

LES CIBLES DE TRANSMUTATION À L'ÉPREUVE

Par leurs propriétés neutroniques, les réacteurs à neutrons rapides constituent un outil de choix pour la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue qui représentent la partie la plus indésirable des déchets nucléaires. Les chercheurs du CEA préparent les expériences qui permettront de tester en réacteur différentes formules pour les capsules et combustibles de transmutation. L'exploitation des résultats de ces expérimentations doit fournir des bases pour le choix des meilleures solutions opérationnelles.

Vue des deux cellules blindées du laboratoire Atalante, au CEA/Valrhô-Marcoule, contenant les équipements de fabrication des cibles d'américium destinées aux expériences Écrix. La presse de mise en forme des pastilles cylindriques, en particulier, est visible dans la partie droite de la cellule de gauche.



CEA

Écrix, une expérience à deux volets

Les études de faisabilité de la **transmutation** des **actinides mineurs** et des **produits de fission à vie longue** par différents systèmes de réacteurs nucléaires et selon différents scénarios de **recyclage** ont permis de retenir les concepts les plus prometteurs. Parmi ceux-ci, les **réacteurs à neutrons rapides (RNR)** où les flux et les énergies des neutrons (rapides ou en partie modérés) sont bien adaptés à la transmutation de quantités importantes d'actinides mineurs sans impact important sur la physique du cœur.

Dans ce contexte, les expériences Écrix prévues lors de la remontée en puissance de Phénix, au CEA/Marcoule, ont deux objectifs. Le premier est de tester le comportement sous irradiation des capsules "cibles" contenant les produits à transmuter, placés sous la forme de céramiques composées d'oxyde d'américium (AmO_x) dispersé dans la magnésie (MgO). Le second est de valider le concept d'incinération en RNR de l'américium en flux localement modéré, dans des proportions significatives de fission et de transmutation (environ 80-90 at % américium)⁽¹⁾.

Plus ou moins près du cœur

Avec pour objectif un taux de fission de 30 %, le programme Écrix comporte deux irradiations (Écrix-B et Écrix-H) avec deux matériaux modérateurs différents, le carbure de bore et l'hydrure de calcium. Le premier ($^{11}\text{B}_4\text{C}$) est bien connu en tant qu'absorbant neutronique des réacteurs nucléaires. Le second (CaH_x) est potentiellement un bien meilleur modérateur mais ses propriétés sous flux demandent à être précisées par une phase de R&D expérimentale. L'effet modérateur du carbure de bore étant faible, la cible Écrix-B est placée au sein des assemblages **fissiles** en 4^e couronne du cœur (figure 1) pour une irradiation prévue de 700 jours équivalents puissance nominale (JEPN)⁽²⁾. Pour l'hydrure de calcium de la cible Écrix-H, l'effet de modulation est élevé avec un net déplacement du flux vers le domaine **thermique** et donc une forte augmentation des **sections efficaces** des actinides, en l'occurrence des isotopes de l'américium que l'on cherche à transmuter. Afin de rendre le niveau de puissance acceptable, Écrix-H est placée en première couronne radiale fertile pour une irradiation de seulement 450 JEPN.

Le dispositif d'irradiation complet consiste pour chaque cible en une capsule d'irradiation amovible renfermant l'aiguille expérimentale, d'une longueur de 120 cm et d'un diamètre de 0,655 cm (figure 2). Refroidie par le sodium, elle est elle-même placée dans un assemblage porteur spécifique. Les deux aiguilles sont identiques avec une hauteur d'empilement de pastilles "américiées" de 20 cm centré sur le plan de flux maximum du réacteur et un gainage austénitique⁽³⁾ "standard RNR".

Des pastilles de haute technologie

Sous quelle forme chimique faut-il introduire l'américium dans le réacteur ? Une réponse "logique" consiste dans un premier

(1) at % indique le pourcentage d'atomes fissionnés par rapport au nombre d'atomes initial.

(2) Jours équivalents puissance nominale (pour un réacteur nucléaire).

(3) Un acier austénitique est un acier auquel sa structure cristalline "cubique à faces centrées" donne une très bonne capacité de déformation et une bonne résistance mécanique.

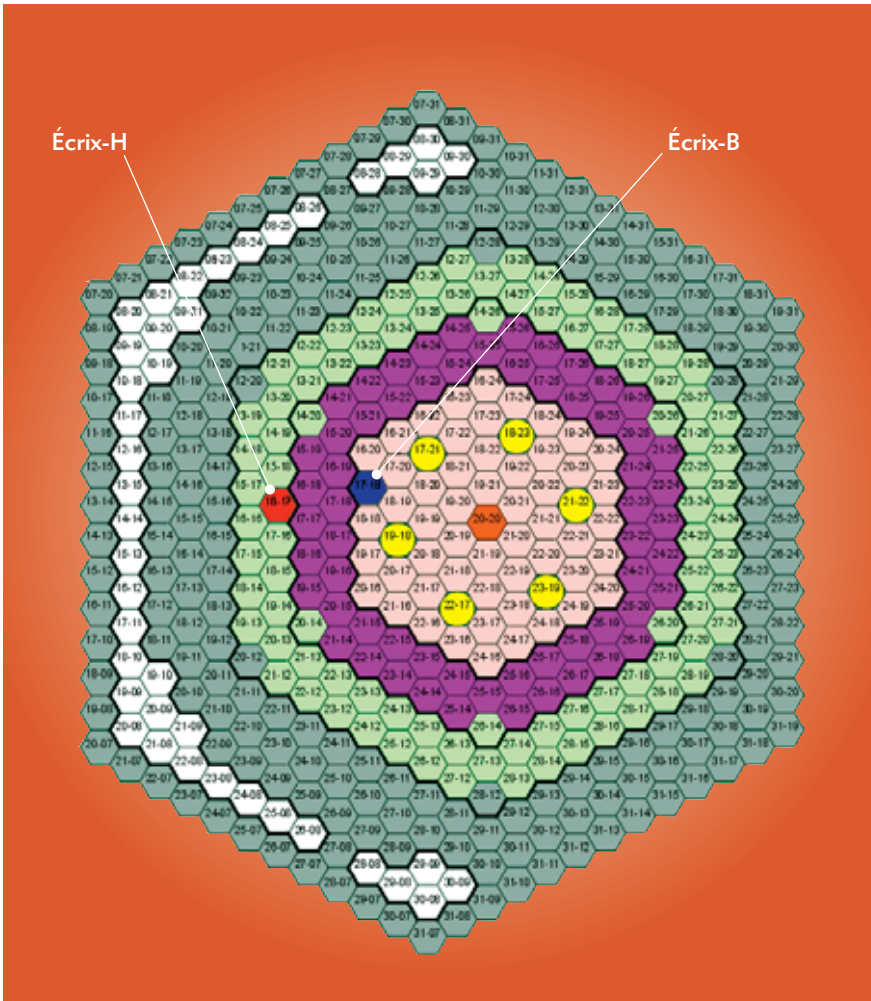


Figure 1. Emplacement des expériences Écrix dans le cœur du réacteur Phénix.



constituées d'une matrice inerte en magnésium contenant 17 % en masse de fines particules d'oxyde d'américium (une "microdispersion" d' AmO_x). Leurs spécifications résultent conjointement des études de faisabilité sur l'élaboration de ce composite céramique-céramique (**cercer**), des calculs neutroniques et thermomécaniques et des prévisions de comportement du matériau cible.

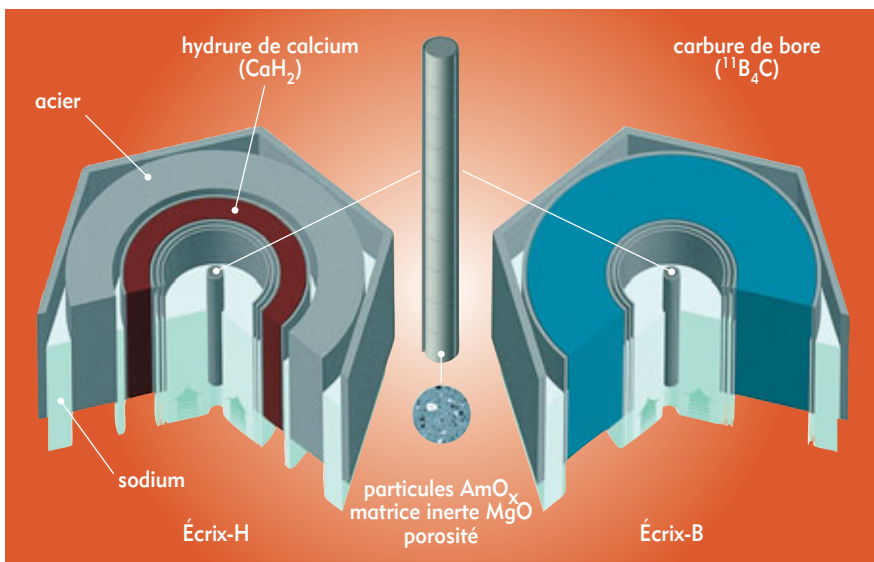
Deux années d'études ont été nécessaires aux équipes de Laboratoire d'études et de fabrication des combustibles avancés de Cadarache et du laboratoire **Atalante** de Marcoule pour mener à bien le programme de R&D destiné à fournir le procédé de fabrication et les techniques de caractérisation permettant l'élaboration d'un matériau de qualité contrôlée conforme aux spécifications. Des outils de fabrication originaux, tels que le granulater pour préparer les fines particules d'oxydes ou la presse de pastillage, de dimensions nécessairement très réduites, ont été développés à cet effet et implantés dans les cellules blindées d'Atalante. Les paramètres de chaque étape de la gamme de fabrication ont été déterminés avec un soin tout particulier apporté au suivi de l'évolution du rapport **stoechiométrique** oxygène/américium. En effet, ce rapport évolue entre 2,00 et 1,62 en fonction de la nature des gaz utilisés pendant le traitement thermique de frittage (argon et argon/ H_2) et pendant l'entre-

CEA

temps à choisir l'oxyde réfractaire, afin de bénéficier du savoir-faire acquis sur les oxydes "similaires" d'uranium et d'uranium-plutonium (**MOX**) des **combustibles** nucléaires.

Dans quelle matrice disperser cet oxyde ? Les fissions résultant du processus de transmutation de l'américium produisent beaucoup d'énergie. Il n'est donc pas possible de l'introduire seul en réacteur sans risque de surchauffe et par conséquent de rupture de

la gaine entourant la cible. L'oxyde du **radioélément** est donc enrobé dans une matrice chargée de contenir et d'encaisser l'énergie des différents éléments résultant de la transmutation, produits de fission et particules **alpha**. Cette matrice doit aussi résister à l'irradiation directe par les neutrons du réacteur : les expériences préliminaires indiquent que la magnésite semble un des matériaux les plus prometteurs. Les pastilles sont ainsi



CEA

Figure 2. Disposition des aiguilles expérimentales d'Écrix-H et B dans leurs dispositifs d'irradiation.





CEA
Dispositif d'irradiation Écrix consistant en une capsule d'irradiation amovible (en jaune) renfermant l'aiguille expérimentale, de 6,5 mm de diamètre et de 1,2 m de longueur, placée dans un porteur.



posage (atmosphère inerte d'azote). Or, seul le matériau $\text{AmO}_{1,62}$ s'avère bien résister au test spécifié d'immersion de 48 heures dans le sodium à 500 °C et pourra donc être testé sous irradiation. Il a également été nécessaire de mettre au point des techniques de caractérisation appropriées telles que la mesure de l'homogénéité de répartition de l'américium par spectrométrie gamma ou la mesure de la perpendicularité des pastilles par métrologie laser.

Les matériaux finalement obtenus présentent un ensemble très satisfaisant de caractéristiques physiques, thermophysiques et microstructurales : la densité approche 97 % de la densité théorique ; plus de 60 % des particules présentent un diamètre moyen inférieur à 2 μm et aucune particule n'a de diamètre supérieur à 100 μm , ce qui démontre la faisabilité technique de la fabrication d'une cible contenant l'oxyde d'américium sous forme microdispersée. Les propriétés thermophysiques mesurées à l'Institut des transuraniens de Karlsruhe (diffusivité thermique, capacité calorifique, expansion thermique, température de fusion) sont très proches de celles de la magnésie et l'effet de la stœchiométrie de l'oxyde d'américium n'est pas perceptible sur elles. En revanche, cette influence est nettement marquée sur le potentiel d'oxygène⁽⁴⁾ qui est similaire, pour le matériau $\text{AmO}_{1,62}$, à celui de l'oxyde d'uranium stœchiométrique UO_2 .

Études neutroniques, thermiques et mécaniques

L'irradiation de cibles fortement chargées en américium nécessite un ensemble de calculs spécifiques pour obtenir, aux fins de dimensionnement, la distribution spatiale et en énergie du flux neutronique dans les aiguilles expérimentales et les capsules. De cette distribution sont tirés les différents paramètres recherchés : puissances dégagées, taux de transmutation dans les aiguilles et dommages dans les matériaux. La difficulté pour ces irradiations est de s'assurer du bon traitement, par le logiciel de référence Eranos, du calcul du ralentissement, dans les modérateurs, des neutrons rapides en provenance du cœur. Elle est aussi de prendre en compte de façon suffisamment précise la formation des isotopes

(4) Le potentiel d'oxygène exprime le pouvoir oxydant relatif des différents composés d'oxydes, notamment en fonction de la température.

(5) Déplacement par atome : unité de dommage d'irradiation des matériaux, plus particulièrement ceux des structures métalliques des RNR. Dire qu'un matériau a subi plus de 100 dpa, par exemple, signifie que chacun de ses atomes a été déplacé en moyenne plus de 100 fois.

de l'américium qui contribuent significativement au dégagement de puissance.

Le calcul de la température de fonctionnement des cibles est un aspect important de la préparation des expériences car il faut vérifier qu'il existe des marges suffisantes par rapport à la limite d'utilisation des pastilles qui correspond à la température de fusion du mélange $\text{MgO-AmO}_{1,62}$ à 1657 °C. Deux procédures de calcul, l'une dite "hétérogène" qui prend en compte la taille et le pourcentage volumique des particules d'oxyde d'américium, la seconde dite "homogène" qui permet de calculer l'évolution de la température dans la matrice, ont démontré que la température resterait dans tous les cas inférieure à 1300 °C pour la matrice avec un accroissement supplémentaire limité à 50 °C dans les particules d' $\text{AmO}_{1,62}$. Enfin, une étude mécanique permet de s'affranchir du risque de rupture de gaine. Les aiguilles Écrix sont conçues pour éviter les contraintes d'interaction pastille-gaine en autorisant un gonflement sous irradiation des cibles de 25 % en volume, valeur supérieure au maximum attendu de 20 %. Les dimensions des vases d'expansion prennent en compte la production importante de gaz de fission et d'hélium et la dose intégrée par la gaine est en dessous du seuil d'endommagement par les neutrons (56 dpa⁽⁵⁾ pour Écrix-B et 12 dpa pour Écrix-H).

D'autres expériences pour optimiser les cibles

Parallèlement à Écrix, un ensemble d'autres expériences d'irradiation programmées dans Phénix vise à tester des voies d'optimisation des cibles pour la transmutation. Il s'agit d'une part, avec les expériences Matina, d'explorer d'autres types de matrices que la magnésie, notamment à base de zircone. Pour la transmutation de l'américium, les expériences Camix-Cochix s'appliquent pour leur part à évaluer des composés plus stables que l'oxyde et des microstructures où le composé d'américium est réparti en gros grains dans la matrice. Les dommages liés à la fission et aux particules alpha seraient ainsi plus localisés que dans la configuration testée avec Écrix où une partie importante de la matrice risque d'être "endommagée" par l'irradiation. Concernant les produits de fission à vie longue, des cibles sont développées pour transmuter, par exemple, le technétium métallique dans l'expérience Anticorp 1.

Toutes ces expériences doivent fournir, à l'échéance de 2006 puis au-delà, les informations nécessaires pour confirmer la faisabilité technique à plus grande échelle de la transmutation de la partie la plus indésirable des déchets nucléaires.

Dominique Warin
Direction de l'énergie nucléaire
CEA/Saclay