

Oxydes d'actinides à façon pour la fabrication de combustibles nucléaires de Génération IV

S. Chaigne, A. Maitre, B. Arab-Chapelet

► **To cite this version:**

S. Chaigne, A. Maitre, B. Arab-Chapelet. Oxydes d'actinides à façon pour la fabrication de combustibles nucléaires de Génération IV. Les 18 èmes Journées Scientifiques de Marcoule, Jun 2018, Bagnols-Sur-Cèze, France. cea-02338607

HAL Id: cea-02338607

<https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-02338607>

Submitted on 9 Dec 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Oxydes d'actinides à façon pour la fabrication de combustibles nucléaires de Génération IV

Nom, Prénom : Chaigne Séverin
Responsable CEA : Bénédicte Arab-Chapelet
Directeur universitaire : Alexandre Maître
Laboratoire d'accueil : IRCER (Limoges) / LPCA
Date de début de thèse : 22/10/2015

Contrat : CTBU
Organisme co-financeur : ANR
Université d'inscription : Limoges
Ecole doctorale : SIMME (n°522)
Master : Sciences des matériaux

I. Contexte de l'étude

1. Contexte

Cette étude s'inscrit dans le cadre des recherches menées sur le traitement-recyclage des combustibles nucléaires du futur et, plus précisément, sur la fabrication de nouveaux combustibles sous forme de pastilles à partir de poudres d'oxydes à base d'actinides de différentes morphologies. Différents procédés de conversion sont envisagés pour la synthèse d'oxydes d'actinides à partir de l'uranium et du plutonium issus du traitement des combustibles usés. Plusieurs études menées au CEA sur le procédé de conversion par voie oxalique ont permis d'aboutir à des oxalates et à des oxydes d'actinides de morphologies très variées en fonction des paramètres de précipitation.

2. Objectifs

Dans ce contexte, l'objet de cette étude vise à évaluer l'aptitude à la mise en forme et au frittage de poudres d'oxydes d'actinides présentant différentes compositions chimiques, morphologies et textures poreuses. Dans un premier temps, il s'agit de travailler sur différents lots de poudres d'oxyde de cérium (CeO_2) généralement utilisés comme analogues non radioactifs des actinides d'après des propriétés physicochimiques assez similaires (e.g. rayon ionique, structure cristallographique, ...). Une étude comparative du comportement de lots de poudre de différentes morphologies (i.e. forme, degré d'agglomération ou d'agrégation) a été menée lors des étapes de mise en forme et de frittage naturel. Afin de mettre plus facilement en exergue l'effet des paramètres morphologiques des matières premières, les travaux préliminaires se sont orientés vers l'utilisation d'une méthode de mise en forme conventionnelle, à savoir le pressage uniaxial, suivie par une étape de frittage naturel sous air. Les études suivantes vont se focaliser sur le développement d'un procédé innovant de mise en forme dans le domaine d'application nucléaire. Ce procédé devra permettre d'améliorer l'homogénéité de l'arrangement des particules au sein du combustible mais aussi de réduire le risque de propagation de poussières radioactives et de fabriquer des combustibles de géométrie annulaire.

II. Résultats et perspectives

1. Résultats

Une poudre commerciale et une poudre synthétisée par précipitation oxalique de CeO_2 ont été utilisées pour la mise au point du procédé de coulage-gélification. Des études préliminaires ont

montré des aptitudes à la mise en forme et au frittage distinctes fonction de la morphologie initiale des poudres, de leur état d'agrégation, de la densité à cru et de la distribution en taille de pores. Par exemple, l'agrégation des particules de CeO_2 résultant de la précipitation oxalique inhibe la capacité de compactage au cours du pressage et entraîne un frittage différentiel. Il serait pertinent d'améliorer les caractéristiques initiales de la poudre grâce à une étape de désagglomération afin d'obtenir un cru homogène en terme de taille de grains et de pores. C'est dans ce sens que le procédé de coulage-gélification a été choisi. Une suspension céramique est consolidée dans un moule non poreux de forme plus ou moins complexe suite à un processus de gélification induit par une réaction de polymérisation. Une pièce crue solide constituée de particules céramiques emprisonnées dans un réseau polymérique est ainsi obtenue. Ces additifs organiques sont ensuite éliminés lors d'une étape de déliantage à température modérée (i.e. $T < 800^\circ\text{C}$). Ce procédé permet la fabrication de pièces de forme complexe et de microstructure (densité relative et taille de grains) contrôlée. Sur la base de formulations gélifiantes issues de la littérature, les étapes-clés du procédé ont été étudiées, notamment : (1) la stabilisation des suspensions, (2) l'initiation de la gélification et (3) l'évolution des caractéristiques microstructurales et dimensionnelles des pièces crues en fonction des traitements thermiques (séchage, déliantage, frittage). La mise en œuvre du procédé s'est avérée concluante sur une poudre commerciale de CeO_2 . La suite du travail s'est focalisée sur une poudre de cérine synthétisée par précipitation oxalique. Après une phase d'adaptation des caractéristiques morphologiques des poudres synthétisées et du procédé de mise en forme, des pièces de forme complexe ont pu être élaborées. La transposition à une poudre d'oxydes mixtes $(\text{U,Ce})\text{O}_2$ a ainsi pu être initiée et a permis de fabriquer les premières pastilles annulaires.

2. Perspectives

Les travaux actuels s'orientent sur l'optimisation du traitement de frittage de la poudre synthétisée par précipitation oxalique afin d'obtenir densité relative supérieure à 95%. Parallèlement, l'étude du comportement sous irradiation des différents réactifs mis en œuvre dans ce procédé innovant a été effectuée à partir d'essais d'irradiation interne (incorporation de poudre à base de ^{238}Pu) et externe (irradiation par rayonnement alpha). Cette étude a permis de montrer que le rayonnement n'avait a priori pas d'effet néfaste sur le processus de gélification.