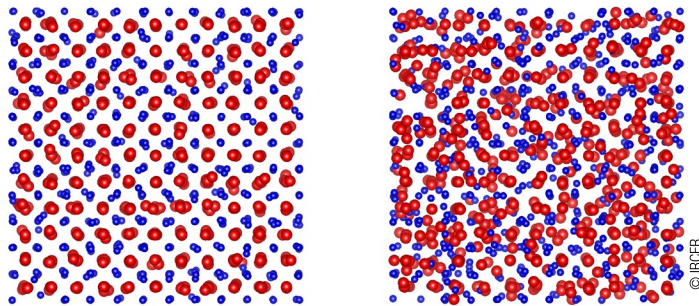


# Céramiques sous irradiation, des qualités et des défauts

La résistance à l'irradiation constitue un point fort des matériaux céramiques dans des domaines aussi variés que l'exploration spatiale, la synthèse de nanomatériaux, le dopage par implantation ionique mais également l'industrie électronucléaire.

Les matériaux céramiques sont réputés pour leurs excellentes performances dans des environnements extrêmes. Ils supportent les hautes températures, couplées ou non à de fortes sollicitations mécaniques, les milieux corrosifs, biologiques ou abrasifs, etc. Le combustible nucléaire lui-même est une céramique composée principalement d'oxyde d'uranium.

Comprendre l'évolution des céramiques soumises à des conditions radiatives intenses et prolongées est un enjeu majeur pour tous ces secteurs. L'Institut de Recherche sur les Céramiques (IRCER, UMR 7315 CNRS / Université de Limoges) est engagé dans ce processus depuis plusieurs années, notamment dans le cadre d'une collaboration avec le Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM, UMR 8609 CNRS / IN2P3 / Université Paris-Sud).



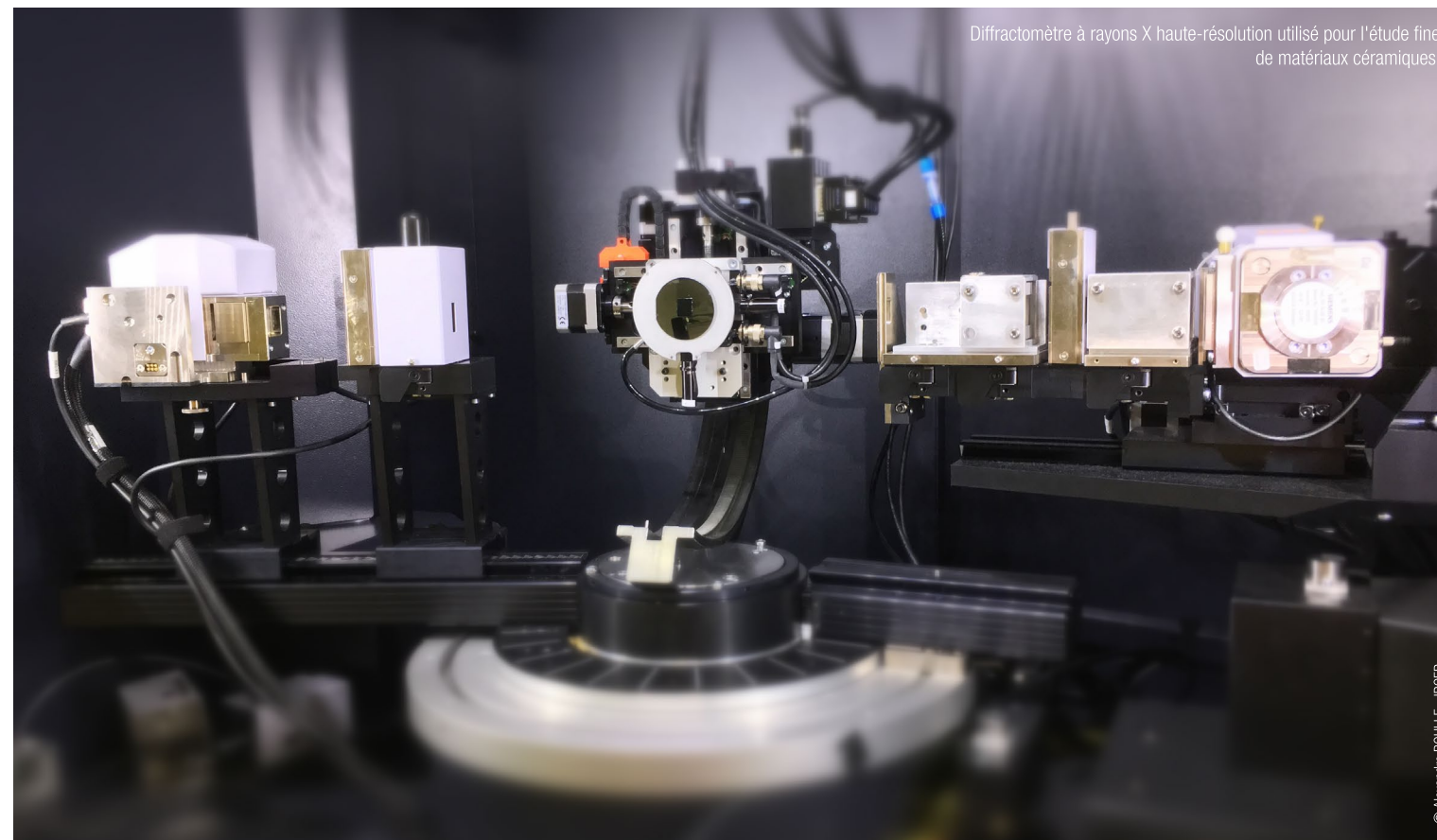
Simulation de l'amorphisation de SiC par augmentation du désordre atomique tel que mis en évidence par DRX : à gauche le cas d'un faible désordre, à droite le cas d'un fort désordre.

## LES CONSÉQUENCES STRUCTURALES DE L'IRRADIATION

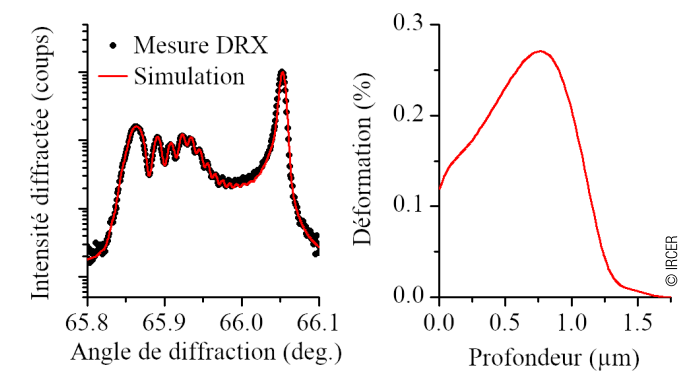
Lorsque la matière est soumise à des rayonnements énergétiques, une grande variété de phénomènes peut se produire, spécifiquement, dans le domaine du keV et au-delà : l'excitation des électrons du matériau et des chocs balistiques entre les particules incidentes et les atomes de la cible. C'est sur ce point que les recherches développées à l'IRCER se concentrent.

Lorsqu'une particule incidente présente une énergie suffisante pour déplacer un atome du matériau cible, celui-ci est éjecté de sa position initiale. Il vient se positionner dans un interstice de la structure du matériau, laissant ainsi un site libre (appelé lacune) derrière lui. Si la majorité de ces défauts structuraux se recombine spontanément, certains d'entre eux survivent et, par l'exposition prolongée au rayonnement, leur concentration augmente. Leur agglomération forme des défauts structuraux de plus en plus importants en nombre et en dimensions. Les conséquences de cette accumulation sont nombreuses et peuvent, *in fine*, compromettre l'intégrité de la céramique (gonflement, fragmentation, fissuration, amorphisation, etc.).

Afin d'appréhender les mécanismes cristallographiques accompagnant ces transformations structurales, l'IRCER collabore avec le CSNSM à l'étude de matériaux modèles (en particulier des monocristaux de plusieurs oxydes et carbures d'intérêt technologique\*), leurs conditions d'irradiations en service sont reproduites de façon paramétrique et



Diffractomètre à rayons X haute-résolution utilisé pour l'étude fine de matériaux céramiques.



Exemple d'une simulation de données expérimentales (gauche) et du profil de déformation associé (droite).

initial (la collision d'une particule avec un atome du matériau) produit une cascade de déplacements atomiques. Leur durée n'excède pas quelques picosecondes et le volume concerné n'est que de quelques nanomètres cubes. Néanmoins, la répétition de ces phénomènes, associés aux phénomènes de diffusion, de croissance et de coalescence finit par affecter des volumes macroscopiques.

Pour prédire l'évolution à long terme des céramiques soumises à des environnements radiatifs, il est indispensable de modéliser leur comportement sur la base de scénarios à l'échelle atomique réalistes. Dans ce contexte, d'importants efforts sont actuellement dédiés au couplage de méthodes de simulations à l'échelle atomique et de techniques de caractérisation, dans le but de valider ou d'invalider les mécanismes issus de ces simulations.

Ces travaux ont ainsi récemment validé les scénarios d'amorphisation de SiC (carbure de silicium) obtenus par dynamique moléculaire et mis en évidence l'existence de vols de Lévy\*\*\* dans la distribution des déplacements atomiques. Une thèse est actuellement en cours\*\*\*\* en vue de développer ces nouvelles approches dans la compréhension des mécanismes d'endommagement dans les céramiques. Un des objectifs de ces travaux de recherche fondamentale est d'alimenter en données et mécanismes des codes de calculs complexes, multi-physique et multi-échelles, servant à explorer des domaines difficilement accessibles expérimentalement (par exemple en situation accidentelle), d'optimiser les coûts et durées de conception et bien sûr d'améliorer la sécurité.

Alexandre Boule < IRCER  
alexandre.boule@unilim.fr

Aurélien Debelle < CSNSM  
aurelien.debelle@u-psud.fr

www.ircer.fr  
www.csnsn.in2p3.fr

\* notamment  $UO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $MgO$ ,  $SrTiO_3$ , SiC, ZrC, etc.

\*\* Ce logiciel, RaDMaX (acronyme de « Radiation Damage in Materials Analyzed with X-ray diffraction »), est diffusé sous licence libre (licence CEA-CNRS-INRIA Logiciels Libres, ou CeCILL) et disponible gratuitement (<https://abouille.github.io/RaDMaX/>).

\*\*\* Les vols de Lévy désignent des phénomènes où certains événements ont des amplitudes beaucoup plus grandes que ce qui est prévu dans le cas d'une loi dite « normale ». On retrouve par exemple ces phénomènes dans les migrations animales, la fluctuation des cours boursiers, la diffusion en milieu turbulent, etc.

\*\*\*\* Thèse entre l'IRCER et le CSNSM, co-financée par l'université de Limoges et l'université Paris Sud, en collaboration avec le CEA de Saclay.

contrôlée par l'utilisation de faisceaux d'ions issus d'accélérateurs de particules (en particulier ceux disponibles au CSNSM). Dans la mesure où les imperfections consécutives à l'irradiation altèrent la structure atomique de ces matériaux, il est possible de caractériser précisément les dommages subis par ces céramiques en déterminant l'évolution de leur structure cristalline. Fort d'une expertise reconnue en matière de caractérisation structurale des céramiques, l'IRCER apporte une compétence nouvelle dans ces études, par l'utilisation de techniques avancées de diffraction des rayons X.

## RAYONS X ET DÉGÂTS D'IRRADIATION

La diffraction des rayons X consiste à éclairer un matériau avec un faisceau de rayons X et utiliser l'interférence des ondes diffusées par les atomes afin d'en déduire leurs positions exactes. Les techniques interférométriques sont souvent utilisées par les scientifiques afin d'amplifier de très faibles phénomènes, comme par exemple en optique ou en astronomie avec la détection récente des ondes gravitationnelles. L'avantage majeur de cette technique est qu'elle permet, en théorie, d'obtenir des informations quantitatives sur la structure de l'échantillon et ce, de façon rapide et non destructive. Cette approche se heurte cependant à plusieurs difficultés pratiques. Il n'est pas possible d'obtenir ces informations par une lecture directe des données expérimentales. De fait, une étape de modélisation des données est indispensable. Afin de faciliter cette tâche, et de la rendre accessible au plus grand

nombre, les chercheurs de l'IRCER ont développé un logiciel\*\* de traitement des données de DRX visant à automatiser cette opération.

"... une image très précise de la structure du matériau et de son évolution..."

L'utilisation de ce programme RaDMaX permet aux scientifiques d'accéder rapidement à deux paramètres essentiels à la compréhension de l'endommagement des céramiques sous irradiation : la déformation de la structure cristalline et le désordre atomique, et ce pour une profondeur de plusieurs micromètres sous la surface irradiée avec une résolution spatiale de quelques nanomètres. L'analyse de ces deux grandeurs, couplée avec des analyses complémentaires par microscopie en transmission ou par spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford en mode canalisé produit une image très précise de la structure du matériau (en termes de nature et de densité de défauts) et de son évolution à mesure de son exposition aux rayonnements.

## COUPLER LES EXPÉRIENCES ET LES MODÉLISATIONS

Une des difficultés majeures dans la compréhension de l'endommagement des céramiques sous irradiation est son aspect intrinsèquement multi-échelles, à la fois dans le temps et dans l'espace. Le phénomène