

Journée Recherche & Technologique : Recherche & Développement sur les cibles d'UC_x Projet STUC

Julien Guillot
4 Octobre 2021

CONTEXTE

- Forte demande de la physique nucléaire de faisceaux exotiques pour l'étude de la structure nucléaire par décroissance β
- Production de faisceaux radioactifs à ALTO : méthode ISOL (Isotope Separation On-Line)

$$I = I_p \cdot \sigma \cdot N \cdot \epsilon_r \cdot \epsilon_{ion} \cdot \epsilon_{tr}$$

I_p : intensité du faisceau primaire

σ : section efficace de l'isotope étudié

N : nombre d'atomes cible

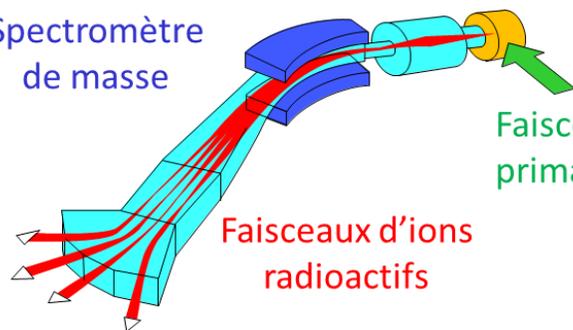
ϵ_r : efficacité de relâchement des éléments de la cible à la source

ϵ_{ion} : efficacité d'ionisation de l'élément

ϵ_{tr} : efficacité de transport et de sélection par spectrométrie de masse

Ensemble
Cible-Source

Spectromètre
de masse

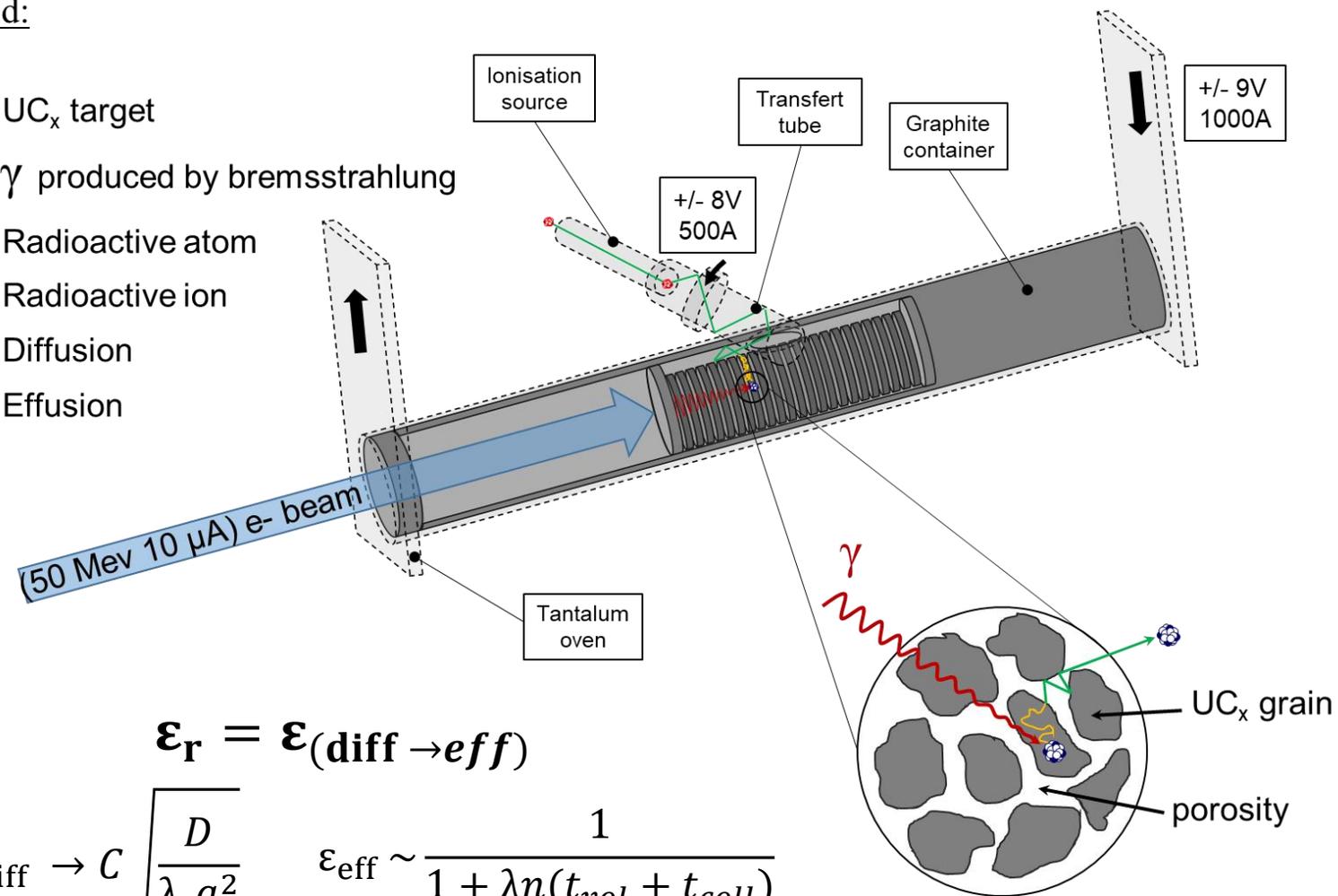


Faisceau
primaire

Faisceaux d'ions
radioactifs

Legend:

-  UC_x target
-  γ produced by bremsstrahlung
-  Radioactive atom
-  Radioactive ion
-  Diffusion
-  Effusion

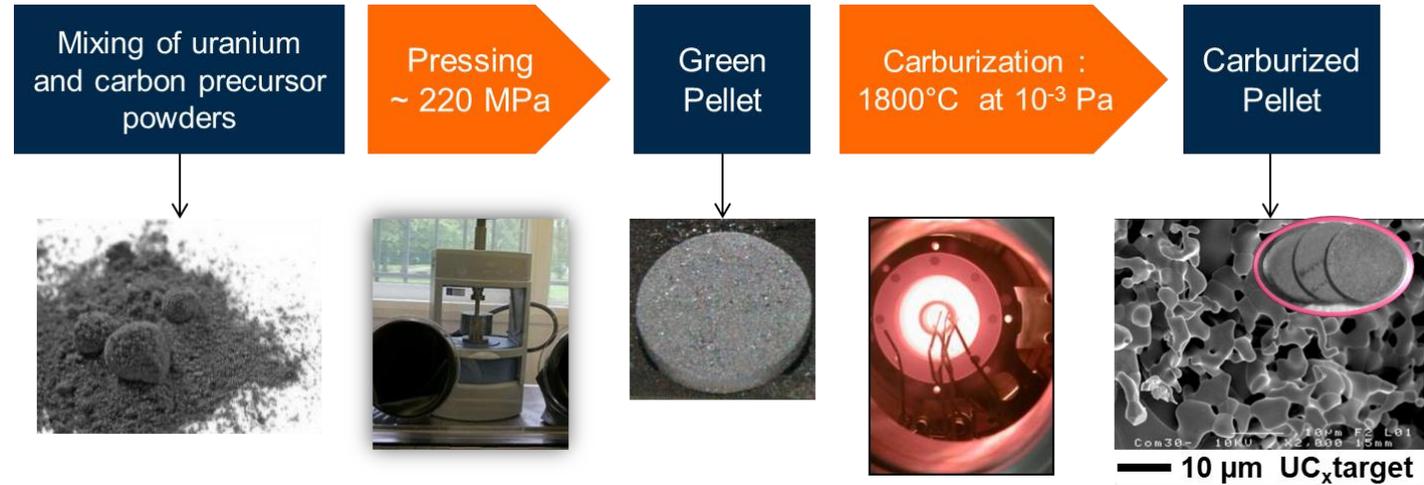


$$\epsilon_r = \epsilon(\text{diff} \rightarrow \text{eff})$$

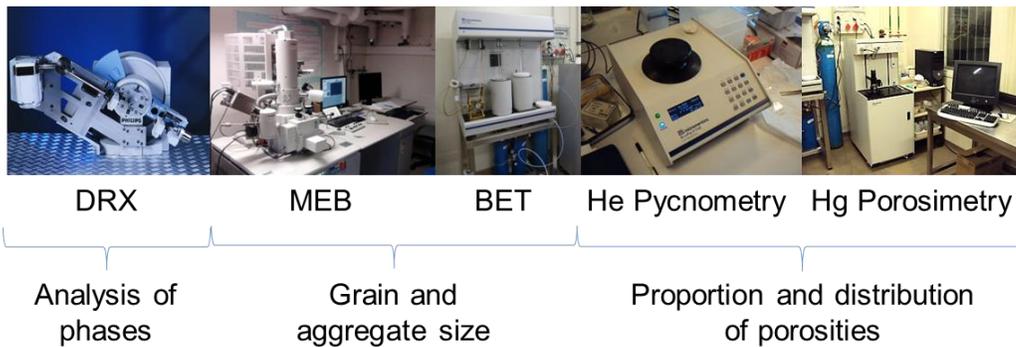
$$\epsilon_{\text{diff}} \rightarrow C \sqrt{\frac{D}{\lambda \cdot a^2}}$$

$$\epsilon_{\text{eff}} \sim \frac{1}{1 + \lambda n(t_{\text{vol}} + t_{\text{coll}})}$$

- **Synthesis of UC_x target:** $UO_2 + 6C \rightarrow (1-x)UC + xUC_2 + (3-x)C + 2CO_{(g)}$



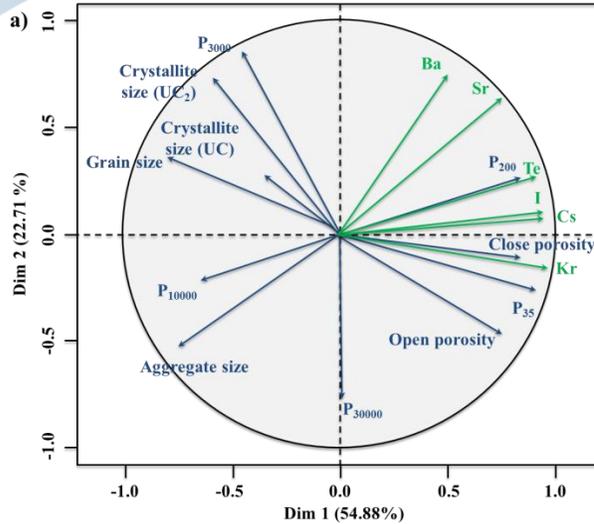
- **Techniques used for the physico-chemical characterization of UC_x targets :**



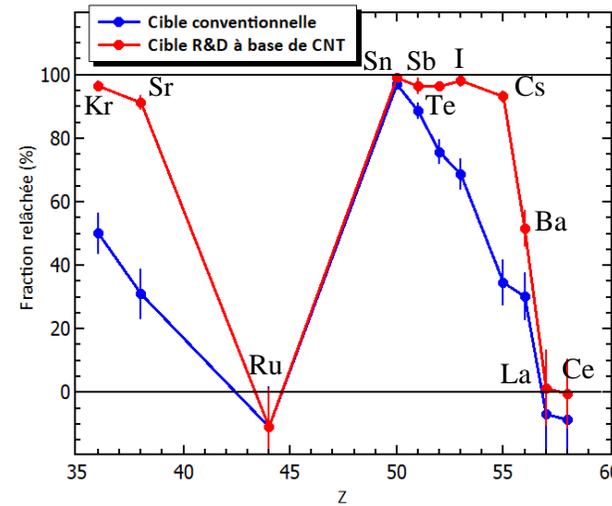
- **Equipment for measuring released fractions (off-line) and production (on-line) :**



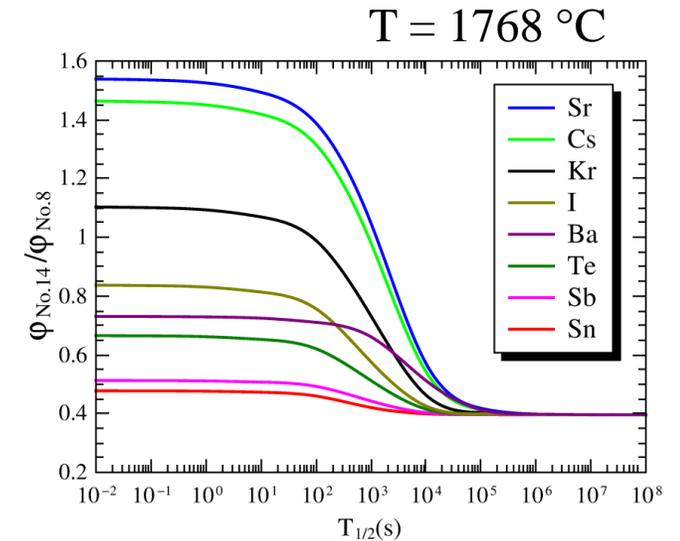
Récapitulatif des études sur les cibles en UC_x



→ L'efficacité de relâchement des PFs est fortement liée à la présence de nanograins d'UC_x et d'une nano-porosit  ouverte r partie de mani re homog ne
Guillot et al. NIMB (2018)



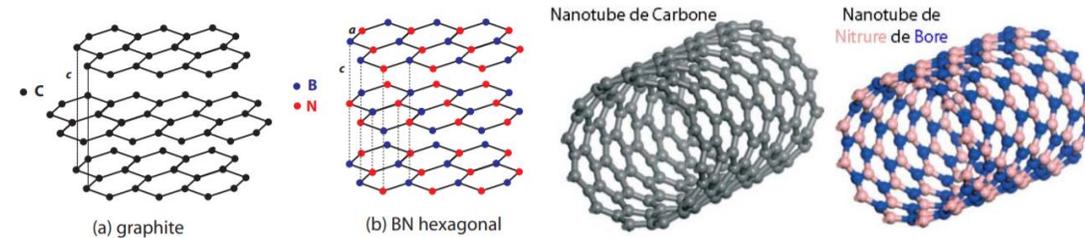
→ La nouvelle cible R&D   base CNT lib re les PFs 20   60% de plus qu'une cible conventionnelle PARRNe
Guillot et al. NIMB (2019)



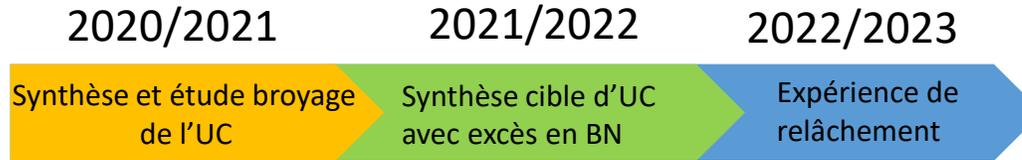
→ La nouvelle cible R&D   base CNT est 3 fois moins dense qu'une cible conventionnelle PARRNe. Pour le Sr, Cs et Kr la cible R&D compense sa faible densit  par son efficacit  de rel chement.
Guillot et al. NIMB (2020)

R&D Pr vu: Projet STUC

Am liorer ces productions en densifiant les cibles en UC mais en gardant les m mes propri t s de rel chement. Pour y parvenir, l'id e est de synth tiser st ochiom triquement les r actifs afin d'obtenir de l'UC mais pas un m lange UC et UC₂. Puis de substituer le carbone en exc s par du nitrure de bore afin de stabiliser cette structure. Le nitrure de bore est un analogue structural au carbone.



Calendrier du projet :



- Synthèse et étude du broyage de l'UC (2020-2021)
- Développer de nouvelles cibles plus denses en uranium en substituant l'UC₂ par de l'UC et stabiliser l'UC tout en conservant de la porosité ouverte avec le nitrure de bore (2021-2022)
- Etudier le relâchement des cibles UC (2022-2023)

Calendrier du projet :

2020/2021

Synthèse et étude broyage
de l'UC

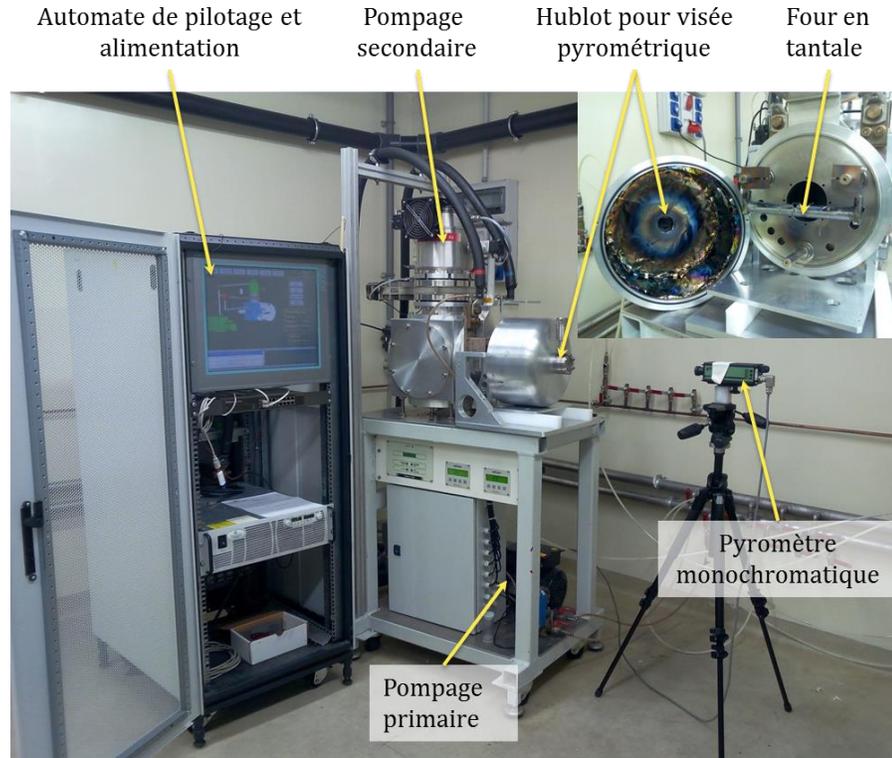
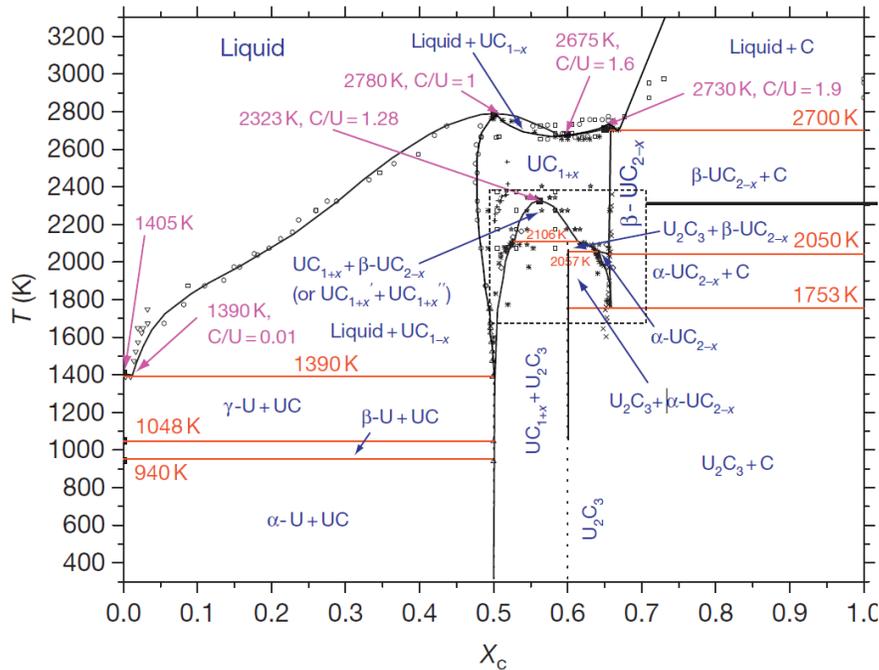
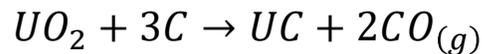
2021/2022

Synthèse cible d'UC
avec excès en BN

2022/2023

Expérience de
relâchement

→ Synthèse et étude du broyage de l'UC (2020-2021)



Difficulté pouvant être rencontrée:

- ▶ On ne peut pas exclure la possibilité d'une répartition inhomogène des poudres UO_2 et carbone qui après carburation pourrait donner **une coexistence des phases U, UC et UC_2**
- ▶ Si impossibilité d'obtenir de l'UC par carboréduction, nous envisageons d'établir une **collaboration** avec des laboratoires pouvant réaliser la synthèse de l'UC par Arc Melting

Calendrier du projet :

2020/2021

Synthèse et étude broyage
de l'UC

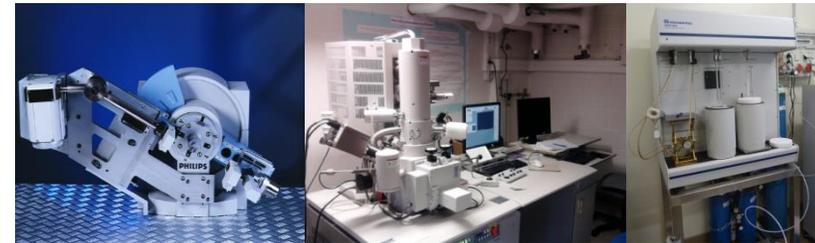
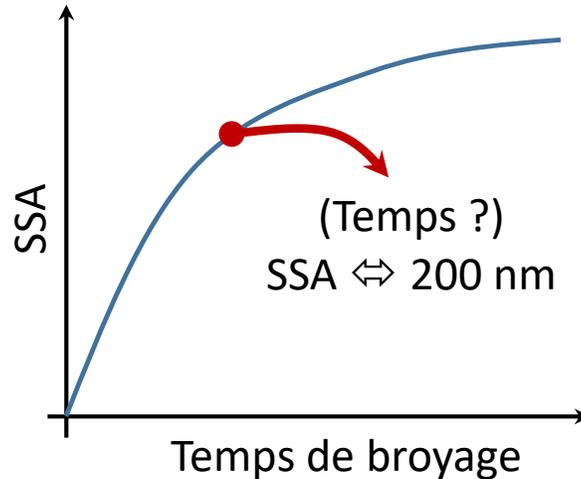
2021/2022

Synthèse cible d'UC
avec excès en BN

2022/2023

Expérience de
relâchement

→ Synthèse et étude du broyage de l'UC (2020-2021)



DRX

MEB

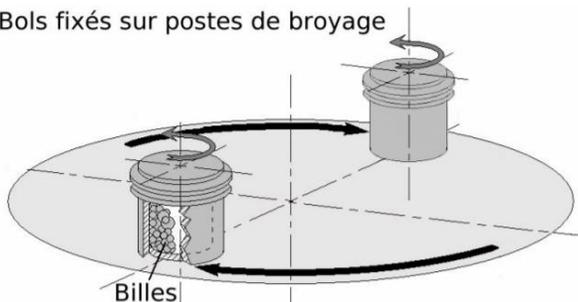
BET

Analysis of
phases

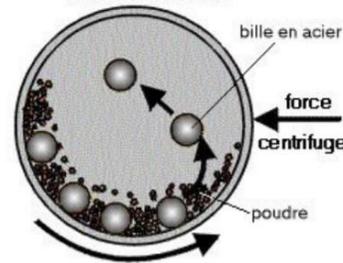
Shape and
grain size

L'objectif est
d'obtenir des grains
d'UC d'un diamètre
d'environ 200 nm

Bols fixés sur postes de broyage



bol en rotation



Difficulté pouvant être rencontrée:

- les carbures d'uranium sont pyrophoriques d'où la nécessité d'une manipulation sous atmosphère inerte (boîte à gants)
- les carbures d'uranium sont très durs (ex: $U_2C_3 = 1350 \text{ Hv}$) donc cela nécessite l'utilisation d'un bol de broyage en WC (1280 Hv)

Calendrier du projet :

2020/2021

Synthèse et étude broyage
de l'UC

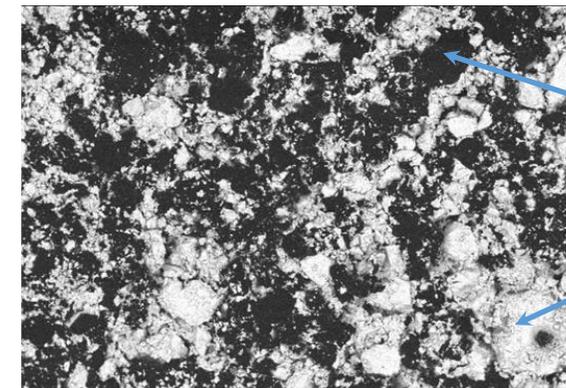
2021/2022

Synthèse cible d'UC
avec excès en BN

2022/2023

Expérience de
relâchement

→ Développer de nouvelles cibles plus denses en uranium en substituant l'UC₂ par de l'UC et stabiliser l'UC tout en conservant de la porosité ouverte avec le nitrure de bore (2021-2022)

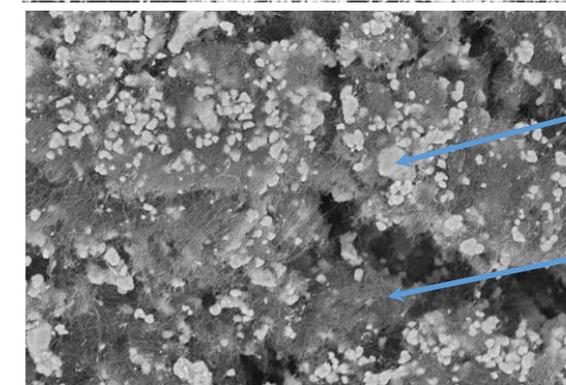


100 μm

Cible UC₂ + Graphite

Graphite

UC₂

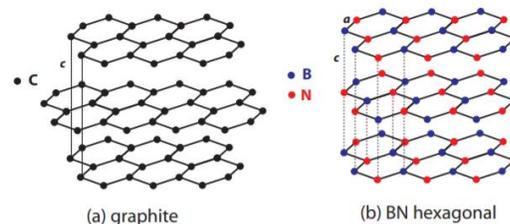


1 μm

Cible UC₂ + Nanotube de carbone

UC₂

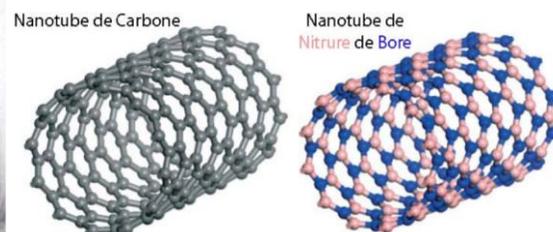
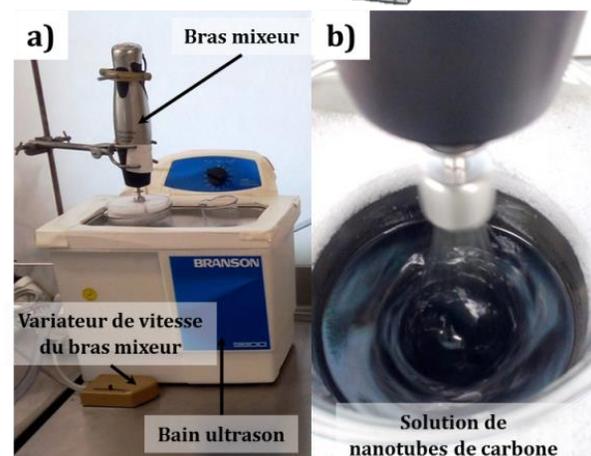
Nanotube
de carbone



Test de stabilité à
haute température
et sur le maintien
pendant 15 jours à
2000 °C

Difficulté pouvant être rencontrée:

Instabilité de l'UC à haute température par la formation de sous produit B₂U (diborure d'uranium) ou UN (nitrure d'uranium)



Calendrier du projet :

2020/2021

2021/2022

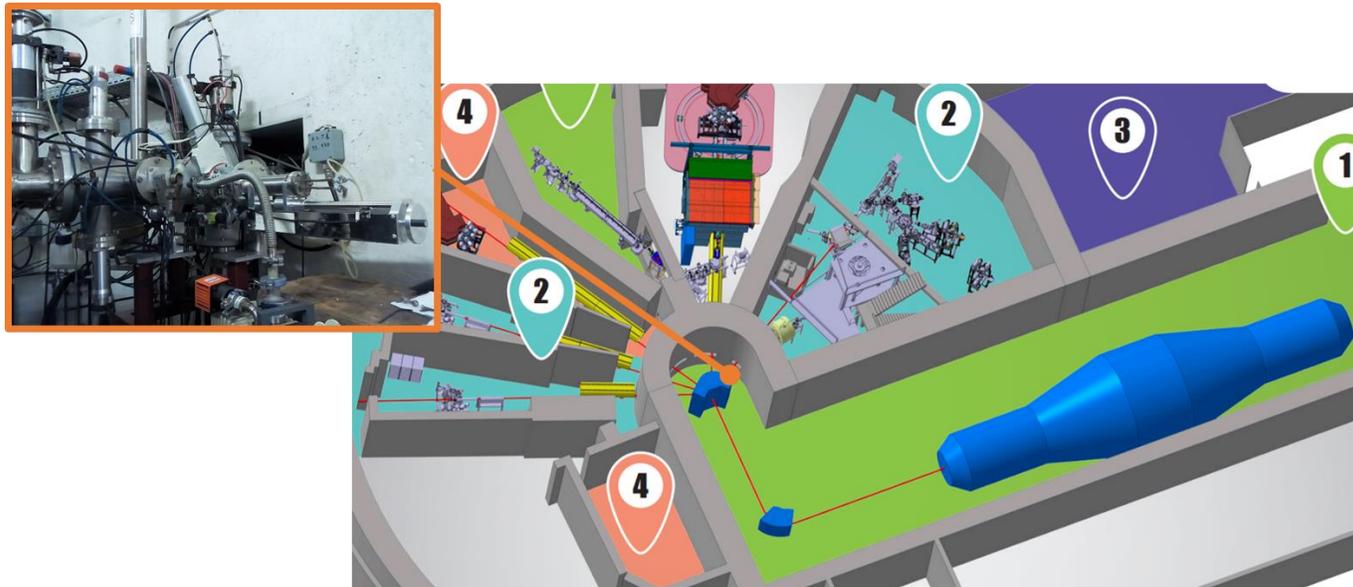
2022/2023

Synthèse et étude broyage
de l'UC

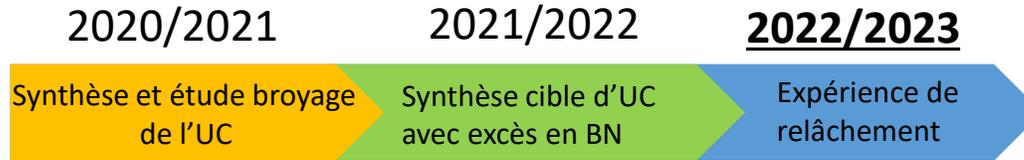
Synthèse cible d'UC
avec excès en BN

Expérience de
relâchement

→ Etudier le relâchement des cibles UC (2022-2023)

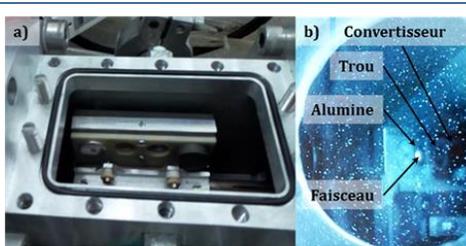


Calendrier du projet :



→ Etudier le relâchement des cibles UC (2022-2023)

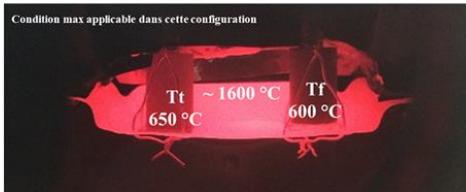
Irradiation:



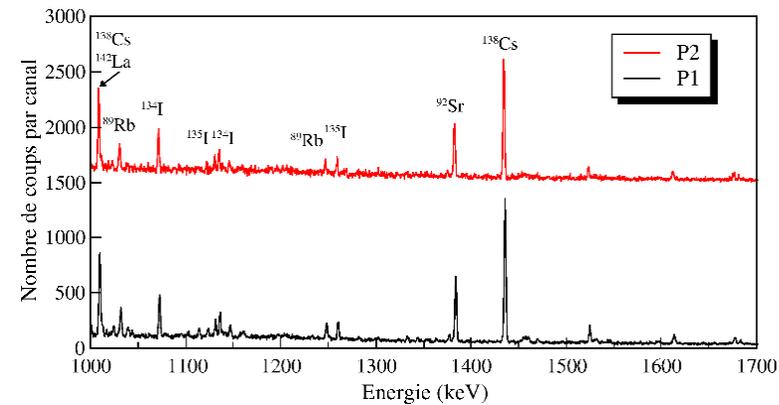
1^{er} comptage:



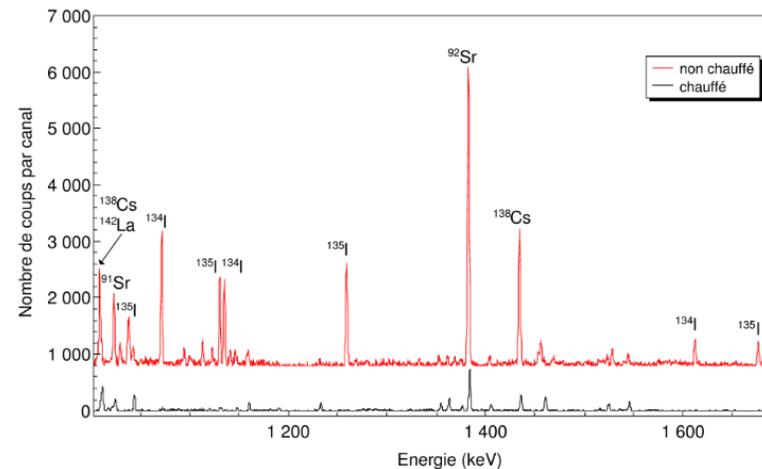
Chauffage:



2^{ème} comptage:



$$R = \frac{I_{P1}}{I_{P2}}$$



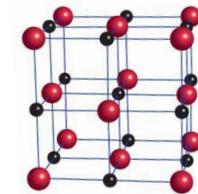
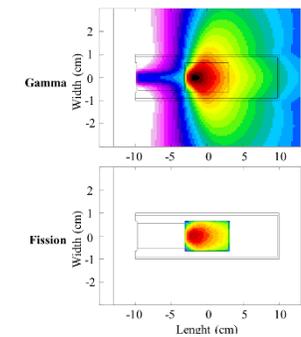
$$RF = 100 \left(1 - \frac{I_{chauffé}}{I_{non\ chauffé}} \right)$$

avec $I_{non\ chauffé} = I'_{P2} \times R$
et $I_{chauffé} = I'_{P1}$

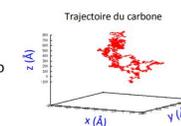
Cette R&D a pour objectif de répondre à plusieurs questions :

- Quelle structure cristalline de l'UC ou l'UC₂ permet de mieux diffuser les éléments radioactifs ?
- Quelle est l'influence de l'effusion : le produit de fission a-t-il une interaction chimique avec son environnement « en excès » (carbone ou nitrure de bore) ?

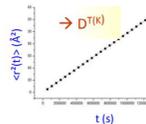
Collecter des données pour arriver à simuler le comportement d'un produit de fission dans une cible



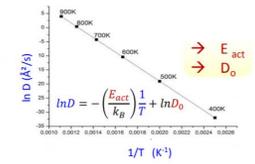
Monte Carlo
 Cinétique



Déplacement
 carré moyen
 $\langle r(t)^2 \rangle = 6Dt$

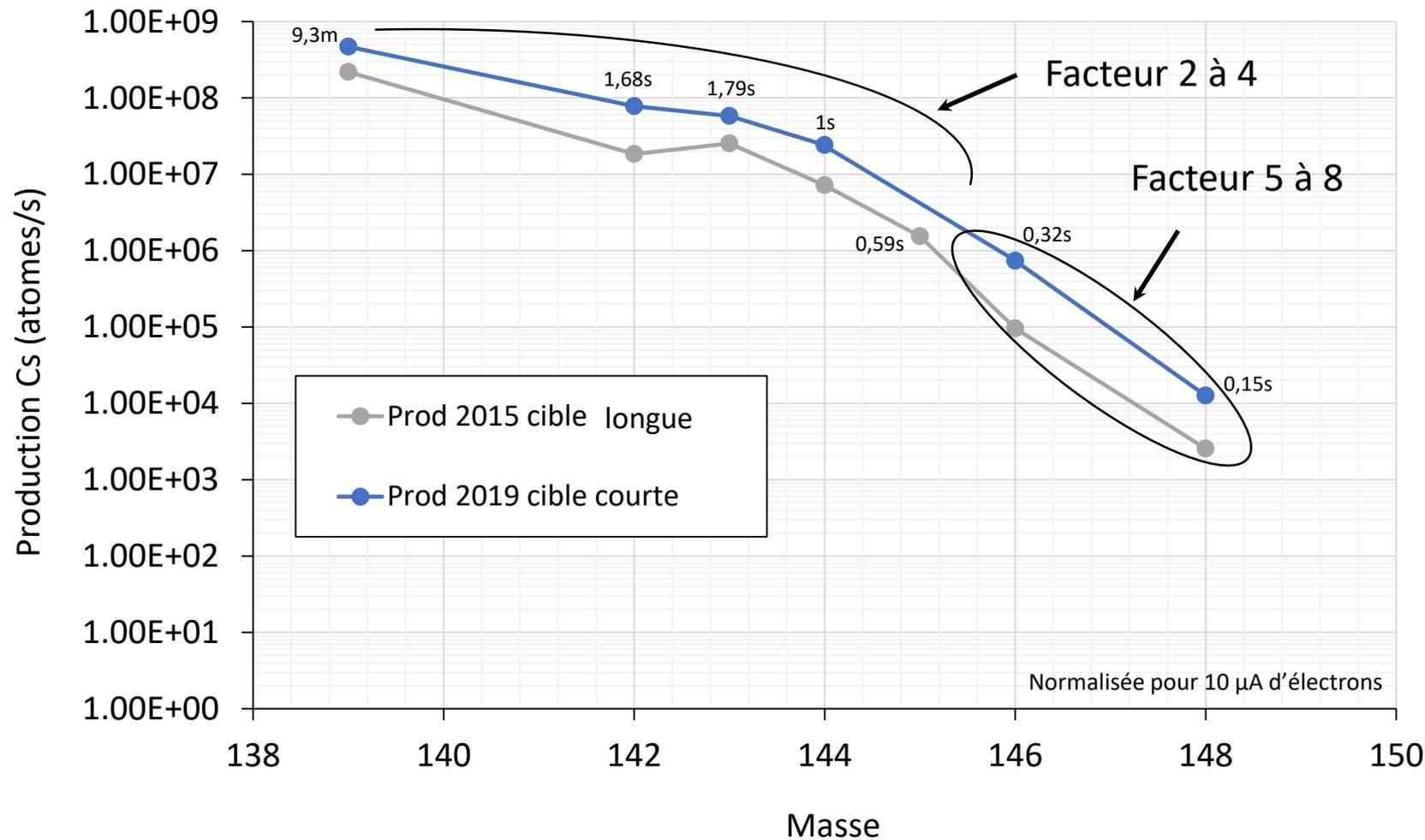


Calcul de D en
 fonction de T



Merci pour votre attention

Production du Cs cible courte juin 2019



1. Déterminer les coefficients de diffusion des atomes étudiés à l'IPN

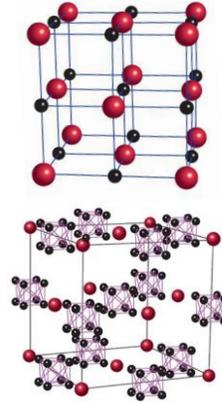
- Vienna Ab-initio Simulation Package
 - Modéliser la maille cristalline UC et UC₂
 - Identifier les sites interstitiels, substitution, lacunes
 - extraire les énergies d'activation des PFs et distances entre sites
- Exécuter le code KMC (Kinetic Monte-Carlo)
 - extraire les coefficients de diffusion(Collaboration avec **Maxime Ignacio** PMC - X)

2. Modéliser le comportement des PFs dans une cible d'UC_x

(Collaboration avec **Denis Grebenkov** PMC - X)

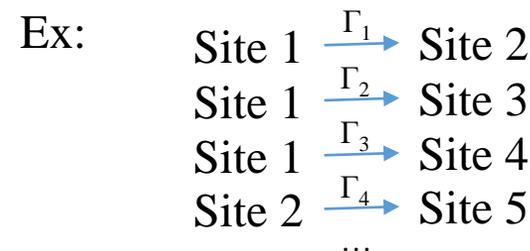
- quantifier l'influence de la porosité (distribution, ouvert ou fermée taille), épaisseur de la cible, taille des grains ...

- Modélisation de la structure d'UC ou UC₂



- Identifier les sites interstitielles (Oh, Td ...)
- Nombre de sites
- Environnement
- Stabilité
- Connexions entre sites voisins
- Distance entre sites interstitiels

- Probabilité de saut entre sites voisins



Calcul des énergies de migration E_{mig}
 et des fréquences d'attaques ν

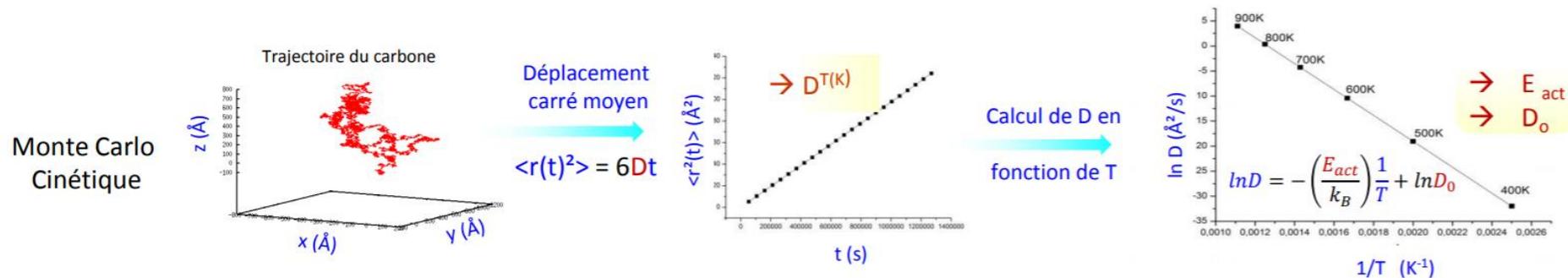
→ Probabilités de saut Γ

$$\Gamma_{i \rightarrow j} = \nu \cdot \exp(-E_{\text{mig}} / K_b \cdot T)$$

Détermination de probabilités de saut entre sites voisins ($\Gamma_{i \rightarrow j}$) qui serviront dans le KMC pour déterminer l'univers des possibles

Algorithme du KMC :

- 1) On reprend les probabilités de saut déterminées avec VASP
Ces probabilités formeront notre « univers de possibles »
- 2) On calcul le taux de transition cumulé
$$Q = \sum \Gamma_i$$
- 3) Tirage d'un nombre aléatoire U
$$U \in [0;Q]$$
 avec U uniforme
- 4) On sélectionne et réalise l'évènement
Incrémenter le temps $t+\Delta t$ avec $\Delta t = \ln(U)/Q \sim 1/Q$
Incrémenter de la distance parcourue (distance interstitielle)



Mod le de diffusion isotrope dans un cylindre (collaboration Denis Grebenkov)

- Fraction rel ch e :

$$RF(t_c) = 1 - \frac{32}{\pi^2} \sum_{k,m=1}^{\infty} \frac{\exp\left(-Dt_c \left(\frac{J_{0,k}^2}{R^2} + \frac{\pi^2(2m-1)^2}{L^2}\right)\right)}{J_{0,k}^2(2m-1)^2}$$

- Efficacit  de rel chement :

$$\varepsilon_{RF}(\lambda) = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{(2m-1)^2 \left(1 + \frac{\pi^2(2m-1)^2 D}{\lambda L^2}\right)} \left(1 - \frac{2I_1(S_m)}{S_m I_0(S_m)}\right)$$

- Production en sortie de cible :

$$\varphi_{pastille} = N_{fission} \times Y \times \varepsilon_{RF}(D, T_{1/2})$$

