverte, caisson étanche). L'un des paramètres importants pour les irradiations matériaux est le spectre neutronique fourni par le réacteur, dont on peut donner une représentation scalaire très simplifiée en calculant le rapport entre le flux rapide (neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV, par exemple), et le flux thermique (neutrons d'énergie inférieure à 0,6 eV, par exemple). Pour les réacteurs électrogènes à eau légère, ce ratio est proche de l'unité en cœur. Des valeurs de flux plus élevées, avec toutefois ce même ratio, sont communément utilisées dans les MTR, afin qu'ils soient représentatifs de la filière eau légère, tout en accélérant éventuellement les phénomènes (fig. 93).

Enfin, un réacteur de recherche pour les matériaux se définit aussi par sa capacité expérimentale au sens large, à savoir le nombre et la nature des expérimentations possibles, la qualité du contrôle des paramètres clés de l'irradiation, la possibilité d'effectuer des mesures et examens *in situ* pendant les inter-cycles, etc. De ce point de vue, le futur réacteur **RJH\***, qui sera implanté à Cadarache (fig. 94) se

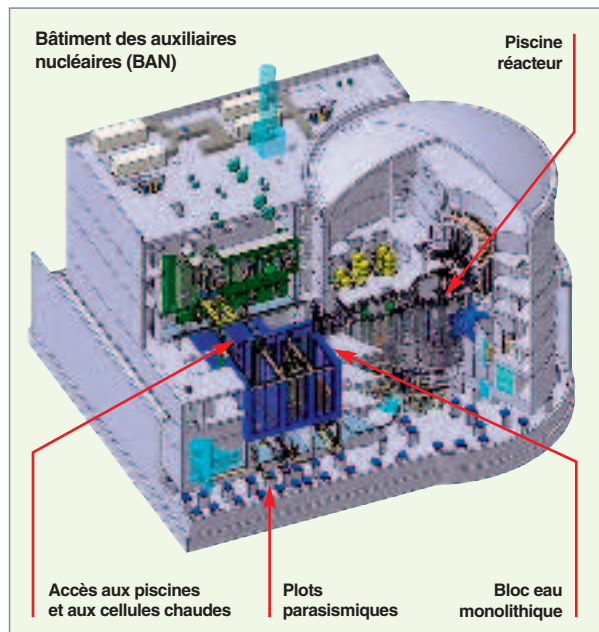


Fig. 94. Le futur Réacteur de recherche Jules Horowitz (RJH). Ce MTR (*Material Testing Reactor*), apportera un renouveau indispensable au parc vieillissant des MTR européens (en 2014, cinq des six principaux MTR européens encore en fonctionnement ont plus de 45 ans). Le RJH sera à disposition de la communauté internationale *via* un consortium de centres de recherches et d'industriels ayant participé à son financement.

placera comme un acteur majeur des études sur le vieillissement sous irradiation des matériaux de structure pour les quelques décennies à venir.

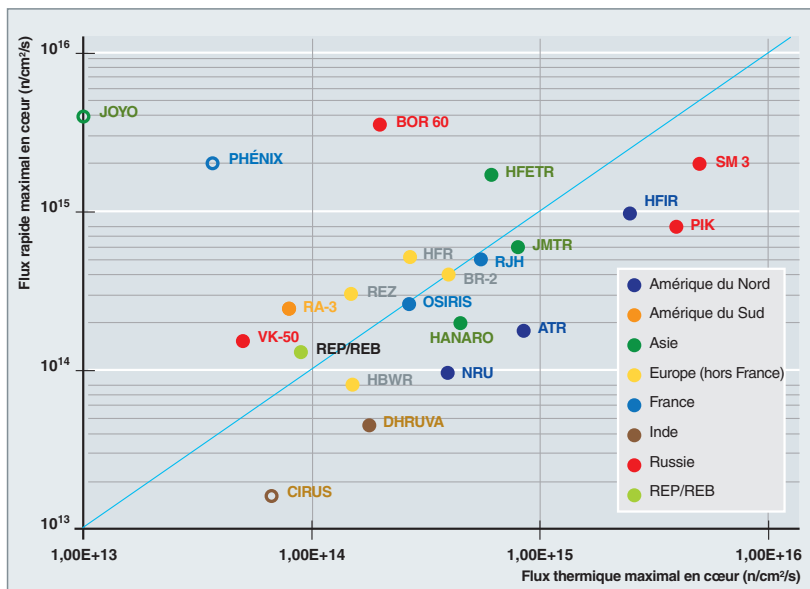


Fig. 93. Rapport de flux rapide sur thermique des principaux réacteurs de recherche utilisés pour les irradiations de matériaux dans le monde, ayant une puissance significative (> 1 MW) (source : *Reactor Research Data Base*, AIEA). Actuellement, une quarantaine de réacteurs de ce type sont recensés comme étant en fonctionnement dans le monde. Une dizaine est à l'arrêt définitif ou en attente d'autorisation de redémarrage (symboles évidés) et deux sont en construction (PIK en Russie et RJH en France). Les valeurs maximales de flux doivent être prises qualitativement.

## Les différents types d'irradiation de matériaux

Les irradiations de matériaux peuvent se classer en plusieurs familles : les irradiations dites « de cuisson », suivies de caractérisations après irradiation ou effectuées pendant les intercycles, et les irradiations à chargement contrôlé (et quelquefois même milieu contrôlé), bénéficiant de mesures *in situ*.

### Les irradiations dites « de cuisson »

Les irradiations de cuisson les plus simples consistent à irradier des échantillons sans autre sollicitation que celle due au milieu (température, flux neutronique), afin de quantifier par des examens hors flux en **cellules blindées\*** l'évolution de caractéristiques physiques ou mécaniques des matériaux.

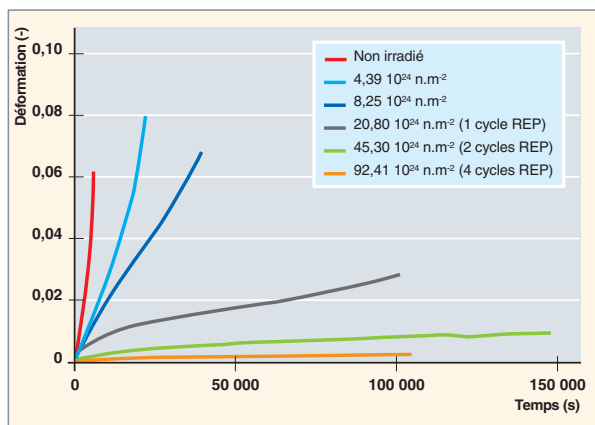


Fig. 95. Illustration du durcissement des matériaux par l'irradiation. Le comportement hors irradiation (ici, le fluage thermique d'un alliage de zirconium) est différent selon la fluence neutronique (flux neutronique intégré sur le temps) absorbée par le matériau. L'irradiation a créé des défauts dans la microstructure cristalline (boucles de dislocations) qui agissent comme des obstacles vis-à-vis des mécanismes de déformation hors flux ultérieurs. Toutes choses égales par ailleurs, le matériau vieilli sous irradiation se déforme moins facilement que le matériau initial.

Ce type d'irradiation est très largement utilisé, que ce soit pour étudier les évolutions des propriétés mécaniques des matériaux (fragilisation de l'acier de cuve, évolution des propriétés viscoplastiques des alliages de zirconium constituant le gainage (fig. 95) ou encore leur évolution dimensionnelle en l'absence de sollicitation mécanique (grandissement sous flux des alliages de zirconium, gonflement des aciers inoxydables des internes).

Des irradiations de cuisson plus évoluées consistent à placer dans des porte-échantillons des échantillons judicieusement conçus pour être sollicités mécaniquement sans contrôle exté-

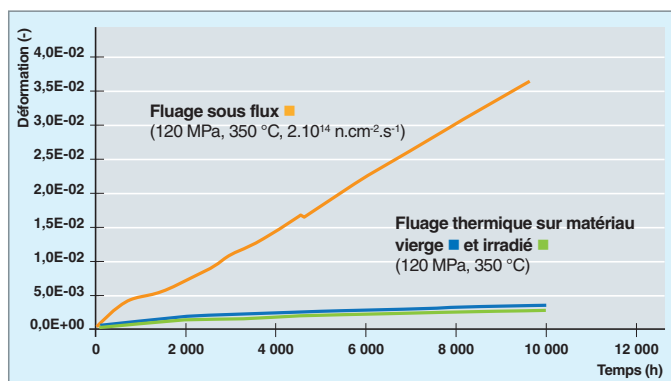


Fig. 96. Illustration de l'existence de mécanismes spécifiques de déformation viscoplastique sous flux neutronique. Toutes choses égales par ailleurs, la déformation viscoplastique (ici due à une sollicitation de fluage) observée sur un alliage de zirconium est beaucoup plus importante en présence d'un flux neutronique. Cela n'est pas un simple effet de l'irradiation, mais celui d'une synergie entre un mécanisme de déformation classique (montée des dislocations) et le flux neutronique qui le favorise.

rieur du chargement (par exemple, éprouvettes tubulaires pré-pressurisées de l'irradiation GRIZZLI (fig. 96) destinées à l'étude du fluage d'irradiation, éprouvettes de flexion trois points de l'irradiation REFLET destinées à l'étude de la relaxation sous flux). Ici aussi, la quantification des phénomènes se fait en déchargeant les expériences durant les inter-cycles et en effectuant les examens adaptés (mesures dimensionnelles en cellules chaudes, notamment).

D'une manière générale, les irradiations de cuisson ont été et sont encore très largement utilisées pour les études en support aux industriels du nucléaire, que ce soit sur les matériaux de l'assemblage combustible ou sur ceux de la cuve et de ses internes. À titre d'exemple, le programme BARITON mené en réflecteur d'OSIRIS a permis de valider la courbe de référence de la ténacité du matériau de cuve irradié dans le domaine de la transition ductile/fragile, élément capital dans le cadre des études sur l'augmentation de la durée de vie. La simplicité apparente de ce genre d'irradiation ne doit cependant pas masquer le soin qu'il faut apporter à la conception des dispositifs accueillant les échantillons ainsi qu'à la conduite de l'expérience, afin de maîtriser et mesurer au mieux les paramètres clés (stabilité dans le temps des conditions d'irradiation, estimation précise des paramètres par un placement judicieux des intégrateurs de dose et des thermocouples).

### Les irradiations fortement instrumentées : un besoin croissant pour la modélisation et la simulation du comportement des matériaux sous flux

Si les moyens de validation expérimentale par particules chargées ou les irradiations de cuisson en réacteur ont permis de réaliser des avancées significatives dans la compréhension des phénomènes élémentaires concourant au vieillissement des matériaux sous flux, il existe au moins deux domaines pour lesquels le besoin d'irradiations de matériaux fortement instrumentées en réacteur de recherche sont importants.

Le premier domaine concerne les phénomènes multiphysiques, comme la **corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation\*** qui est responsable de la fissuration intergranulaire de vis de liaison cloison/renfort d'interne. L'IASCC (fig. 97) est le fruit des interactions entre le matériau, le milieu et la contrainte, qui sont complexifiées par les effets de l'irradiation sur le milieu (radiolyse) et le matériau (fluage, ségrégation intergranulaire, gonflement). Certains phénomènes sont étudiés par des expérimentations hors flux sur matériaux vierges ou irradiés, comme les études de corrosion sous contrainte réalisées en cellules blindées sur matériau irradié. Néanmoins, les effets synergiques ainsi que les cinétiques ne pourront s'appréhender que par le biais d'expérimentations sous flux fortement instrumentées, dont la complexité (contrôle du milieu, contrôle du chargement, mesures de déformation, détection de l'amorçage de fissure ou mesures de propagation) ne doit pas masquer le besoin.

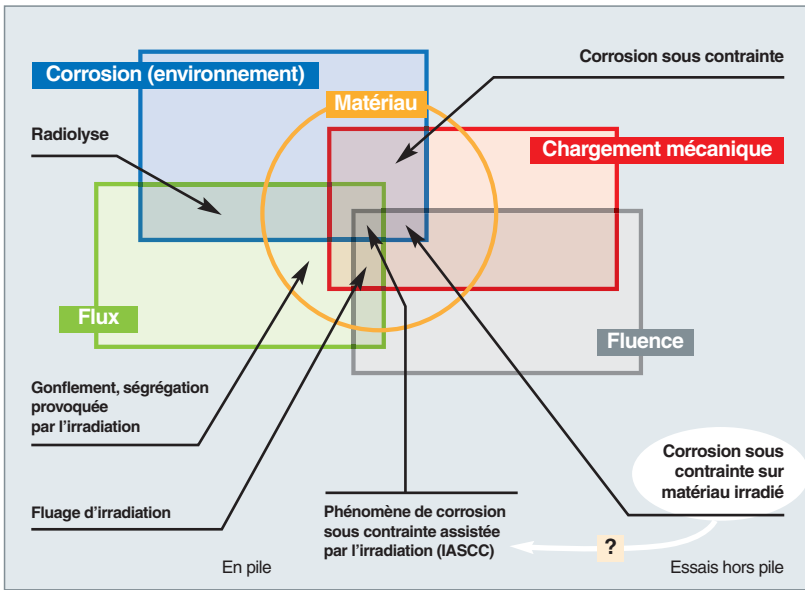


Fig. 97. Illustration schématisant des différents phénomènes entrant en jeu dans la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation des internes de cuve. Si les données obtenues dans les expériences de corrosion sous contrainte effectuées hors flux sur matériaux irradiés sont et resteront indispensables, des expériences en pile fortement instrumentées (contrôle du chargement mécanique des échantillons, mesure du déplacement, suivi de propagation de fissure) sont une des clés pour comprendre le phénomène en incluant les effets synergiques, d'une part, et en quantifiant les cinétiques, d'autre part [1].

L'autre domaine est celui des mécanismes de déformation sous flux, et notamment celui des matériaux de l'assemblage combustible. Les alliages de zirconium ont une structure cristalline de type hexagonale compacte, qui ne présente pas les mêmes propriétés mécaniques suivant les directions de sollicitation (on parle d'« anisotropie »). Associée à un mode d'élaboration qui conduit à des grains dont l'orientation cristalline est préférentiellement orientée suivant certaines directions (on parle de « texture\* »), cette anisotropie cristalline se répercute sur le comportement macroscopique du matériau (fig. 98), et doit être prise en compte dans les modèles de comportement.

Or, dans le cadre de l'optimisation de la gestion des assemblages combustibles, on a besoin de modèles de déformation

sous flux des alliages de zirconium qui soient aussi évolués que possible, afin de pouvoir rendre compte de l'historique complexe du chargement mécanique du point de vue du matériau en service. Ces modèles servent à développer des codes de calculs, que l'on souhaite de plus en plus prédictifs. Ces modèles ne peuvent être déterminés, et les codes associés qualifiés, qu'au moyen d'expérimentations sous flux permettant de modifier, en cours d'expérimentation, les conditions expérimentales (température, chargement mécanique) et de mesurer précisément la réponse du matériau. C'est l'objectif qui est fixé pour le dispositif MÉLODIE (fig. 99), développé conjointement par le CEA et VTT (membre du consortium RJH), dont l'objectif est d'obtenir des cinétiques précises de déformation sous flux dans des conditions de **trajet de chargement\*** complexe.

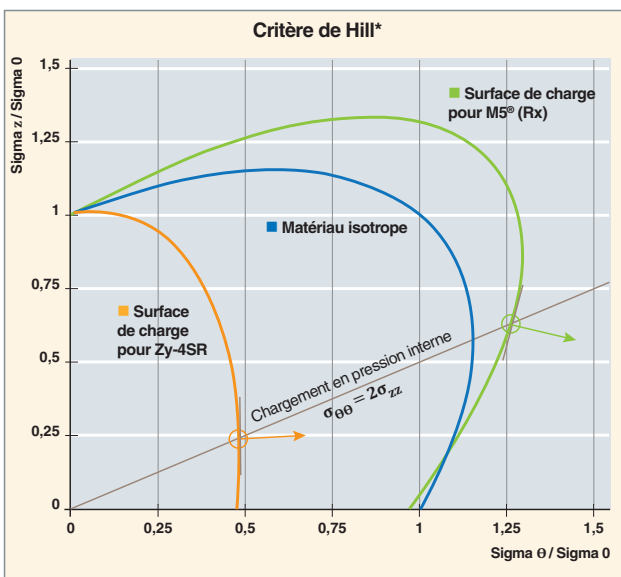


Fig. 98. Illustration de l'anisotropie de matériaux. **Surfaces de charge\*** hors flux de différents alliages réels (Zy-4, en orange, et M5<sup>o</sup>, en vert) et comparaison avec un matériau isotrope (en bleu). Pour le chargement mécanique de pressurisation interne d'une gaine de crayon combustible, matérialisé par la ligne droite grise, la contrainte appliquée dans la direction  $\theta$  est le double de celle appliquée dans la direction Z. La réponse du matériau dans la direction  $\theta$  est fournie par la composante 1 de la normale de la surface de charge à son intersection avec le **trajet de chargement\***. Suivant l'anisotropie des matériaux, la réponse dans la direction Z (composante 2 de la normale) pourra être soit nulle (matériau isotrope), soit légèrement positive (exemple de l'alliage Zy-4), soit largement négative (alliage M5<sup>o</sup>). Afin d'être prédictifs dans toutes les situations de chargement, les modèles de comportement doivent prendre en compte l'anisotropie des matériaux. Actuellement, l'anisotropie de comportement sous flux des alliages de zirconium n'est accessible avec certitude que pour le chargement de pression interne et le chargement axial. Pour les matériaux anisotropes, en l'absence d'hypothèses très fortes sur la forme de la surface de charge, c'est insuffisant pour prédire avec efficacité la réponse du matériau dans d'autres conditions de sollicitation.



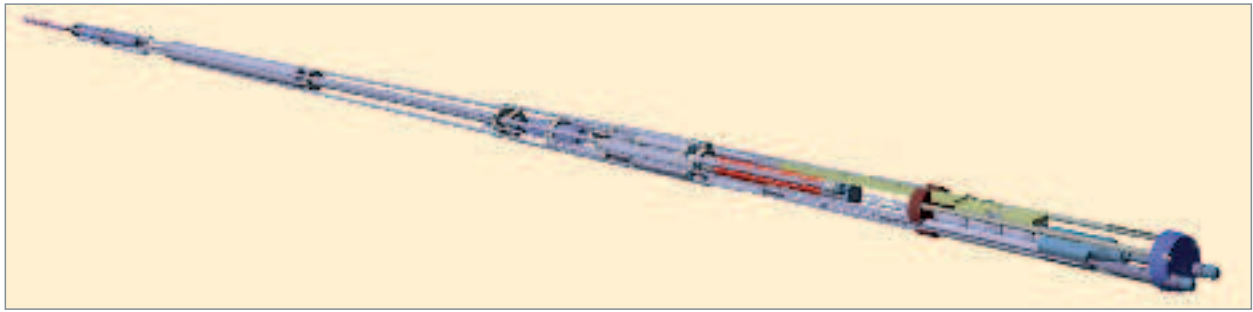


Fig. 99. Le dispositif MÉLODIE (*MEchanical LOading Device for Irradiation Experiment*), développé conjointement par le CEA et VTT, membre du consortium RJH ou Réacteur Jules Horowitz, permettrait d'accéder à la réponse viscoplastique d'échantillons tubulaires suivant toutes les directions de l'espace des contraintes, en combinant une sollicitation axiale et une sollicitation de pression interne selon un ratio contrôlé. L'évolution possible de ce ratio, en cours d'expérimentation, permettrait d'appliquer un historique de chargement mécanique sous flux, ce qui est indispensable pour tester la manière dont le matériau conserve la mémoire du chargement passé face à une sollicitation donnée. En outre, la mesure *in situ* des déformations diamétrales et circonférentielles permettrait d'accéder aux cinétiques dans les parties transitoires du chargement, ce qui ouvre la voie à une bonne description du fluage primaire sous flux, difficilement accessible dans des expérimentations ne mettant en œuvre que des mesures intercycles.

Outre cet apport prédictif utile à l'industriel pour une gestion optimisée de l'assemblage combustible, l'irradiation MÉLODIE, utilisée conjointement avec d'autres moyens d'études disponibles ou en cours de développement (expériences de cuisson sur échantillons à biaxialité initiale paramétrable, machines de sollicitation biaxée en laboratoires froid et chauds (fig. 100), permettrait de faire des avancées significatives sur la connais-

sance des mécanismes microscopiques responsables de la déformation sous irradiation des alliages de zirconium.

En guise de conclusion, les réacteurs expérimentaux dédiés aux expériences sur les matériaux (MTR, *Material Testing Reactors*) constituent un outil nécessaire pour répondre aux enjeux importants liés au vieillissement sous irradiation des

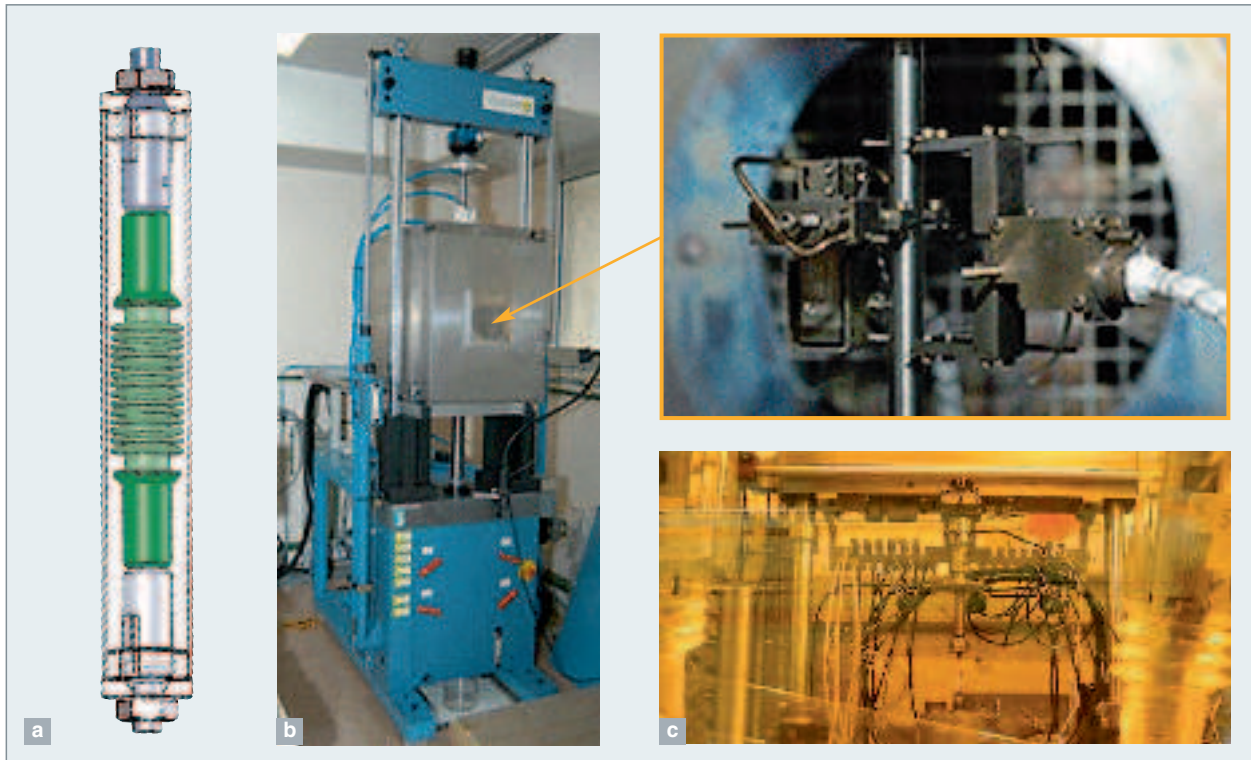


Fig. 100. Moyens expérimentaux complémentaires au dispositif MÉLODIE, dédiés à l'étude de l'anisotropie de comportement sous flux des alliages de zirconium. a) Éprouvettes de fluage en pression interne avec taux de biaxialité initial paramétrable SARAH (*Sample for Advanced Research on Anisotropy and Hoop behaviour*), développées au CEA en vue d'utilisation sous flux ou hors flux. Machine de sollicitation biaxée traction-pression interne en labo froid (b) ou chaud (c).

matériaux de réacteurs de puissance (matériau de cuve, internes, gainage). Les expériences d'irradiations neutroniques qui y sont menées doivent être aussi représentatives que possible des sollicitations thermomécaniques et environnementales rencontrées.

Deux grandes familles d'irradiations expérimentales se dégagent : les expérimentations dites « de *screening* » visant à maximiser la charge expérimentale, dans des conditions d'irradiations fixées les plus stables possibles, et les irradiations « fortement instrumentées », visant à contrôler et modifier les conditions expérimentales en cours d'expérience (en général, uniquement le chargement thermo-mécanique), et à mesurer en ligne la réponse du matériau.

Si la première famille reste indispensable dans une démarche de choix de matériaux et d'acquisition de données de base en conditions représentatives, les irradiations fortement instrumentées sont quant à elles la clé pour valider les modèles de plus en plus évolués et prédictifs d'évolution des matériaux en réacteurs de puissance.

Cependant, leur nombre reste limité en raison de l'environnement très contraint que constitue un MTR, qui est un défi pour les concepteurs d'expériences d'irradiation.

**Sébastien CARASSOU, Pascal YVON**

**et Benoît TANGUY,**

*Département des matériaux pour le nucléaire*

#### ► Références

[1] D. FÉRON, E. HERMS et B. TANGUY, « Behavior of stainless steels in pressurized water reactor primary circuits », *Journal of Nuclear Materials*, **427** (2012), pp. 364-377.

## Les outils d'irradiation par particules chargées

### L'irradiation aux ions

Les faisceaux d'ions positifs accélérés à une énergie de quelques MeV constituent depuis presque un demi-siècle un outil expérimental permettant de produire et de caractériser le dommage causé par irradiation dans la matière condensée. Les transferts d'énergie de ces projectiles au milieu cible, qui obéissent soit à des processus purement inélastiques – les collisions avec les électrons des cortèges des atomes –, soit purement élastiques – les chocs balistiques avec les noyaux des atomes –, provoquent une évolution de la microstructure du matériau irradié. Les faisceaux d'ions peuvent être également utilisés pour implanter dans le matériau un élément étranger, de manière à modifier sa composition chimique, voire à influencer certaines de ses propriétés thermomécaniques ou physiques. Contrairement aux photons *gamma* et aux neutrons, l'échantillon bombardé ne présente aucune activation à l'issue de l'irradiation, ce qui autorise sa caractérisation immédiate.

La spécificité des faisceaux d'ions dans l'étude de l'endommagement des matériaux réside dans le fait que l'expérimentateur peut faire varier de manière indépendante un très grand nombre de paramètres : le numéro atomique, la masse et l'énergie de l'ion incident, le flux, la fluence, la température, le niveau de contrainte imposée à l'échantillon. Cette singularité confère aux faisceaux d'ions positifs un atout indéniable dans le domaine de l'étude du comportement sous irradiation des matériaux envisagés pour les nouvelles sources d'énergie et, en particulier, ceux destinés aux réacteurs nucléaires du futur, y compris pour la fusion. En effet, le principal obstacle à franchir dans le développement d'un nouveau matériau nucléaire est lié à la possibilité d'évaluer sa tolérance à l'irradiation neutronique. Ce test implique alors son irradiation dans un réacteur expérimental sur un intervalle de temps très long, compte tenu des faibles flux accessibles dans ce type de machine. À cela, il faut ajouter le coût d'une telle irradiation, le recours obligatoire à des outils d'analyse nucléarisés, ainsi que la nécessité, le plus souvent, de différer la caractérisation, eu égard à l'activité induite.

Les premiers exemples de simulation expérimentale des effets de l'irradiation neutronique par le biais de faisceaux d'ions accélérés ont été publiés il y a environ trente ans [1, 4]. Les concepts fondamentaux de cette approche ont été définis de manière complète en 1994 [5] et des normes internationales ont été formulées, dès 1996, par l'*American Society for Testing and Material* [6]. Les bases du principe de l'émulation des

effets des neutrons grâce à l'emploi d'un faisceau de protons ont été proposées, il y a dix ans [7]. Plusieurs articles de synthèse ont été publiés au cours de ces cinq dernières années [8, 9]. Un *workshop* international intitulé « *Ion Beam Simulation of High Dose Neutron Irradiation* » s'est tenu en mars 2014 à l'université du Michigan (*Ann Harbor*) [10]. Tous les spécialistes réunis à cette occasion sont tombés d'accord sur la nécessité de créer un groupe de travail dont l'objectif serait d'identifier et de formaliser les bonnes pratiques de la simulation des effets de l'irradiation neutronique au moyen de faisceaux d'ions.

L'analogie majeure entre irradiation neutronique et irradiation aux ions dans un domaine d'énergie entre la centaine de keV et la dizaine de MeV tient essentiellement à ce que la génération de cascades de collisions résulte de collisions primaires dans lesquelles les ions, aussi bien que les neutrons, transfèrent une certaine quantité d'énergie cinétique à des noyaux du matériau qui vont à leur tour déclencher une série de collisions. Par ailleurs, la génération d'atomes de gaz (essentiellement hélium et hydrogène), suite aux réactions nucléaires ( $n, \alpha$ ) et ( $n, p$ ), la production de noyaux de transmutation ou d'activation et celle de produits de fission peuvent être simulées par des expériences de multi-irradiation impliquant deux, voire trois faisceaux d'ions simultanément. C'est, par exemple, la vocation de la plateforme de multi-irradiations aux ions **JANNUS\*** en opération depuis 2008 à la DEN Saclay [11, 13] schématisée dans la figure 101.

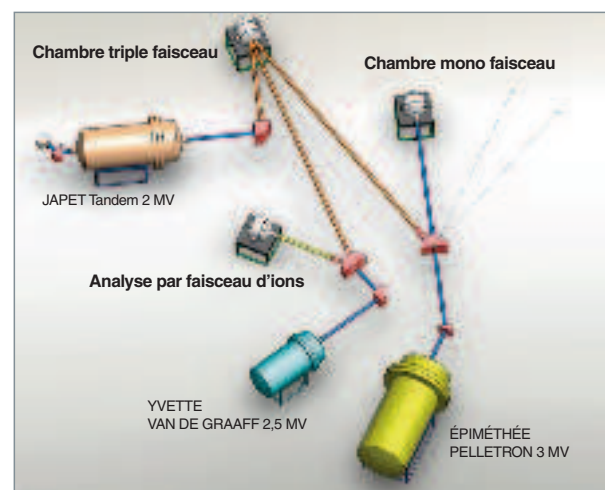


fig. 101. Schéma de la plateforme de multi-irradiations aux ions JANNUS, à Saclay.

La principale limitation de la simulation ion/neutron est liée à la sensibilité des ions aux interactions coulombiennes, ce qui provoque un ralentissement électronique et limite leur parcours, conduisant finalement à un volume endommagé de quelques microns cubes seulement. Le recours à des ions lourds de très grande énergie ( $> \text{MeV/nuc}$ ) produit bien un endommagement homogène sur un plus grand parcours. Il n'est cependant pas plus représentatif, dans la mesure où l'endommagement se produit presque uniquement par perte d'énergie électronique. Une seconde limitation réside dans le fait que l'endommagement provoqué par des ions n'est pas isotrope dans l'espace, mais fortement dirigé. Enfin, les intensités des faisceaux d'ions délivrés par les accélérateurs de particules usuels (simple étage ou tandem, cyclotron) et donc les flux d'ions accessibles sont, en général, nettement plus élevés que ceux issus d'un réacteur. Cet écart de plusieurs ordres de grandeur, certes souhaitable pour accélérer la cinétique d'endommagement (jusqu'à  $10 \text{ dpa}^*/\text{h}$ ), pose le problème d'un éventuel effet de flux et de ses conséquences thermiques (échauffement brutal localisé) et radiatives (recombinaison des défauts). Il est important de noter qu'un processus de redistribution des espèces chimiques présentes dans le matériau irradié, dit « de mélange ionique », peut se manifester. Ce phénomène conduit à la formation de nouvelles espèces chimiques, compte tenu des conditions d'absence d'équilibre thermodynamique imposées au milieu et peut présenter, en outre, un intérêt non négligeable dans le domaine de la modification contrôlée des propriétés des matériaux.

La caractérisation chimique et structurale après irradiation d'un échantillon soumis à des faisceaux d'ions fait appel aux mêmes techniques que celles utilisées après irradiation aux neutrons, à savoir la microscopie électronique en transmission, la diffraction de rayons X, la diffusion de neutrons aux petits angles, la spectroscopie d'annihilation de positons ou la sonde atomique tomographique. À ces outils, viennent s'ajouter des méthodes d'analyse superficielle comme les techniques d'analyse par faisceaux d'ions, la micro-spectrométrie RAMAN. Compte tenu du faible volume endommagé, la caractérisation mécanique des échantillons irradiés aux ions se résume à des mesures de micro- ou de nano-indentation ou à l'évaluation d'éventuelles variations dimensionnelles (élongation, gonflement, courbure de surface).

La simulation expérimentale des effets du bombardement neutronique via l'emploi de faisceaux d'ions positifs accélérés s'est fortement développée dans le domaine des matériaux d'intérêt nucléaire, notamment autour du forum Génération IV centré sur les réacteurs du futur, ainsi que dans le cadre de programmes de recherche internationaux sur la fusion. Elle a permis de mieux comprendre les mécanismes de résistance des matériaux (métaux purs, alliages, céramiques, composites) vis-à-vis de l'irradiation et de sélectionner un certain nombre de matériaux présentant une excellente tolérance chimique, microstructurale et thermomécanique. La figure 102 illustre le caractère représentatif de l'irradiation d'un acier aus-

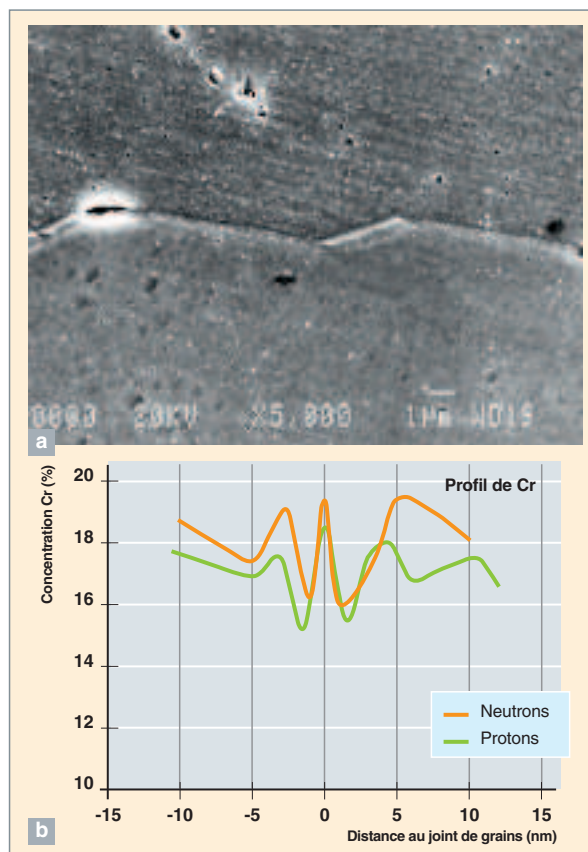


fig. 102. a) Image d'un joint de grains dans un acier austénitique 316. b) Comparaison des profils de ségrégation du chrome au voisinage d'un joint de grains dans un acier austénitique 316 irradié soit par des protons de 3,2 MeV à 360 °C et à hauteur de 1 dpa, soit par des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV à 275 °C pour une dose de  $1,1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ , soit environ 1,4 dpa.

ténitique de type 316 par des protons de 3,2 MeV, en comparaison avec une irradiation aux neutrons. Le phénomène observé résulte d'une ségrégation élémentaire produite sous irradiation au voisinage d'un joint de grains [7].

## Les irradiations aux électrons

Les électrons d'énergie égale ou supérieure à environ 1 MeV, qui peuvent déplacer les atomes dans la plupart des matériaux d'intérêt nucléaire, sont utilisés pour l'étude des effets d'irradiation. De même que dans le cas de l'irradiation avec des ions, l'irradiation avec des électrons présente l'avantage de ne pas rendre radioactifs les échantillons irradiés. De plus les expériences sont réalisées avec un contrôle très précis des paramètres d'irradiation (température, flux, dose atteinte) qui peuvent être modifiés de façon souple, ce qui rend possible des études paramétriques. L'irradiation avec des électrons crée uniquement des défauts isolés (**paires de Frenkel\*** lacune-interstitiel\*) et permet donc des études complémentaires des expériences réalisées avec des ions qui provoquent la formation de cascades de déplacements. En outre, le dommage primaire créé étant parfaitement bien connu, l'irradia-



tion aux électrons est très utile pour déterminer des données d'entrée pour les modèles d'évolution microstructurale sous irradiation et comme technique de validation expérimentale de ces modèles.

Deux types d'appareils sont utilisés pour réaliser des irradiations aux électrons. Tout d'abord, des **accélérateurs\*** de type VAN DE GRAAFF ou Pelletron, tels que l'accélérateur SIRIUS (laboratoire des Solides Irradiés, CEA/DSM/IRAMIS), qui permettent d'irradier des échantillons sur une surface pouvant atteindre plusieurs cm<sup>2</sup> et une épaisseur de plusieurs centaines de microns, ce qui rend accessible l'irradiation de mini-éprouvettes pour essais mécaniques. Le taux de dommage ne peut néanmoins dépasser quelques 10<sup>-9</sup> dpa/s. Les accélérateurs d'électrons ont été utilisés, en particulier, pour l'étude de la formation d'amas de solutés sous irradiation dans les alliages ferritiques, qui est l'un des mécanismes de fragilisation des aciers de cuve des réacteurs à eau. Par exemple, la formation d'une densité élevée d'amas enrichis en atomes de phosphore a été mise en évidence par sonde atomique tomographique (SAT), après irradiation jusqu'à 10<sup>-3</sup> dpa à 300 °C d'un alliage modèle FeCuMnNiP (fig. 103).

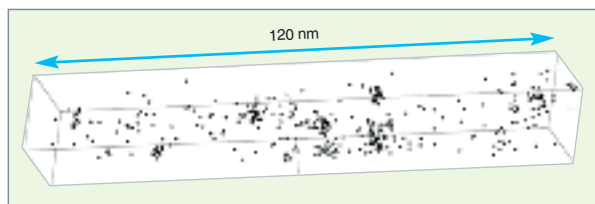


fig. 103. Visualisation en trois dimensions de la distribution des atomes de phosphore, mesurée par la Sonde Atomique Tomographique (SAT), dans un alliage modèle FeCuMnNiP irradié avec des électrons à 300 °C jusqu'à une dose de 10<sup>-3</sup> dpa [14]. Une forte densité de petits amas de phosphore est mise en évidence.

Les microscopes électroniques à très haute tension (THT), dont la tension maximale d'accélération des électrons varie entre 1 et 3 MV, permettent également d'effectuer des irradiations aux électrons. Un microscope fonctionnant jusqu'à 1,2 MV est installé à Saclay (fig. 104). Il s'agit du seul THT en fonctionnement en Europe.

Les échantillons utilisés pour les irradiations sont principalement des lames minces de microscopie électronique en transmission. Les zones irradiées ont une épaisseur maximale de quelques centaines de nanomètres. Un taux de création de défauts élevé (jusqu'à environ 5 10<sup>-3</sup> dpa/s) peut être obtenu en focalisant le faisceau d'électrons.



Fig. 104. Le microscope électronique à très haute tension (THT) du CEA Saclay. Cet appareil permet d'irradier des échantillons avec des électrons d'énergie maximale 1,2 MeV et un taux de création de défauts pouvant atteindre environ 5 10<sup>-3</sup> dpa/s.

L'échantillon est alors irradié sur une surface de quelques microns de diamètre, comme le montre la figure 105 : la zone irradiée, qui contient une grande densité de boucles de dislocations, apparaît comme une zone plus sombre que la matrice. L'expérience illustrée par la figure 102 avait pour but l'étude du phénomène de ségrégation intergranulaire induite sous irradiation dans les aciers austénitiques. La mesure du profil de composition chimique au niveau du joint de grains met en évidence un appauvrissement très localisé en chrome et en fer ainsi qu'un enrichissement en nickel.

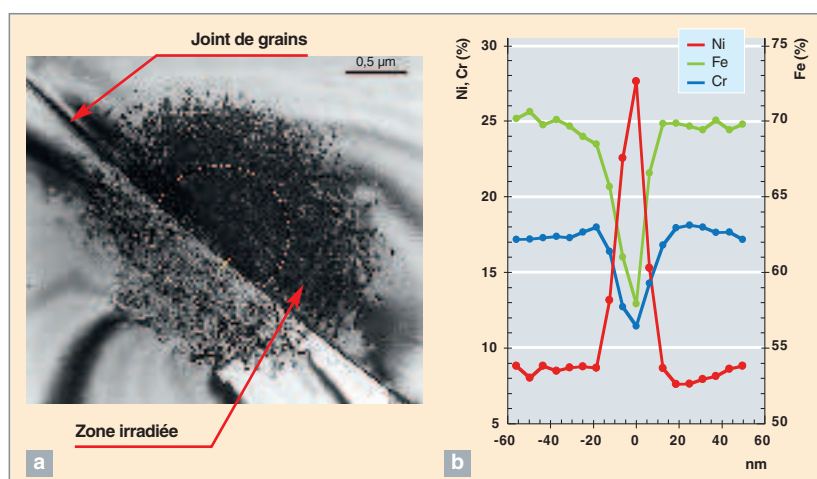


Fig. 105. Acier austénitique 316L irradié avec des électrons de 1 MeV dans le microscope THT du CEA Saclay à 400 °C jusqu'à 5 dpa. La figure 103a montre la zone irradiée qui est centrée sur un joint de grains. Le profil de composition chimique mesuré au voisinage du joint est représenté sur la figure 103b. L'irradiation a produit un phénomène de ségrégation intergranulaire hors d'équilibre qui se caractérise par un enrichissement en nickel et un appauvrissement en chrome et en fer au niveau du joint.

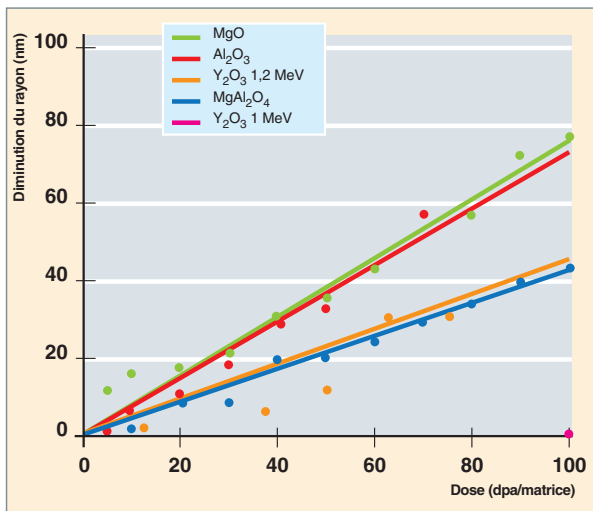


fig. 106. Évolution du rayon de particules d'oxyde (MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) dispersées dans une matrice ferritique en fonction de la dose reçue par la matrice. Les irradiations ont été effectuées à 400 °C dans le microscope THT du CEA Saclay avec des électrons de 1 MeV [2]. Pour le cas particulier de l'oxyde Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, des irradiations avec des électrons de 1,2 MeV ont également été réalisées, car aucune dissolution n'est observée à 1 MeV.

Un microscope THT permet de former l'image du matériau irradié par le faisceau d'électrons et donc de suivre *in situ* l'évolution de la microstructure sous irradiation. MONNET et coll. [15] ont, par exemple, étudié à l'aide du THT du CEA Saclay la stabilité sous irradiation d'un alliage ferritique renforcé par dispersion d'oxydes. L'évolution de différents oxydes a été suivie au cours de l'irradiation, ce qui a permis de mesurer leur cinétique de dissolution. Cette cinétique dépend de la nature de l'oxyde, comme le montre la figure 106.

En particulier, les particules d'oxyde d'yttrium (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) sont stables sous irradiation avec des électrons de 1 MeV et se dissolvent lorsque l'énergie est augmentée à 1,2 MeV, ce qui est dû au fait que les électrons de 1 MeV ont une énergie insuffisante pour déplacer les atomes d'yttrium. Ces expériences montrent, par ailleurs, qu'à dose d'irradiation de la matrice identique, les oxydes Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> se dissolvent moins que Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et MgO.

Des irradiations *in situ* aux électrons ont également été effectuées dans le but de paramétrer des modèles d'évolution microstructurale sous irradiation, de type dynamique d'amas, par exemple. Ainsi, HARDOUIN DUPARC et coll. [16] ont irradié des alliages ferritiques contenant de faibles teneurs en diverses impuretés et ont mesuré, à différentes températures, la vitesse de croissance des amas d'interstitiels, ainsi que l'évolution, en fonction de la dose d'irradiation de la densité de ces amas.

La figure 107 présente les valeurs de densités d'amas interstitiels à l'état stationnaire, mesurées à différentes températures d'irradiation pour du fer pur et pour un alliage FeCu

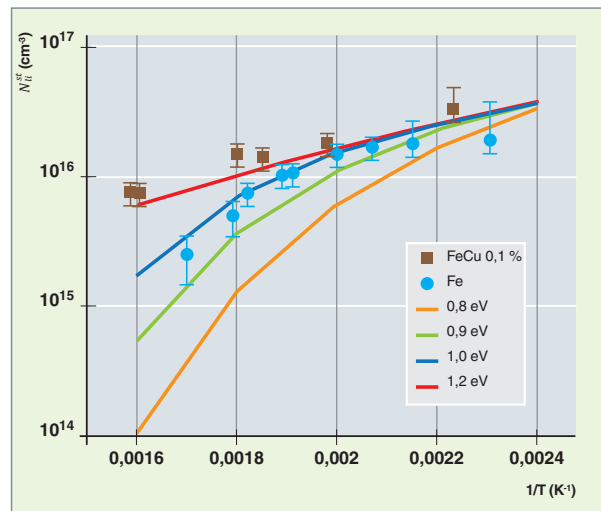


fig. 107. Densité d'amas interstitiels mesurées à l'état stationnaire, dans le cas du fer pur et d'un alliage FeCu contenant 0,08 % at. de cuivre irradiés à différentes températures avec des électrons de 1 MeV dans le microscope THT du CEA Saclay [16]. Les courbes représentées correspondent aux valeurs de densité calculées dans le fer pur à l'aide d'un modèle de dynamique d'amas, pour différentes valeurs de l'énergie de liaison du bi-interstitiel.

contenant 0,08 % at. de cuivre. Les densités calculées par le modèle de dynamique d'amas sont également représentées. La présence de cuivre dans l'alliage stabilise les petits amas d'interstitiels. Le modèle reproduit bien les données expérimentales pour le fer pur et l'alliage FeCu, avec les mêmes valeurs des paramètres du modèle, à l'exception de la valeur de l'énergie de liaison du bi-interstitiel qui est égale à 0,9 eV dans le cas du fer pur et 1,2 eV dans le cas de l'alliage FeCu.

**Patrick TROCELLIER,**

*Département des matériaux pour le nucléaire*

#### ► Références

- [1] R.S. AVERBACK *et al.*, « Correlations between ion and neutron irradiations: Defect production and stage I recovery », *Journal of Nuclear Materials*, **75** (1978), pp. 162-166.
- [2] M.B. LEWIS *et al.*, « Improved techniques for heavy-ion simulation of neutron radiation damage », *Nucl. Instrum. Meth.*, **167** (1979), pp. 233-247.
- [3] J.R. PARSONS *et al.*, « Ion simulation of neutron irradiation growth in annealed polycrystalline Zr », *Journal of Nuclear Materials*, **96** (1981), pp. 169-177.
- [4] H. ULLMAIER, « The simulation of neutron-induced mechanical property changes by light ion bombardment », *Ann. Chim. Fr. Sci. Mat.*, **9** (3) (1984), pp. 263-274.
- [5] C. ABROMEIT, « Aspects of simulation of neutron damage by ion irradiation », *Journal of Nuclear Materials*, **216** (1994), pp. 78-96.

- [6] ASTM International, « Standard practice for neutron radiation damage simulation by charged-particle irradiation », E 521-1996.
- [7] G.S. Was *et al.*, « Emulation of neutron irradiation effects with protons: validation of principle », *Journal of Nuclear Materials*, **300** (2002), pp. 198-216.
- [8] P. HOSEMANN *et al.*, « Studying Radiation Damage in Structural Materials by Using Ion Accelerators », *Reviews of Accelerator Science and Technology*, **4** (2011), pp. 161-182.
- [9] M. FLUSS *et al.*, *Charged-Particle Irradiation for Radiation Damage Studies, Characterization of Materials*, John Wiley & Sons, 2011.
- [10] <http://www.engin.umich.edu/college/about/news/stories/2014/march/workshop>
- [11] Y. SERRUYS *et al.*, « JANNUS: A multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of the atomistic modeling », *Journal of Nuclear Materials*, **386-388** (2009), pp. 967-970.
- [12] P. TROCELLIER *et al.*, « Radiation damage studies of nuclear ceramics using the JANNUS-Saclay triple-ion beam irradiation platform, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, **1298** (2011), pp. 153-166.
- [13] S. PELLEGRINO *et al.*, « The JANNUS Saclay facility: A new platform for materials irradiation, implantation and ion beam analysis », *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **273** (2012), pp. 213-217.
- [14] B. RADIGUET, P. PAREIGE et A. BARBU, «Irradiation induced clustering in low copper or copper free ferritic model alloys », *Nucl. Instrum. Methods B*, **12** (2009), pp. 1496-1499.
- [15] I. MONNET, T. VANDENBERGHE et P. DUBUISSON, « A comparison between different oxide dispersion strengthened ferritic steels ongoing in situ oxide dissolution in High Voltage Electron Microscope », *Journal of Nuclear Materials*, **424** (2012), pp. 204-209.
- [16] A. HARDOUIN DUPARC, C. MOINGEON, N. SMETNIANSKY-DE-GRANDE et A. BARBU, « Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations », *Journal of Nuclear Materials*, **302** (2002), pp. 143-155.

