

Proposition de stage – Année 2020-2021

Niveau du stage : M1

Durée du stage : 6 semaines

Ouverture éventuelle vers un sujet de thèse :

Type de financement envisagé : stage non rémunéré

Responsable du stage : Clotilde GAILLARD

Téléphone : 04-72-43-18-23

Email : gaillard@ipnl.in2p3.fr

Adresse : IP2I Lyon – Bureau XXX

Domaine Scientifique de la Doua – Bât. Paul Dirac

4 rue Enrico Fermi – 69622 Villeurbanne Cedex - France

Equipe d'encadrement : C. Gaillard, Y. Pipon, N. Moncoffre

Thématique : Etude sur le combustible nucléaire

Intitulé du stage : Etude des mécanismes d'incorporation des atomes d'oxygène dans UO_2 oxydé par couplage spectroscopie Raman/RBS-c

Description du travail demandé :

Le système uranium-oxygène est un des plus complexes mais aussi l'un des plus importants avec l'utilisation d' UO_2 comme combustible nucléaire. En situation accidentelle et même en conditions normales réacteur, une rupture de gaine peut permettre à de la vapeur d'eau d'être en contact avec le combustible, entraînant son oxydation. La formation d' UO_{2+x} entraîne une diminution de la conductivité thermique du combustible et augmente le relâchement de gaz de fission.

Le but de ce stage est d'utiliser 2 types de matériaux UO_2 (monocristaux et pastilles polycristallines) et le couplage de 2 techniques expérimentales complémentaires, la spectroscopie Raman et la RBS en canalisation, afin d'explicitier les mécanismes d'oxydation de UO_2 en UO_{2+x} pour de faibles sur-stœchiométries ($x < 0.03$). Les échantillons d' UO_2 seront oxydés de façon contrôlée sous vapeur d'eau grâce à un système mis en place à l'IP2I. Ce dispositif permet de contrôler précisément les conditions d'oxydation (T , $p\text{O}_2$) afin de reproduire les conditions oxydantes de recuit proches de celles d'un scénario accidentel en réacteur. Suite à ce traitement, les échantillons seront analysés par 2 techniques. La spectroscopie Raman est une technique d'analyse non-destructive sensible à la formation d'oxydes dans l' UO_2 qui induisent, par incorporation d'atomes d'oxygène, une distorsion du réseau cubique. Cette technique sera mise en œuvre à l'IP2I sur un dispositif permettant une cartographie des échantillons et donc, de suivre l'évolution des différentes bandes en fonction de leur localisation dans les grains ou les joints de grain. Ensuite, la canalisation d'ions légers associée à la spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford (RBS-c) sera mise en œuvre au laboratoire CSNSM/FLUO à Orsay sur les échantillons monocristallins. Elle permet de faire de la cristallographie dans l'espace direct. En particulier la présence d'agrégats de défauts d'oxygène peut être

identifiée par balayages angulaires autour des directions et plans cristallographiques majeurs du monocristal et leur comparaison avec des simulations numériques pour les différents types de défauts proposés.

Le but final de cette étude est de mieux comprendre les mécanismes d'incorporation des oxygènes interstitiels dans UO_2 , à la fois entre les joints de grains et les grains, mais aussi la localisation de ces atomes O dans la maille en fonction de la sur-stœchiométrie en oxygène.

Internship offer – Year 2020-2021

Internship level: M2

Duration: 4 months

Possible PhD follow up: Yes

Proposed PhD funding type: Interdisciplinary program NEEDS (CNRS)

Supervisor: Clotilde Gaillard

Phone: 04-72-43-18-23

Email: gaillard@ipnl.in2p3.fr

Address: IP2I Lyon – Bureau XXX

Domaine Scientifique de la Doua – Bât. Paul Dirac

4 rue Enrico Fermi – 69622 Villeurbanne Cedex - France

Mentoring team: C. GAILLARD, Y. PIPON, N. MONCOFFRE

Research field: Study of nuclear fuel UO_2

Internship title: Study of incorporation mechanisms of oxygen in UO_{2+x} by coupling Raman spectroscopy and RBS-c

Work description:

The uranium-oxygen phase diagram is one of the most complex but also one of the most important with the use of the UO_2 oxide as nuclear fuel. In normal or accidental reactor conditions, the fuel may be in contact with vapor pressure after a fuel cladding failure. As a consequence, UO_2 oxidizes in UO_{2+x} which leads to a decrease of its thermal conductivity and may induce a release of volatile fission products. However, the mechanisms of UO_{2+x} formation remain unclear and the aim of this internship will be to explicit the structure of UO_{2+x} for weak hyper-stoichiometries.

To this aim, 2 different UO_2 materials (mono-crystal and poly-crystal) will be used. They will be oxidized under controlled conditions (T, $p\text{O}_2$, atmosphere) thanks to a device developed at IP2I able to reproduce the oxidizing annealing conditions close to the ones occurring in reactor. Then, samples will be analysed using 2 complementary techniques. Raman spectroscopy will be carried out at IP2I. It is sensitive to the presence of oxide phases in UO_2 which induces a distortion of the UO_2 lattice. Then, ion canalization coupled with Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS-c) will be made on monocrystalline samples at the CSNSM/FLUO lab in Orsay. This technique can identify and localize the presence of oxygen clusters in the lattice.

Finally, the results will give new insights on the incorporation of oxygen atoms in UO_2 between grains and grain boundaries, but also on the localization of these O atoms in UO_2 lattice as a function of the hyper-stoichiometry.