

Evolution des propriétés du carbure de silicium sous d'intenses bombardements ioniques

A. Benyagoub, A. Audren, D. Lelièvre, CIRIL-GANIL, Caen
L. Thomé, F. Garrido, L. Vincent, CSNSM, Orsay

Le carbure de silicium (SiC) est l'un des matériaux envisagés dans les futurs réacteurs nucléaires à haute température, à la fois pour réaliser certains éléments du cœur et pour enrober le combustible nucléaire. Dans les conditions de fonctionnement de ces réacteurs, le SiC sera soumis à différents types d'irradiation qui à terme sont susceptibles d'altérer sa structure et modifier ses capacités de rétention pour les produits de fission. Parmi ceux-ci, le ^{137}Cs et le ^{131}I sont considérés comme étant les plus radiotoxiques. Aussi, nous nous sommes intéressés aux effets induits par l'implantation dans SiC des équivalents stables de ces deux produits de fission et aux propriétés de diffusion de ces espèces.

I- Rappel des résultats précédents

a) *Implantations à la température ambiante*

Dans une première partie de cette étude, nous avons implanté, à la température ambiante, des monocristaux de SiC (polytype α) avec des fluences croissantes d'ions Cs de 300 keV ou d'ions I de 700 keV. Nous avons suivi l'endommagement créé ainsi que le profil de concentration des ions implantés grâce à la combinaison de deux techniques de microanalyse nucléaire : la rétrodiffusion Rutherford et la canalisation. Nous avons ainsi montré qu'un désordre total est obtenu lorsque la fluence dépasse 10^{14} ions/cm². Ce résultat indique clairement que SiC est un matériau facilement endommageable par collisions nucléaires à la température ambiante : il suffit en effet de déplacer environ 25 % des atomes pour que la structure initialement cristalline devienne complètement désordonnée. De plus, l'évolution du taux de désordre en fonction de la fluence révèle une cinétique de type sigmoïdale, ce qui implique un processus d'endommagement par accumulation de défauts. Par ailleurs, on remarque que l'évolution du désordre est la même pour les deux ions (Cs et I), ce qui indique qu'il n'y a pas d'effet chimique des espèces implantées et que l'endommagement ne résulte que de processus purement collisionnels.

b) *Recuit des échantillons implantés à température ambiante*

Dans une seconde partie de ces travaux, des études de recuits thermiques ont été menées jusqu'à 1300°C pour les échantillons implantés avec du césium et jusqu'à 1000°C pour ceux implantés avec de l'iode. Les analyses structurales révèlent un recuit progressif du désordre commençant vers 600°C pour donner lieu à une guérison de la moitié du désordre vers 1300°C (température maximale du four utilisé). En parallèle, les atomes de césium implantés ne commencent à diffuser que dans un domaine de température compris entre 1100 et 1300°C. Ce résultat est extrêmement encourageant car il indique un grand pouvoir de rétention de SiC, même lorsqu'il est complètement désordonné.

II- Résultats récents

a) Implantations à haute température

Rappelons que dans les expériences précédentes, les implantations ont été faites à la température ambiante. Il est important de considérer aussi le rôle de la température d'implantation sur les effets induits par les espèces implantées. Dans ce but, nous avons implanté, à 400°C et à 600°C, des monocristaux de SiC avec des fluences croissantes d'ions I de 700 keV. Nous avons suivi *in situ* l'endommagement créé ainsi que le profil de concentration des ions implantés. Dans les deux cas, le profil de concentration correspond exactement à celui obtenu à la température ambiante, ce qui signifie que l'iode ne migre pas lorsqu'il est implanté à 400 ou à 600°C. Par contre, nous avons trouvé que le désordre créé par cette implantation est beaucoup plus faible (plus d'un ordre de grandeur) que celui obtenu à la température ambiante. Il est de même nettement plus faible que celui obtenu après implantation à la température ambiante suivie d'un recuit à 600°C. Ces résultats montrent clairement que l'irradiation de SiC à haute température n'endommage que faiblement ce matériau; ils sont extrêmement encourageants pour l'utilisation du carbure de silicium dans les futurs réacteurs à hautes températures.

b) Irradiations avec des ions lourds rapides à différentes températures

Afin de simuler les effets des fragments de fission, nous avons soumis des monocristaux de SiC à des irradiations avec des ions lourds de haute énergie (régime du ralentissement électronique). Ces expériences ont été effectuées à la température ambiante sur la Sortie Moyenne Energie de l'accélérateur GANIL avec des ions Ni de 300 MeV et des ions Pb de 800 MeV. L'analyse par rétrodiffusion Rutherford en canalisation des échantillons irradiés montre un taux d'endommagement nettement plus faible que celui obtenu par des ions de basse énergie (régime du ralentissement par collisions nucléaires). Ce faible endommagement a aussi été confirmé et quantifié par les techniques de spectro-photométrie UV-visible et de diffraction de rayons X. Une expérience a aussi été réalisée à la température de 600°C sur la sortie IRRSUD de l'accélérateur GANIL avec des ions Pb de 104 MeV jusqu'à une fluence de $1,4 \times 10^{14}$ Pb/cm². Là aussi, le désordre créé est extrêmement faible (quelques %) par rapport à celui généré à la température ambiante par des ions de basse énergie. On peut donc en déduire que les fragments de fission n'endommagent que faiblement le carbure de silicium.

c) Implantations et irradiations à haute température

Des monocristaux de SiC ont été préalablement implantés à la température de 600°C avec des ions I de 700 keV à la fluence de 10^{15} ions/cm². Comme on l'a vu au paragraphe II-a, ces échantillons contiennent très peu de désordre (quelques %) en raison de la température d'implantation élevée. Ils ont ensuite été irradiés, toujours à 600°C, soit sur IRRSUD avec des ions Pb de 104 MeV jusqu'à une fluence $1,4 \times 10^{14}$ Pb/cm² pour simuler le rôle des fragments de fission, soit sur ARAMIS avec des ions Au de 6,8 MeV jusqu'à une fluence de $6,3 \times 10^{15}$ Au/cm² pour simuler le rôle des collisions nucléaires. Dans les deux cas, on trouve que les profils d'iode sont les mêmes avant et après irradiation. On peut déduire de ces résultats que l'iode ne diffuse pas sous irradiation (qu'on soit en régime de ralentissement nucléaire ou électronique) jusqu'à une température de 600°C.

Les travaux scientifiques prévus pour les années futures se scindent en deux parties présentant des horizons différents :

- a) A court terme, nous souhaitons étendre les études d'effets d'irradiation et de diffusion sous irradiation à des températures plus élevées que celles utilisées jusqu'à présent.

Pour cela, nous disposons d'un four pouvant monter jusqu'à 1500°C, partiellement financé par le GDR GEDEPEON et actuellement en fonctionnement. En outre, dans ce type d'étude, il est particulièrement intéressant de corrélérer le taux de désordre créé dans les échantillons irradiés à la variation des dimensions de ces échantillons (gonflement). De telles expériences requièrent l'acquisition d'un profilomètre permettant de mesurer des hauteurs de marche entre parties irradiées et parties vierges de l'ordre de quelques centaines de nanomètres (voir la demande budgétaire).

- b) A plus long terme, afin de nous approcher un peu plus des conditions de fonctionnement d'un réacteur, nous aimerions étudier les effets combinés du ralentissement nucléaire et du ralentissement électronique simulés par des irradiations concomitantes avec des ions de basse et de haute énergie. La combinaison de ces deux types d'interaction est en effet rarement prise en compte dans ce type de problématique, et des résultats très préliminaires permettent d'envisager une éventuelle synergie entre les effets induits par ces deux phénomènes.

Demande budgétaire pour 2007

a) Ressources humaines

- CIRIL : - 0,5 chercheur permanent par an;
 - 0,5 doctorant par an;
 - 0,3 technicien par an.
- CSNSM : - 0,75 chercheur permanent par an;
 - 0,2 technicien par an.

b) Matériels disponibles et opérationnels

CIRIL

- Faisceaux de la Sortie Moyenne Energie avec chambre d'irradiation et diffractomètre à Rayons X (CHEXPIR) en ligne
- Possibilité d'utiliser un four (~ 600 °C) pour les irradiations
- Faisceaux d'IRRSUD avec chambre d'irradiation

CSNSM

- Faisceaux d'IRMA/ARAMIS avec chambre d'irradiation et d'analyse RBS/C *in situ*
- Four (température maximale de 1000 °C) pour les irradiations et l'analyse RBS/C *in situ*
- Four (température maximale de 1500°C) pour les traitements thermiques *hors situ*

c) Equipement prévu

- Profilomètre (de type 'Talystep') pour les mesures de gonflement sur les échantillons irradiés. Ce genre d'équipement n'existe dans aucun des deux laboratoires. Financement prévu : ~30 000 €. Une contribution du GDR GEDEPEON est demandée à hauteur de 4 000 €.

d) Consommables

- 40 échantillons de carbure de silicium de type 6H de dimensions ~ 10mm×10mm×1mm soit 2 wafers de 2 pouces (à 1500 € pièce) pour un total de: 3 000 €.
- 40 échantillons de carbure de silicium de type 3C de dimensions ~ 10mm×10mm×1mm soit 2 wafers de 2 pouces (à 2000 € pièce) pour un total de: 4 000 €.
 Une partie des échantillons est prévue pour les études à haute énergie tandis que l'autre partie est destinée aux études à basse énergie. Le nombre total d'échantillons se justifie par la nécessité de varier plusieurs paramètres: le type et la fluence d'ions, et la température d'irradiation.
- Porte-cibles pour les différentes techniques d'analyse: 2 000 €.
- Détecteurs pour les expériences RBS/C *in* et *ex situ*: 3 000 €
- Tube céramique pour recuits thermiques: 1 500 €
- Découpe et polissage d'échantillons pour TEM 2 000 €

e) Missions de travail

- Missions Caen-Orsay pour les expériences sur ARAMIS: 2 500 €.
- Missions Orsay-Caen pour les expériences au GANIL: 2 500 €.

Récapitulatif des demandes:

- Missions de travail et consommables: 20 500 €
- Contribution à l'achat d'un profilomètre : 4 000 €

Total : 24 500 €