

Titre : modélisation du dommage primaire à l'évolution de la microstructure sous irradiation aux ions et neutrons

Sujet de la thèse

La prédiction des propriétés macroscopiques des matériaux nécessite souvent un certain nombre de données de l'échelle atomique. Dans le contexte des matériaux pour réacteurs nucléaires, ces données sont entre autre le dommage primaire, c'est-à-dire l'ensemble des défauts créés lors de l'interaction d'une particule énergétique telle qu'un neutron ou un ion avec les atomes du matériau. La particule énergétique va interagir avec les électrons et les noyaux des atomes composant la cible. Cette interaction dépend de la masse, de la charge et de l'énergie de la particule incidente ainsi que des caractéristiques de la cible. Durant cet événement, le noyau touché peut transmuter : il y aura, dans ce cas, création d'un nouvel élément, il reçoit également une certaine quantité d'énergie cinétique. Si celle-ci est suffisante pour qu'il quitte son site atomique, il entrera en collision avec les atomes de son voisinage. Ceux-ci peuvent à leur tour acquérir suffisamment d'énergie cinétique pour produire de nouvelles collisions. Ce phénomène se produisant de proche en proche (le phénomène à l'échelle atomique est comparable aux chocs entre des boules de billard), déclenche, ainsi, une avalanche de déplacements atomiques appelée « cascade de déplacements ou de collisions » voir par exemple https://en.wikipedia.org/wiki/Collision_cascade. La durée et la taille de la cascade, et par conséquent le nombre de défauts produits, dépendent essentiellement des caractéristiques du premier atome déplacé, couramment appelé Primary Knock-on Atom (PKA) et de la structure du métal irradié. Les mécanismes élémentaires qui sont à l'origine du dommage d'irradiation ne peuvent être systématiquement observés par des techniques expérimentales en raison de leur très courte durée de vie (quelques picosecondes), et de leur faible étendue spatiale (entre quelques angströms et quelques centaines d'angströms). Une meilleure compréhension du dommage d'irradiation implique donc le développement conjoint de techniques de modélisation et expérimentales de caractérisation de la microstructure. Cette thèse s'inscrit dans le **développement des techniques de modélisation** et plus particulièrement sur une meilleure description du dommage primaire et de son évolution. Pour se faire, il faut développer des potentiels interatomiques représentatifs des matériaux étudiés. Si ces potentiels sont en général assez bons pour représenter le matériau à l'équilibre, et que l'on sait également représenter les interactions à très courte distance en cas de compression extrême à l'aide de modèles de Coulomb et de modèles de Coulomb écrantés, il n'existe pas de méthodologie encore établie sur l'extension de ces potentiels pour les distances intermédiaires, donc pour faire le lien entre compression extrême et équilibre alors que cette partie intervient lors des cascades de déplacements et influe beaucoup sur la formation de défauts (leurs nombres et leurs distributions). Il est donc important d'établir une **méthode de construction de cette partie intermédiaire pour une modélisation fiable du dommage primaire**. Cela constitue le premier volet de la thèse. Pour ce faire le doctorant s'appuiera d'une part sur des résultats obtenus au laboratoire ces dernières années sur la caractérisation de différentes propriétés des potentiels et la corrélation entre ces propriétés et le dommage obtenu. D'autre part, il utilisera des résultats de calculs dits « ab initio ».

Dans un deuxième temps, des **cascades de déplacements seront simulées** en dynamique moléculaire pour obtenir « le terme source » permettant de modéliser **l'évolution du dommage primaire créé** par neutrons mais également par ions en des défauts de taille plus grande qu'il sera alors possible de **comparer aux résultats expérimentaux**. Pour cela les distributions des PKA produits par ions et neutrons seront calculés avec les logiciels SRIM et SPECTER, et l'évolution du dommage primaire

modélisé par notre code de Monte Carlo cinétique LAKIMOCA. Pour obtenir des résultats représentatifs incluant les événements rares, un nombre important de simulations devra être analysé, ce qui nécessitera de mettre en œuvre des méthodes de traitement de grand volume de données (statistiques et big data), avec si nécessaire l'utilisation des outils de machine learning.

Les matériaux visés seront le fer pour assoir la méthode, car il existe de nombreux potentiels différents pour ce métal qui a beaucoup été étudié, puis le Ni et à plus longue échéance le NiCr considéré comme matériau simplifié mais représentatif des matériaux austénitiques utilisés en réacteurs.

Contexte de ce travail

Ce travail s'inscrit d'une part dans le cadre d'un projet structurant ions/neutrons conduit au sein d'un programme national incluant le CNRS et les partenaires du nucléaire en France (CEA, EDF, FRAMATOME) visant à comparer l'effet des irradiations aux ions et avec des neutrons dans les matériaux mais également dans le cadre de projets européens tels que SOTERIA (Safe long term operation of light water reactors through the improved understanding of radiation effects ; <http://www.soteria-project.eu/>), sa suite et les programmes d'eurofusion.

En parallèle à ce travail de modélisation, et dans le cadre du projet structurant ions/neutrons, des **études expérimentales sont prévues**, basées sur l'utilisation de la spectroscopie d'annihilation de positons (PAS) et des recuits de résistivité (RR) pour sonder l'endommagement dans des métaux irradiés avec des ions. Dans les 2 ans qui viennent l'implémentation du dispositif de recuit de résistivité (RR) au laboratoire CEMHTI à Orléans sera finalisée. Des mesures seront réalisées sur le fer dans une première étape pour comparer les résultats obtenus avec des études publiées et qualifier le dispositif. Puis afin de se rapprocher des matériaux austénitiques commerciaux utilisés dans les réacteurs (316 par exemple) l'endommagement induit dans des métaux de structure CFC comme le Ni et NiCr sera caractérisé grâce aux deux techniques complémentaires RR et PAS.

La comparaison des résultats des simulations avec ces deux types de méthodes expérimentales de caractérisations des microstructures, **se fera en collaboration avec le Royal Institute of Technology (KTH)** à Stockholm où une thèse sur la modélisation du signal de positons et de la résistivité des défauts ponctuels et de leurs amas est en cours. Les interactions entre les deux thèses seront intensifiées par des échanges : chacun des étudiants fera un ou plusieurs séjours dans le laboratoire de l'autre.

Encadrement et lieu de la thèse

L'étudiant intégrera l'équipe métallurgie de l'UMET (umet.univ-lille1.fr) laboratoire situé à Villeneuve d'Ascq, à côté de Lille, dans le nord. L'UMET est composé d'environ 80 enseignants chercheurs et chercheurs CNRS, d'une quarantaine de personnels administratifs et de soutien à la recherche, d'une soixantaine d'étudiants en thèse, et d'une quinzaine de chercheurs contractuels et professeurs émérites. L'UMET développe une recherche centrée sur la science des matériaux dans des champs d'applications diversifiés pouvant viser une application directe industrielle ou la compréhension de processus élémentaires. L'équipe métallurgie travaille en collaboration avec EDF depuis plus de 20 ans et participe à de **nombreux projets européens** relatifs à la modélisation du dommage d'irradiation.

La thèse sera encadrée par Charlotte Becquart, professeur à l'École Nationale Supérieure de Chimie de Lille, qui appartient au laboratoire UMET (Unité Matériaux et Transformations) situé à Villeneuve d'Ascq et Christophe Domain, ingénieur chercheur à EDF R&D à Moret sur Loing, avec des interactions avec Marie France Barthe (CEMHTI, Orléans), Pär Olsson (KTH, Suède) et Gilles Adjanor (EDF R&D).

Charlotte Becquart et Christophe Domain travaillent depuis plus de 20 ans sur la modélisation du dommage d'irradiation aux échelles atomiques et mésoscopiques. Ils **utilisent et développent** des moyens de simulation pour l'étude à l'échelle atomique de phénomènes de déformation, de changements de phases et d'endommagement par irradiation etc. Les techniques mises en application sont la Dynamique Moléculaire (DM), les méthodes de Monte Carlo (MC) et des méthodes de calcul de structures électroniques utilisant les premiers principes (méthodes « ab initio »).

Publications représentatives du C. Becquart et C. Domain concernant le sujet de la thèse :

"Influence of the interatomic potentials on Molecular Dynamics simulations of displacement cascades", C.S. Becquart, C. Domain, A. Legris & J.C. van Duysen, Jour. Nucl. Mater 280 (2000) 73.

"Ab initio threshold displacement energies in iron", P. Olsson, C.S. Becquart & C. Domain, Mater. Res. Lett. 4 (2016) 219

"An empirical potential for simulating vacancy clusters in tungsten" D. R. Mason, D. Nguyen-Manh & C. S. Becquart, Jour. Phys. Cond. Matter. 50 (2017) 505501.

Profil recherché

Ce sujet, interdisciplinaire, s'adresse aux étudiants (es) motivés par la simulation numérique des matériaux (échelle atomique et mésoscopique). Le/la candidat(e) devra être titulaire d'un diplôme d'ingénieur et/ou d'un master.

Le poste nécessite de solides connaissances en **science des matériaux** et **cristallographie**, de bonnes aptitudes de **communication orale et écrite** (en anglais a minima) pour présenter aux congrès et rédiger des articles dans des revues scientifiques. Nous recherchons un/une jeune chercheur(se) qui saura s'impliquer dans son projet, **curieux (se)**, ayant une certaine **autonomie** et une forte **motivation** pour développer des compétences en **modélisation** dans le domaine des **matériaux métalliques**. De plus, le/la candidat(e) devra être apte à travailler en équipe sur des projets pluridisciplinaires. Le/la candidat(e) doit de plus avoir nécessairement des **connaissances en programmation et des notions de linux**.

Les candidatures devront inclure un CV détaillé ; au moins deux références (personnes susceptibles d'être contactées) ; une lettre de motivation ; un résumé d'une page du mémoire de master ; les notes de Master 1 ou 2 ou d'école d'ingénieur.

Pour postuler : <https://emploi.cnrs.fr/Offres/CDD/UMR8207-CHABEC-002/Default.aspx>

La date de début de la thèse est le 1^{er} octobre 2019 et sa durée sera de 3 ans.

ATTENTION : ETANT DONNEE LA PERIODE ESTIVALE UN CERTAIN DELAI DANS LES REPONSES DE C. DOMAIN ET C. BECQUART EST A ATTENDRE.

Title: modeling the primary damage to the evolution of the microstructure under irradiation with ions and neutrons

Objective and subject of the thesis:

Prediction of the macroscopic properties of materials often requires a certain amount of atomic scale data. In the context of materials for nuclear reactors, these data are among others the primary damage, that is to say the set of defects created during the interaction of an energetic particle such as a neutron or an ion with the atoms of the material. The energetic particle will interact with the electrons and nuclei of the target atoms. This interaction depends on the mass, charge and energy of the incident particle as well as the characteristics of the target. During this event, the affected nucleus can transmute: there will be, in this case, creation of a new element. It also receives a certain amount of kinetic energy. If this energy is high enough for the atom to leave its atomic site, it will collide with the atoms of its neighborhood. These can in turn acquire enough kinetic energy to produce new collisions. This phenomenon occurring step by step (the phenomenon on the atomic scale is comparable to the shocks between billiard balls), triggers, thus, an avalanche of atomic displacements called "displacement cascades or collisions cascades" see for example https://en.wikipedia.org/wiki/Collision_cascade.

The duration and the size of the cascade, and consequently the number of defects produced, depend essentially on the characteristics of the first atom displaced, commonly called Primary Knock-on Atom (PKA) and the structure of the irradiated metal. The elementary mechanisms that cause radiation damage cannot be systematically observed by experimental techniques because of their very short lifetime (a few picoseconds), and their small spatial extent (between a few angstroms and a few hundred angstroms). A better understanding of radiation damage therefore implies the joint development of modeling and experimental microstructure characterization techniques. This thesis is part of the **development of modeling techniques** and more specifically on a better description of primary damage and its evolution. To do so, it is necessary to **develop interatomic potentials** representative of the materials studied. These potentials are generally good enough to represent the material at equilibrium. It is also well known that very short-range interactions corresponding to in extreme compression in solids are well reproduced using Coulomb models and Coulomb models. However, there is no established methodology for the extension of these potentials for intermediate distances, i.e. to make the link between extreme compression and equilibrium while this part intervenes during the displacement cascades and has a great influence on the formation of defects (their numbers and their distributions). It is therefore important to **establish a method for constructing this intermediate part for a reliable modeling of the primary damage**. This is the first part of the thesis. To do this, the PhD student will, on the one hand, rely on the results obtained in the laboratory recently on the characterization of different properties of potentials and the correlation between these properties and the damage obtained. On the other hand, he/she will use results of first principles or "ab initio" calculations.

In a second step, **displacement cascades will be simulated using molecular dynamics** to obtain the "source term" allowing to model the evolution of the primary damage created by neutrons but also by ions in defects of larger sizes, **comparable with experimental results**. For this purpose, the distributions of PKA produced by ions and neutrons will be calculated with the softwares SRIM and SPECTER, and the evolution of the primary damage modeled by our kinetic Monte Carlo code

LAKIMOCA. To obtain representative results including rare events, a large number of simulations will have to be analyzed, which will require the implementation of large data processing methods (statistics and big data), with, if necessary, the use of machine learning tools.

The materials targeted will be iron for the method because there exist many potentials for Fe and this material has been extensively studied, then Ni and in the longer term NiCr considered as a simplified but representative material of austenitic materials used in reactors.

Context of this work:

This work is part of a structuring project “Ions / neutrons” conducted within a national program including the CNRS and nuclear partners in France (CEA, EDF, FRAMATOME ...) to compare the effect of irradiation with ions and with neutrons in materials but also in the framework of European projects such as SOTERIA (<http://www.soteria-europe.com/>) its follow-up programs and the programs of eurofusion. In parallel with this modeling work, and within the framework of the “Ions / neutrons” structuring project, **experimental studies are planned**, based on the use of positron annihilation spectroscopy (PAS) and resistivity annealing (RR) to probe the damage in metals irradiated with ions. In the next 2 years the implementation of the resistivity annealing device (RR) at the CEMHTI laboratory in Orléans will be finalized. Measurements will be made on iron in a first step to compare the results obtained with published studies and qualify the device. Then, in order to get closer to commercial austenitic materials used in reactors (316 for example), the damage induced in metals of FCC structure such as Ni and NiCr will be characterized by the two complementary techniques RR and PAS.

The **comparison of the simulation results** obtained in the thesis proposed here, **with experimental results** obtained with RR and PAS will also be done in collaboration with the **Royal Institute of Technology (KTH) in Stockholm** where a thesis on the modeling of the positron signal and the resistivity of the point defects and their clusters is ongoing. The interactions between the two theses will be intensified by **exchanges**: each student will make one or more stays in the laboratory of the other.

Supervision and place of the thesis:

The student will join the **metallurgy team** of UMET (umet.univ-lille1.fr) laboratory located in Villeneuve d'Ascq, near Lille, in the north of France. UMET is made up of about 80 CNRS researchers and researchers, about forty administrative and research support staff, about sixty PhD students, and about fifteen contract researchers and emeritus professors. UMET develops a research focused on the science of materials in fields of diversified applications that can aim at a direct industrial application or the understanding of elementary processes. The metallurgy team has been working with EDF for more than 20 years and is involved in many **European projects** related to irradiation damage modeling.

The thesis will be supervised by Charlotte Becquart, professor at the National School of Chemistry of Lille, which belongs to the laboratory UMET (Materials and Transformations Unit) located in Villeneuve d'Ascq and Christophe Domain, EDF engineer in Moret sur Loing; with interactions with Marie France Barthe (CEMHTI, Orléans), Pär Olsson (KTH, Sweden) and Gilles Adjanor (EDF R&D).

Charlotte Becquart and Christophe Domain have been working for more than 20 years on the modeling of radiation damage at the atomic and mesoscopic scales. They **use and develop simulation means** for the atomic scale study of deformation phenomena, phase changes, irradiation damage, etc. The applied techniques are Molecular Dynamics (MD), Monte Carlo methods (MC) and methods of electronic structure calculations using the first principles ("ab initio" methods).

Representative publications of C. Becquart and C. Domain concerning the subject of the thesis: "Influence of the interatomic potentials on Molecular Dynamics simulations of displacement cascades", C.S. Becquart, C. Domain, A. Legris & J.C. van Duysen, Jour. Nucl. Mater 280 (2000) 73.

"Ab initio threshold displacement energies in iron", P. Olsson, C.S. Becquart & C. Domain, Mater. Res. Lett. 4 (2016) 219

"An empirical potential for simulating vacancy clusters in tungsten" D. R. Mason, D. Nguyen-Manh & C. S. Becquart, Jour. Phys. Cond. Matter. 50 (2017) 505501.

Required skills

This interdisciplinary subject is intended for students motivated by the **numerical simulation of materials** (atomic and mesoscopic scale). The candidate must hold an **engineering degree** and / or a **master's degree**.

The position requires solid knowledge in **materials science and crystallography**, good oral and written communication skills to present at conferences and write articles in scientific journals. We are looking for a young researcher who will be involved in his project, **curious**, with a certain **autonomy** and a **strong motivation to develop modeling skills** in the field of metallic materials. In addition, the candidate must be able to work in a team on multidisciplinary projects. The candidate must also have **knowledge of programming and notions of linux**.

Applications should include a detailed CV; at least two references (people likely to be contacted); a cover letter of one page; a one-page summary of the master thesis; the grades of Master 1 or 2 or engineering school

To apply: <https://emploi.cnrs.fr/Offres/CDD/UMR8207-CHABEC-002/Default.aspx>

The starting date of the thesis is October 1st, 2019 and its duration will be 3 years.

ATTENTION: BECAUSE OF THE SUMMER HOLIDAYS, A CERTAIN DELAY IS TO BE EXPECTED REGARDING THE REPLIES OF C. DOMAIN AND C. BECQUART