

EFFETS DES RAYONNEMENTS DANS LES SOLIDES ET LES MATERIAUX POUR REACTEURS

La physique de l'état solide qui n'était guère considérée comme une science distincte, il y a 20 ou 25 ans, est devenue une discipline très active et en développement rapide. La technologie moderne exige, en effet, de plus en plus des matériaux. Cette tendance se fait surtout sentir en technologie nucléaire, où l'on recherche certaines combinaisons optima de propriétés physiques, ce qui nécessite l'étude sur de nouvelles bases des matériaux et de leurs propriétés, tant au point de vue théorique qu'au point de vue technologique. L'une des exigences les plus importantes qu'impose le génie nucléaire met en jeu un concept entièrement nouveau : la stabilité en présence des rayonnements. Pour qu'un matériau puisse être utilisé dans un réacteur, il faut qu'il puisse résister, non seulement à des températures élevées, mais aussi à des flux intenses de rayonnements nucléaires pendant des périodes prolongées.

Les particules nucléaires qui traversent les matériaux des réacteurs cèdent une partie de leur énergie aux atomes de ces matériaux et provoquent un déplacement de certains de ces atomes par rapport à leur position normale. Il en résulte finalement des modifications importantes des propriétés physiques des matériaux irradiés : dimensions, résistance, dureté, conductivité thermique et électrique, propriétés magnétiques, résistance à la corrosion, etc. Il est donc nécessaire de connaître la durée de vie utile de tout matériau employé en technologie nucléaire et on ne peut le faire qu'en étudiant les effets des rayonnements.

Etant donné le grand intérêt que suscitent les effets des rayonnements en technologie nucléaire, l'Agence internationale de l'énergie atomique a réuni un colloque sur les effets des rayonnements dans les solides et les matériaux pour réacteurs, qui s'est tenu à Venise du 7 au 11 mai 1962.

Ce colloque a rassemblé plus de 200 participants venus des pays suivants : Afrique du Sud, Allemagne, Autriche, Belgique, Canada, Danemark, Espagne, Etats-Unis d'Amérique, France, Grèce, Hongrie, Italie, Japon, Norvège, Pakistan, Pays-Bas, Pologne, Portugal, Roumanie, Royaume-Uni, Suède, Suisse, Tchécoslovaquie, Union des Républiques socialistes soviétiques et Yougoslavie, ainsi que de l'EURATOM. Environ 90 mémoires ont été présentés : 38 individuellement et les autres au cours de "tables rondes". Ils traitaient des sujets suivants : théorie générale des effets des rayonnements; métaux purs; combustibles nucléaires métalliques et céramiques; graphite et oxyde de béryllium; ralentisseurs; dommages causés dans

les semi-conducteurs, les cristaux ioniques et autres cristaux non métalliques; méthodes spéciales.

Théorie générale: effets des rayonnements sur les métaux et les alliages

A la première séance du colloque, des spécialistes de la physique théorique ont décrit les mécanismes fondamentaux des dommages causés par les rayonnements et leurs effets dans les solides et les autres matériaux. Les discussions ont mis en lumière les progrès réalisés depuis quelques années dans la compréhension des effets des collisions entre les atomes dans les solides; toutefois, des recherches théoriques plus poussées sont nécessaires pour comprendre parfaitement la nature et le mécanisme de ces effets.

Dans son mémoire sur les analogies entre les effets des rayonnements nucléaires et ceux des flux de particules chargées de faible vitesse dans les corps solides, M. Starodoutsev (URSS) a fait ressortir que les problèmes posés par les modifications radioinduites des propriétés physiques de divers matériaux acquièrent de plus en plus d'importance. Il a décrit des expériences qui montrent que de nombreux groupes de phénomènes relèvent à la fois de la physique des rayonnements et de l'électronique cathodique. A partir de ces données, il a établi un programme d'étude des effets sur les matériaux des rayonnements produits dans un réacteur.

MM. J. R. Beeler et D. G. Besco (Etats-Unis) ont présenté un mémoire expliquant comment on peut utiliser une calculatrice IBM pour déterminer les effets des rayonnements. Dans un autre mémoire, MM. J. Lindhard et P. V. Thomsen (Danemark) ont étudié la répartition de l'énergie de dissipation entre les mouvements d'électrons et d'atomes.

Trois autres mémoires, présentés par des spécialistes de Belgique, de Roumanie et des Etats-Unis, avaient trait à certains aspects de la théorie générale des effets des rayonnements.

Deux séances du colloque ont été consacrées aux effets des rayonnements dans les métaux purs, et une séance aux effets dans les alliages.

Etudiant la nature des dommages causés dans les métaux, M. A. Seeger (République fédérale d'Allemagne) a déclaré que les découvertes des trois dernières années confirmaient la théorie sur



A la séance d'ouverture du colloque de Venise, de gauche à droite: M. Henry Seligman, Directeur général adjoint de l'AIEA chargé de la recherche et des isotopes; M. Vittorio Branca, de la Fondation Cini; M. Manfredo de Bernart, Prefet de Venise; M. Sigvard Eklund, Directeur général de l'AIEA; M. Favaretto Fisco, Maire de Venise et M. Arkady Rylov, Directeur général adjoint de l'AIEA chargé de la formation et de la documentation technique

les dommages dus aux neutrons rapides qu'il avait exposée à la deuxième Conférence internationale sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques, en 1958. Toutefois, les effets des rayonnements sont mieux compris grâce à l'utilisation du microscope électronique et aux mesures de ferromagnétisme. Récemment, d'importants travaux ont porté sur le durcissement provoqué par les rayonnements et la déformation plastique des cristaux individuels durcis par l'irradiation. M. Seeger a ensuite examiné certains aspects des dommages causés par les électrons et les neutrons rapides dans les métaux nobles et le nickel.

MM. R.O. Simmons, J.S. Koehler et R.W. Balluffi (Etats-Unis) ont indiqué, dans leur mémoire, que le bombardement de métaux purs par des particules énergétiques produit divers défauts; comme la plupart de ces défauts sont à l'échelle atomique, leur étude par observation directe a été jusqu'à présent très limitée. La présence de ces défauts ponctuels dans un métal modifie plusieurs propriétés physiques, notamment la résistivité électrique, la densité, l'énergie emmagasinée et l'élasticité. En général, on a recours à deux types d'expériences pour analyser les défauts radioinduits et déterminer les mécanismes atomiques responsables des phénomènes observés dans les métaux irradiés. Le premier consiste à comparer l'ampleur et le type des défauts que laissait prévoir la théorie pour une certaine irradiation aux modifications effectives de propriétés physiques. Cette méthode donne les meilleurs résultats dans le cas de l'irradiation par les électrons. Dans un deuxième type d'expériences, le recuit thermique d'un métal à la suite d'une irradiation permet de mesu-

rer l'altération des propriétés physiques pour différentes gammes de températures. Cette méthode est particulièrement intéressante pour les basses températures. Les auteurs ont souligné que l'on avait fait de nombreuses expériences pour étudier les dommages radioinduits sur la structure cristalline des métaux et que l'on avait tenté à plusieurs reprises d'identifier les défauts et les mécanismes atomiques responsables. La théorie a pu fournir des indications grossières en vue de l'interprétation, mais un grand nombre d'explications ont malheureusement le caractère de cas d'espèce. Beaucoup de difficultés ne pourront être résolues que lorsqu'on aura acquis une connaissance plus précise des défauts les plus simples produits dans les métaux.

M. A. A. Johnson (Royaume-Uni), Mme N. Milasin (Yougoslavie) et M. F. N. Zein (RAU), dans un mémoire commun sur la fragilisation des métaux irradiés par des neutrons, ont indiqué que les expériences auxquelles on a procédé jusqu'ici dans ce domaine sont de trois ordres. On a d'abord tenté d'observer directement au microscope électronique les dommages radioinduits. Cette méthode a été employée pour le fer et le molybdène; mais on a constaté que, dans ces métaux, le dommage se manifeste à une échelle trop réduite pour être observé au microscope. En deuxième lieu, on a tenté de déterminer la nature du dommage d'après les modifications des propriétés mécaniques qu'il provoque. Cette méthode a été largement utilisée, mais les résultats sont limités du fait que l'on ne connaît pas d'une manière assez approfondie les propriétés mécaniques des métaux irradiés. Enfin, on a mesuré les modifications de propriétés physiques telles que la résistivité électrique et on a étudié la "guérison" du métal irradié lorsqu'il est chauffé au-dessus de la température d'irradiation. D'après les auteurs, cette technique donne surtout de bons résultats lorsqu'on étudie les défauts laissés par l'irradiation dans la structure cristalline. Après avoir discuté et comparé les résultats de ces trois types d'expériences, les auteurs ont décrit une série de mesures au cours desquelles les trois méthodes ont été appliquées à l'étude du comportement du molybdène irradié lorsqu'il est porté à des températures allant de 100 à 300°C.

D'autres mémoires, présentés par des spécialistes d'Allemagne, des Etats-Unis, de Belgique, du Royaume-Uni, de France, de Roumanie et de l'Union soviétique, étaient consacrés à différents aspects des dommages radioinduits dans les métaux purs.

Etudiant les dommages radioinduits dans les alliages, M. A. C. Damask (Etats-Unis) a souligné qu'il importe tout particulièrement de connaître la nature et la distribution des défauts dans les alliages, car tout état thermodynamique d'un alliage est caractérisé par la position relative des atomes. M. Damask a passé en revue les moyens permettant de modifier cette relation grâce à un bombardement par des particules lourdes.

Présentant un mémoire sur les dommages causés par les rayonnements dans le zirconium, le Zircaloy-2 et l'acier inoxydable, M. L. M. Howe (Canada) a déclaré que les matériaux qui conviennent le mieux pour le gainage du combustible et pour les tubes sous pression sont les alliages de zirconium, car ils remplissent au mieux les conditions suivantes : dureté, résistance à la corrosion, économie de neutrons et facilité de fabrication. Dans les réacteurs canadiens NPD (génératrice nucléaire de démonstration) et CANDU (à uranium et eau lourde), on utilisera du Zircaloy-2, alliage de zirconium contenant de l'étain et du fer, du nickel et du chrome en combinaison. Comme les tubes sous pression auront une température voisine de celle du fluide de refroidissement qui y circulera, ils devront pouvoir supporter des températures élevées et l'irradiation par les neutrons pendant de longues périodes. Pour améliorer les propriétés mécaniques du Zircaloy-2, on a procédé à une série d'expériences sous rayonnement. Les résultats montrent que, dans quelques cas, certaines propriétés de l'alliage ont été améliorées, notamment la résistance à la traction et l'élasticité. Ces expériences avaient également pour but d'obtenir des données sur les mécanismes de durcissement du Zircaloy-2 et du zirconium sous l'effet des rayonnements.

MM. M.S. Wechsler et R.H. Kernohan (Etats-Unis) ont passé en revue les travaux du Laboratoire national d'Oak Ridge consacrés aux effets des rayonnements sur les alliages à base de cuivre. Certaines réactions dans ces alliages sont favorisées par une exposition au bombardement par des neutrons, des électrons ou des rayons gamma. Les auteurs ont indiqué dans quelles conditions les alliages irradiés peuvent devenir instables; ces données sont précieuses pour le choix des matériaux devant être utilisés dans les milieux soumis aux rayonnements.

Certains mémoires sur les dommages radio-induits dans les alliages, présentés par des spécialistes des Etats-Unis, d'Autriche, de France, d'Italie et de l'Union soviétique, relataient des expériences effectuées sur différentes catégories d'aciers, pour lesquelles les effets des rayonnements sur les propriétés mécaniques du métal ont une importance technologique, en raison du large emploi de ce métal comme matériau de construction ou pour les cuves sous pression.

Matières fissiles, ralentisseurs et semi-conducteurs

Le colloque a ensuite étudié les effets des rayonnements sur des matériaux qui jouent un rôle très important dans les réacteurs : le combustible nucléaire lui-même, sous forme d'uranium métallique ou de composés céramiques de l'uranium contenant du carbone et de l'oxygène. Cette question a fait l'objet d'une table ronde, au cours de laquelle M. A. Herpin (France) a analysé neuf

mémoires présentés par des spécialistes d'Inde, de France, de l'Union soviétique, du Royaume-Uni et des Etats-Unis. Les phénomènes les plus importants étudiés étaient la fissuration de l'uranium et le gonflement de l'uranium sous l'effet des rayonnements, ainsi que la diffusion et la précipitation des gaz rares dans les métaux fissiles, non irradiés et irradiés.

Au cours d'une autre table ronde, M. W. E. Roake (Etats-Unis) a brossé un tableau d'ensemble des dommages radioinduits dans les combustibles céramiques.

Le comportement à l'irradiation de l'alliage uranium-carbone pour des taux de combustion faibles et élevés et les défauts produits par l'irradiation à basse température dans le carbure d'uranium moulé ont été étudiés d'après les résultats des recherches les plus récentes relatés dans sept mémoires présentés par des spécialistes des Etats-Unis, du Royaume-Uni, de France et des Pays-Bas.

Autre important problème étudié au colloque : les dommages radioinduits dans les ralentisseurs, notamment dans le graphite et l'oxyde de béryllium. La table ronde consacrée à ce sujet, après une étude d'ensemble sur le graphite présentée par M. J. H. W. Simmons (Royaume-Uni), a mis en évidence les grands progrès réalisés depuis quelques années dans la compréhension des phénomènes du dommage radioinduit dans le graphite.

MM. G. W. Keilbotz, J. E. Lee Jr., R. P. Shields et W. E. Browning Jr. (Etats-Unis), dans un mémoire sur les altérations de l'oxyde de béryllium sous l'effet des rayonnements, ont déclaré que les propriétés nucléaires de l'oxyde de béryllium et sa valeur comme matière céramique à haute température en faisaient un excellent ralentisseur ou réflecteur pour les réacteurs de puissance. Pour un emploi rationnel et rentable, il faut que l'oxyde de béryllium résiste à des doses de neutrons très élevées. Les auteurs ont décrit les expériences en cours pour déterminer les mécanismes spécifiques des dommages observés et pour calculer les paramètres optimums pour la construction et l'exploitation de réacteurs ralentis à l'oxyde de béryllium.

Si des effets appréciables sont produits dans les métaux après des expositions relativement courtes dans les réacteurs, les effets sont encore plus apparents dans d'autres matériaux, notamment dans des semi-conducteurs comme le germanium.

A une séance spéciale du colloque, M. P. Baruch (France) a lu une étude d'ensemble sur les dommages radioinduits dans les semi-conducteurs; puis une table ronde a été consacrée à huit mémoires provenant des Etats-Unis, de France, de Grèce, de Pologne et de Roumanie.

MM. J. W. MacKay et E. E. Klontz (Etats-Unis) ont déclaré que la production de défauts dans les semi-conducteurs dépend beaucoup de la température pendant l'irradiation. Les auteurs l'ont constaté au cours d'expériences effectuées pour

étudier le mécanisme des dommages radioinduits dans le germanium.

MM. P. Baruch et J.-C. Pfister (France) ont présenté un rapport détaillé sur des expériences destinées à étudier les effets des rayonnements sur la diffusion d'impuretés telles que le gallium, le bore et le phosphore dans les semi-conducteurs.

Au cours d'une table ronde, tenue pendant la même séance, M. E. L. Andronikachvili (URSS) a analysé sept mémoires sur les dommages radioinduits dans les cristaux ioniques et dans les cristaux non métalliques; ces mémoires provenaient d'Allemagne, d'Italie, du Japon, de Pologne, de Roumanie et de l'Union soviétique.

Un de ces mémoires, présenté par MM. K. Heine, G. B. Schmidt et W. Heer (Allemagne), montrait que les phénomènes chimiques ont également de l'importance dans les dommages produits par les rayonnements dans les cristaux ioniques.

Dans un mémoire sur les effets de l'irradiation aux neutrons sur les matériaux magnétiques utilisés en génie nucléaire, MM. E. Labusca, N. Andreesco et C. Motoc (Roumanie) ont décrit plusieurs expériences qui leur ont permis de déterminer les conditions dans lesquelles certains matériaux magnétiques peuvent être utilisés dans les appareils qui fonctionnent dans des champs de rayonnements.

Méthodes spéciales

A la dernière séance du colloque, on a présenté sept mémoires, provenant des Etats-Unis, du Royaume-Uni, de France, du Japon, de Roumanie et de l'Union soviétique, qui exposaient les techniques et méthodes spéciales utilisées pour étudier les effets des rayonnements.

M. R. R. Coltman (Etats-Unis) a décrit l'emploi de l'hélium liquide pour des expériences sur les effets des rayonnements aux très basses températures, à l'aide d'un appareil spécial - le "cryostat à hélium" - installé près du centre du réacteur au graphite d'Oak Ridge. Avec cet appareil, il a étudié la résistivité électrique, la libération de l'énergie accumulée, les variations de la longueur, la limite d'élasticité et d'autres propriétés des matériaux. M. Coltman a précisé qu'en plaçant le cryostat dans différentes configurations de combustible et en entourant les échantillons d'un écran mobile de cadmium, on a pu examiner tout à fait

indépendamment les dommages causés par les neutrons thermiques, par les neutrons rapides et par les neutrons de fission. Il a insisté sur les dommages causés par les rayons gamma émis par les échantillons eux-mêmes à la suite de la capture de neutrons thermiques. Il a également montré comment ces sortes de mesures peuvent aider à comprendre les mécanismes fondamentaux des dommages causés par les rayonnements.

M. V. E. Goldansky (URSS) a décrit ce que l'on appelle le "soudage nucléaire ponctuel" et indiqué certaines de ses applications. L'émission de particules lourdes chargées dans certaines réactions nucléaires produit un échauffement intense dans les micro-volumes situés sur les trajectoires des particules. En introduisant du lithium ou du bore, qui se prêtent à de telles réactions, dans la couche superficielle séparant deux matériaux quelconques et en bombardant ces matériaux par des neutrons thermiques, on provoque l'échauffement d'un grand nombre de micro-volumes à la surface de contact, ce qui produit le soudage nucléaire ponctuel: liaison très solide des matériaux, avec un effet radiochimique relativement faible. M. Goldansky a précisé que les possibilités de cette méthode avaient été mises en évidence pour la première fois lorsqu'on avait provoqué l'adhérence de polymères et d'autres matières. Plus tard, on a eu recours à cette méthode pour augmenter l'adhérence de certains tissus sur des surfaces caoutchoutées. Les résultats montrent que l'adhérence ainsi obtenue est jusqu'à quatre fois plus élevée que celle réalisée par d'autres méthodes.

Les participants ont également procédé à des échanges de vues sur les problèmes actuels les plus importants dans le domaine considéré et sur les méthodes expérimentales et théoriques qui pourraient permettre de les résoudre. Ils ont pu ainsi déterminer certaines grandes lignes des programmes de recherches qu'il y aurait lieu d'entreprendre.

Voici les noms des hommes de science qui ont présidé les réunions scientifiques ou animé les tables rondes: MM. A. Seeger (Allemagne), H. G. Van Bueren (Pays-Bas), S. V. Starodubtsev (URSS), E. W. J. Mitchell (Royaume-Uni), E. Nagy (Hongrie), A. Herpin (France), W. E. Roake (Etats-Unis), J. H. W. Simmons (Royaume-Uni), W. Kosiba (EURATOM), P. Baruch (France), E. Andronikashvili (URSS) et L. Giulotto (Italie).