



**Technologie
in functie van
innovatie**

03

Primeur voor BR2

Fusie vraagt hoge-neutronenflux-bestraling bij 1200 °C

Twee decennia in de toekomst lijkt ver weg. Maar in het Zuid-Franse Cadarache construeert men nu de testfusiereactor ITER. Het is de laatste stap vóór de bouw van de prototype fusiereactor DEMO, die er rond 2044 moet staan. Ook het SCK•CEN draagt als onderzoekscentrum zijn steentje bij: voor het Europese programma EUROfusion zal er in BR2 een hoge-flux-bestraling plaatsvinden bij 1200 °C. Nooit eerder in de geschiedenis van het SCK•CEN werden zulke extreme omstandigheden bereikt.

De ITER-reactor die over enkele decennia in het Franse Cadarache komt, is de eerste stap om zowel de technische als de commerciële voordelen van kernfusie te bewijzen. Onderzoeksteams ontwikkelen en kwalificeren nu de materialen die in die fusiereactor zullen komen, onder meer voor de 'eerste wand' die direct wordt blootgesteld aan het plasma.

De selectie van basismaterialen voor ITER is nu afgerond. Wolfram zal als pantser dienen voor de divertor – een component dat een maximale warmtebelasting volhoudt om de meest stabiele ontlading van het plasma te bereiken. De end-of-life dosis ontvangen door het divertormateriaal in ITER zal niet boven 1 dpa (displacement per atom) gaan.

Nu moet het onderzoek naar nieuwe materialen evolueren om de werking van commercieel georiënteerde fusie-installaties mogelijk te maken – specifiek voor DEMO, het prototype van industriële fusie dat de opvolger van ITER wordt. De geaccumuleerde dosis zal er ten minste een factor 10 of 20 hoger liggen. Dit kernfusieonderzoek gebeurt in het kader van het EUROfusion-project, een H2020 samenwerkingsverband tussen Euratom en landen uit de Europese Unie, Zwitserland en het Oekraïne die een consortium vormen.

“ De eerste bestralingscampagne boven 1000 °C in BR2 wordt een echte uitdaging en zal nieuwe perspectieven bieden voor ontwikkeling van hogetemperatuurmaterialen voor zowel kernfusie als kernsplijting. ”

Bestralingscampagne in BR2

Onder meer in het SCK•CEN worden de eerste data gescreend en geselecteerd voor bestralingsomstandigheden 'na ITER'. In 2017 starten de onderzoekers een nieuwe bestralingscampagne in de onderzoeksreactor BR2 om innovatieve wolfram-gebaseerde materialen te selecteren. De imitatie van fusieomstandigheden is wél mogelijk in BR2 dankzij zijn kernflexibiliteit, de hoge flux en de grote ervaring van de experts. Door de neutronenflux en de bestralingstemperatuur te verhogen, creëren de onderzoekers neutronen die 'proxy' zijn aan een fusieomgeving. Toch vergen de end-of-life omstandigheden nog een lange bestralingstijd, ten minste vijf jaar ononderbroken straling.





GRAFJET HOUDT HET HOOFD KOEL

HTHF is de naam van de behuizing waarin het TUNER-project (TUngsten NEutron irRadiation) een bepaalde bestraling zal uitvoeren. In deze specifieke behuizing onderzoekt men het effect van de combinatie van hoge temperatuur (800 °C) en hoge flux (1 dpa in wolfram) op materialen en hun eigenschappen.

De voordelen van grafiet

De keuze ging naar grafiet, omdat het een lage neutronenabsorptie en goede warmtegeleiding heeft. Bovendien warmt grafiet door zijn laag soortelijk gewicht minder uit zichzelf op. Zo vermijden de onderzoekers dat de temperatuur te hoog zou oplopen. Het ontwerp volgde in het begin enkele meer algemene criteria, in een later stadium werd het aangepast aan de specifieke criteria van de klant. Ontwerper Gitte Borghmans moest erg gedetailleerd werken: "26 hulsjes hangen als kleine wagonnetjes achter elkaar. Elk hulsje is maar 30 mm hoog."

6 cycli in BR2

De installatie HTHF is nu ontworpen en de bouw vindt plaats begin 2017, zodat de bestraling voor de zomervakantie van 2017 kan starten. Door de gevraagde 'high flux' zal HTHF gedurende 6 cycli – ongeveer 1 jaar – in de BR2-reactor blijven. Het laboratorium LHMA neemt de bestraalde monsters in 2018 onder de loep.

De campagne in BR2 wordt een echte uitdaging en zal aantonen of BR2 in staat is extreme bestralingsomstandigheden voor nieuwe materialen te leveren. Na het succesvol aantonen van de HTHF-prestatie bestaat de volgende onderzoeksstap uit een sub-miniaturisatieprogramma: hoe kleiner de volumes, hoe lager of goedkoper de stralingsomstandigheden waaraan men moet voldoen. Kleine monstervolumes betekenen ook snelle deactivatie, goedkoop transport en in het algemeen een snelle PIE-feedback. In de toekomst zal het gebruik van miniaturisatie sterk groeien, wat de volgende grote test is voor het Fusion Materials Programme.

“ *Het project omvat ook de ontwikkeling van een nieuw bestralingsapparaat, de zogenaamde High Temperature High Flux.* ”

De te bestralen materialen zijn op wolfram gebaseerde legeringen, bedoeld voor de eerste wand en het pantser. De onderzoekers gebruiken nano-engineering om de beste prestaties te bereiken in fusieomstandigheden. Met de bestralingscampagnes willen ze nagaan: blijven de prestatie van de productiematerialen na de blootstelling aan neutronen op peil of gooien die neutronen roet in het eten?

Stap voor stap

Het project op zich bestaat uit drie delen met verschillende post-bestralingstesten en verloopt in samenwerking met de onderzoekscentra FZJ en KIT (Duitsland) en Demokritos (Griekenland). Voor de spreiding van de opdracht over verschillende centra zijn er goede redenen. Eén laboratorium heeft niet alle materialen, expertise en kunde in huis. Bovendien loopt er een race tegen de tijd, want de planning voor de bepaling van het DEMO-ontwerp is erg krap, hoewel de realisatie zelf pas tegen 2044 gepland is.

Nieuw bestralingsapparaat

De duur van het project is ongeveer drie jaar met een totaalbudget van 2,5 miljoen euro, waarvan de helft naar bestraling gaat en een derde naar 'post-irradiation experiments' (PIE). Het project omvat ook de ontwikkeling van een nieuw bestralingsapparaat, de zogenaamde High Temperature High Flux (HTHF) (zie kader).

In deze installatie zal een hoge-neutronenflux-bestraling plaatsvinden bij 1200 °C onder actieve temperatuur- en omgevingscontrole, een primeur in de geschiedenis van proeven die in het SCK-CEN uitgevoerd zijn. Na de bestraling brengen de onderzoekers de thermische, mechanische en micro-mechanische eigenschappen van de bestraalde materialen in kaart in het laboratorium voor hoge en middelhoge activiteit (LHMA).

Technologie

Duurzaamheid is geen modewoord

BR2 behoort, door de "refurbishment" en zijn unieke configuratie, nog steeds tot één van de beste testreactoren, en zal daar ook toe blijven behoren de komende generaties. BR2 is ook een uiterst betrouwbare toeleverancier van medische radio-isotopen, en staat in voor maar liefst twee derde van de wereldwijde productie. De verdere ontwikkeling van nieuwe veelbelovende medische radio-isotopen voor kankerbehandeling toont aan dat duurzaamheid ons nucleair onderzoek steeds kenmerkt en zal blijven kenmerken.

Leo Sannen

Instituutsdirecteur Nucleaire Materiaalwetenschappen



Hoe evolueert poriewater bij opwarming in Boomse Klei?

Onderzoek 225 meter onder de grond

Is de Boomse Klei geschikt voor de ondergrondse berging van radioactief afval? Dat wordt intensief onderzocht. Eén onderzoek gaat na in welke mate de warmte van het radioactieve afval - gesimuleerd door de PRACLAY Heater test - een invloed zal hebben op de samenstelling van het poriewater, dat op zijn beurt het gedrag van radionucliden kan beïnvloeden. De experimenten vinden plaats in het laboratorium HADES, 225 meter diep onder de grond.

Wetenschappers wereldwijd beschouwen diepe berging in geologisch stabiele lagen als de meest aangewezen manier voor het langetermijnbeheer van het hoogradioactieve afval. In België focust het onderzoeksprogramma zich op diepe kleilagen zoals de Boomse Klei. Voordat berging in klei concreet kan worden, is het nodig het gedrag van de klei en de impact van mogelijke verstoringen grondig te onderzoeken. Het SCK·CEN startte dit onderzoek in België bijna 40 jaar geleden.

Het onderzoek naar de impact van warmte op de samenstelling van het poriewater gebeurt in het ondergrondse laboratorium HADES, als onderdeel van de PRACLAY Heater test. Met deze test kunnen de onderzoekers nagaan hoe de Boomse Klei zich thermisch, hydro-mechanisch en chemisch gedraagt wanneer deze opwarmt door contact met hoogradioactief afval.



Onderzoekers **Mieke De Craen** en **Miroslav Honty** in het ondergrondse laboratorium HADES.

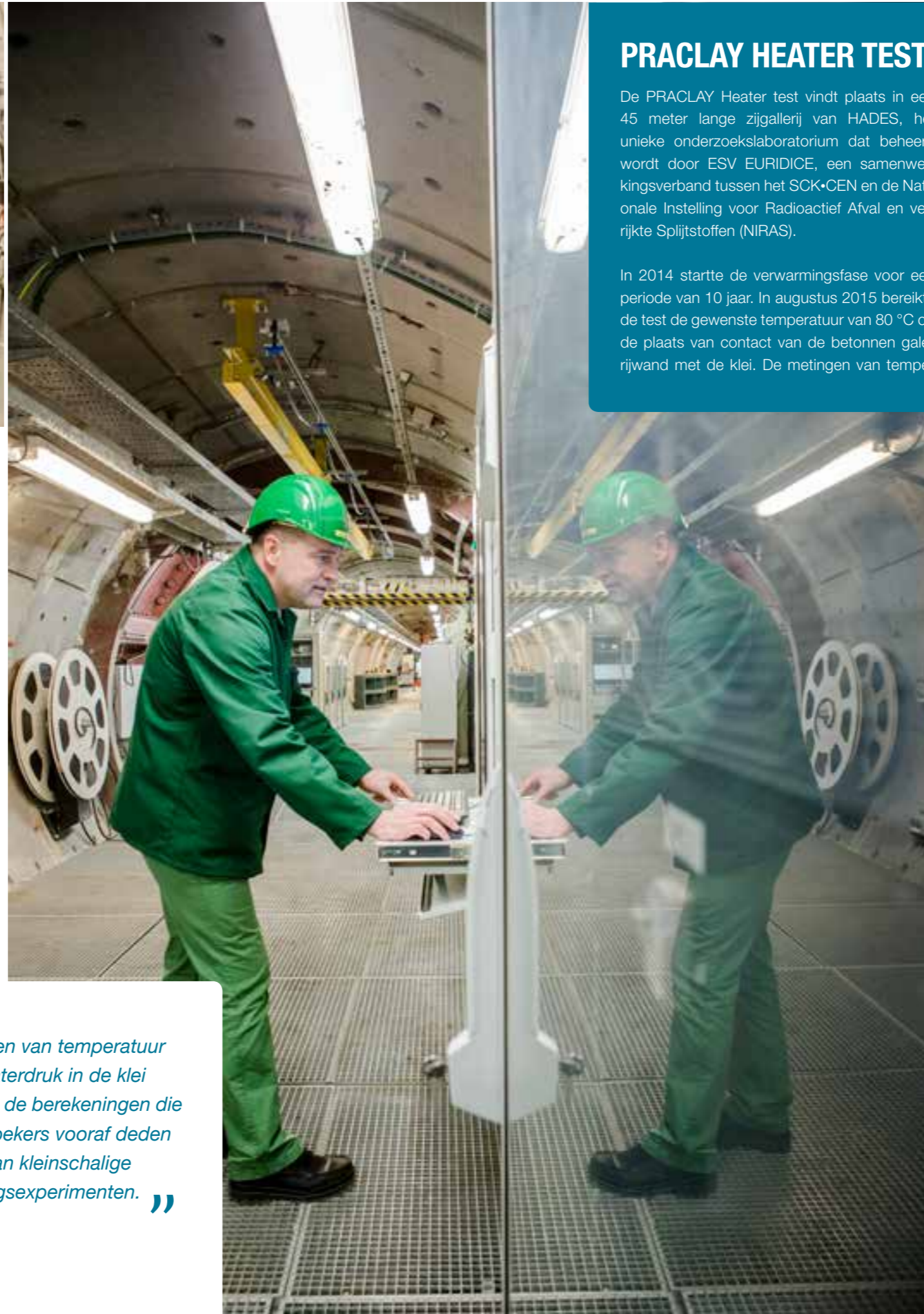


Onderzoek naar thermische belasting

Eén van de experimentele opstellingen heeft als doel om de chemische veranderingen te bestuderen die het gevolg zijn van de opwarming van de klei. Het onderzoek zal lopen over een periode van tien jaar. Hoe gaat het in zijn werk?

Onderzoekers Mieke De Craen en Miroslav Honty nemen ons mee 225 meter diep onder de grond: "Wij monstern in het laboratorium op regelmatige tijdstippen het poriewater en de daarin opgeloste gassen. We boren een gat in de kleilaag en stoppen er een piëzometer in. Bekijk het als een metalen buis met op verschillende plaatsen een filter die het water opvangt. Dat water gaat via dunne leidingen naar de experimentele opstelling in het ondergrondse laboratorium. In normale omstandigheden heeft het poriewater op deze diepte een temperatuur van 16 °C, maar door de opwarming van de PRACLAY Heater test bedraagt de temperatuur ter hoogte van de filters momenteel zo'n 55 °C. Die temperatuur kan het chemisch evenwicht verstoren en dát is precies wat we willen bestuderen. De experimentele opstelling maakt het mogelijk om een aantal specifieke parameters te meten en om het poriewater en de daarin opgeloste gassen afzonderlijk te bemonstern. De monsters vertrekken dan naar de bovengrondse laboratoria voor verdere analyse."

“ De metingen van temperatuur en poriewaterdruk in de klei bevestigen de berekeningen die de onderzoekers vooraf deden op basis van kleinschalige verwarmingsexperimenten. ”



PRACLAY HEATER TEST

De PRACLAY Heater test vindt plaats in een 45 meter lange zijgallerij van HADES, het unieke onderzoekslaboratorium dat beheerd wordt door ESV EURIDICE, een samenwerkingsverband tussen het SCK•CEN en de Nationale Instelling voor Radioactief Afval en verrijkte Splijtstoffen (NIRAS).

In 2014 startte de verwarmingsfase voor een periode van 10 jaar. In augustus 2015 bereikte de test de gewenste temperatuur van 80 °C op de plaats van contact van de betonnen galerijwand met de klei. De metingen van tempe-

ratuur en poriewaterdruk die tot nu toe in de klei zijn gebeurd, bevestigen de berekeningen die de onderzoekers vooraf deden op basis van de resultaten van kleinschalige verwarmingsexperimenten uit het verleden. Deze bevestiging, op een schaal die representatief is voor een echte berging, is één van de belangrijkste doelstellingen van het experiment. Daarnaast biedt de PRACLAY Heater test ook de mogelijkheid om de geochemische veranderingen in de klei, de stabiliteit van de betonbekleding en de betrouwbaarheid van de meetinstrumenten bij verhoogde temperatuur te testen.

Resultaten vergelijken met voorspellingen

Door de verwarming treden er chemische reacties op die het poriewater beïnvloeden. De onderzoekers willen uitvissen in welke mate dat gebeurt en of het een effect heeft op het gedrag van radionucliden. Mieke De Craen en Miroslav Honty: "We hebben een grote database van het poriewater bij een natuurlijke temperatuur van 16 °C. En we hebben ook geochemische modellen om de samenstelling van poriewater te voorspellen bij verhoogde temperaturen. Maar tot nu toe hadden we de mogelijkheid niet om de geldigheid ervan te testen aan de hand van experimentele gegevens".

Dat kan nu op grote schaal dankzij de verwarmingsproef in HADES. De onderzoekers zullen de poriesamenstelling van het water bepalen en de resultaten vergelijken met hun voorspellingen. Dankzij de nieuwe gegevens zullen we in staat zijn de situatie bij verhoogde temperaturen in detail te bestuderen. Ondertussen loopt er ook een onderzoek in nauwe samenwerking met de groep Microbiologie. Zij gaan peilen naar de mogelijke aanwezigheid en activiteit van micro-organismen in poriewater in de Boomse Klei onder thermische belasting."

U₃O₇: het ontbrekende puzzelstuk

Beter begrip van oxidatieproces

Uraniumdioxide (UO₂) is de meest gebruikte kernsplijtstof. Bij blootstelling aan lucht of water zal UO₂ oxideren naar U₃O₈. Bij die oxidatiereactie zet het materiaal minstens met een derde van zijn volume uit en bij erg fijne poeders kan dat proces zeer snel gaan. De wetenschap bestudeert al meer dan zeventig jaar de complexe structuren die tijdens de oxidatie van UO₂ naar U₃O₈ gevormd worden, maar een belangrijke tussenfase, namelijk U₃O₇ bleef tot op heden onbegrepen. Daar bracht Gregory Leinders verandering in met zijn doctoraatsstudie.

Uraniumpoeders en cilindervormige brandstofpastilles oxideren steeds als ze in contact komen met lucht. Dat kan zowel bij de productie van kernsplijtstof als bij de opslag van gebruikte splijtstof nefaste gevolgen hebben. Tijdens de oxidatiereactie komt er een aanzienlijke hoeveelheid warmte vrij, waardoor in erg fijne poeders het gevaar op spontane ontbranding ontstaat. Met alle veiligheidsrisico's tot gevolg, want in een productieproces is brand uit den boze.

Dat is niet alles. Zodra oxidatie onbeperkt optreedt, wordt het hogere en meer stabiele oxide U₃O₈ gevormd. Deze oxidevorm is niet bruikbaar voor de productie van kernsplijtstof. Bij de kristallografische overgang naar U₃O₈ vergroot het volume met liefst 36 procent. Hierdoor kunnen opslagcontainers scheuren,

niet alleen bij het productieproces maar ook bij de verwerking en bewaring van de gebruikte splijtstof.

Gegevens in tegenspraak

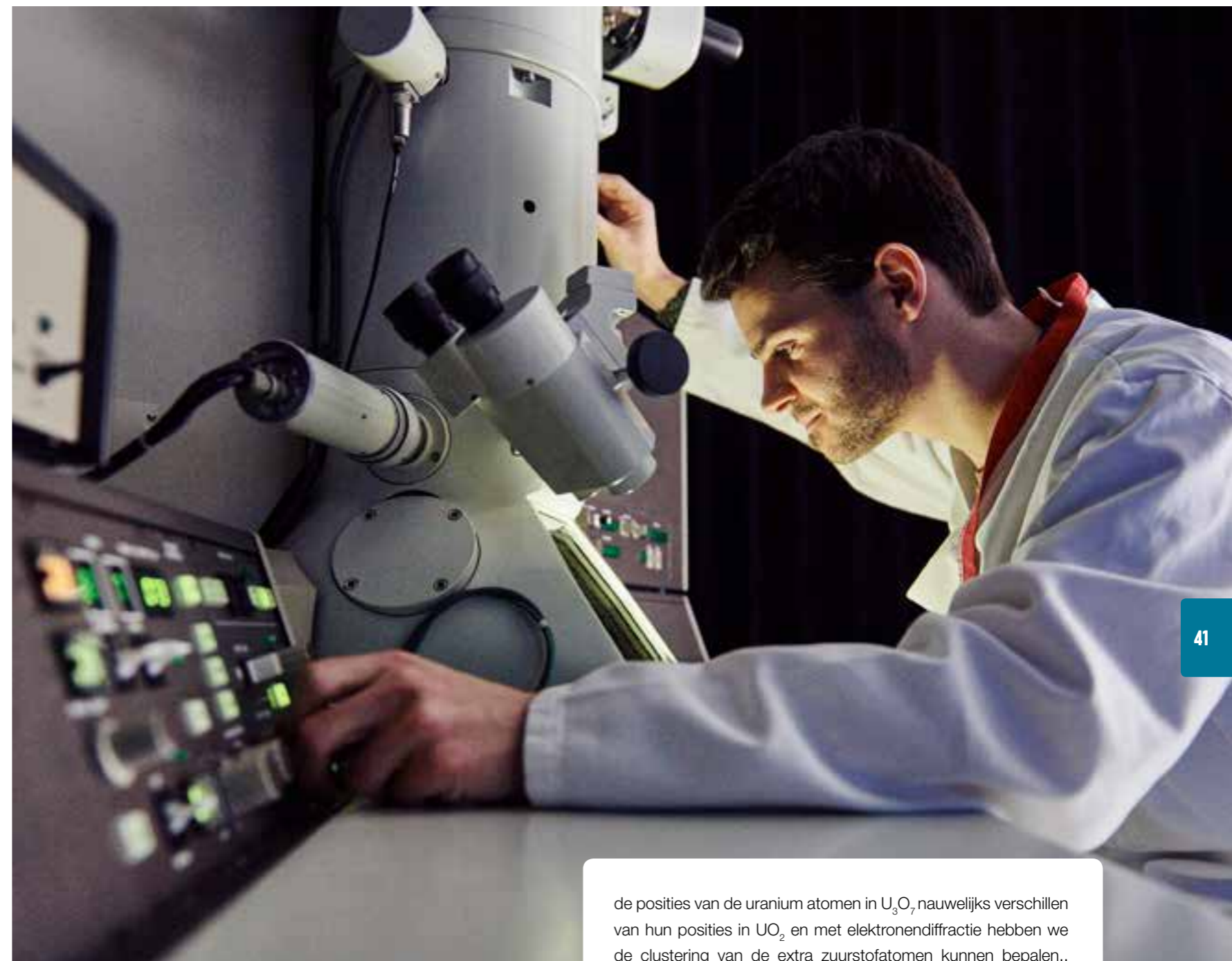
Gregory Leinders onderzocht samen met collega's uit de groep *Splijtstof-materialen* hoe zuurstof interageert met UO₂-poeders: "Ik ging na op welke manier en hoe snel de oxidatie plaatsvindt. De omstandigheden waren gerelateerd aan die bij de productie van kernsplijtstof en bij de opslag van UO₂-poeders en brand-

stofpastilles. Concreet: een maximale zuurstofconcentratie gelijk aan die in de lucht en temperaturen tot zo'n 250 °C".

Voordat U₃O₈ gevormd wordt onder deze omstandigheden, ontstaat het intermediair uraniumoxide U₃O₇. Gregory Leinders: "Hoewel dit oxide al zeventig jaar bekend is, ontbrak het aan inzicht in de complexe kristalstructuur. De gegevens spraken elkaar soms zelfs tegen. Samen met mijn collega's ben ik erin geslaagd een consistent model voor die structuur te ontwikkelen, op basis van nieuwe experimentele resultaten."

Periodische ordening

Nadat polykristallijne U₃O₇-poeders werden aangemaakt in de labo's van het SCK·CEN, gebruikten de onderzoekers X-stralendiffractie en elektronendiffractie voor de structurele analyse: "We doen dat met een bundel X-stralen en een bundel elektronen, zodat er een scattering-proces optreedt dat gevoelig is aan de positie van de atomen in de structuur.



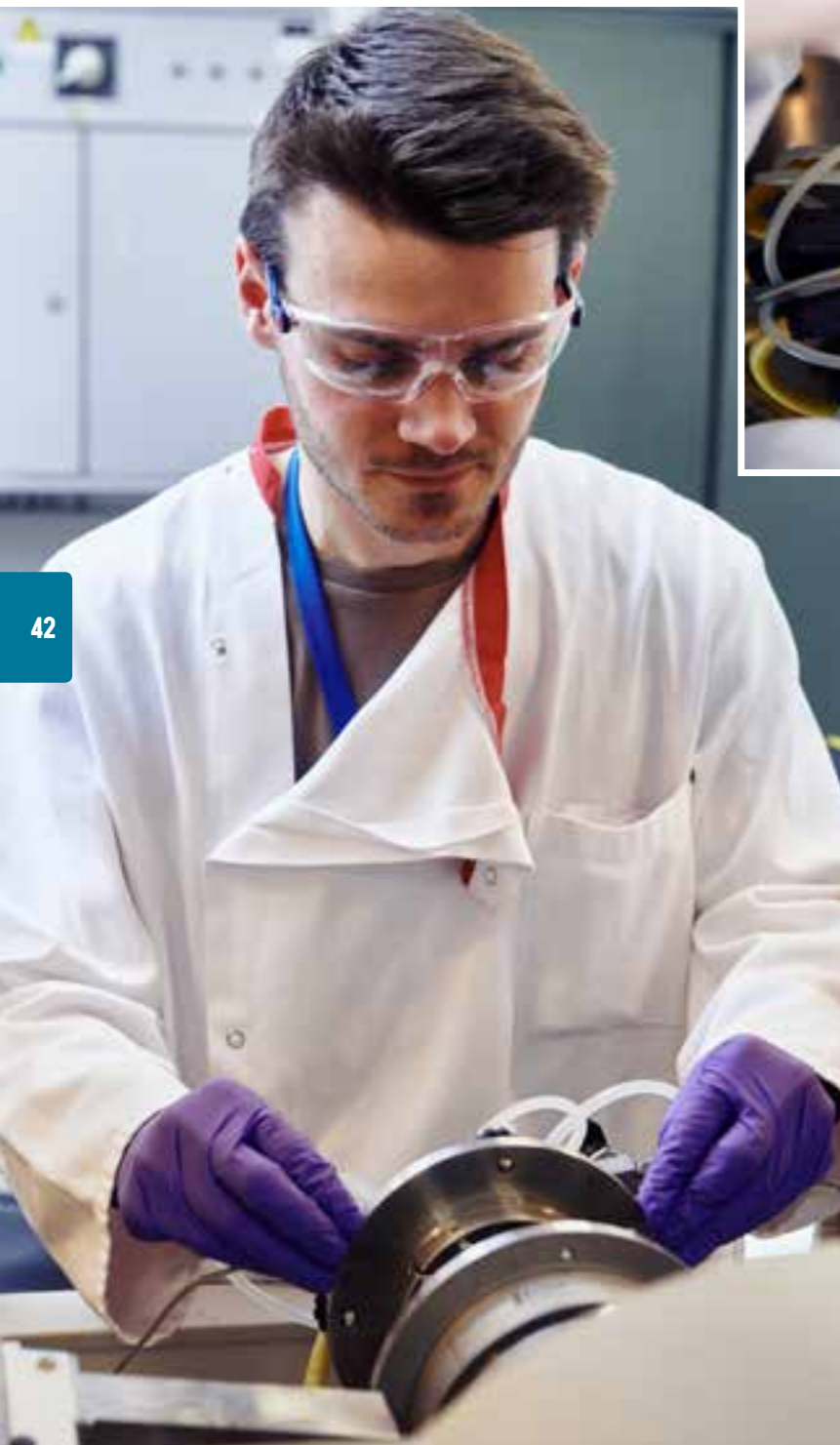
de posities van de uranium atomen in U₃O₇ nauwelijks verschillen van hun posities in UO₂ en met elektronendiffractie hebben we de clustering van de extra zuurstofatomen kunnen bepalen. Gemiddeld genomen lijkt de structuur sterk op die van UO₂, maar er zitten toegevoegde anionen gegroepeerd in zogenoemde kuboctaëder zuurstofclusters, wat leidt tot een lang-periodische ordening. Het kristalrooster kan vervolgens beschreven worden met een vergrote eenheidscel die 15 fluoriet-soort subcellen bevat."

Het gevolg is een interferentiepatroon, en dát meten we. Zulke diffractogrammen geven ons informatie over de positie van en de afstand tussen atomen en de symmetrie van de kristalstructuur."

Het gebruik van de twee diffractietechnieken maakte het mogelijk om de structuur goed in kaart te brengen: "Met X-stralendiffractie toonden we aan dat

Wetenschappers hadden er zich al meer dan 70 jaar het hoofd over gebroken, maar de onderzoekers van het SCK·CEN slaagden erin: "Eindelijk bestaat er een consistent model voor de complexe kristalstructuur van U₃O₇."

“Eindelijk bestaat er een consistent model voor de complexe kristalstructuur van U_3O_7 .”



Naar een kwantitatieve interpretatie

Met de afleiding van de U_3O_7 -kristalstructuur is een essentieel ontbrekend stuk in de puzzel van het oxidatiemechanisme van UO_2 ontdekt. Maar er is meer nodig: “De eenheidscel op zich vraagt nog verfijnd onderzoek. In een vervolgstudie willen we additionele structurele informatie ontrafelen aan de hand van hoogstaande technieken. Onder meer met synchrotron X-stralenabsorptie-spectroscopie (XAS) om de valentietoestand van de uraniumatomen te bepalen. En met precessie-elektronendiffractie voor de verdere verfijning van de kristalstructuur – een meer geavanceerde techniek die het mogelijk maakt intensiteiten in een elektronendiffractogram kwantitatief te bepalen en te interpreteren. Al deze resultaten zullen ertoe bijdragen meer inzicht te krijgen in de vorming van het belangrijke eindproduct van oxidatie: U_3O_8 .”

Nieuwe perspectieven voor behandeling van kanker

Capsules met waardevolle thorium voor gerichte Alfa therapie

Het verleden kan waardevolle schatten voor de toekomst bezitten. Het SCK•CEN heeft gedurende de jaren 70 thoriumbronnen geproduceerd en is vandaag één van de weinige onderzoeksinstituten in de wereld die in het bezit is van thorium-229. Deze radio-isotoop, zowel zeldzaam als veelbelovend, biedt een reëel potentieel in de behandeling tegen kanker.

Thorium-229 (Th-229) is een waardevol radio-isotoop, bijvoorbeeld voor gebruik in nucleaire klokken. Maar er is meer: de dochterisotopen actinium-225 (Ac-225) en bismut-213 (Bi-213) hebben veel potentieel in kankertherapie. Dat klinkt hoopgevend en toch er is één probleem: de wereldwijde hoeveelheid Th-229 is erg beperkt. Het SCK•CEN is erin geslaagd om relevante hoeveelheden Th-229 in de historische thoriumbronnen aan te tonen, waardoor de mogelijkheid ontstond om onderzoek en ontwikkeling van radiofarmaca op te starten. Meer specifiek gaat de interesse uit naar het ‘vervalproduct Ac-225, voor zowel directe toepassingen als het creëren van een generator voor Bi-213.



Targeted Alpha Therapy

Ac-225 en Bi-213 kunnen gekoppeld worden aan specifieke antilichamen. Een antilichaam is een soort voertuigmolecule waaraan een kortlevend radioactief deeltje kan worden gehangen. Het antilichaam gekoppeld met Ac-225 of Bi-213 zal zich in het lichaam vervolgens verplaatsen en specifiek binden aan een kankercel zoals een sleuteltje op een slot, en bij het radioactief verval van Ac-225 en Bi-213 komen alfadeeltjes vrij die de kankercel vernietigen. Dit is het principe van zogenoemde Targeted Alpha Therapy (TAT).

Een van de enige ter wereld

Het SCK•CEN is een van de enige onderzoeksinstellingen ter wereld die in het bezit is van Th-229 als bron voor Ac-225 en Bi-213. Tijdens het onderzoek van de historische thoriumbronnen werd de beschikbare hoeveelheid Th-229 bepaald aan de hand van een niet-destructieve meetmethode gebaseerd op gammaspectrometrie en mathematische modellering. De toegepaste kwalitatieve methode bood het voordeel dat de hermetische afdichting van de historische capsules intact bleef en dat de zuiverheid van het kostbare product niet in het gedrang kwam. De kennis en ervaring van de expertisegroep *Dismantling, Decontamination & Waste* voor de bepaling van de meetopstelling en de interpretatie van de meetresultaten was hierin cruciaal. Het thorium – slechts 1 milligram! – zat in capsules die in een volgende fase met de grootste omzichtigheid geopend moesten worden.

“Het SCK•CEN is een van de enige onderzoeksinstellingen ter wereld die in het bezit is van thorium-229, een waardevol radio-isotoop.”

“Met ons preklinisch onderzoek willen we de medische sector overtuigen van de grote meerwaarde van Targeted Alpha Therapy. Dat inzicht kan voor het SCK•CEN de deur openen naar een grootschalige isotopenproductie. Veelbelovend!”

Geslaagde operatie

De opening van de capsule vond in december 2016 plaats. Met succes! Er zijn meteen acties gestart in de vorm van het SERAPHIM-project (**S**eparation of thorium-229 from historical sources for the production of **r**adioisotopes for targeted **a**lpha **i**mmunotherapy). Eerst wordt de radiologische inhoud verwerkt voor de afscheiding van Th-229. Daarna is het de bedoeling een Ac-225/Bi-213 generator te produceren waaruit Bi-213 wordt gewonnen voor de ontwikkeling van Bi-213-gekoppelde antilichaampjes voor therapie van eierstok- en borstkanker. Dit gebeurt in het doctoraat van Yana Dekempeneer, een succesvolle samenwerking tussen de expertisegroep Radiochemie en de Vrije Universiteit Brussel.

SCK•CEN-onderzoeker Thomas Cardinaels, hoofd van het project, is ervan overtuigd dat deze alfa-isotopen een grote toekomst voor zich hebben: “Met ons preklinisch onderzoek willen we de medische sector overtuigen van de grote meerwaarde van Targeted Alpha Therapy. Dat inzicht kan voor het SCK•CEN de deur openen naar een grootschalige isotopenproductie. Veelbelovend!”