

Etude des diagrammes de phases Na-U-O et Na-Np-O pour la sûreté des réacteurs rapides refroidis au sodium (SFRs).

A.L. Smith^{1,2}, P.E. Raison¹, L. Martel¹, D. Prieur¹, A. Hen¹, E. Colineau¹, J.-C. Griveau¹, J.-Y. Colle¹, O. Benes¹, E. Suard³, A.C. Scheinost⁴, C. Hennig⁴, G. Wallez⁵, A.K. Cheetham², and R.J.M. Konings²

¹European Commission, Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, Allemagne

²University of Cambridge, Department of Materials Science and Metallurgy, Royaume Uni

³Institut Laue Langevin, France

⁴Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf (HZDR), Institute of Resource Ecology

⁵Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée – UPMC- ChimieParisTech, France

anna.smith@ec.europa.eu, als77@cam.ac.uk

Dans l'éventualité d'une rupture de gaine dans un réacteur refroidi au sodium (Sodium-cooled Fast reactor, SFR), le sodium, qui joue le rôle de caloporteur, pourrait entrer en contact avec le combustible nucléaire (U, Pu, Np, Am)O₂. La connaissance des propriétés structurales, thermomécaniques, et thermodynamiques des composés se formant dans les diagrammes de phases Na-M-O (M=U, Pu, Np, Am) est donc essentielle pour l'évaluation des risques de sûreté des réacteurs en conditions accidentelles.

Des études datant des années 1980s ont montré que l'urano-plutonate Na₃U_{1-x}Pu_xO₄ se formait à la suite de l'interaction sodium-combustible sous les conditions de potentiel d'oxygène du réacteur [1]. Ce composé présente par ailleurs une densité et conductivité thermique plus faible que le combustible, ce qui peut entraîner une aggravation de la brèche initiale de la gaine. La concentration en plutonium du combustible étant de l'ordre de 20%, les composés Na₃UO₄ et Na₃U_xPu_{1-x}O₄ sont isostructuraux et ont des propriétés thermodynamiques similaires. Mais la structure de Na₃UO₄ n'avait jusque qu'ici pas été déterminée dans la littérature [2]. Nous avons récemment résolu cette structure à l'aide de diffraction de rayons X, diffraction neutronique, spectroscopie EXAFS (Extended X-Ray Absorption Fine Structure) et XANES (X-Ray Near Edge Structure), et résonance magnétique nucléaire du sodium ²³Na. Nous avons également montré que la structure pouvait accommoder un excès de sodium jusqu'à la composition Na_{3+y}U_{1-y}O₄ (0.18<y<0.2), ce qui n'avait jamais été considéré par le passé. Les coefficients d'expansion thermique du composé ont été déterminés par diffraction rayons X à haute température, et comparés à ceux du combustible. Finalement la concentration en oxygène dissous dans le sodium nécessaire à la formation du composé a été évaluée.

Concernant les systèmes Na-Np-O et Na-Pu-O, très peu d'études ont été menées depuis les années 1960s [3], et de nombreuses incertitudes existent sur les phases susceptibles de se former. Les données thermodynamiques sont aussi très rares. Nous présenterons nos études structurales du système Na-Np-O à l'aide de diffraction rayons X [4] et de spectroscopie Mossbauer, ainsi que les propriétés thermodynamiques du composé Na₂NpO₄: enthalpie de formation déterminée par spectrométrie de masse haute température et cellule d'effusion Knudsen [5], et capacité thermique à basses températures (2-300 K) étudiée grâce à un instrument PPMS (Physical Property Measurement System).

1 M.A. Mignanelli, P.E. Potter, *J. Nucl. Mat.*, **130**, (1985), 289-297

2 R. Lorenzelli, T. Athanassiadis, R. Pascard, *J. Nucl. Mat.*, **130**, (1985), 298-315

3 C. Keller *et al.*, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **27** (1965), 1205-1223

4 A.L. Smith *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **413**, (2011), 114-121

5 A.L. Smith *et al.*, *J. Chem. Thermodyn.*, **60**, (2013), 132-141