

RELATIONS ENTRE PRECURSEURS ET COMPORTEMENT AU FRITTAGE : VERS UN CONTÔLE DE LA MICROSTRUCTURE DES OXYDES (U, Ce)O₂

J. Martinez^{1,2}, N. Clavier¹, N. Dacheux¹, F. Audubert², N. Vigier³

¹ ICSM, UMR 5257 CEA/CNRS/UM2/ENSCM, Site de Marcoule Bât. 426, BP 17171, 30207
Bagnols/Cèze cedex, France

² CEA, DEN, Cadarache, DEC/SPUA/LTEC, Bât 717, 13108 St Paul lez Durance, France

³ AREVA NC / BUR / DIRP / RDP, Boîte à lettre 406B, 1 Place Jean Millier, 92 084 Paris La
Défense, France

julien.martinez@cea.fr

Les oxydes mixtes d'actinides tels que le MOX (U,Pu)O₂ sont actuellement utilisés dans certains réacteurs de la filière REP et sont considérés comme combustibles de référence pour plusieurs concepts de réacteurs électronucléaires de troisième et quatrième générations. Leur élaboration, pour l'heure basée sur des procédés associés à la métallurgie des poudres, pourrait à l'avenir faire intervenir la précipitation initiale de précurseurs cristallisés tels que les oxalates, les carbonates, les hydroxydes, ... [1]. Les solides finaux préparés devraient alors présenter une homogénéité accrue conduisant à une amélioration de plusieurs propriétés physico-chimiques du matériau (aptitude au frittage, résistance à l'irradiation, aptitude à la dissolution, ...).

Néanmoins, l'impact du précurseur utilisé sur les processus de densification menant du compact pulvérulent au solide cohésif, et donc sur la microstructure résultante, demeure largement méconnu. Ce travail vise donc à établir les relations existant entre la nature du précurseur et le comportement au frittage d'oxyde mixte (U, Ce)O₂, de manière à aboutir *in fine* à un contrôle de la microstructure des solides denses préparés, notamment concernant la taille de grains et la répartition de la porosité. Dans ce cadre, la première partie de cette étude a été consacrée à la préparation et la caractérisation de plusieurs précurseurs cristallisés à base d'uranium (IV) et de cérium, ce dernier simulant le plutonium au cours de ce travail. La caractérisation des solides obtenus a permis de déterminer l'ensemble des caractéristiques physico-chimiques des précurseurs synthétisés. Leur conversion en dioxydes mixtes a également été examinée par des techniques d'analyse variées incluant l'ATD-ATG et plusieurs techniques *in situ* dont la DRX-HT et la MEBE-HT. Ces dernières ont permis d'identifier les paramètres d'intérêt pour le frittage que constituent la morphologie, la surface spécifique ou l'homogénéité de la distribution cationique. Par la suite, l'étude de la densification a été entreprise à l'aide de techniques de caractérisation usuelles telles que la dilatométrie et la pycnométrie.

[1] E. Collins, S. Voit, R. Vedder, *ORNL Milestone Report*, (2011).