

Introduction

Dès le début de l'aventure industrielle du nucléaire, s'est imposée la nécessité de développer une **science des matériaux spécifique**, soit pour acquérir la maîtrise de matériaux peu connus (l'uranium, le plutonium, leurs oxydes, nitrures et carbures pour le combustible, ou le zirconium, le magnésium et leurs alliages pour la gaine de l'élément combustible), ou pour maîtriser des phénomènes nouveaux imprévus (depuis le premier qui fut l'« **effet Wigner*** » dans le graphite, jusqu'au gonflement des aciers austénitiques dans les réacteurs à neutrons rapides, vingt-cinq ans plus tard, en passant par la **croissance*** de l'uranium et du zirconium, la diffusion et la plasticité sous irradiation, la **radiolyse*** de l'eau...).

Les matériaux de structure des réacteurs nucléaires, qu'il s'agisse des réacteurs électrogènes actuels de Génération II et III, des réacteurs de Génération IV ou des futurs réacteurs de fusion thermonucléaire contrôlée, sont soumis à des conditions de service sévères : températures élevées, irradiation de neutrons rapides, sollicitations mécaniques, et environnement qui peut être corrosif. Leurs propriétés d'usage se dégradent en service : on parle de vieillissement, lequel limite, *de facto*, la durée de fonctionnement de certains composants avec des conséquences multiples. La gaine de l'élément combustible ou la cuve des réacteurs sont des barrières de sûreté dont l'exploitant doit démontrer l'aptitude au service. Comprendre et prédire au mieux l'évolution des propriétés des matériaux de structure de ces composants sont donc des enjeux cruciaux pour la sûreté de fonctionnement des installations. Cette connaissance permet aussi de proposer de nouveaux matériaux de gaine, dans le but d'allonger la durée de service de l'élément combustible et ainsi d'améliorer le **taux de combustion*** en toute sûreté, enjeu économique considérable. La cuve des réacteurs est non remplaçable : la dégradation des propriétés de l'acier déterminera la fin de fonctionnement de l'installation. Dans le cas de composants remplaçables comme les internes, les tuyauteries et les échangeurs, leur remplacement éventuel affectant la disponibilité des réacteurs, l'enjeu sera essentiellement économique.

On comprend donc l'intérêt crucial de disposer d'une **science des matériaux du nucléaire**. Cette science doit s'appuyer sur une modélisation solide. En effet, on veut garantir le comportement des matériaux sous irradiation sur des durées qui dépassent parfois les durées accessibles à l'expérimentation. Il s'agit aussi d'extrapoler à des conditions d'irradiation nouvelles et parfois inaccessibles, comme celles des réacteurs de fusion, l'évolution des matériaux qui n'est connue que dans

un domaine de conditions à la fois neutroniques et thermiques trop limité. Les matériaux peuvent être soumis en réacteur à des conditions extrêmes, notamment susceptibles d'être atteintes en conditions accidentelles, pour lesquelles l'observation aux échelles spatiales et temporelles pertinentes n'est pas possible. Il s'agit, enfin, de réduire les incertitudes et de mieux justifier les marges de sécurité, initialement établies de façon empirique. Les réacteurs nucléaires sont construits à l'aide de règles conventionnelles, et le vieillissement, comme le comportement mécanique en service et en conditions accidentelles de leurs matériaux, sont classiquement prédits à partir de méthodes empiriques. Toutefois, la démonstration de leurs performances et de leur durée de vie s'appuie de plus en plus sur une démarche fondée sur la physique. La compréhension préalable à la prédiction du comportement mécanique d'un matériau passe par des modélisations physiques à différentes échelles d'espace et de temps, et des méthodes de changements d'échelle. Ce type d'approche est désormais reconnu comme un complément très riche de la démarche empirique.

Prédire le comportement à long terme des matériaux soumis à de tels environnements, concevoir de nouveaux matériaux plus performants impliquent de simuler les phénomènes physiques en jeu. Mener à bien ce projet dont dépendent la sûreté et l'exploitation des réacteurs nécessite de procéder par étapes. Cela suppose, dans un premier temps, d'acquérir une bonne connaissance des caractéristiques des matériaux employés en termes de microstructure, de résistance, de ductilité et de corrosion. Il s'agit, ensuite, d'identifier les modifications qu'induisent les neutrons sur ces matériaux. Une fois les phénomènes physiques identifiés, il convient de les modéliser, d'abord séparément puis tous ensemble, dans le cadre d'une simulation. Enfin, il faut être en mesure de valider toute cette modélisation par des expériences, menées d'abord sur des systèmes simples, puis sur des systèmes aussi représentatifs que possible des conditions réelles d'utilisation.

Dans le contexte français, c'est au CEA qu'est revenue, dès sa création, la charge de développer la science des matériaux du nucléaire, en relation avec l'expertise des meilleurs laboratoires universitaires de métallurgie et de physique du solide, notamment celui dirigé par le Professeur Jacques FRIEDEL (1921-2014). Les avancées faites au CEA et les méthodes de modélisation de l'époque ont été transférées, dans les années 90, à EDF et AREVA qui se les sont appropriées, ce qui leur a permis de se mettre à niveau pour aborder les pro-

Tableau 1.

Matériaux et composants des réacteurs nucléaires

Principaux composants des réacteurs nucléaires de générations II, III, IV et de fusion soumis à l'irradiation des neutrons rapides, leurs matériaux de structures, leurs conditions de service et les propriétés d'usage qui déterminent leur aptitude au service (température exprimée en degrés Celsius, contrainte exprimée en MPa, pression exprimée en bar, dose exprimée en **dpa*** (déplacements par atome), et productions d'hélium et d'hydrogène exprimées en appm/dpa).

blèmes de vieillissement de manière moins empirique. Depuis les années 2000, la modélisation et la science des matériaux pour le nucléaire font l'objet de nombreux développements conduits en commun avec EDF et AREVA, en relation avec l'Université.

Dans cette introduction, le lecteur trouvera une description rapide des matériaux du nucléaire et des composants dont ils forment la structure, les raisons de leur sélection, leurs condi-

Réacteur	Composant - Fonction - Remplaçable	Alliages	Composition chimique État métallurgique	Conditions de service (nominales)
Réacteur à eau sous pression (générations II et III)	Gaine* de combustible	Zircaloy 4	Zr-1,3 %Sn-1 200 ppmO-0,2 %Fe-0,1 %Cr. Détendu	- 320-400 °C - ± 90 MPa - 5 dpa (5 ans)
	- Barrière de sûreté - Consommable	Alliage M5®	Zr-1 %Nb-0,025 %Fe-1250 ppmO Recristallisé	
		Alliage Zirlo	Zr-1 %Nb-1 % Sn-1000 ppmO Détensionné	
	Cuve - Barrière de sûreté - Non remplaçable	Acier faiblement allié	- Fe-Mn-Ni (Cu-P) Bainitique revenu	- 150 bars - 290 °C - 0,2 dpa (à 60 ans)
	Structures internes inférieures - Thermohydraulique - Remplaçable	Acier austénitique	- 304L 18 %Cr-10 %Ni hypertrempe - 316 17Cr-11Ni-2.5 Mo écroui	- 290-380 °C - ~60 dpa (à 60 ans) - ~10 appmHe/dpa
Génération-IV Cas des réacteurs à neutrons rapides, refroidis au sodium	Gaine de combustible - Barrière de sûreté - Consommable	- Acier austénitique	- 15 %Cr/15 %Ni Ti écroui optimisé (AIM-1) - acier austénitique écroui avancé	- 650 °C - 100 MPa (fin de vie) - 150 dpa (4 ans) - ~0,2 appmHe/dpa
		- ODS martensitique - ODS ferritique	- 9-14 %Cr (Y, Ti, O)	- > 650 °C - ~100 MPa (fin de vie) - > 150 dpa - ~0,2 appmHe/dpa
	Tube hexagonal - Segmentation cœur - Thermohydraulique - Consommable	- Acier martensitique	- EM10: 9 %Cr 1 %Mo - acier martensitique avancé (AMA) optimisé - Trempe revenu ou écroui	- 550 °C - ~150 dpa (EM10) - >150 dpa (AMA) - ~0,2 appmHe/dpa
		SiC/SiC	Solution très ambitieuse en cours d'évaluation	
Réacteur de fusion DEMO	Couverture tritigène - Autosuffisance Tritium - Remplaçable	- Acier martensitique - ODS martensitique - ODS ferritique	- 9 %Cr WV à basse activation - 9 %Cr (Y, Ti,O) - 14 % Cr (Y, Ti, O) - Revenu	- T = f (caloporteur) - ~50 dpa - ~10 appmHe/dpa - ~50 appmH/dpa

tions de fonctionnement et les principales manifestations macroscopiques du vieillissement. L'évolution de ces dernières sera explicitée en fonction des conditions de service, en particulier flux et dose neutroniques, température, contrainte mécanique et milieu environnant. Les mécanismes physiques élémentaires qui contrôlent les phénomènes de vieillissement seront succinctement décrits, ainsi que les outils de modélisation, de caractérisation mécanique, microstructurale et physicochimique, et d'irradiation.

Les matériaux du nucléaire

Les alliages métalliques constitutifs des composants des réacteurs nucléaires de fission de générations II, III et IV, et des futurs réacteurs de fusion sont présentés dans le tableau 1 avec leurs conditions d'irradiation et les propriétés critiques dont l'évolution peut conduire à l'inaptitude au service.

Les matériaux utilisés dans les réacteurs à eau sous pression

Les aciers utilisés sont des aciers standards qui ont été sélectionnés sur la base de propriétés assurant à l'état initial une bonne compatibilité physico-chimique et mécanique avec le cahier des charges connu à la fin des années 60 :

- L'acier de cuve est un acier faiblement allié, 16MND5, de structure cristalline cubique centrée, qui, à l'état bainitique revenu, offre un bon compromis entre résistance mécanique et **ténacité***. Un revêtement inoxydable interne pallie sa mauvaise tenue à la corrosion aqueuse. Sous l'effet de l'irradiation des neutrons, la courbe de ténacité se décale vers des températures plus élevées (voir fig. 1). À température donnée, la ténacité baisse donc avec l'irradiation : l'acier se fragilise. La cuve est la deuxième barrière de sûreté du réacteur dont l'exploitant doit démontrer l'intégrité tout au long de la vie du réacteur. Pour cela, la ténacité de l'acier doit rester suffisante pour garantir la stabilité de tout défaut, réel ou postulé, soumis aux divers chargements pris en compte dans les codes de dimensionnement. La cuve est, de plus, un composant non remplaçable : son inaptitude au service signifie la fin de vie du réacteur ;

Propriété déterminante
<ul style="list-style-type: none"> - Croissance* - Fluage* d'irradiation - Corrosion/hydruration - Tenue aux conditions accidentelles
<ul style="list-style-type: none"> - Ténacité*
<ul style="list-style-type: none"> - Ductilité*, ténacité* - Fluage d'irradiation - Fissuration par corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (IASCC) - Gonflement*
<ul style="list-style-type: none"> - Gonflement/fluage d'irradiation - Fluage thermique : ductilité - Corrosion côté combustible - Corrosion côté sodium - Fragilité post-irradiatoire - Retraitabilité - Intégrité mécanique
<ul style="list-style-type: none"> - Gonflement - Ténacité - Intégrité mécanique
<ul style="list-style-type: none"> - Intégrité mécanique - Résistance à l'érosion
<ul style="list-style-type: none"> - Gonflement - Ténacité - Corrosion (caloporteur eau)

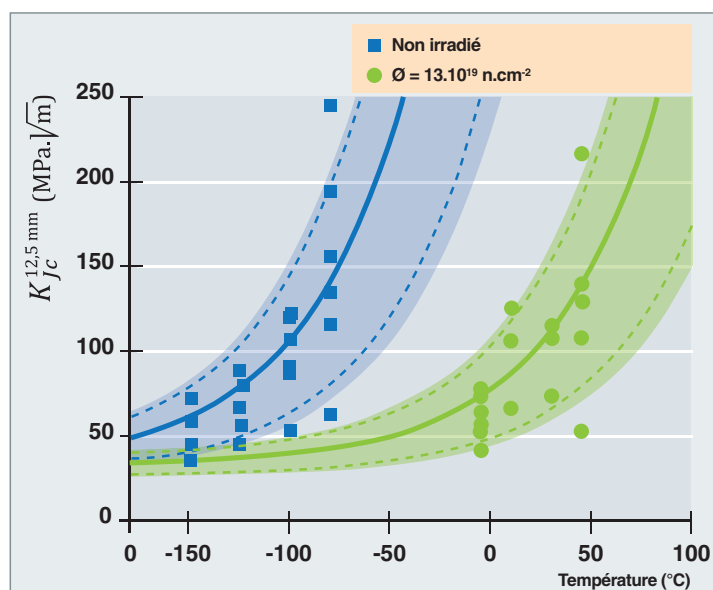


Fig. 1. Ténacité de l'acier de cuve des réacteurs à eau sous pression, en fonction de la température avant (en bleu) et après irradiation (en vert). Après irradiation, la courbe se décale vers les températures plus élevées.

- les structures internes inférieures sont en acier austénitique de structure cristalline cubique à faces centrées : 304 **hyper-trempé*** pour le cloisonnement et 316 **écroui*** pour les vis qui en assurent l'assemblage (voir fig. 2). Ces équipements internes forment une construction de 13 m de haut et de 3 m de diamètre, dont l'intégrité et la stabilité dimensionnelle doivent être assurées. Ces aciers austénitiques ont été retenus pour leur bonne résistance mécanique et leur caractère inoxydable. En service, ces aciers durcissent et voient leur ductilité et leur ténacité diminuer : comme la cuve, ils se fragilisent. Des nano-cavités et des nano-bulles d'hélium¹ ont été observées, en Microscopie Électronique en Transmission (MET), avec des échantillons prélevés sur des vis [1]. Ces aciers pourraient donc gonfler pour les fortes doses envisagées en cas de prolongation de la durée de fonctionnement des réacteurs, avec comme conséquences des variations dimensionnelles des structures et des contraintes mécaniques induites par les gradients de gonflement associés aux gradients thermiques, ce qui pourrait affecter la stabilité dimensionnelle et l'intégrité de ces composants internes. Le phénomène de corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (**IASCC***) a été observé sur quelques vis, le développement de la fissuration intergranulaire ayant lieu dans les congés de ces vis pour des doses d'environ 5 dpa.

1. À cause d'une composante thermique significative du spectre neutronique observée par les internes, le nickel des aciers inoxydables subit une réaction de transmutation en deux étapes, $^{58}\text{Ni} + n \rightarrow ^{59}\text{Ni} + \gamma$ puis $^{59}\text{Ni} + n \rightarrow ^{56}\text{Fe} + ^4\text{He}$, qui conduit à une production d'hélium. Les aciers austénitiques des internes constituent, de ce point de vue, un point singulier au sein des aciers utilisés dans les réacteurs de fission.

C'est la transparence aux neutrons du zirconium qui est la raison de la sélection des alliages à base de Zr pour le gainage du combustible :

- Le Zircaloy-4 a été l'alliage utilisé dans les réacteurs du parc EDF. Sa composition chimique et sa gamme de fabrication (état détendu) ont été optimisés pour améliorer la résistance mécanique et la tenue à la corrosion. L'oxygène est un élément interstitiel dans le réseau cristallin hexagonal compact du zirconium, qui contribue fortement à accroître la limite d'élasticité de l'alliage. L'étain, en substitution, améliore significativement la tenue au fluage. Le fer et le chrome ont des limites de solubilité modestes dans le zirconium (~150 ppm à 850 °C) ; ils précipitent sous forme de phases **intermétalliques***, $\text{Zr}(\text{Fe},\text{Cr})_2$ et $\text{Zr}(\text{Nb},\text{Fe})$, qui limitent la taille de grains et améliorent la tenue à la corrosion. Le phénomène de **croissance*** sous irradiation de ces alliages conduit à des allongements qui peuvent provoquer une déformation rédhibitoire des assemblages ;
- les alliages M5[®] d'AREVA, et ZIRLO de Westinghouse, résultent de nouvelles optimisations de la composition chimique et de la gamme de fabrication (état recristallisé pour le M5[®] et partiellement recristallisé pour le ZIRLO) conduisant, en service, à un gain en terme de croissance, de fluage sous irradiation, et à une tenue à la corrosion considérablement améliorée, sans sacrifier pour autant les qualités mécaniques de la gaine, ce qui permet d'atteindre des temps de séjour en réacteurs plus longs qu'avec le Zircaloy-4.

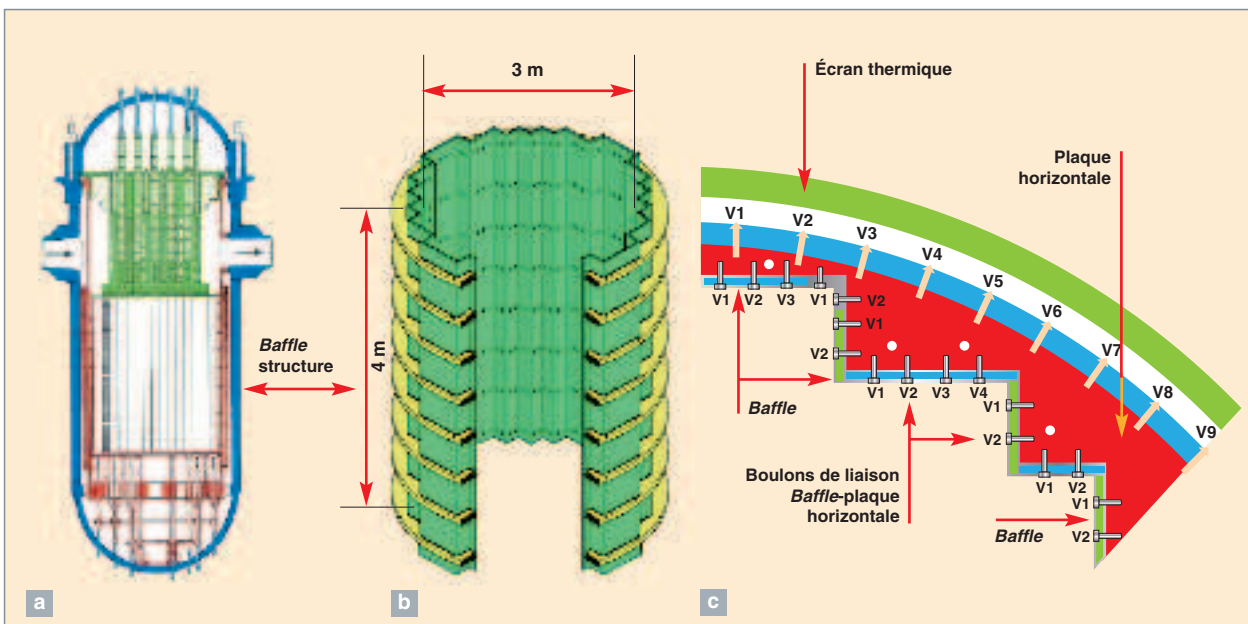


Fig. 2. a) Coupe verticale montrant la cuve et les structures internes inférieures d'un réacteur à eau sous pression. b) Vue d'ensemble des structures internes inférieures. c) Détail des plaques verticales (« baffles »), horizontales (« formers ») et des boulons d'assemblage.

Les matériaux utilisés dans les réacteurs de fission à neutrons rapides

Les gaines des premiers cœurs de réacteurs de fission à neutrons rapides² étaient en acier inoxydable de type 316 hyper-trempé ou écroui sur la base de la bonne compatibilité de ce type d'acier avec le combustible et avec le caloporteur sodium, et de la résistance à chaud suffisante pour limiter la déformation par **fluage thermique*** due à la pression interne des gaz de fission. C'est sur ce type d'acier que fut découvert le phénomène du **gonflement*** [2] qui allait limiter les taux de combustion. En effet, un gonflement excessif du matériau de gainage ne pouvait être toléré, afin de maintenir les sections de passage du sodium qui conditionnent la capacité de refroidissement, et, aussi, d'éviter une dégradation excessive de sa **ductilité*** : au-delà de 6 % de gonflement volumique, la chute de la ductilité devenait inacceptable, et c'est ce critère qui a limité le **taux de combustion*** des réacteurs à neutrons rapides (RNR) et motivé la recherche d'aciers à résistance au gonflement améliorée. La figure 3 rassemble les résultats d'un quart de siècle de recherche appliquée dans PHÉNIX, en France. Il est clair que la structure cristalline, la composition chimique et l'état métallurgique sont les paramètres essentiels qui contrôlent le gonflement.

Les aciers **ferritiques*** et **martensitiques***, de structure cristalline cubique centrée, présentent un gonflement macroscopique négligeable pour des doses élevées jusqu'à environ 150 dpa, alors que les aciers **austénitiques***, après une dose d'incubation significativement plus faible, entrent dans un régime de gonflement rapide et dépassent très vite la limite des 6 % de gonflement volumique. Cette bonne résistance au gonflement et une tenue mécanique à chaud raisonnable jusqu'à environ 550 °C font des aciers martensitiques de bons candidats pour le matériau de structure du tube hexagonal (TH) enveloppe de l'assemblage combustible des RNR. Des examens en MET montrent cependant que la dose d'incubation du gonflement de ce type d'acier devrait être voisine des doses maximales atteintes à ce jour. Aussi, des optimisations de l'état métallurgique et/ou de la composition chimique seront-ils nécessaires pour améliorer la résistance au gonflement, permettant d'atteindre les doses >150 dpa envisagées pour la filière des RNR.

La composition chimique et l'état métallurgique sont cruciaux pour ce qui est de la résistance au gonflement, comme le

montre le comportement des aciers austénitiques. L'allongement de la dose d'incubation a été obtenu grâce à des ajustements successifs des teneurs en Cr, Ni, C, Ti, Si et P et une mise en solution excellente suivie d'un **écrouissage*** de ~20 %³, ce qui a conduit à l'acier AIM-1, le meilleur des 15Cr-15Ni-Ti, écroui et stabilisé au titane, devant permettre d'atteindre 120 dpa. Des examens d'échantillons et de gaines irradiés dans PHÉNIX montrent qu'une optimisation des aciers austénitiques est possible avec des aciers austénitiques avancés, dont la matrice et les éléments d'addition peuvent être encore ajustés pour atteindre, sans gonflement rédhibitoire, des doses voisines de 150 dpa.

L'atteinte de doses dépassant 150 dpa, sur la gaine des réacteurs à neutrons rapides, est un véritable défi. Il est vraisemblable que la résistance au gonflement des aciers austénitiques avancés pourrait s'avérer insuffisante. Quant aux aciers ferritiques-martensitiques, leur résistance en fluage thermique est trop faible pour des températures au-delà de 550 °C. Des aciers renforcés par dispersion d'oxydes (**ODS***⁴) obtenus par métallurgie des poudres sont en cours de développement, les nano-oxydes constituant des obstacles efficaces au glissement des dislocations. Des irradiations par particules chargées montrent qu'ils devraient avoir une résistance au gonflement significative jusqu'à des doses de l'ordre de 150 dpa, voire davantage, grâce à leur structure cubique centrée et à la dispersion très stable d'oxydes qui favorisent l'élimination des

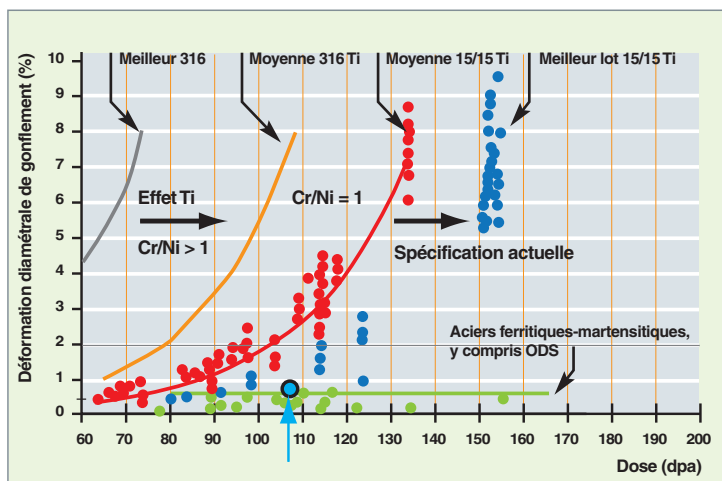


Fig. 3. Déformation diamétrale de gonflement des gaines et des tubes hexagonaux du réacteur à neutrons rapides PHÉNIX. Les différents aciers austénitiques 316Ti (17 %Cr-12 %Ni-Ti) et 15-15 Ti (15 %Cr-15 %Ni-Ti) sont irradiés à l'état mis en solution par hypertrempé, suivi d'un écrouissage de 20 %. L'acier ferritique est une nuance à 17 %Cr, les aciers martensitiques sont des aciers à 12 %Cr (DIN1-4914) ou 9 %Cr-1 %Mo (EM10). L'acier EM12, 9 %Cr-2 %Mo, est un acier biphasé ferritique et martensitique. Figure aussi la limite des 2 % de déformation de gonflement pour les gaines, au-delà de laquelle la baisse de ductilité est inacceptable. (D'après Jean-Louis SÉRAN, CEA/Saclay.)

4. ODS : Oxide Dispersion Strengthened.

2. DFR (Dounray Fast Reactor), au Royaume-Uni, EBR II (Experimental Breeder reactor II) aux États-Unis, BOR60, BN350, BN600 en URSS, JOYO au Japon, RAPSODIE et PHÉNIX en France.

3. L'application d'un traitement de revenu après les étapes standard de mise en solution et d'écrouissage a toujours conduit à des doses d'incubation significativement plus courtes.

défauts ponctuels et confèrent la résistance à chaud suffisante jusqu'aux températures de ~650-700 °C typiques des gaines combustibles des RNR.

Les matériaux utilisés dans les réacteurs de fusion

Émettant l'hypothèse que la machine de fusion ITER atteindra ses objectifs, les différents partenaires du projet commencent à concevoir un réacteur expérimental, DEMO, unique installation entre ITER et le premier réacteur industriel de fusion, qui devra démontrer, à l'horizon 2050, la faisabilité de la production d'électricité à partir de la fusion D-T⁵. La figure 4 propose le schéma d'un possible DEMO. Les composants de la chambre à vide les plus exposés aux flux de neutrons sont la première paroi, le **divertor*** et les couvertures tritigènes [3]. L'objectif de dose dans l'acier de structure de la première paroi est de ~50 dpa, associés à des productions importantes d'hélium et d'hydrogène, ~10 appmHe/dpa et ~50 appmH/dpa, dues aux réactions de transmutation (n, α) et (n, p) dont les sections efficaces deviennent significatives pour les neutrons de 14 MeV produits par la fusion D-T.

Des aciers martensitiques à 9 %Cr ont été sélectionnés comme matériau de structure de la première paroi, des couvertures tritigènes et du divertor, sur la base de leur excellente résistance au gonflement sous irradiation de neutrons rapides de fission, d'une résistance en fluage thermique satisfaisante jusqu'à 550 °C et d'un excellent compromis entre conductivité thermique et coefficient de dilatation, ce qui permet de limiter les contraintes mécaniques d'origine thermique à des niveaux acceptables dans des structures d'épaisseur centimétrique⁶. La communauté de la fusion a adapté la composition chimique de l'acier standard, 9 %Cr-1Mo-V-Nb, pour que l'acier ainsi optimisé se désactive rapidement après service et puisse être considéré comme un déchet de faible activité dès quelques centaines d'années de stockage après service. Dans ce type d'acier dit « à basse activation », l'EUROFER en Europe, le molybdène et le niobium, qui sont responsables en grande partie de l'activation à long terme, ont été remplacés par le

5. D pour deutérium et T pour Tritium, qui sont les deux isotopes de l'hydrogène dont on utilisera la fusion des noyaux comme source d'énergie dans les futurs réacteurs de fusion : $D+T \rightarrow He (3,4 \text{ MeV}) + n (14,1 \text{ MeV})$.

6. Les flux thermiques qui traversent une gaine d'élément combustible rapide et la première paroi d'un réacteur de fusion sont du même ordre de grandeur, ~1 MW/m². Les valeurs des contraintes mécaniques d'origine thermique dans l'épaisseur de la gaine en acier austénitique restent acceptables, compte tenu de l'épaisseur millimétrique de la gaine. L'épaisseur centimétrique de la première paroi rend impossible l'utilisation des aciers austénitiques comme unique matériau de structure.

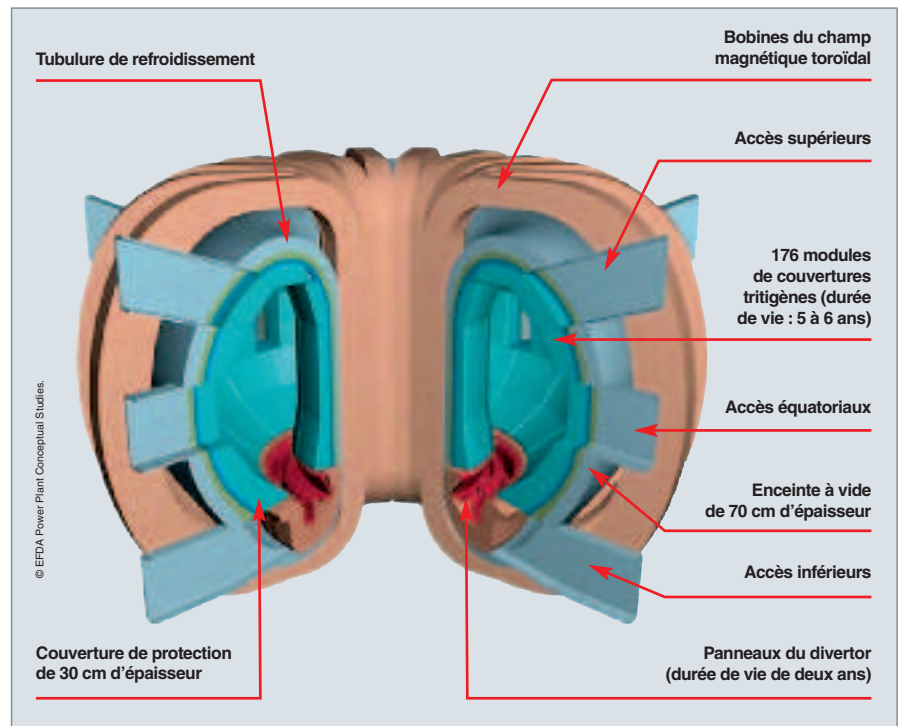


Fig. 4. Schéma d'un réacteur de fusion étudié dans le cadre des *Power Plant Conceptual Studies* du programme européen EFDA. Le grand rayon et la hauteur de l'enceinte à vide sont de l'ordre de 10 m. La proposition de segmentation des couvertures tritigènes donne une idée de l'agencement interne. Concernant le système magnétique, seules figurent les bobines du champ magnétique toroïdal. La première paroi qui protège les couvertures tritigènes n'a pas été dessinée.

tungstène, et, les éléments d'alliages ou impuretés, comme Ni, Cu, Al, Ti, Si et Co, strictement limités [4]. Le programme européen de développement de l'EUROFER a déjà permis la fabrication industrielle de quelques tonnes de ce type d'acier, avec des propriétés d'usage tout à fait comparables à celles des aciers martensitiques standard.

Pour les parties des structures du divertor ou de la première paroi qui verraient des températures supérieures à 550 °C et aussi des doses élevées, des aciers ODS ferritiques martensitiques très similaires à ceux des applications de fission sont également en cours de développement.

En raison de l'interaction avec le plasma, la première paroi et le divertor doivent être recouverts d'un matériau de protection. Pour ITER et DEMO, le tungstène a été sélectionné pour sa haute température de fusion⁷ et son faible taux d'érosion. La compréhension de l'interaction entre le tungstène et le plasma en est à son tout début, ainsi que l'étude des mécanismes sous-jacents. Ce que devient une telle interaction en présence d'une production de défauts ponctuels créés par le flux de neutrons rapides d'un réacteur de fusion commence seulement à être exploré.

7. Température de fusion du tungstène : 3695 K : la plus élevée de tous les métaux.

Les matériaux utilisés dans les applications à haute température

Pour cause de température de fusion trop basse, les alliages métalliques ne peuvent plus être utilisés dans les cœurs de certains réacteurs de Génération IV, tels que les réacteurs à caloporteur gaz (**GFR*** et **VHTR***), ou bien certains concepts de couvertures tritigènes à très haute température pour la fusion thermonucléaire. Le recours à une céramique, le carbure de silicium SiC, s'est avéré être le meilleur compromis. Le SiC présente, en effet, de bonnes propriétés neutroniques et une bonne tenue sous irradiation de neutrons rapides de fission⁸. Sa mise en œuvre sous forme de composite SiC/SiC fibré lui confère des caractéristiques mécaniques pseudo-ductiles, au détriment cependant de son étanchéité, dès lors que l'on sort du domaine d'élasticité. Un « *liner* » métallique est donc nécessaire pour garantir l'étanchéité de l'aiguille et le confinement des produits de fission (un concept de gaine sandwich avec *liner* métallique a été breveté par le CEA).

Effets d'irradiation : les manifestations macroscopiques

Comme mentionné ci-dessus, les propriétés des matériaux évoluent sous l'effet de l'irradiation, ce qui peut limiter la durée de vie des composants du réacteur. Les principales manifestations macroscopiques de cette évolution sont présentées dans cette section.

La stabilité dimensionnelle sous irradiation

Les **variations dimensionnelles** des matériaux de structure observées sous irradiation peuvent avoir pour origine le gonflement, la croissance ou le fluage d'irradiation.

Le **gonflement** est une augmentation isotrope de volume qui se manifeste en l'absence de contrainte mécanique et croît avec l'irradiation. Nous avons vu, dans la figure 3, *supra*, p. 11, que les aciers austénitiques des gaines des RNR étaient sujets à ce phénomène. Après une dose d'incubation, où la variation de volume est négligeable, apparaît un domaine où la vitesse de gonflement est stationnaire. Compte tenu du critère de gonflement maximal de 6 % évoqué plus haut, et de la valeur élevée des vitesses stationnaires de gonflement, la fin de la période d'incubation correspond à peu près à la fin de vie de l'élément combustible des RNR. On comprend, dès lors, que le gonflement a fait et fait encore, dans la perspective du démonstrateur **ASTRID***, l'objet d'un important programme d'études théoriques et expérimentales.

8. Les sections efficaces de transmutation (n, α) des neutrons de 14 MeV conduisent, dans le carbure de silicium, à des productions d'hélium particulièrement élevées, ~100 appmHe/dpa, qui devraient rendre problématique l'utilisation de ce matériau pour de fortes doses dans les réacteurs de fusion.

Le **croissance sous irradiation** se manifeste par une déformation anisotrope à volume constant en l'absence de sollicitation mécanique. Elle est spécifique des matériaux de structure cristalline anisotrope possédant une forte **texture*** cristallographique généralement due à leur procédé de fabrication. Historiquement, le phénomène de croissance fut mis en évidence sur l'uranium α de structure orthorhombique soumis au dommage d'irradiation créé par la fission de l' U^{235} ⁹. La croissance des alliages de zirconium des tubes-guides constituant le squelette des assemblages des REP d'EDF, conduit à leur allongement, ce qui limite la durée de fonctionnement de l'assemblage en REP.

Le **fluage d'irradiation** des aciers et des alliages de zirconium des assemblages combustibles des RNR et des REP est une déformation irréversible à volume constant, fonction croissante de la **dose*** et de la **contrainte***. Dans le cas des aciers des RNR, le fluage d'irradiation se manifeste très clairement dans le domaine de température, 400-500 °C, où le fluage thermique (en absence d'irradiation) est négligeable, et, dépend très peu de la composition et du traitement thermomécanique de l'acier contrairement au fluage thermique. La prise en compte de ce mode de déformation sous flux est impérative pour le calcul thermomécanique des contraintes et déformations de l'élément combustible des REP et des RNR.

Durcissement et fragilisation sous irradiation

Sous irradiation, la limite d'élasticité des alliages métalliques croît avec la dose. Il y a donc **durcissement***, qui s'accompagne d'une baisse de la ductilité et de la ténacité ; on parle alors de **fragilisation*** associée à ce durcissement. Dans le cas de matériaux ayant un gonflement important, typiquement > 6 %, on observe aussi une fragilisation de porosité qui est, en général, réhibitoire car donnant lieu à la rupture.

Tous les matériaux de structure cubique à faces centrées ou hexagonale compacte rompent, en l'absence d'effet d'environnement (voir ci-après), par déformation plastique : on parle de **rupture ductile***, qui nécessite une énergie significative. La déformation plastique des aciers mesurée en laboratoire de haute activité après irradiation en RNR ($T > 400$ °C), reste homogène¹⁰. Pour les températures de service plus basses, comme dans le cas des aciers austénitiques des internes inférieurs des REP ou les alliages de zirconium, il y a souvent localisation de la déformation plastique.

Les aciers ferritiques, de structure cubique centrée, présentent, quant à eux, une température de transition dite « fragileductile (TTFD) ». À basse température, ces aciers rompent

9. Voir, par exemple, C. WEINBERG, J. DURAL et R.R. CONTE, *Physics Letters*, volume 27A, number 10, 7 October 1968.

10. Les rares cas de localisation rapportés dans la littérature correspondent à des matériaux ayant fortement gonflé, au-delà de la limite des 2 %.

par **clivage***, c'est-à-dire, par séparation des plans cristallographiques denses, donc avec une énergie à rupture et une ténacité faibles. Au-dessus de la TTFD, ils rompent par plasticité généralisée, donc de manière ductile avec des énergies à rupture et des ténacités significatives. La conséquence de l'irradiation est l'accroissement de la température de transition, et donc la baisse de la ténacité, comme nous l'avons vu plus haut pour l'acier de cuve des REP. À la température de service de 290 °C et aux doses significatives de la fin de vie à 40 ans, ~0,1 dpa, l'acier de cuve des REP d'EDF ne présente pas de localisation de la déformation plastique.

Les Règles de Surveillance en Exploitation des Matériels Mécaniques (RSE-M) des Îlots nucléaires, qui permettent aujourd'hui de démontrer l'intégrité de la cuve des REP, introduisent de nombreuses marges difficilement quantifiables. Elles permettent de montrer que la ténacité des aciers de cuve reste suffisante pour des irradiations actives jusqu'à 40 ans de service. Au-delà, dans l'hypothèse d'un allongement de la durée de vie à 50 ou 60 ans, la méconnaissance des marges introduites dans les procédures du code deviennent pénalisantes. On comprend donc l'intérêt d'une prédiction physique fiable du comportement plastique et de la ténacité des aciers de cuve, c'est-à-dire avec des incertitudes identifiées et quantifiées, ainsi que l'effort qui lui est consacré par les exploitants et les laboratoires de recherche de par le monde.

Les effets de l'environnement

Des modifications du comportement des matériaux peuvent également être associées à l'environnement et quelquefois favorisées par l'irradiation. Elles sont très différentes selon le fluide caloporteur : nous pouvons citer, à titre d'exemples, l'oxydation et l'hydruration des alliages de zirconium dans les REP, l'oxydation avec le Pb ou le Pb-Bi envisagés comme caloporteur dans certains RNR de Génération IV, et la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation de composants d'internes de cuve (vis de cloisonnement) en acier austénitique écroui (316L).

Un inventaire des principaux phénomènes macroscopiques à l'origine de cette évolution est donné en figure 5, ci-après.

Effets d'irradiation : les mécanismes à l'échelle atomique

Sous irradiation de neutrons rapides, l'alliage subit en permanence de fortes perturbations des trois principaux paramètres qui contrôlent ses propriétés d'usage, à savoir : la structure cristalline, la composition chimique et la **microstructure***. L'irradiation, qui éloigne l'alliage de son état d'équilibre, est contrebalancée par la relaxation des défauts introduits par l'irradiation. C'est de cette compétition entre dommage et guérison que résulte l'évolution cinétique des propriétés d'usage,

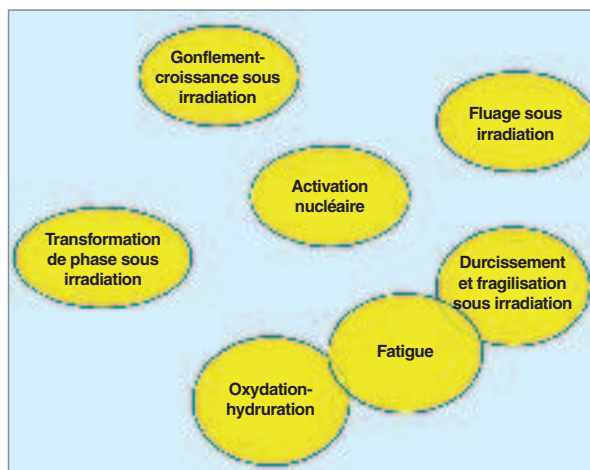


Fig. 5. Les phénomènes physiques macroscopiques à l'origine de l'évolution des propriétés des matériaux. Cette carte peut être comparée à celle de la figure 10, qui représente les phénomènes microscopiques en jeu.

et, qu'il s'agisse de la physique du dommage ou de celle de sa guérison, ce n'est qu'à l'échelle atomique qu'elle peut être formulée de manière fiable, c'est-à-dire avec des définitions et des hypothèses maîtrisées.

Les interactions des neutrons avec la matière peuvent être élastiques ou inélastiques. Les premières sont à l'origine des **cascades*** de déplacements et de la création des **défauts ponctuels***, **lacunes*** et **interstitiels***, ainsi que du désordre balistique. Les secondes créent des atomes étrangers par réactions de fission et de transmutation qui peuvent affecter la cohésion des solides sous irradiation.

Les cascades de déplacements atomiques ou dommage balistique

La figure 8, page 15, montre quelques instantanés, lors de la dizaine de picosecondes que dure une cascade de déplacements atomiques calculée par dynamique moléculaire dans un alliage dilué de Fe-Cu.

Lorsqu'un neutron rapide de fission ou de fusion entre en collision élastique avec un noyau de Fe, il a suffisamment d'énergie pour éjecter de son site ce dernier qui, à son tour, a en général assez d'énergie cinétique pour déplacer d'autres atomes et ainsi provoquer une cascade de déplacements atomiques, chaque déplacement étant caractérisé par une paire de défauts ponctuels, constituée d'une lacune et d'un auto-interstitiel. Le dommage balistique est caractérisé par le nombre de déplacements par atome. Ainsi, chaque atome d'une gaine de crayon combustible d'un REP du parc d'EDF est déplacé en moyenne une dizaine de fois lors de son séjour en réacteur. Dans les RNR, le flux de neutrons rapides est d'un

Les cristaux et leurs défauts

Les métaux sont formés d'amas de cristaux élémentaires appelés « grains » en métallurgie. Ils cristallisent généralement dans des systèmes simples : cubique centré, cubique à faces centrées ou hexagonal. Pour décrire une direction ou un type de plan dans un cristal, on utilise un système d'indices entiers, relatifs au vecteur directeur de la normale au plan cristallin considéré.

Les cristaux présentent souvent des défauts : un site cristallin où l'atome est absent s'appelle une **lacune***. C'est un défaut de faible énergie (0,5 à 1 eV), qui peut être créé par l'agitation thermique et que l'on trouve donc en concentration non négligeable à haute température ($T > 0,7 T_{\text{fusion}}$).

Un atome surnuméraire dans un cristal est un **interstitiel*** (auto-interstitiel, s'il est de même nature). C'est, en général, un défaut de grande énergie ($> 3 \text{ eV}$), qui ne peut être créé que par irradiation.

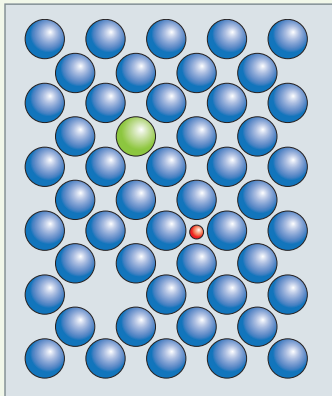


Fig. 6. Défauts ponctuels dans un cristal : lacune, atome en substitution (vert), en insertion (rouge).

Les cristaux sont rarement purs : les atomes d'impuretés en solution solide peuvent se loger dans le cristal, soit en se substituant à un atome du cristal, soit en s'insérant dans le cristal, en le distordant localement (fig. 6). Si les impuretés sont en concentration suffisamment forte, elles peuvent précipiter sous forme d'une nouvelle phase.

Les défauts du cristal peuvent aussi ne pas être ponctuels, mais étendus : voir *infra*, p. 20, l'encadré sur les **dislocations***.

La limite entre deux grains, composés de cristaux d'orientations différentes, s'appelle un « **joint de grains*** » (fig. 7). Les énergies des joints dépendent de la désorientation entre les cristaux. Pour de très faibles désorientations, les joints peuvent être vus comme un réseau de dislocations.

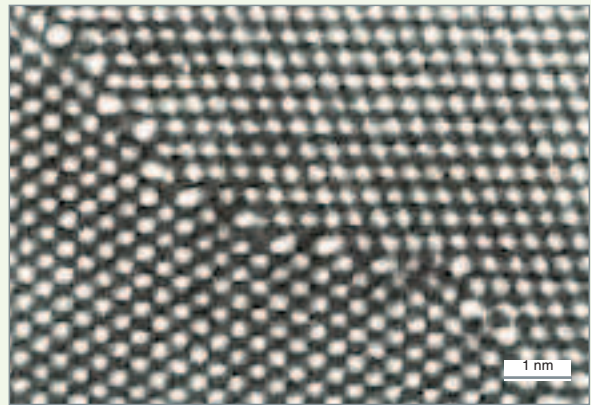


Fig. 7. Joint de grains dans du silicium, observé au microscope électronique à transmission.

à deux ordres de grandeur supérieur à celui des réacteurs à eau. Les atomes des aciers du cœur fissile sont ainsi déplacés, en moyenne, entre 100 et 200 fois pendant leur séjour en réacteur, soit 100 à 200 dpa (déplacements par atome). Dans

les futurs réacteurs de fusion, les déplacements atomiques atteindront des doses semblables à celles des réacteurs à neutrons rapides.

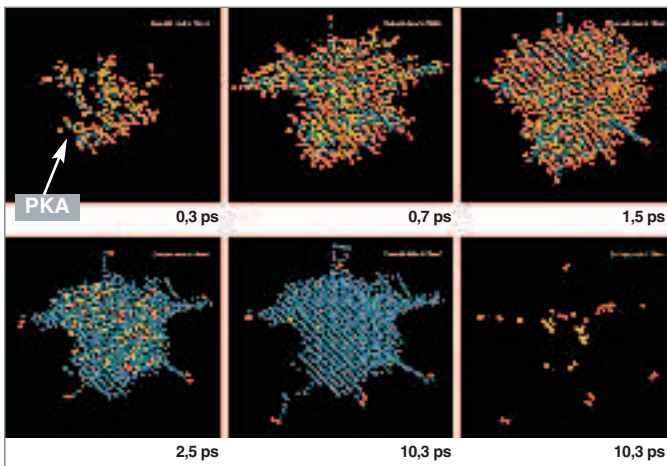


Fig. 8. Développement d'une cascade de déplacements créée par un premier atome frappé (PAF), en anglais PKA (*Primary Knocked-on Atom*), éjecté de son site cristallin après un choc élastique avec un neutron rapide qui lui transfère, dans le cas considéré, une énergie de 5 keV. Après le pic de production de déplacements vers la picoseconde, la majorité des défauts (~90 %) est recuite au bout de ~10 ps. Il ne reste que quelques lacunes et amas au centre de ce que fut la cascade et quelques auto-interstitiels et amas en périphérie. Les défauts de type lacunaire sont en jaune, ceux de type interstitiel en rouge. Sauf dans le dernier instantané, sont aussi indiqués en bleu les atomes remplacés. Ce sont des atomes qui ont été éjectés de leur site cristallin mais en ont retrouvé un nouveau. Les remplacements ne provoquent pas de défauts ponctuels, mais un désordre balistique qui aura un rôle essentiel dans la stabilité sous irradiation des composés définis.

(D'après Nguyen DOAN CEA/Saclay.)

La production d'atomes étrangers par réactions nucléaires de fission et de transmutation

Les réactions nucléaires ont un impact important sur les propriétés des matériaux.

Les produits de fission issus des réactions nucléaires à l'origine de la production d'énergie dans le combustible peuvent être solides ou gazeux et modifient les propriétés du combustible.

Les réactions de **transmutation***, (n,α) ou (n,p) , par exemple, introduisent des atomes d'hélium et d'hydrogène dans les matériaux de structure. Les neutrons produits par la fusion du deutérium et du tritium, ayant une énergie plus élevée (14 MeV) que ceux de la fission (~2 MeV), la production d'éléments de transmutation, notamment l'hélium et l'hydrogène, sera d'un à deux ordres de grandeur plus élevée dans les réacteurs de fusion que dans les RNR.

L'hélium a un rôle essentiel dans l'apparition du gonflement, car il favorise la germination des cavités. De même, en ce qui concerne les aciers martensitiques, l'irradiation simultanée par trois faisceaux d'ions simulant les déplacements atomiques, et, les productions d'hélium (~10 appm/dpa) et d'hydrogène (~50 appm/dpa), typiques des conditions d'irradiation d'un spectre de neutrons de fusion D-T, suggère que la résistance au gonflement de ce type d'acier pourrait être significativement plus faible sous spectre de fusion que celle observée sous spectre de fission¹¹. De nombreuses irradiations par particules α montrent que l'hélium provoque des phénomènes de fragilisation intergranulaire et doit donc affecter la cohésion des joints de grains. De même, la fragilisation en fluage thermique des gaines des RNR est attribuée à l'hélium de transmutation, même si les quantités produites en spectre de RNR sont modestes.

L'évolution cinétique de la microstructure : la part des défauts ponctuels

Aux températures des réacteurs électrogènes, les **défauts ponctuels*** sont mobiles et peuvent soit se recombinaison (c'est la disparition de la paire lacune, auto-interstitiel), soit s'éliminer sur divers puits (joints de grains, dislocations, interfaces entre diverses phases précipitées et la matrice), soit encore s'agglomérer. Les lacunes ou les auto-interstitiels peuvent s'agglomérer sous la forme de boucles de dislocation ; les lacunes s'agglomèrent sous forme de cavités.

11. L'irradiation par un seul faisceau d'ions simulant le dommage balistique d'un spectre de fission confirme l'excellente résistance au gonflement des aciers martensitiques observée en RNR. Par contre, sous triple faisceau simulant les conditions d'un spectre neutronique de fusion, des gonflements importants ~3 % sont rapportés après une dose de 50 dpa accumulée à 470 °C. Voir, par exemple, E. WAKAI, *Journal of Nuclear Materials*, **318** (2003), pp. 267-273.

Les interactions élastiques entre défauts ponctuels et dislocations sont essentielles pour comprendre la croissance des cavités de gonflement et le fluage d'irradiation. La dilatation du réseau cristallin autour de l'auto-interstitiel est plus importante que dans le cas de la lacune. Il en résulte que l'auto-interstitiel interagit plus fortement avec le champ élastique des dislocations que la lacune et s'élimine de préférence sur ces dernières. Ainsi, dans les conditions d'un métal **écroui***¹² où les conditions de germination des cavités sont réalisées (présence d'hélium), au surplus d'auto-interstitiels s'éliminant sur le réseau de dislocations correspondra un surplus de lacunes s'éliminant sur les cavités, qui peuvent ainsi croître, bien que l'irradiation produise les deux types de défauts en nombre égal. En présence d'une contrainte mécanique appliquée, la différence de module d'élasticité entre le volume contenant le défaut ponctuel et la matrice permet de proposer un mécanisme possible de fluage d'irradiation appelé, en anglais, « SIPA » pour *Stress-induced preferential absorption* [2].

D'une manière générale, il y a accumulation de défauts ponctuels, sous forme de cavités ou de bulles d'hélium, mais aussi sous forme de boucles de dislocations. Ce sont autant d'obstacles au glissement des dislocations, qui contribuent à l'augmentation de la limite d'élasticité, donc au durcissement dû à l'irradiation.

L'évolution cinétique de la microstructure : la stabilité de phases sous irradiation

Sous irradiation, une grande variété de transformations de phase a pu être observée : dissolution, **amorphisation*** de phases initialement présentes, précipitation de phases hors d'équilibre. Cette apparente variété où tout semble possible peut, en réalité, se rationaliser par le fait que, sous irradiation, la stabilité d'une phase ne découle pas du minimum de l'énergie libre, comme hors pile, mais d'un régime stationnaire, résultant de la compétition entre le désordre balistique créé par l'irradiation¹³ et la guérison induite par la diffusion.

À basse température, le désordre balistique l'emporte. C'est le domaine des effets spécifiques de l'irradiation. Des composés thermiquement stables peuvent se dissoudre ou devenir amorphes sous irradiation. On peut citer, dans cette catégorie, l'amorphisation-dissolution des phases de laves Zr (Fe, Cr)₂ et la remise en solution du Fe dans l'alliage Zircaloy-4, à laquelle on attribue une augmentation de la cinétique de corrosion, et l'amorphisation du carbure de silicium à basse température.

12. Un métal écroui est un métal où l'on a introduit une densité de dislocation significative, ~10¹² cm⁻² par déformation plastique, par exemple, par laminage.

13. Ces sont les séquences des atomes remplacés qui créent le désordre balistique. Sans conséquence pour un alliage en solution solide, ces remplacements créent du désordre chimique dans tout composé de composition et structure définies.

À plus haute température, la guérison par la diffusion domine, et les instabilités constatées à basse température disparaissent. Cependant, on ne retrouve pas une situation identique à celle que l'on aurait hors irradiation. D'une part, la sur-saturation des défauts ponctuels accélère la diffusion, mais, d'autre part, surtout, le couplage entre solutés et flux de défauts ponctuels s'éliminant sur les puits produit des ségrégations hors d'équilibre, induites par l'irradiation : *Radiation Induced Segregation (RIS)*¹⁴. La figure 9 donne un exemple de RIS dans les aciers austénitiques où c'est l'élimination des lacunes au joint de grains qui pilote l'appauvrissement du Cr et du Fe, diffuseurs rapides, au voisinage du joint de grains. En revanche, s'il existe une interaction significative attractive entre soluté et lacune, comme c'est le cas de Mn, Ni, Cu et P dans le Fe- α , les lacunes entraînent le soluté vers le puits où elles s'éliminent et le soluté s'enrichit au voisinage du puits. C'est ce mécanisme qui doit contribuer à la formation des nano-amas enrichis en ces éléments, observés en **Sonde Atomique Tomographique*** (SAT) dans les aciers de cuve ou alliages modèles irradiés.

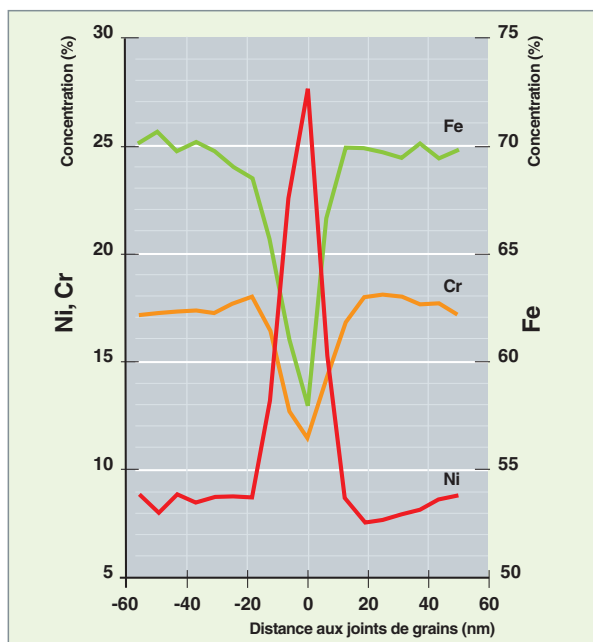


Fig. 9. Profils de ségrégation mesurés sur les joints de grains dans un acier austénitique de type 316 irradié. Un enrichissement en Ni et un appauvrissement de Fe et Cr aux joints de grains sont observés (J. HENRY, CEA).

14. Historiquement, la ségrégation sous irradiation fut découverte dans des alliages Ni-Si sous-saturés. Sous irradiation, le silicium ségrégait aux puits d'élimination des défauts ponctuels (dislocations et boucles de dislocation) et dépassait localement la limite de solubilité du silicium, provoquant la précipitation hétérogène de Ni₃Si. A. BARBU et P. PERRAILLON, *Scripta Met*, **15** (1981), p. 1177.

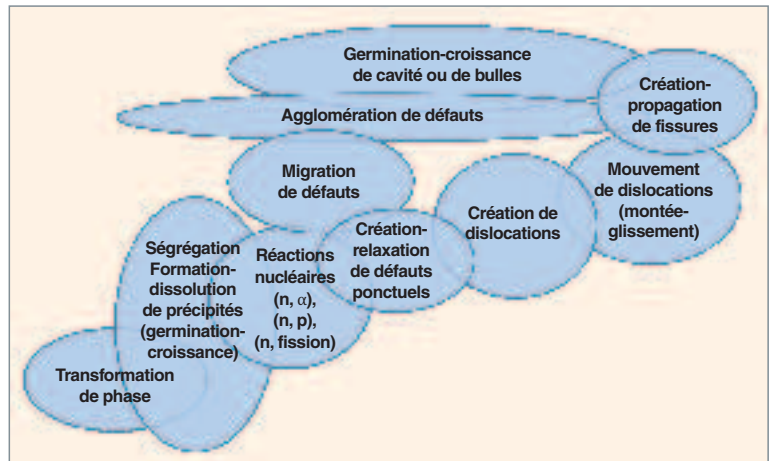


Fig. 10. La carte des phénomènes physiques microscopiques affectant les matériaux sous irradiation. Cette carte peut se superposer à celle de la figure 5, *supra*, p. 14 qui représente les phénomènes macroscopiques : la distance entre les phénomènes sur la carte traduit un lien causal ou une proximité thématique.

Les modifications des propriétés d'usage, dont le comportement mécanique des matériaux sous irradiation, sont donc contrôlées par la production, la migration et l'agglomération des défauts ponctuels ou des produits de transmutation créés par l'irradiation, et, dans certains cas, par l'interaction du matériau avec son milieu environnant (par exemple, la formation d'hydrures dans les alliages de zirconium comme conséquence de la corrosion par l'eau du matériau). Les mécanismes ont été succinctement décrits. Ils ne sont pas nécessairement tous bien identifiés, comme, par exemple, le rôle de la composition chimique sur le gonflement ou encore le mécanisme exact du fluage d'irradiation. On remarquera que ces mécanismes s'étendent depuis des échelles de temps inférieures à la picoseconde, pour la cascade, à plusieurs années, en ce qui concerne l'évolution de la microstructure, et du dixième de nanomètre pour les défauts ponctuels à une dizaine de microns pour le glissement des dislocations qui contrôle la plasticité.

Les phénomènes physiques microscopiques affectant les matériaux sous irradiation sont résumés dans la figure 10.

L'approche multi-échelles (spatiale et temporelle) de la modélisation des matériaux

Ainsi, la physique qui contrôle le vieillissement des matériaux du nucléaire est décrite correctement à l'échelle de l'atome, voire à l'échelle de la structure électronique. C'est à cette échelle qu'on peut déterminer les énergies de formation et de migration des défauts ponctuels, les énergies de mise en solution des éléments de transmutation ou encore les processus d'activation thermique qui contrôlent la mobilité des dislocations.

La modélisation physique des manifestations macroscopiques du vieillissement sera donc multi-échelles. Pour être fiable et prédictive, elle devra, de plus, être menée en étroite synergie avec une démarche expérimentale, afin d'identifier les mécanismes physiques et valider les prédictions. Des approches expérimentales à partir de matériaux modèles de compositions chimiques et de microstructures de complexité croissante, depuis le métal pur jusqu'à l'alliage réel, doivent permettre de questionner les mécanismes, d'extraire de la complexité des matériaux réels ce qui est déterminant et d'aboutir à des modèles physiques réalistes et fiables. Cette partie expérimentale devra s'appuyer sur des caractérisations mécaniques et physico-chimiques, si possible jusqu'à l'échelle atomique et, en ce qui concerne les effets d'irradiation, sur l'examen de matériaux irradiés par des particules chargées, ions et électrons, et par des neutrons en réacteur expérimental ou en réacteur électrogène.

Les échelles et outils de modélisation

Les outils de modélisation d'une échelle fournissent généralement les données de base pour l'échelle supérieure. On peut distinguer :

L'échelle de la structure électronique et les calculs *ab initio**

Il s'agit de la résolution de l'équation de Schrödinger¹⁵ du système d'électrons qui assure la cohésion de toute configuration atomique. On a ainsi accès à l'énergie de cohésion des phases, à l'énergie de formation et migration des défauts ponctuels, à l'énergie de mise en solution des atomes de transmutation ou à l'énergie d'activation de glissement des dislocations... Les méthodes de résolution de l'équation de Schrödinger ont l'avantage de ne pas mettre en œuvre de paramètres empiriques ajustables. En revanche, le chercheur a le choix entre diverses approximations pouvant conduire à des résultats sensiblement différents qu'il devra comparer entre eux et avec les données expérimentales, quand elles existent, pour sélectionner l'approximation la mieux adaptée.

Les calculs *ab initio* étant relativement lourds, ils ont pleinement bénéficié de l'accroissement de la puissance de calcul des ordinateurs. Il s'agit d'un domaine en pleine expansion. Les systèmes traités restent cependant de dimension modeste, typiquement quelques centaines d'atomes au plus.

L'échelle atomique et les cinétiques rapides

Lorsqu'on s'intéresse aux collisions nucléaires qui produisent les défauts ponctuels ou à la modélisation du glissement d'une dislocation et à son interaction avec divers obstacles, la dynamique moléculaire est l'outil souvent utilisé. On est à l'échelle de l'atome ; leurs vibrations sont modélisées dans le cadre de

la mécanique classique, où les forces interatomiques dérivent d'un potentiel empirique, fonction de la position relative des atomes du système considéré. Les systèmes traités peuvent être de l'ordre du million d'atomes. Les pas de temps sont nécessairement inférieurs aux temps caractéristiques des vibrations atomiques, $\sim 10^{-13}$ s. Il en résulte que les durées simulées se mesurent, au mieux, en nanosecondes. La qualité des résultats ne vaut que ce que valent les potentiels empiriques qui sont ajustés sur une base de données (paramètre cristallin, modules d'élasticité, énergétique des défauts ponctuels et des dislocations...), expérimentales ou issues de calculs *ab initio*.

L'échelle atomique et les cinétiques lentes

Les cinétiques lentes sont contrôlées par la diffusion des défauts ponctuels qui, dans le cadre de l'approximation de l'activation thermique, ont une probabilité de saut d'un site à son plus proche voisin, de la forme $v_D \exp(-E^{\text{act}}/k_B T)$, où v_D est la fréquence de vibration caractéristique du réseau et E^{act} l'énergie d'activation du saut souvent calculée *ab initio*. Différentes méthodes de calculs de ces cinétiques sont utilisées. Certaines, comme les méthodes de Monte-Carlo sont stochastiques, d'autres sont déterministes. Ces méthodes sont complémentaires. Si les méthodes stochastiques ne permettent pas, en général, de traiter les temps longs du nucléaire, elles sont très utiles pour une étude fine des processus de germination déterminants dans la mise en place de la microstructure d'irradiation. Parmi les méthodes déterministes, la dynamique d'amas, qui traite la microstructure sous irradiation comme un gaz d'objets décrits par leurs concentrations, permet de calculer les évolutions cinétiques sur les temps longs du nucléaire.

La figure 11 illustre les échelles de temps et d'espace décrites par ces différentes méthodes de modélisation.

Le passage de la microstructure au comportement mécanique

Ce domaine n'est pas spécifique, dans son principe, des matériaux du nucléaire, bien que les objets formant les microstructures d'irradiation (boucles de dislocations, cavités, bulles d'hélium...) le soient. Ce sont les **dislocations***, défauts linéaires et leur mouvement qui sont à l'origine des déformations plastiques.

La modélisation du comportement des dislocations lorsqu'on soumet le matériau à des contraintes mécaniques extérieures, a été développée à l'ONERA et à l'INP Grenoble. En collaboration avec l'INPG, le CEA a entrepris les développements nécessaires à ses propres besoins, notamment la prise en compte des défauts d'irradiation et de la montée des dislocations pour le fluage d'irradiation (voir encadré, *supra*, p. 20). Comme dans le cas du calcul *ab initio*, les codes de dynamique de dislocations (DD) ont particulièrement bénéficié du développement de la puissance de calcul des ordinateurs.

15. Du nom de son concepteur, Erwin SCHRÖDINGER (1887-1961), célèbre physicien, théoricien et philosophe autrichien. Il s'agit d'une équation fondamentale en mécanique quantique. (N.D.E.)

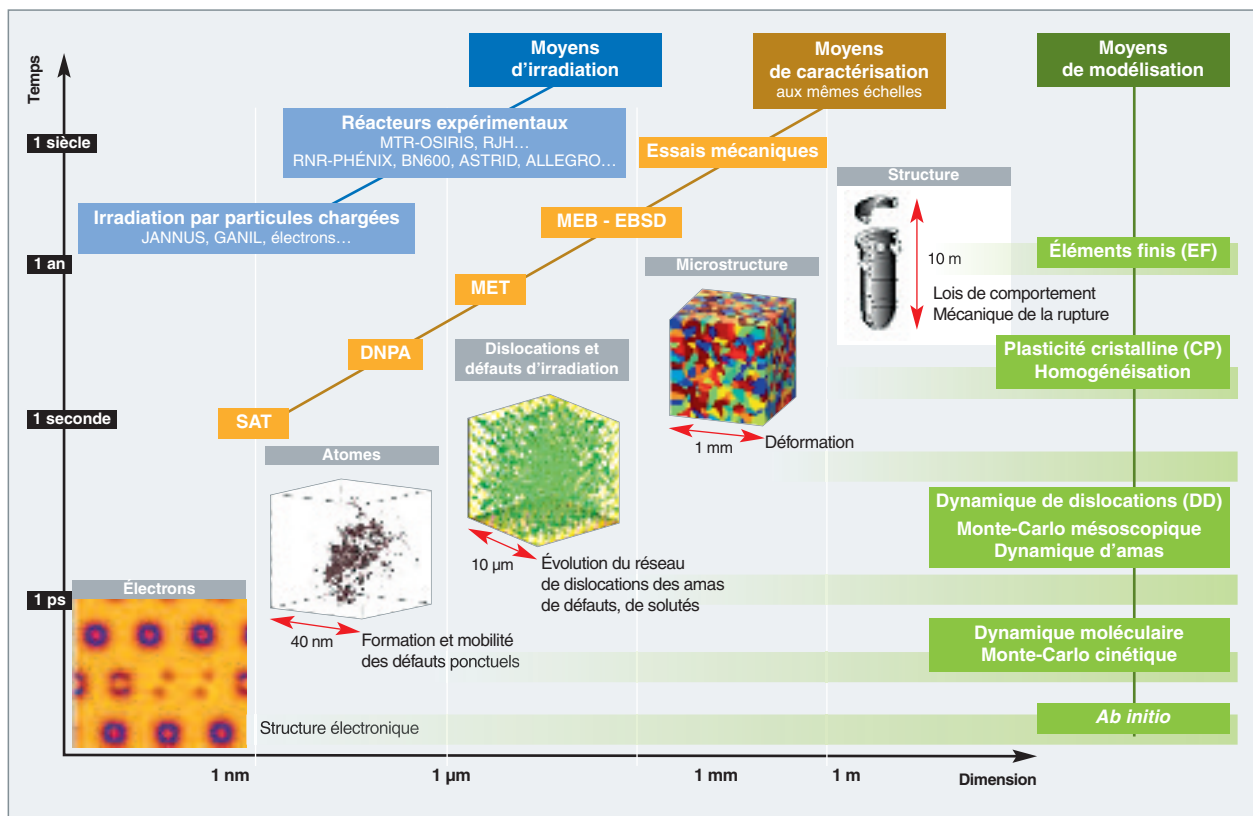


Fig. 11. Moyens de caractérisation, d'irradiation et de modélisation multi-échelles mis en œuvre pour l'étude des matériaux nucléaires.

Ce type de code est aujourd'hui capable de simuler la déformation plastique de quelques 0,1 % dans des volumes $\sim 1 \mu\text{m}^3$, ce qui est insuffisant pour simuler le comportement plastique dans de nombreuses situations du nucléaire. Des modèles de plasticité cristalline doivent prendre le relais pour décrire le comportement d'un grain de métal ; des méthodes d'homogénéisation sont alors appliquées pour décrire le comportement plastique des solides réels qui sont polycristallins.

La figure 11 schématise la modélisation multi-échelles de la plasticité des matériaux irradiés.

La validation expérimentale

Une modélisation physique fiable et prédictive nécessite une confrontation à l'expérience des prédictions obtenues. Une palette de techniques de caractérisation est disponible ou en cours de développement, aux mêmes échelles d'espace que les modèles (figure 11).

Les outils de caractérisation des matériaux

La caractérisation mécanique des matériaux utilise les outils classiques permettant de réaliser des essais de traction, de fluage, d'éclatement, d'impact, de ténacité, d'indentation nécessaires pour obtenir des caractéristiques macroscopiques telles que la limite élastique, la résistance à rupture, la

dureté... L'indentation associée à l'observation *post mortem* par **Microscopie Électronique en Transmission*** (MET*) ou les essais de traction *in situ* en MET permettent de visualiser les populations de dislocations que modélise la dynamique des dislocations.

Dans le domaine de la caractérisation microstructurale des matériaux, l'utilisation de plusieurs techniques, associée à l'augmentation significative des performances des outils d'analyse, ces dix dernières années, permet de fournir des éléments essentiels aux développements des modèles physiques des différentes échelles. Les outils classiques de caractérisation des matériaux à l'échelle mésoscopique, telle la **Microscopie Électronique à Balayage*** (MEB*) associée à la diffraction des électrons rétrodiffusés, donnent accès à l'orientation cristalline des grains constitutifs de l'alliage. La microscopie électronique en transmission (MET) classique, complétée de méthodes analytiques basées sur la spectrométrie X ou la perte d'énergie des électrons, fournit des renseignements sur la structure et la composition chimique des objets créés par l'irradiation pour des tailles supérieures au nanomètre. D'autres outils de caractérisation encore plus fins sont apparus, comme par exemple, la **Sonde Atomique Tomographique*** (SAT) qui renseigne sur la composition chimique d'objets de taille de l'ordre du nanomètre, voire inférieure. Ces techniques échantillonnent des volumes souvent faibles (l'épaisseur de la lame mince examinée en MET est

Les dislocations

En théorie de l'élasticité des milieux continus, une dislocation est une discontinuité du milieu, engendrée comme suit (procédure de VOLTERRA) : dans un milieu élastique continu, on effectue une coupure le long d'une surface S bordée par une ligne L ; à l'aide d'une contrainte externe, on déplace l'une par rapport à l'autre les deux lèvres de la coupure ; on remplit de matière le vide créé, ou l'on retire la matière en excès ; on recolle, enfin, les lèvres et on supprime la contrainte externe. On a ainsi créé un champ de déplacement dans le milieu et modifié localement le champ de contraintes.

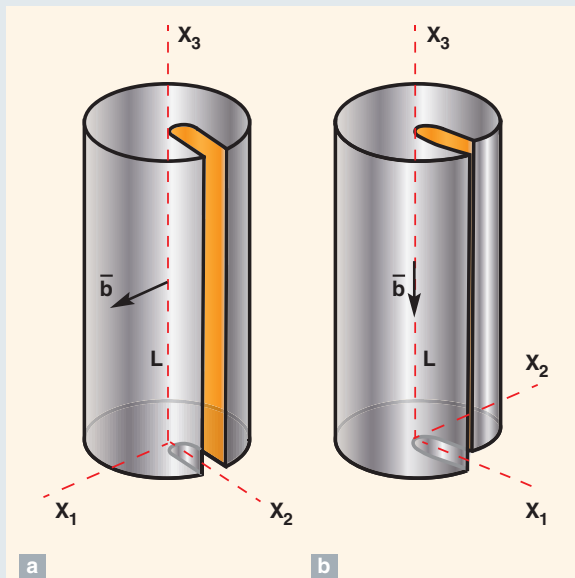


Fig. 12. Dislocations dans un cylindre élastique. a) Dislocation coin. En orange : matière ajoutée après coupure et écartement des lèvres. b) Dislocation vis. En orange : plan de coupure et de glissement des lèvres.

On distingue deux types de dislocations :

- Les dislocations coin (fig. 12a), qui correspondent à l'insertion ou au retrait de matière le long d'un demi-plan de coupure. Cette insertion déplace la matière avoisinante selon une translation perpendiculaire au plan d'insertion et à la ligne de dislocation L . Les dislocations coin peuvent être vues comme le bord d'un demi-plan atomique supplémentaire inséré dans le cristal ;
- les dislocations vis (fig. 12b), dans lesquelles les déplacements sont parallèles à la ligne de dislocation L . Les plans atomiques s'enroulent en hélice autour de la ligne de dislocation.

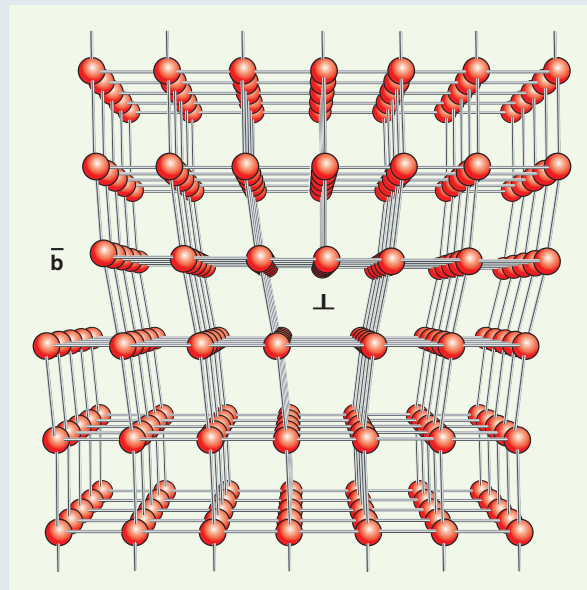


Fig. 13. Une dislocation coin dans un cristal cubique.

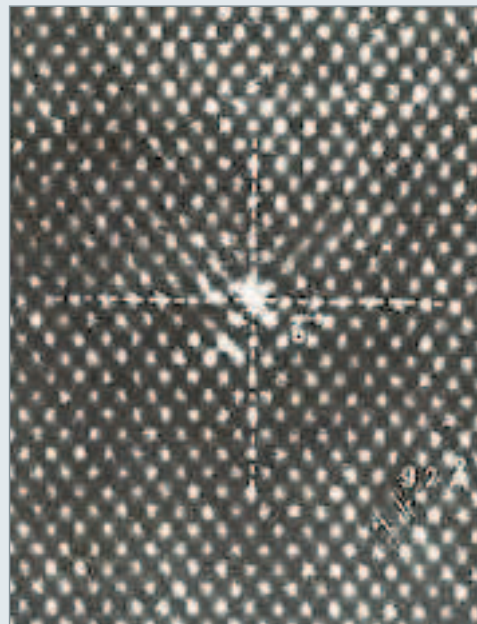


Fig. 14. Vue d'une dislocation coin dans un cristal de germanium observée au microscope électronique en transmission. On peut observer cette dislocation en inclinant la photo dans les directions NW ou NE.

Le déplacement produit par la dislocation est caractérisé par un vecteur dit « de Burgers » (\vec{b}). Pour une dislocation coin, le vecteur de Burgers est perpendiculaire au plan de coupe et à la ligne de dislocation L ; pour une dislocation vis, il est parallèle à L .

Toutes les dislocations peuvent être résolues sous la forme coin, vis ou une combinaison de ces deux types.

Dans les milieux cristallins, les dislocations affectent la régularité de l'arrangement des atomes. Elles impliquent des déplacements qui ne sont pas quelconques, dans la mesure où les translations doivent être limitées à des vecteurs du réseau cristallin, et les rotations à des opérations de symétrie du réseau. Les vecteurs de Burgers sont donc, en général, les vecteurs de la maille élémentaire.

Dislocations, contraintes et déformations

Un champ de contraintes entoure une dislocation. Le milieu est soumis à des contraintes internes principalement concentrées le long de la ligne de dislocation. Si μ est le module de cisaillement du matériau, le travail des contraintes introduites par les dislocations produit une énergie élastique stockée dans le solide $E = \mu \cdot b^2$ par unité de longueur de dislocation, ou encore, $E = \mu \cdot b^3$ par atome, puisque b est de l'ordre de la distance interatomique. Dans beaucoup de solides, cette énergie est de l'ordre de 5 eV. L'énergie élastique stockée dans une dislocation est donc considérable.

Un champ de contraintes externes interagit avec la dislocation : tout se passe comme si les contraintes externes exerçaient une force sur la ligne de dislocation qui tend alors à se déplacer dans le matériau. Le champ des contraintes appliquées provoque sur chaque élément dL de la ligne de dislocation une force linéaire $dF = \tau \cdot b \cdot dL$, où τ est la contrainte de cisaillement (cission) sur le plan de glissement. Le frottement de réseau n'autorise ce glissement qu'à partir d'une valeur précise de la **cission***, appelée « **cission résolue*** ».

Le mouvement des dislocations demande beaucoup moins d'énergie que le glissement en phase de tout un plan atomique : c'est pourquoi la déformation plastique du matériau sous contrainte externe se fait par mouvement des disloca-

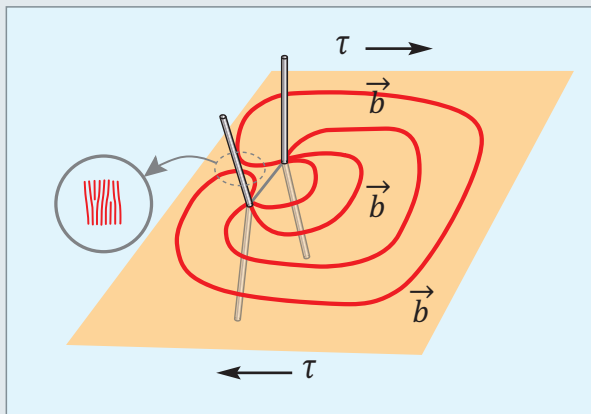


Fig. 15. Multiplication d'un segment de dislocation épinglé en ses deux extrémités (mécanisme de Frank et Read).

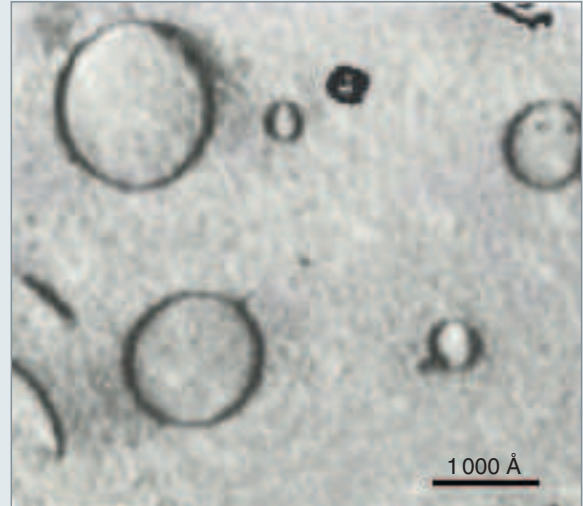


Fig. 16. Boucles de dislocation dans du tungstène, observées au microscope électronique à transmission.

tions. Celui-ci a lieu dans le plan qui contient la ligne de dislocation et le vecteur de Burgers. Le mouvement des dislocations peut être empêché par les défauts cristallins. On parle alors d'« ancrage » ou d'« épinglage » des dislocations : un matériau impur ou plein de défauts cristallins résiste, en général, beaucoup plus à la déformation plastique qu'un monocristal très pur.

L'existence d'une énergie par unité de longueur suggère qu'une dislocation de forme sinueuse a tendance à devenir rectiligne, à la manière d'une corde élastique. Sous les effets conjugués d'une contrainte externe qui tend à la déplacer, et d'ancrages locaux qui la maintiennent en place, les segments libres d'une ligne de dislocation peuvent se courber jusqu'à former des **boucles*** qui contournent les obstacles selon un processus répétitif. Ce mécanisme est connu sous le nom de « source de Frank et Read ». Il permet la multiplication des dislocations, mais demande une sollicitation d'autant plus forte que la distance entre les obstacles est faible.

L'apparition de boucles de dislocation est donc le résultat d'une déformation plastique dans les matériaux. Ces boucles sont visibles au microscope électronique, les lignes sombres étant la marque des distorsions locales du réseau, provoquées par la dislocation.

~100 nm ; le volume des pointes d'alliage analysées en SAT typiquement ~50x50x200 nm³) ; elles sont avantageusement complétées par des méthodes permettant d'échantillonner des volumes significativement plus grands, comme la **Diffusion de Neutrons aux Petits Angles*** (DNPA) qui échantillonne des volumes de l'ordre du cm³, et devient sensible à la présence d'objets nanométriques, pourvu qu'ils présentent un contraste chimique ou magnétique avec la matrice. On notera que l'observation directe des défauts ponctuels eux-mêmes reste le « parent pauvre ». Seul le microscope ionique à effet de champ (FIM¹⁶) a permis, un certain nombre de fois, de les observer, dans le tungstène notamment.

Les moyens d'irradiation

L'étude du comportement des matériaux sous rayonnement nécessite des expériences d'irradiation. L'observation de matériaux irradiés en conditions réelles de service est, bien sûr, essentielle mais pas toujours possible, notamment en ce qui concerne les structures fixes. On a alors recours à des irradiations en réacteur expérimental ou à la simulation de l'irradiation par particules chargées.

Les irradiations aux neutrons sont les plus représentatives, car c'est principalement à ces derniers que sont exposés les matériaux de structure des réacteurs. Elles sont réalisées dans des réacteurs d'irradiation des matériaux, comme le réacteur **OSIRIS***, à Saclay, ou son remplaçant le **Réacteur Jules Horowitz***, en construction à Cadarache (voir la monographie intitulée « Les Réacteurs nucléaires expérimentaux », 2012). Ces expériences sont très longues (entre cinq et dix ans, en moyenne) et très coûteuses (l'ordre de grandeur est le M€ / irradiation en réacteur expérimental). Il est, de plus, difficile en réacteurs de faire varier les conditions d'irradiation, par exemple le flux et la température de manière paramétrique. Par ailleurs, les matériaux irradiés sont, en général, actifs et ne peuvent être manipulés qu'en laboratoire de haute activité, comme le LECL au CEA Saclay. C'est pourquoi, en complément des irradiations aux neutrons, les chercheurs ont recours à des irradiations aux particules chargées (ions et électrons).

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 au fait que ce sont les premiers atomes frappés, c'est-à-dire les ions de l'alliage considéré, qui produisent les **cascades de déplacements***¹⁷. En outre, la production de noyaux de transmutation et de fission peut être simulée par implantation, lors d'expériences impliquant des faisceaux d'ions. Ce type d'outil d'irradiation permet de faire varier aisément la nature des ions, les conditions de dose, de flux et de température. Les volumes irradiés sont com-

patibles avec l'ensemble des techniques de caractérisation physicochimique¹⁸. Associées aux techniques de caractérisation, les irradiations aux ions et aux électrons constituent un outil de choix pour comprendre les mécanismes physiques des dégâts de l'irradiation aux neutrons et valider la modélisation multi-échelles des manifestations macroscopiques du vieillissement. C'est la vocation de la plateforme d'irradiation JANNUS et du réseau national EMIR (voir *infra*, p. 111).

La caractérisation mécanique et microstructurale de matériaux ayant vécu les conditions de service réelles des réacteurs électrogènes demeure essentielle pour une qualification finale de cette démarche de science des matériaux du nucléaire et pour pouvoir disposer d'outils de prédiction fiable du vieillissement à très long terme.

En résumé, seule une démarche théorique de compréhension et de modélisation des phénomènes physiques, qui se nourrit de la caractérisation mécanique, microstructurale et physicochimique moderne, à l'échelle adéquate, de matériaux réels et de matériaux-modèles irradiés aux ions, aux électrons et aux neutrons, dans des conditions bien maîtrisées, peut permettre une prédiction fiable du vieillissement des matériaux des installations nucléaires.

Bonne lecture...

La lecture de cette monographie offre un panorama complet des développements actuels des outils de modélisation physique et de prédiction des effets d'irradiation dans les matériaux utilisés dans les réacteurs d'aujourd'hui et de demain. Sont exclues du périmètre de la monographie la modélisation de l'élaboration des matériaux, la modélisation de leur corrosion et la modélisation de leur soudage.

On trouvera successivement une description des outils modernes de modélisation des matériaux (section II) ; des outils de validation expérimentale (section III) ; puis quelques exemples de modélisation de thermodynamique et de cinétique (section IV), et de plasticité et de rupture (section V).

**Jean-Louis BOUTARD, Bernard BONIN
et Chantal CAPPELAERE**

► Références

- [1] D.J. EDWARDS *et al.*, *Journal of Nuclear Materials*, **317** (2003), pp. 32-45.
- [2] C. CAWTHORNE and E. J. FULTON, *Nature*, **216** (1967), p. 575.
- [3] J.-L. BOUTARD, *Les Reflets de la Physique*, n° 38 (2014), pp. 22-27.
- [4] R. LINDAU *et al.*, *Fusion Eng. and Design*, **75-79** (2005), pp. 989-996.

16. FIM : *Field Ion Microscopy*.

17. Quant aux électrons dans la gamme d'énergie de quelques MeV, trop légers pour créer des cascades de déplacements, ils ne produisent que des paires lacune-interstitiel isolées et permettent d'étudier tous les effets d'irradiation liés à l'accélération de la diffusion.

18. En ce qui concerne la caractérisation mécanique, les volumes irradiés par les faisceaux d'ions ne permettent que les expériences d'indentation et des observations au Microscope Électronique en Transmission (MET).