



CONSEIL SCIENTIFIQUE
RADIOCHIMIE
IRRADIATION ET DIFFUSION

Frederico Garrido

Contributeurs

Rémi Barillon, Aurélie Gentils, Denis Horlait, Nathalie Moncoffre,
Johan Vandendorre

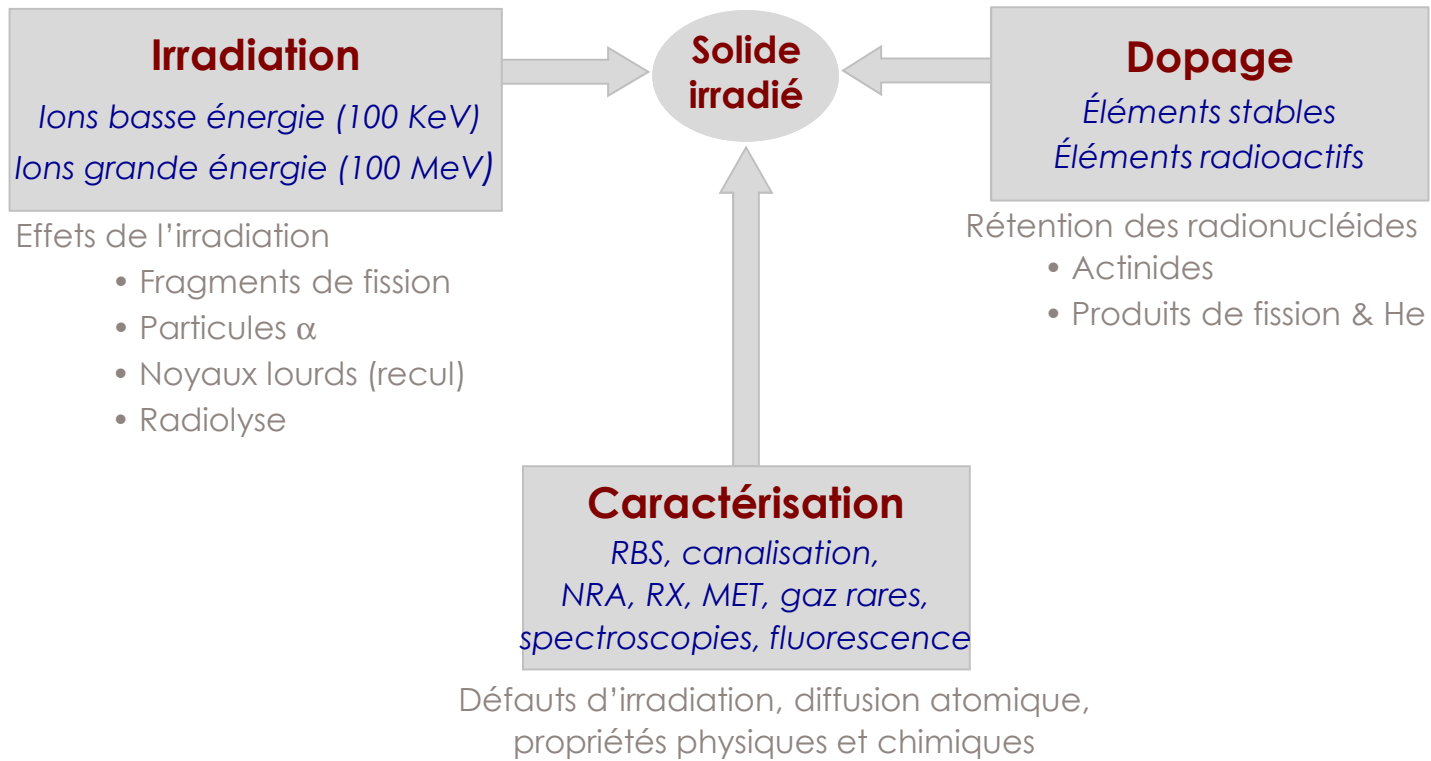
ENJEUX SCIENTIFIQUES

Années cinquante et soixante

- Premiers réacteurs nucléaires (Marcoule 1956 puis Chinon)
- Modélisation de l'endommagement balistiques des solides (Kinchin et Pease 1955), Ecole de Aarhus (Lindhard)
- Développement de petits accélérateurs pour l'exploration des interactions rayonnement/matière

Années quatre-vingt et quatre-vingt-dix

- Ouverture du GANIL: exploration systématique des effets de l'excitation électronique dans les solides
- (Première) loi Bataille (1991) : l'IN2P3 devient un acteur majeur; création des programmes PRACEN (1993) et GDR PRACTIS(1995 – département SC)
- Exploration systématique des effets de l'irradiation et de la diffusion



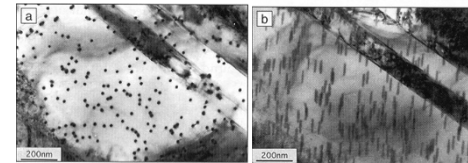
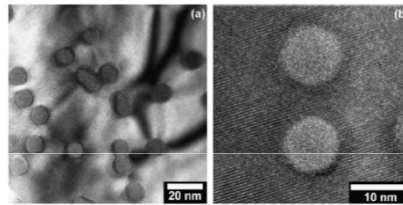
Irradiation

ions basse énergie (100 KeV)
ions grande énergie (100 MeV)

Solide irradié

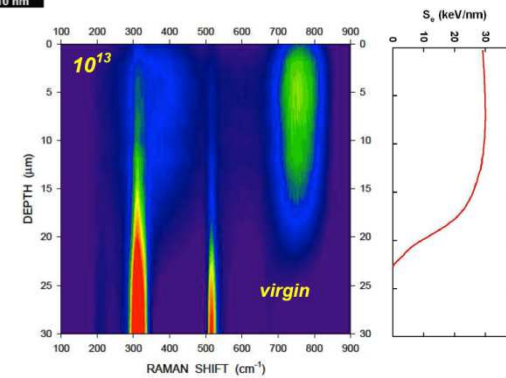
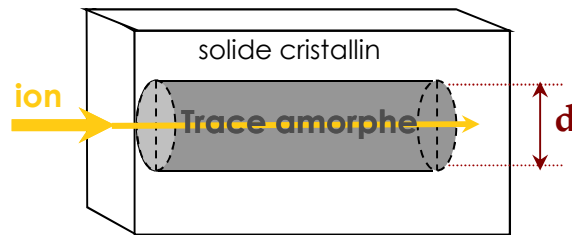
Effets de l'irradiation

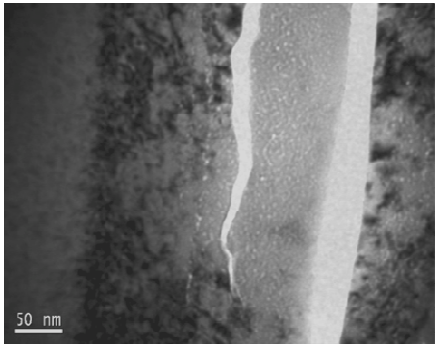
- Fragments de fission
- Particules α
- Noyaux lourds (recoil)
- Radiolyse



Traces amorphes dans NiTi
irradié U 760 MeV

$Gd_2Ti_2O_7$
irradié Xe 870 MeV





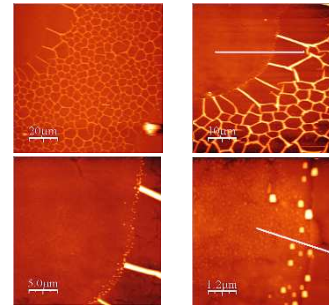
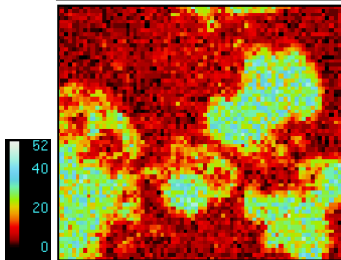
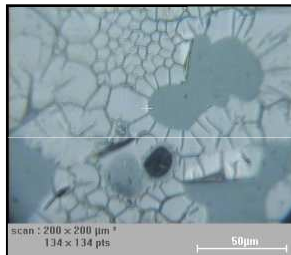
Bulles de Xe dans ZrO_2

Solide irradié

Dopage
Éléments stables
Éléments radioactifs

Rétention des radionucléides

- Actinides
- Produits de fission & He



Exfoliation: $MgAl_2O_4$ implanté Cs et recuit à $850^\circ C$

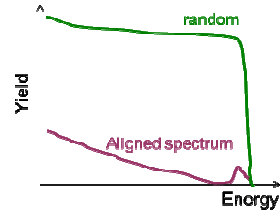
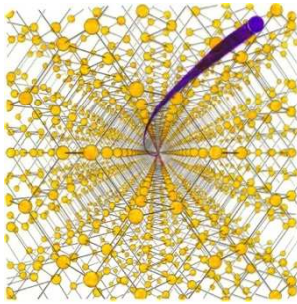
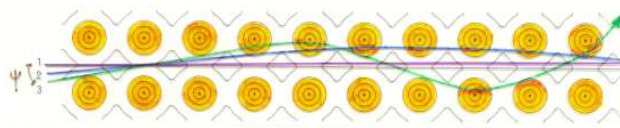
Solide irradié



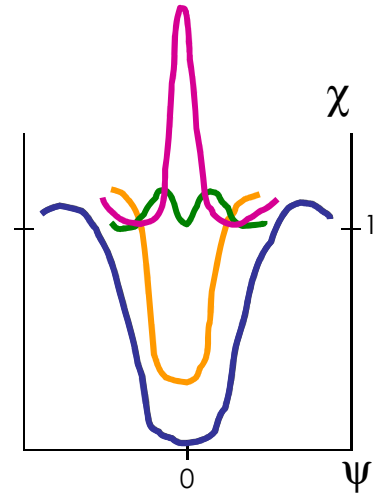
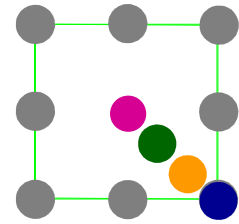
Caractérisation

*RBS, canalisation,
NRA, RX, MET, gaz rares,
spectroscopies, fluorescence*

Défauts d'irradiation, diffusion atomique,
propriétés physiques et chimiques

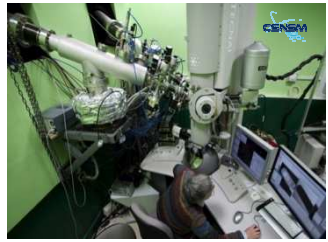
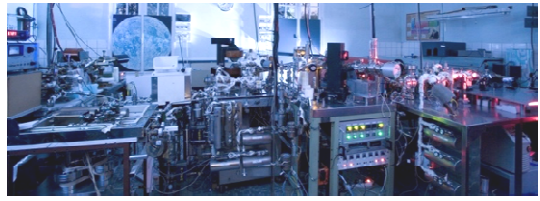


Solide irradié



Caractérisation
*RBS, canalisation,
 NRA, RX, MET, gaz rares,
 spectroscopies, fluorescence*

Défauts d'irradiation, diffusion atomique,
 propriétés physiques et chimiques

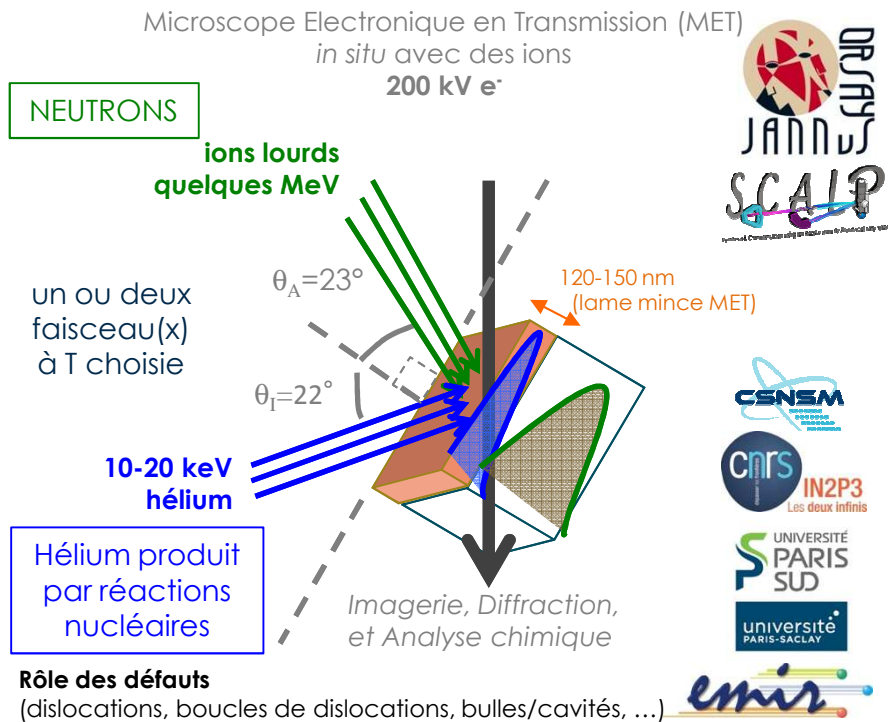


MATÉRIAUX MÉTALLIQUES SOUS IRRADIATION ALLIAGES AUSTÉNITIQUES ET FERRITIQUES, TUNGSTÈNE



Comportement sous irradiation ionique à l'échelle microstructurale

Matériaux de structure des réacteurs nucléaires actuels et du futur (fission, fusion)



Collaborations en tant que contact locaux JANNUs-Orsay

- Microstructure sous irradiation de différents matériaux métalliques (FeNiCr, Zr, ...)

CSNSM : B. Décamps, A. Gentils, S. Jublot-Leclerc

Tungstène

- Evolution microstructurale sous irradiation (fusion, ITER)

Projet EUROfusion (coll. M.-F. Barthe, CEMTHI)

CSNSM: B. Décamps + staff JANNUS-Orsay



MATÉRIAUX MÉTALLIQUES SOUS IRRADIATION ALLIAGES AUSTÉNITIQUES ET FERRITIQUES, TUNGSTÈNE



Alliages ferritiques FeCr

- Effets de l'irradiation sur la ségrégation intergranulaire
- Simulation de l'irradiation aux neutrons avec des ions (effet de flux, gonflement dû au Cr)

Projets européens GETMAT (2008-12), MATISSE (2013-17), SOTERIA (2015-19)

Projets NEEDS (2013, 2014, 2015, 2016)

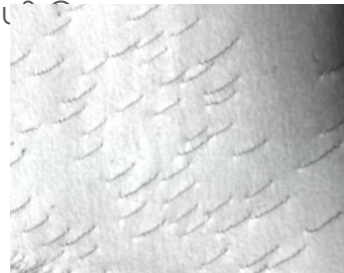
Projets EFDA-EUROfusion

2 Thèses (PHENIICS, 2013-2016 et 2015-2018, co-dir GPM)

CSNSM: B. Décamps + staff JANNuS



ETH zürich



Alliages austénitiques FeNiCr

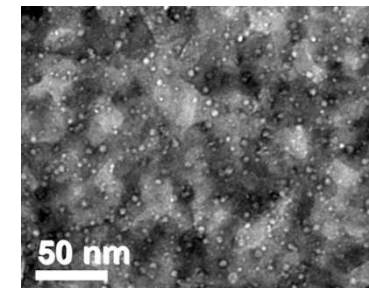
- Vieillissement et gonflement sous irradiation
- Influence de l'hélium
- Extension de la durée de vie des REP

Projet européen PERFORM60 (FP7 EURATOM, 2009-2013)

Projet ANR ColrrHeSim (2011-2015)

1 Thèse (PHENIICS, 2014-2017)

CSNSM: B. Décamps, F. Fortuna, A. Gentils, S. Jublot-Leclerc
+ staff JANNuS-Orsay+ IT prépa éch.



COMPRÉHENSION DE LA SYNTHÈSE DES NANO-OXYDES DANS LES ACIERS ODS



Mécanismes de synthèse des nano-précipités d'oxyde dans les aciers FeCr

Simulation expérimentale par implantation ionique

- Contrôle des conditions de synthèse (difficile par voie classique)
- Caractérisation microstructurale fine des nano-amas par MET (structure, composition)
- Couplage étroit avec modélisations (PICS-PRC Russie 2015-2017)
- Effet de l'hydrogène et de l'hélium

3 thèses (PHENIICS 2012-2015 et deux en 2016-2019)

CSNSM: A. Gentils, S. Jublot-Leclerc + IT prépa lames + Staff JANNuS-Orsay



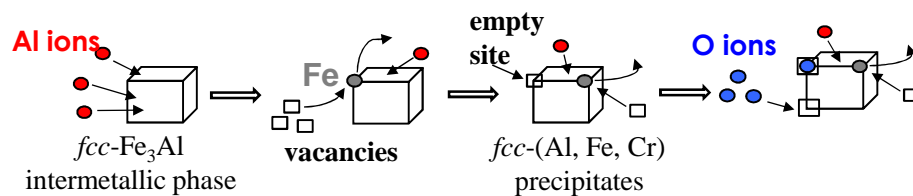
NRC Kurchatov Inst.
V. Borodin



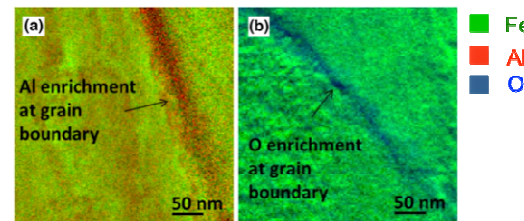
Saclay, DEN/DMN
J. Ribis (SRMA)



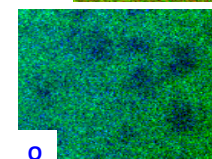
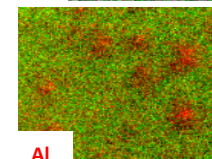
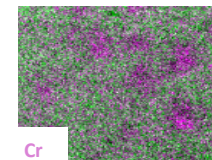
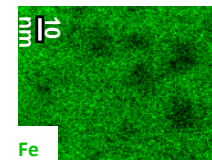
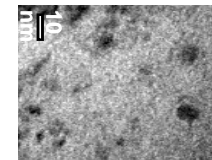
NRNU MEPhI
M. Ganchenkova



Phil. Mag. 2014, NIMB 2015



Diffusion d'Al et O à température ambiante



(c) C. Zheng, A. Gentils
Nano-amas (Al, Cr, O)

SIMULATION EXPÉRIMENTALE DES EFFETS DE L'IRRADIATION – OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE ET APPARENTÉES

Solides de structure fluorine

- Combustibles : UO_2 , PuO_2 , MOX
- Matrices de transmutation des actinides : $(\text{Zr},\text{Y})\text{O}_2$

Monocristal de UO_2 – système modèle du combustible utilisé

Simulation des effets de l'irradiation

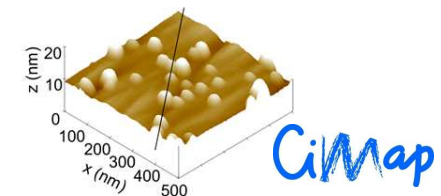
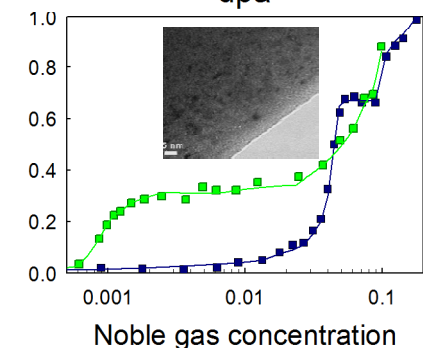
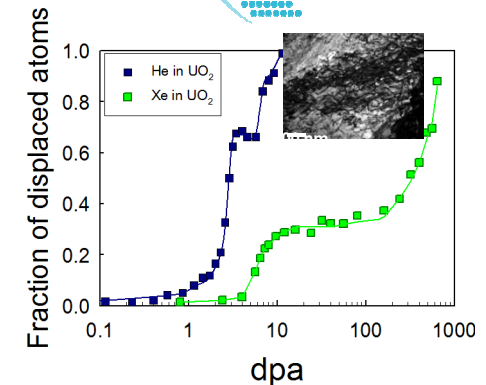
- Collisions atomiques (SCALP et ANAFIRE); excitation électronique (GANIL)
- Dopage – contribution chimique – rôle impureté (insoluble et soluble)
- Implantation/caractérisation RBS/C et TEM *in situ* (plateforme SCALP)
- Effet de la température (irradiation à 500°C)

Collisions balistiques : contributions à la déstabilisation du solide

- Espèces insolubles – défauts d'irradiation et nanodomains cristallins
- Espèces solubles: défauts uniquement
- Cas spécifique de l'hélium – bulles nanométriques et fissuration

Excitation électronique

- Faible fluence: nano en surface
- Dès le recouvrement des traces: formation de domaines désorientés



SIMULATION EXPÉRIMENTALE DES EFFETS DE L'IRRADIATION – OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE ET APPARENTÉES

Sesquioxides de terres rares Ln_2O_3

- Poisons/absorbants neutroniques

Simulation des effets de l'irradiation: excitation électronique

- Ligne IRRSUD – GANIL: Pb de 100 MeV (fragments de fission)
- Irradiation/caractérisation DRX *in situ* (dispositif ALIX; coll. CIMAP)

Deux contributions à la déstabilisation du solide

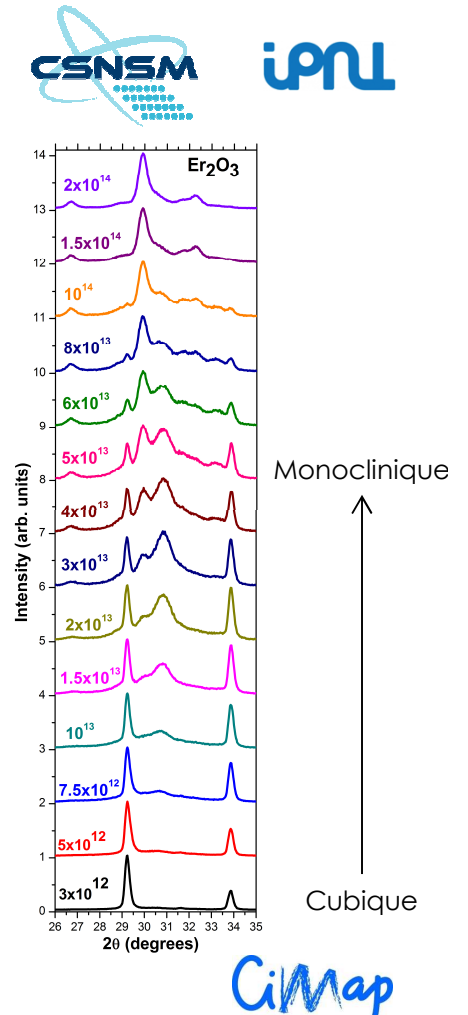
- Transition de phase cubique-monoclinique pour tous les oxydes explorés (Eu, Gd, Dy, Ho, Er)
- Très forte réorientation des grains par recouvrement des traces

CSNSM: A. Debelle, F. Garrido, G. Sattonnay, L. Thomé + 2 thèses + soutien équipe accélérateurs (3 AI et 2 IR temps partiel)

NEEDS Matériaux (CirCombUra; ENDIRSIC; MESINII); DIM OxyMORE; IN2P3 (MATSIR)

IPNL: N. Bérerd, C. Gaillard, N. Moncoffre, Y. Pipon + 2 thèses + soutien équipe faisceaux d'ions IPNL (1 AI et 1 IR temps partiel)

Financement IRSN: financement de 2 thèses dont 1 avec l'IN2P3



PROPRIÉTÉS DE TRANSPORT DES GAZ RARES DANS LES MATÉRIAUX NUCLÉAIRES



Comportement des gaz dans les combustibles (UO_2 , UC) et gaines (SiC); matrices de déchets

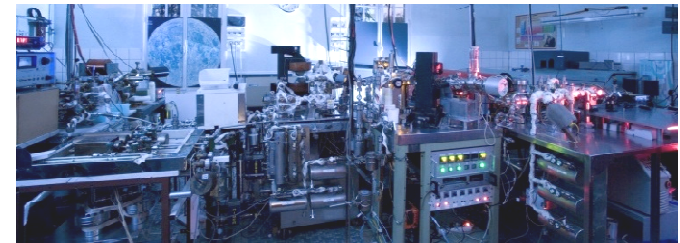
- Kr et Xe: produits de fission majeurs des actinides (1.5 et 11.7% des PF dans réacteurs actuels)– participent à l'évolution microstructurale et performance du combustible; nécessité de gaines
- He: pressurisation des aiguilles de combustibles + He accumulé par décroissance alpha (évolution à long terme des matrices de déchets)

Etudes de relâchement en température : détermination de coefficients de diffusion

- Très grande sensibilité des mesures des spectromètres : effets des faibles doses; effet à basse T / faible vitesse de relâchement

Moyens techniques: plateforme PIAGARA

- 4 spectromètres de masse dédiés à l'analyse des gaz rares
- Interconnexion par systèmes ultravides et purification de gaz
- Fours de traitements jusque 1400°C
- Très grande sensibilité (limite de détection $10^9 - 10^3$ atomes)



PROPRIÉTÉS DE TRANSPORT DES GAZ RARES DANS LES MATÉRIAUX NUCLÉAIRES



CENBG: E. Gilibert, D. Horlait, B. Lavielle, 1 IR, 1 AI (CDD)

NEEDS CirCombUra (2013-2015), Diffusion de He dans UC et de Xe dans UO_2 (coll. CEMHTI; CSNSM; CEA/LLCC)

NEEDS ENDIRSIC (2013-2015), Endommagement de SiC sous irradiation (coll. PPRIME; CEMHTI; CSNSM; CEA/LLCC)

NEEDS Transcomb (2016-) Transport des gaz rares dans UO_2 (coll. CEMHTI; CEA/LLCC)

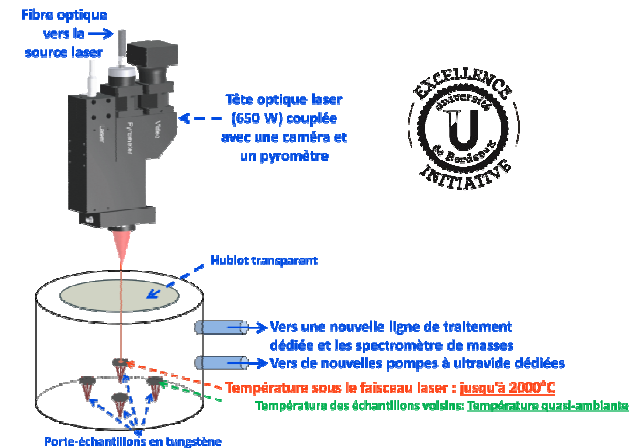
Collaboration LLCC (2015-2018): Comportement des gaz rares Xe et Kr dans UO_2 à faible et haute fluence d'implantation



Bourse d'installation de l'Idex de Bordeaux (D. Horlait): Projet L2PAON (Ligne Laser Pour l'Analyse Optimisée de Matériaux pour le Nucléaire)

- Développement d'une nouvelle ligne de chauffage et traitement des gaz dédiée à la matière nucléaire

Total financements 2014-2019: 185 K€



COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION DES CARBURES B₄C ET SiC

B₄C absorbant neutronique pour les réacteurs RNR-Na de GEN IV

- Mécanismes d'endommagement sous irradiation neutrons
- Simulation expérimentale JANNuS-Orsay: *in situ* TEM ions Au de 1 MeV
- Amorphisation : rôle des impuretés: 9 dpa sans insertion; 2 dpa avec insertion
- Aucun effet de l'orientation cristallographique

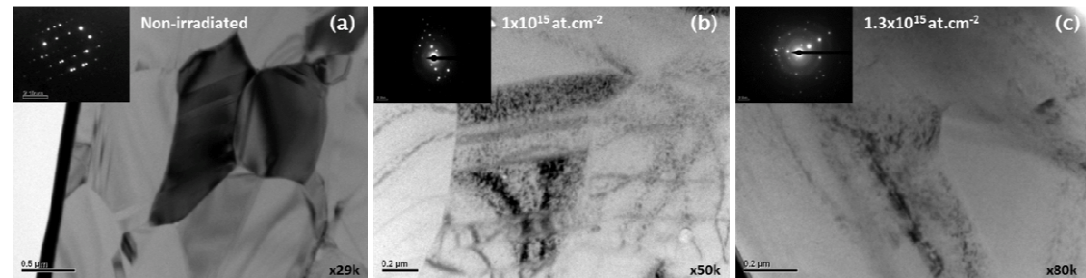
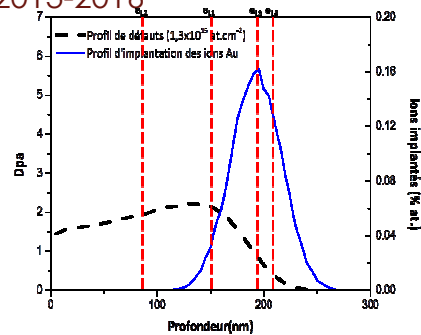
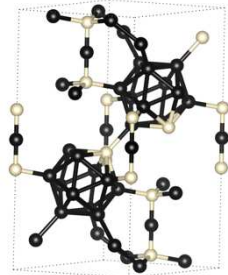
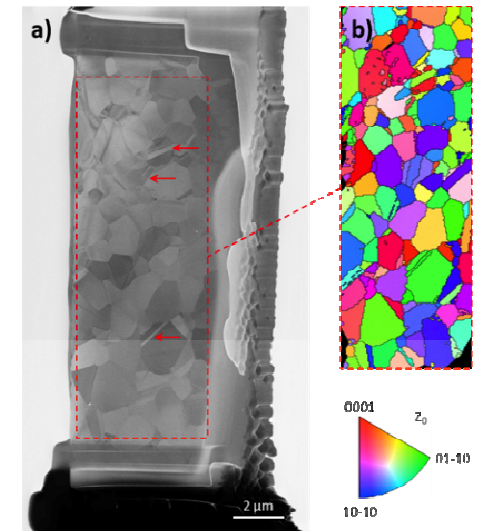


2 thèses B₄C + 2 sur SiC

B₄C: N. Toulhoat, N. Moncoffre, N. Béreard, Y. Pison, 3 Ing. temps partiel

SiC: N. Millard-Pinard, S. Gavarini

NEEDS PROCIRRB 2013-2016

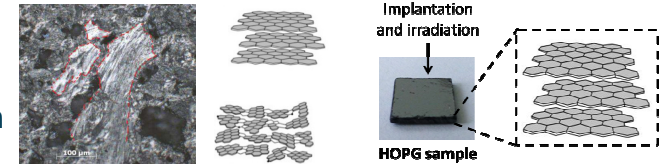


IRRADIATION AUX IONS DU GRAPHITE POUR SIMULER LES NEUTRONS



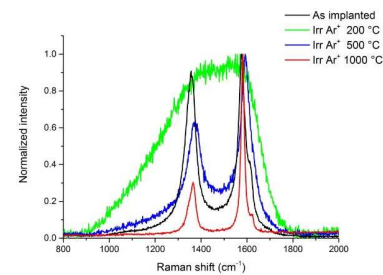
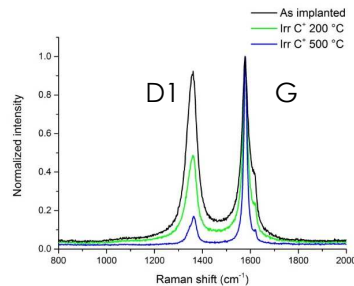
Démantèlement des réacteurs UNGG

- Graphite modèle HOPG utilisé pour comprendre les effets d'irradiation
- Caractérisation par micro-spectrométrie Raman



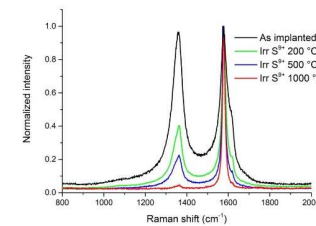
Endommagement balistique

- Pré-implantation avec des ions ^{13}C (0.02 dpa)
- Post-irradiation en température: recuit du désordre dès 500°C (lacunes de C)



Endommagement électronique

- Pré-implantation avec des ions ^{13}C (0.02 dpa)
- Irradiation en température: ions S de 100 MeV
- Endommagement électronique fortement compensé par T



IRRADIATION AUX IONS DU GRAPHITE POUR SIMULER LES NEUTRONS



Extrapolation en conditions réacteur

- Pré-endommagement prononcé: irradiation en température (conditions réacteur) de modifie pas la structure initiale
- Pré-endommagement modéré: endommagement sous irradiation dépend de la position dans le réacteur (zones froides haut flux - peu restructurées - versus zones chaudes bas flux – fortement restructurées)

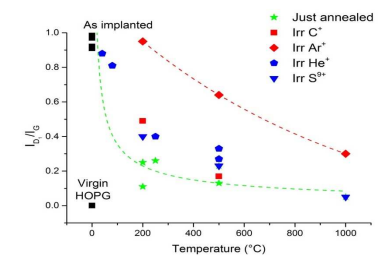
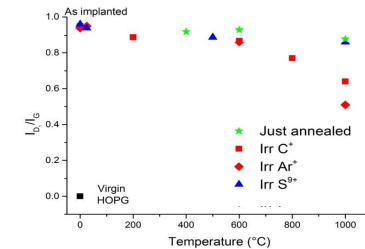
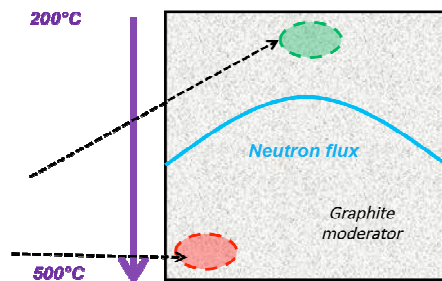
Ions	Carbone	Argon	Hélium	Soufre
Energie (MeV)	0.4 – 0.6	0.8	15.7	100
S_e (keV/ μm) dans la zone implantée en ^{13}C	585 - 730	980	75	3700
S_n (keV/ μm) dans la zone implantée en ^{13}C	10 - 15	175	0.003	1
S_n/S_e	0.01 – 0.02	0.18	4×10^{-5}	3×10^{-4}
Dpa dans la zone implantée en ^{13}C	1	4.4	0.0001 – 0.0002	0.002

2 thèses

IPNL: N. Toulhoat, N. Moncoffre, N. Bérerd, Y. Pison, 2 Ing. temps partiel

Financement: programme européens; EDF branche démantèlement (DP2D)

Température du graphite (cas du réacteur SLA2)



DOSIMÉTRIE ET EFFETS DES RAYONNEMENTS IONISANTS À L'ÉCHELLE MOLÉCULAIRE



Etude fondamentales des modifications chimiques et de la fluorescence induites dans des matériaux organiques et d'intérêt biologique sous rayonnement

- Expérience et simulation: lien entre le dépôt d'énergie et les phénomènes physico-chimiques mesurés (sections efficaces, rendements)
- Défis sociétaux associés: dosimétrie médicale, hadronthérapie, radioprotection, micro-dosimétrie

Dosimétrie X innovante

- Mesures des fluorescence en coïncidence et temps réel
- Brevet, valorisation (SATT Conectus Alsace), création société Fibermetrix
- Etude des mécanismes : ionisations et excitations (X, He, H, C, neutrons)

Matériaux organiques sous irradiation par faisceaux d'ions

- Mesures de sections efficaces: ion/polymère
- Effet O₂: mécanismes propres aux ions
- Simulation (dose électrons secondaires – Géant 4)

Radiolyse d'acides aminés et de protéines sous faisceaux d'ions

- Mesures de sections efficaces: ion/acides aminés aromatiques, protéines
- Effet O₂ et H₂O (effets indirects)
- Simulation Géant 4 DNA

DOSIMÉTRIE ET EFFETS DES RAYONNEMENTS IONISANTS À L'ÉCHELLE MOLÉCULAIRE



Plateformes analytiques et d'irradiation

- Plateformes d'irradiation: H sur Cyrcé (Précy) et H et He sur le 4 MV (Icube)
- Plateforme analytique in situ: UV-Vis, fluorescence, IRTF
- Plateforme analytique ex situ: HPLC-spectromètre de masse Orbitrap

Groupe de radiochimie IPHC : 3 EC, 2 IR, 1 AI, 2 doctorants (2015-2018; dont 1 co-tutelle Kobe)

Collaborations: CENBG et Rames (lien avec le GDR MI2B), CEA (Saclay, Bruyères), Kobe et NIRS Chiba

Plan cancer 2016-2018: 114 k€

New International Open Laboratory 2015-2018, programme NIRS de Chiba; accès au Heavy Ion Medical Accelerator (frais de mission)

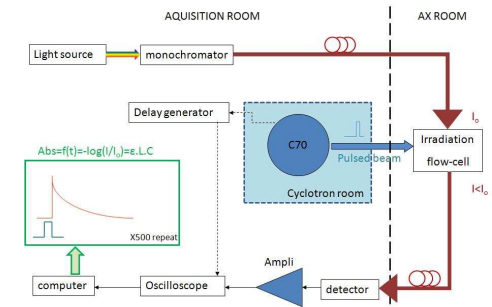
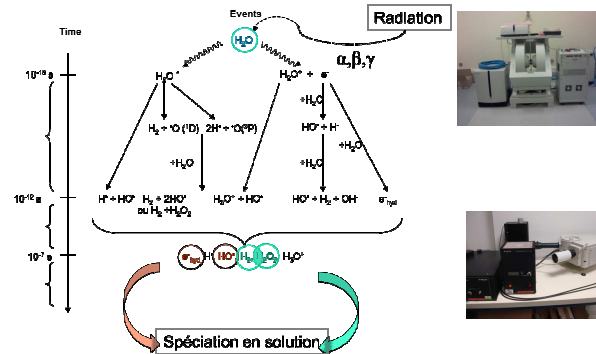
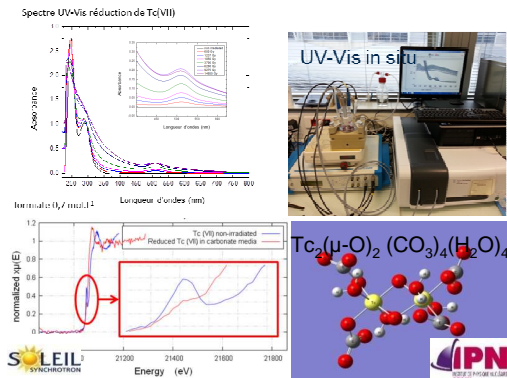
IMPACT DE LA RADIOLYSE DE L'EAU SUR LA SPÉCIATION DES RADIOÉLÉMENTS

Développement de mesures analytiques UV-VIS, μ GC

- Détermination des rendements radiolytiques d'espèces issues de la radiolyse de l'eau (H_2O , H_2O_2)
- Spéciation d'espèces Tc, Mn, Re, Np, Fe sous irradiation en solution
- Projet Européen (FEDER)

Perspectives

- Détermination de rendements radiolytiques d'espèces radicalaires issues de la radiolyse de l'eau
- Développement analytique RPE, radiolyse pulsée sur faisceau d' He^{2+} à haute énergie (ARRONAX)



COMPORTEMENT DES MATÉRIAUX SOUS IRRADIATION À L'INTERFACE SOLIDE/SOLUTION

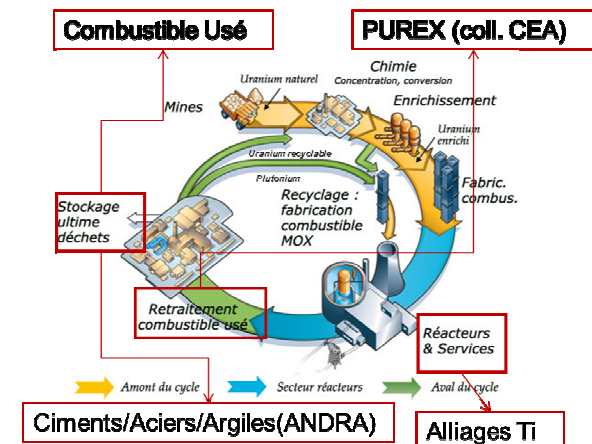
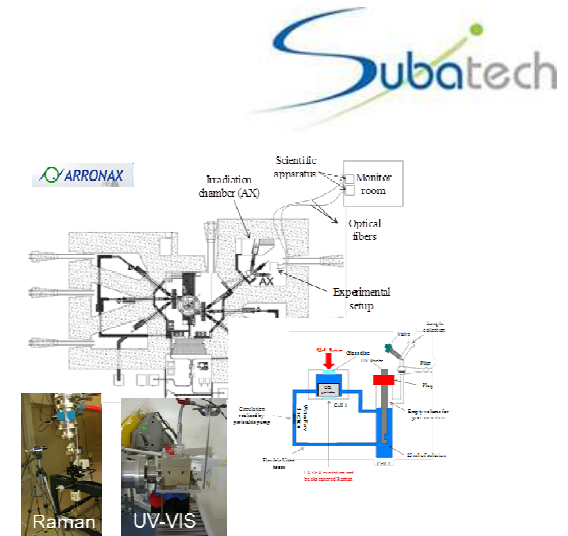
Développement de spectroscopies RAMAN et UV-VIS
in situ sous irradiation sur le cyclotron ARRONAX

Projets

- Régional (CPER: ALPHARAD)
- National (ANR: CISSRAD, TESAMI, EQUIPEX ARRONAX+, Chaires ANDRA)
- Européen (FIRST-NUCLIDES)

Perspectives

- Caractérisation sous irradiation pour l'étude corrosion radiolytique des matériaux du cycle du combustible
- Rôle du H₂ produit par radiolyse de l'eau sur le comportement sous irradiation

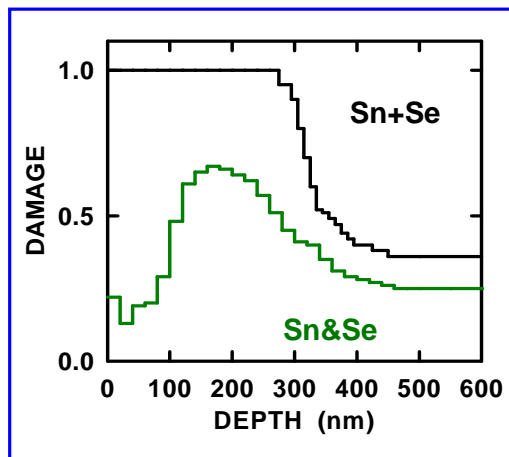


FONDAMENTAUX DE L'INTERACTION ION-MATIÈRE SYNERGIE ENTRE CONTRIBUTIONS BALISTIQUES ET ÉLECTRONIQUES

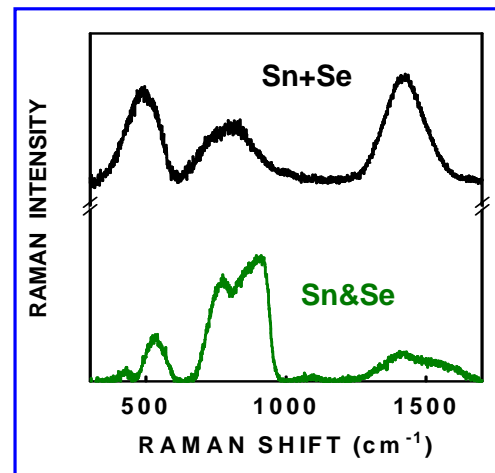


SNEEL: Synergy between Nuclear and Electronic Energy Losses

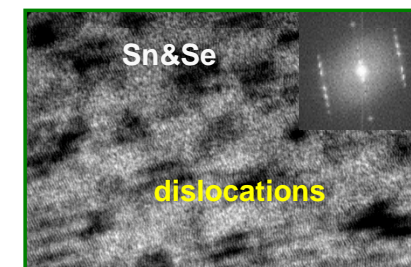
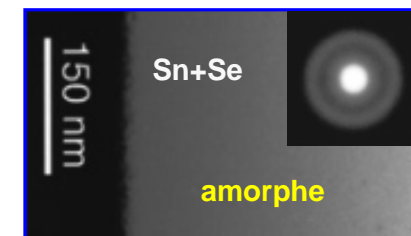
- Solide irradié avec un double faisceau d'ions
- Très fort effet recuit des défauts d'irradiation lorsque le solide est irradié avec un double faisceau d'ions



Profils de défauts dans Si irradié à
BE (S_n) et HE (S_e)



Spectres Raman sur SiC irradié à
BE (S_n) et HE (S_e)



Images MET sur SiC irradié à
BE (S_n) et HE (S_e)

APL 102 (2014); JAP 117 (2015)

(Sn+Se): irradiations successives / (Sn&Se): irradiations simultanées



PERSPECTIVES

Forces

- Contributions nationales et internationales de premier plan (collaborations, publications, présentation invitées, nombreuses thèses, bonne insertion dans le contexte national)
- Compétence historique de l'IN2P3 dans le développement de machines accélératrices pour les applications non nucléaires; fort soutien et grande qualité des équipes techniques

Faiblesses

- Fractionnement de la communauté en (toutes) petites équipes
- Force de frappe humaine insuffisante
- Perte partielle de structuration de la communauté depuis la fin des GDR et le passage à NEEDS
- Faculté d'agir en amont de la définition des appels à projets: aspects(très)appliqués au détriment de la recherche fondamentale

PERSPECTIVES

Opportunités

- Large ouverture vers la communauté des modélisateurs
- Ouverture vers les autres énergies

Menaces

- Faible recrutement de personnels permanents
- Caractère unique et innovant des accélérateurs à maintenir
- Développements de dispositifs d'analyse *in situ* sur les lignes de faisceau (diffraction X, spectroscopies optiques et électroniques) à poursuivre
- Diminution de financements externes et soutien de base en forte diminution