

# Apport du rayonnement synchrotron pour la caractérisation microstructurale des aciers à dispersion d'oxydes irradiés

Denis MENUT<sup>a</sup>, Jean-Luc BÉCHADE<sup>a</sup>, Neila SELLAMI<sup>b</sup>, Sebastiano CAMMELLI<sup>c</sup>, Gaël SATTONNAY<sup>b</sup>, Magali MORALES<sup>d</sup>, Daniel CHATEIGNER<sup>e</sup>, Bruno SITAUD<sup>c</sup>, Yann DE CARLAN<sup>a</sup>

<sup>a</sup> CEA/DEN/Service de Recherche Métallurgiques Appliquées, Bât 453 PC 47, 91191 Gif-Sur-Yvette, France

<sup>b</sup> Laboratoire d'Etude des Matériaux Hors Equilibre, Institut de Chimie Moléculaire et des Matériaux d'Orsay, UMR 8182, Université Paris Sud, Bât 410, 91405 Orsay Cedex, France

<sup>c</sup> Synchrotron SOLEIL, Division Expérience, ligne de lumière MARS, L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin-BP 48, 91192 Gif-Sur-Yvette Cedex, France

<sup>d</sup> Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique, UMR 6252 CNRS-CAE-ENSICAEN et Université de Caen CIMAP-ENSICAEN, 6 Bd Maréchal Juin, 14050 Caen, France

<sup>e</sup> Université de Caen Basse-Normandie, Laboratoire CRISMAT-ENSICAEN, UMR 6508, 6 Bd Maréchal Juin, 14050 Caen Cedex 4, France

Parmi les solutions envisageables pour le gainage du combustible des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium de 4<sup>ème</sup> génération, les ODS (Oxide Dispersion Strengthened), matériaux nano-renforcés par dispersion d'oxydes (figure 1), offrent de nombreux atouts. En effet, ces matériaux à hautes performances qui constituent non seulement la première barrière de confinement des produits et des gaz de fission radioactifs, mais participe aussi à la stabilité dimensionnelle de l'assemblage combustible, allient à la fois une remarquable résistance mécanique en température et un excellent comportement sous irradiation.



Figure 1 : micrographies MET d'un acier ODS (a) consolidé par filage à chaud (direction radiale) ; (b) observation de la précipitation des nano-renforts intragranulaire

La stabilité des nano-renforts sous irradiation étant un critère déterminant du choix des matériaux ODS, de nombreuses études se sont intéressées à cette problématique [1, 2]. Des comportements très distincts sont observés sous irradiation (neutrons et ions) selon le type de matériau et les conditions d'irradiation testées. Les résultats sont cependant contradictoires, notamment pour les très petites tailles de particules inférieures à 4 nm. Ils indiqueraient que

ces nano-oxydes sont : i) non-stœchiométriques et souvent caractérisés par une structure cœur-coquille [3] ; ii) potentiellement de structure NaCl, ce qui n'a jamais été mis en évidence pour les nano-oxydes Y-Ti-O (pyrochlore ou fluorine) [3] ; iii) ne présentent pas de structure cristallographique facilement identifiable et sont fortement désordonnés, voire amorphes [4]. D'autre part, ces nano-oxydes contiendraient un taux important de lacunes, notamment confirmé par spectroscopie d'annihilation de positron [5] et par des simulations de Dynamique Moléculaire et de Fonctionnelle de Densité [6]. La forte concentration de lacunes, et notamment les interactions solutés-lacunes, permettraient de stabiliser et d'abaisser l'énergie de formation de ces nano-oxydes « métastables » en dessous de celle des oxydes d'équilibre. Bien que la nature des renforts et la température d'irradiation semblent jouer un rôle important sur les comportements observés, aucun mécanisme clair n'est proposé dans la littérature afin d'expliquer ces évolutions. Par ailleurs, la plupart des travaux ne regardent les effets de l'irradiation que sur les densités et tailles moyennes de renforts, très peu s'intéressent à la structure ou la chimie des nano-oxydes après irradiation [1, 2].

Dans le cadre de cette présentation, on se propose de montrer comment sont utilisées les techniques de Spectroscopie d'Absorption des rayons X (XANES et EXAFS) et de Diffraction des Rayons X sur des matériaux ODS élaborés au CEA irradiés dans deux types de conditions [7] : i) avec des neutrons (réacteurs expérimentaux) sur la ligne MARS du synchrotron SOLEIL [8] qui est aujourd'hui la seule ligne autorisée à recevoir des échantillons irradiant et/ou contaminant comportant des émetteurs  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  et neutrons (activités  $\leq$  à  $2 \times 10^4$  fois le seuil d'exemption) ; ii) avec des ions simulant les conditions d'irradiation en réacteur (interaction balistique), pour suivre les évolutions microstructurales des phases nano-structurées. On s'appuiera notamment sur une étude qui a porté sur le comportement d'une phase oxyde de référence  $Y_2Ti_2O_7$ , dans la structure pyrochlore, irradiée aux ions lourds qui a nécessité la mise en œuvre, en laboratoire, de mesures de DRX en incidence faible (figure 2a) et SAX (figure 2b) également en incidence faible sur la ligne MARS.

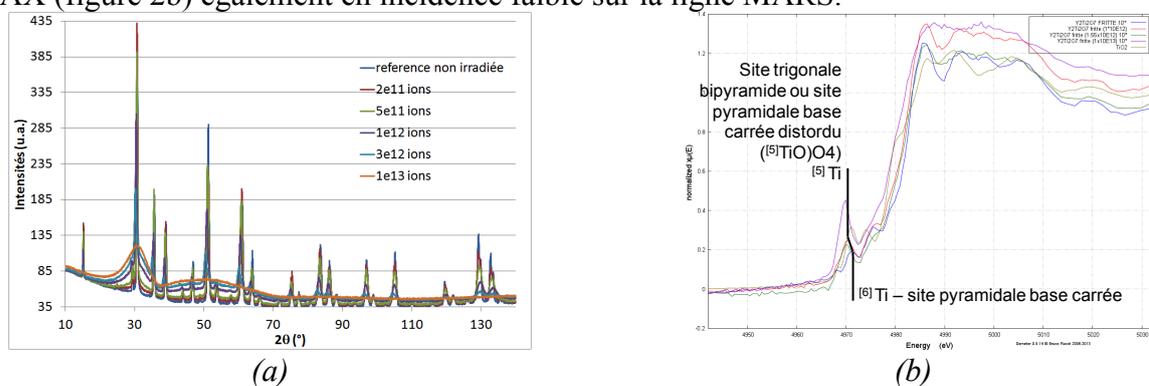


Figure 2 : Diagramme de (a) DRX et (b) mesures XANES au seuil  $K\alpha$  du Ti acquis en incidence faible sur des échantillons d' $Y_2Ti_2O_7$  massif polycristallins irradiés aux ions lourds

- [1] I. Monnet, Thèse de l'Ecole Centrale Paris, soutenue le 29 juin 1999.
- [2] M-L Lescoat, Thèse de l'Université de Lille1, soutenue le 4 décembre 2012
- [3] A. Hirata, T. Fujita, Y.R. Wen, J.H. Schneible, C.T. Liu, M.W. Chen, Nature Materials, **10** (2011) 3150
- [4] M.C. Brandes, L. Kovarik, M.K. Miller, M.J. Mills, Journal of Materials Science, **47** (2012) 3913
- [5] J. Xu, C.T. Liu, M.K. Miller, H. Chen, Physical Review B, **79** (2009) 020204-1
- [6] C.L. Fu, M. Krcmar, G.S. Painter, X-Q Chen, Physical Review Letters, **99** (2007)225502
- [7] J-L. Béchade, D. Menut, M-L Lescoat, B. Sitaud, S. Schlutig, P.L. Solari, I. Llorens, H. Hermange, Y. de Carlan, J. Ribis, L. Toulabi, Journal of Nuclear Materials, **428** (2012) 183
- [8] B. Sitaud, P.L. Solari, S. Schlutig, I. Llorens, H. Hermange, Journal of Nuclear Materials, **425** (2012) 238