

Modélisation de la nucléation des bulles d'hélium 3 dans un tritium métallique à l'aide d'un automate cellulaire

La modélisation des phénomènes physiques induisant la germination des bulles d'hélium 3 à l'échelle microscopique dans le tritium de palladium a été entreprise en s'appuyant sur un automate cellulaire tridimensionnel. Au moyen de probabilités de changements d'états des cellules de l'automate, les phénomènes physiques impliqués dans la genèse des bulles ont été modélisés.

Un des principaux résultats montre que la phase de germination est quasiment achevée après quelques jours de vieillissement, et ce quels que soient les paramètres d'entrée appliqués. Le système fait croître par la suite les bulles au lieu d'en créer de nouvelles. Il a également été montré que la densité de bulles atteinte est très dépendante de la mobilité de l'hélium 3 au cours des premiers jours de vieillissement. Plus grande est la mobilité de l'hélium 3, plus faible est la densité de bulles.

M. Segard • A. Fabre • S. Thiébaud CEA-Valduc

F. Montheillet École nationale supérieure des mines, UMR-CNRS 5146, Saint-Etienne

Le tritium est un isotope de l'hydrogène essentiel pour la production d'énergie par fusion thermonucléaire. Cependant, en raison de sa nature radioactive et de sa grande diffusivité, des conditions de stockage particulières sont requises afin de pouvoir le manipuler en toute sécurité. Ainsi, le tritium est souvent stocké sous forme de tritures métalliques. Le palladium est couramment employé comme métal hôte puisque, entre autres, il absorbe et désorbe le tritium aisément.

Néanmoins, l'hélium 3 apparaissant suite à la décroissance radioactive du tritium dans le palladium ($T \rightarrow {}^3\text{He}^{++} + \beta^- + \bar{\nu}$) va précipiter sous forme de bulles nanométriques et, au cours du vieillissement, ces bulles vont modifier les propriétés mécaniques [1] et thermodynamiques [2] du tritium. Afin de prédire l'évolution des propriétés du matériau au cours du vieillissement, il est indispensable de comprendre les mécanismes régissant le comportement de l'hélium 3 à l'échelle microscopique.

La présente étude est focalisée sur la modélisation de la phase de nucléation des bulles d'hélium [3]. Cette modélisation est entreprise à l'aide d'un automate cellulaire décrivant le matériau à l'échelle atomique (figure 1). L'objectif est de caractériser la manière dont se forment les bulles en fonction de paramètres définis (mobilité des atomes d'hélium, quantité de défauts...).

Les phénomènes physiques impliqués dans la genèse des bulles, que ce soit la diffusion du tritium, la formation d'hélium 3 par décroissance du tritium, la diffusion de l'hélium, l'auto-piégeage des atomes d'hélium ou la croissance des bulles, sont pris en compte dans ce modèle. Cela est réalisé grâce à l'utilisation de simples règles de changement d'état des cellules de l'automate. La présence de défauts préexistants comme des lacunes est également considérée.

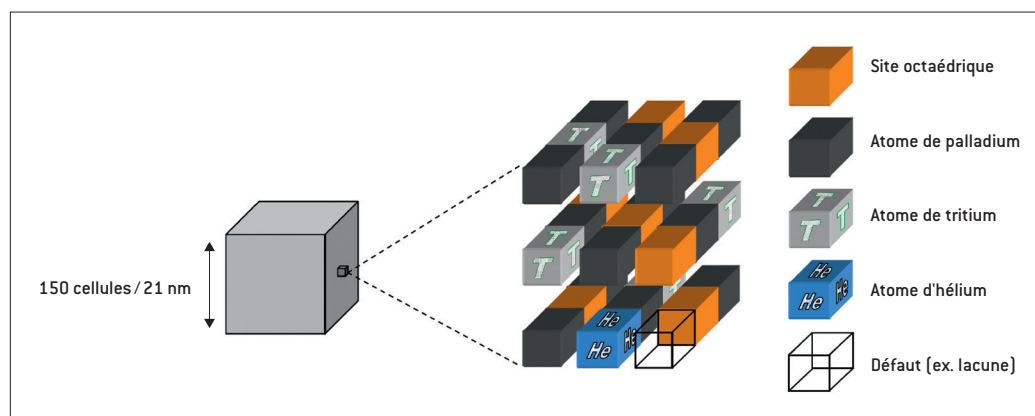


Figure 1. Représentation schématique de l'automate cellulaire dans sa configuration actuelle.

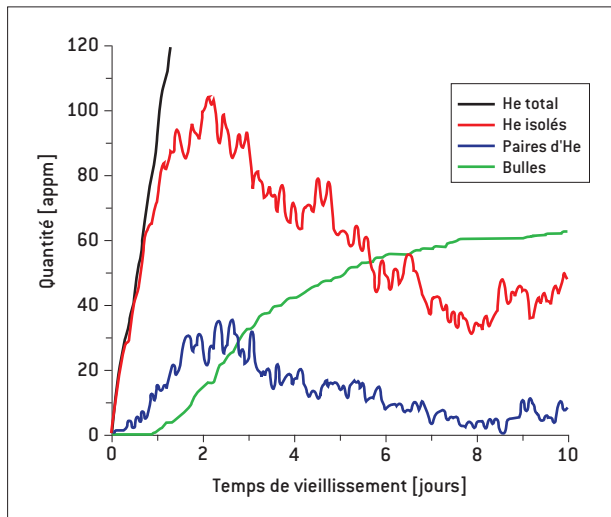


Figure 2. Évolution du nombre d'atomes d'hélium 3 total dans le système, du nombre d'atomes d'hélium isolés, du nombre de paires d'atomes d'hélium et du nombre de bulles, en l'absence de sites de piégeage.

Résultats du modèle dans le cas général

L'évolution typique, en fonction du vieillissement, de la concentration de l'hélium sous ses différentes formes dans le matériau, qu'il soit « isolé » (atome diffusant de site interstitiel en site interstitiel), en paire, ou en bulle est présentée sur la **figure 2**.

Initialement, les atomes isolés sont seuls et diffusent librement. Quand leur concentration s'élève, 2 atomes d'hélium isolés ont une plus grande probabilité de se rencontrer et forment une paire difficilement dissociable. Un troisième atome peut rencontrer la paire et être à son tour piégé, un peu plus profondément. Tous les autres atomes se joignant à l'amas seront piégés davantage.

Dans le modèle, une bulle d'hélium est comptabilisée dès que la taille d'un amas atteint trois atomes (l'amas est supposé indissociable à ce stade). Cela explique l'augmentation du nombre d'atomes isolés en premier, puis des paires,

et enfin des bulles. La quantité d'atomes isolés décroît ensuite puisque l'augmentation du nombre de bulles fournit des sites de piégeage additionnels. Par conséquent, moins de paires sont formées et la vitesse d'apparition des bulles décroît.

Finalement, quand le nombre de bulles est suffisamment important, un atome isolé a une probabilité plus élevée de rencontrer une bulle plutôt qu'un autre atome isolé durant sa diffusion : un régime quasi stationnaire est atteint, dans lequel les nombres d'atomes isolés, de paires et de bulles n'évoluent plus significativement. Il est remarquable de noter que ce régime apparaît seulement après 10 jours de vieillissement (à comparer à la durée de vie du dispositif de stockage qui peut dépasser 10 ans). Dans cette configuration de l'automate, la quantité de bulles ramenée au volume modélisé donne une densité de bulles de 2.10^{25} m^{-3} , proche de ce qui est mesuré expérimentalement [4].

Influence de la mobilité de l'hélium sur la quantité de bulles formées

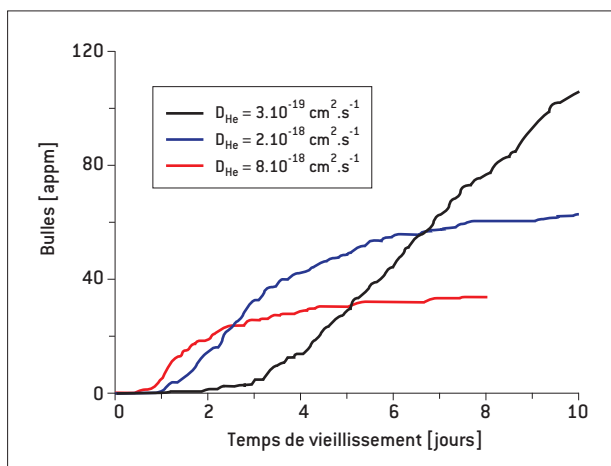
En fonction de la température de stockage du tritium métallique, l'hélium n'a pas la même mobilité. Or, la diffusivité de l'hélium va influencer sur la quantité de bulles nucléant au sein du matériau. Pour souligner cette influence, différents coefficients de diffusion (D_{He}) ont été attribués à l'hélium et les évolutions au cours des premiers jours du vieillissement ont été calculées.

Quand D_{He} diminue, une nette augmentation de la quantité d'atomes isolés, et par conséquent du nombre de paires, a pu être soulignée. Cela impacte fortement la quantité de bulles formées (**figure 3**): leur nombre augmente d'un facteur supérieur à 4 quand D_{He} baisse d'un facteur 25 (soit une baisse de la température d'environ 10%).

Conclusion

Cette étude a pu montrer que la densité de bulles d'hélium est établie très rapidement au cours du vieillissement, et ce, quels que soient les paramètres d'entrée appliqués. Cette densité de bulles est très dépendante de la diffusion de l'hélium, et il a pu être mis en évidence que la baisse de la mobilité de l'hélium entraîne une hausse de la quantité de bulles dans le système. Par conséquent, le contrôle de la température de stockage du tritium au cours des premiers jours est un point clé de la maîtrise du vieillissement.

Figure 3. Évolution du nombre de bulles sur 8 à 10 jours de vieillissement en fonction du coefficient de diffusion de l'hélium.



RÉFÉRENCES

- [1] F. MONTHEILLET, D. DELAPLANCHE, A. FABRE, E. MUNIER, S. THIÉBAUT, "A mechanical analysis of metallic tritide aging by helium bubble growth", *Mater. Sci. Eng. A*, **494**, p. 407-415 [2008].
- [2] S. THIÉBAUT, M. DOUILLY, S. CONTRERAS, B. LIMACHER, V. PAUL-BONCOUR, B. DÉCAMPS, A. Percheron-Guégan, "He-3 retention in LaNi5 and Pd tritides: Dependence on stoichiometry, He-3 distribution and aging effects", *J. Alloys. Comp.*, **446-447**, p. 660-669 [2007].
- [3] M. SEGARD, A. FABRE, S. THIÉBAUT, F. MONTHEILLET, "Bubble nucleation process in a metal tritide modeled using a cellular automaton", *J. Nucl. Mat.*, **420**, p. 388-395 [2012].
- [4] A. FABRE, B. DÉCAMPS, E. FINOT, J. M. PÉNISSON, J. DEMOMENT, S. THIÉBAUT, S. CONTRERAS, A. PERCHERON-GUÉGAN, "On the correlation between mechanical and TEM studies of the aging of palladium during tritium storage", *J. Nucl. Mat.*, **342**, p. 101-107 [2005].