



La technologie
au service de
l'innovation

03

Fusion : primeur pour le BR2

Campagne d'irradiation à flux de neutron élevé à 1200°C

Deux décennies, cela semble encore loin. Mais l'on construit déjà actuellement à Cadarache, dans le Sud de la France, le réacteur expérimental de fusion ITER. C'est la dernière étape avant la construction du prototype de fusion industriel DEMO, qui devrait être prêt aux alentours de 2044. En tant que centre de recherche, le SCK•CEN apporte également sa pierre à l'édifice : son BR2 procèdera à une campagne d'irradiation à flux élevé à 1200°C dans le programme européen EUROfusion. Des conditions extrêmes qui n'ont jamais été atteintes auparavant dans l'histoire du SCK•CEN.

Le réacteur ITER qui sera opérationnel à Cadarache en France dans quelques décennies est la première étape pour démontrer les avantages tant techniques que commerciaux de la fusion nucléaire. Les équipes de recherche développent et qualifient maintenant les matériaux qui seront utilisés dans le réacteur de fusion, notamment pour la 'première paroi' qui est directement exposée au plasma.

Le choix des matériaux de base pour ITER est maintenant terminé. Le tungstène servira de blindage pour le diverteur - un composant qui maintient

une charge thermique maximale afin d'atteindre la décharge de plasma la plus stable. La dose de fin de vie reçue par le matériau du diverteur dans ITER ne dépassera pas 1 dpa (déplacement par atome).

La recherche de nouveaux matériaux doit à présent progresser pour permettre le fonctionnement des installations de fusion à orientation commerciale, spécifiquement pour DEMO, le prototype de fusion industriel qui succèdera à ITER. La dose accumulée devra être supérieure d'un facteur d'au moins 10 ou 20. Cette recherche sur la fusion nucléaire se fait dans le cadre du projet EUROfusion, une joint-venture H2020 entre Euratom et des pays de l'Union européenne, la Suisse et l'Ukraine qui forment un consortium.

« La première campagne d'irradiation au-dessus de 1000°C dans le BR2 est un véritable défi et offrira de nouvelles perspectives pour le développement de matériaux à haute température tant pour la fusion nucléaire que pour les combustibles nucléaires. »

Campagne d'irradiation

Les premières données ont été analysées au SCK•CEN et sélectionnées pour des conditions d'irradiation représentatives d'ITER. En 2017, les chercheurs lanceront une nouvelle campagne d'irradiation dans le réacteur de recherche BR2 pour sélectionner des matériaux innovants à base de tungstène. L'imitation des conditions de fusion est en effet possible dans le BR2 grâce à sa flexibilité, au flux élevé et à la grande expérience des experts. En augmentant le flux de neutrons et la température d'irradiation, les chercheurs créent des neutrons qui seront le 'proxy' d'un environnement de fusion. Les conditions de fin de vie requièrent cependant un grand temps d'irradiation, au moins cinq ans d'irradiation ininterrompue.





DU GRAPHITE POUR GARDER LA TÊTE FROIDE

Le projet TUNER (TUngsten NEutron irRadiation) sera irradié dans le dispositif HTHF. Ce dispositif aux dimensions précises permet d'examiner l'effet de la combinaison de la haute température (800°C) et du flux élevé (1 dpa dans le tungstène) sur les matériaux et leurs propriétés.

Les atouts du graphite

Le choix s'est porté sur le graphite parce qu'il possède une faible absorption neutronique et une bonne conductibilité thermique. En outre, le graphite chauffe moins en raison de sa faible densité. Les chercheurs évitent de cette manière que la température n'augmente trop. La conceptrice Gitte Borghmans a dû travailler de manière très détaillée : « 26 petites 'loquettes' de seulement 30 mm de hauteur sont accrochées comme de petits wagons les unes derrière les autres. »

6 cycles dans le BR2

L'installation HTHF est maintenant conçue et la construction a commencé début 2017 afin de pouvoir démarrer l'irradiation avant les vacances d'été 2017. Avec le 'flux élevé' demandé, le HTHF restera dans le réacteur BR2 pendant 6 cycles, soit environ un an. Le laboratoire LHMA se chargera de l'analyse des échantillons irradiés en 2018.

La campagne dans le BR2 est donc un véritable défi et montrera si le BR2 est en mesure d'offrir des conditions d'irradiation extrêmes pour les nouveaux matériaux. Après avoir démontré avec succès les performances HTHF, l'étape de recherche suivante consistera en un programme de sous-miniaturisation : plus les volumes sont petits, moins les conditions d'irradiation qui doivent être satisfaites sont strictes et onéreuses. De petits volumes d'échantillons signifient également une désactivation rapide, un transport peu coûteux et, en général, un retour PIE rapide. À l'avenir, la miniaturisation sera de plus en plus sollicitée, ce qui constitue le nouveau grand challenge du programme de recherche sur les matériaux pour la fusion.

Technologie

La durabilité n'est pas qu'un terme à la mode

Le BR2, par son refurbishment et sa configuration unique, fait toujours partie des meilleurs réacteurs d'essai et il conservera ce statut pour les générations à venir.

Le BR2 est également un fournisseur de radio-isotopes médicaux incroyablement fiable et demeure responsable d'au moins deux tiers de la production mondiale. Le développement futur de nouveaux radio-isotopes médicaux très prometteurs pour le traitement du cancer démontre que la durabilité caractérise toujours notre recherche nucléaire et qu'il en sera ainsi à l'avenir.

Leo Sannen

Directeur de l'Institut Science des Matériaux nucléaires



Nouveau dispositif d'irradiation

La durée du projet est d'environ trois ans, pour un budget total de 2,5 millions d'euros, dont la moitié sera consacrée à l'irradiation et un tiers aux examens post-irradiatoires (*post irradiation experiments* ou PIE). Le projet comprend également le développement d'un nouveau dispositif d'irradiation, le dénommé « High Temperature High Flux » (HTHF) (voir encadré).

Dans cette installation HTHF, une irradiation de flux de neutrons élevé à 1200°C se produira sous contrôle actif de température et d'environnement, une première dans l'histoire des essais effectués au sein du SCK-CEN. Après l'irradiation, les chercheurs vont cartographier les propriétés thermiques, mécaniques et micromécaniques des matériaux irradiés au sein du laboratoire de haute et moyenne activité (LHMA).

« Le projet comprend également le développement d'un nouveau dispositif d'irradiation, le dénommé 'High Temperature High Flux' »

Les matériaux à irradier sont des alliages à base de tungstène destinés à la première paroi et au blindage. Les chercheurs utilisent la nano-ingénierie pour obtenir les meilleures performances dans des conditions de fusion. Grâce aux campagnes d'irradiation, ils vont pouvoir vérifier si les performances des matériaux de production restent bien au même niveau après l'exposition aux neutrons.

Étape par étape

Le projet comporte différents tests post-irradiatoires et se déroule en collaboration avec les centres de recherche FZJ et KIT (Allemagne) et Demokritos (Grèce). Une répartition des tâches qui permet de conjuguer les forces de chaque centre. Un seul laboratoire ne possède pas tous les matériaux, l'expertise et la compétence. Sans compter la course contre la montre car le planning du projet DEMO reste très serré, bien que la réalisation ne soit prévue que pour 2044.

Plongée au coeur des couches d'argile de Boom

Recherche à 225 mètres sous terre

L'argile de Boom est-elle adaptée pour le stockage souterrain de déchets radioactifs ? Cette question fait l'objet de recherches intensives. Dans le cadre du projet PRACLAY, les scientifiques examinent notamment l'impact de la chaleur dégagée par les déchets radioactifs sur la composition de l'eau porale, qui peut à son tour influencer le comportement des radionucléides. Ces expériences se déroulent dans le laboratoire HADES, à quelque 225 mètres sous terre.

Les scientifiques du monde entier considèrent l'enfouissement en profondeur dans des couches géologiques stables comme étant la méthode la plus appropriée pour la gestion à long terme des déchets hautement radioactifs. En Belgique, le programme de recherche se concentre sur les couches d'argile profondes telles que l'argile de Boom. Les chercheurs analysent minutieusement le comportement de l'argile et l'impact des éventuelles perturbations. Une recherche de pointe lancée par le SCK·CEN il y a près de 40 ans.

La recherche sur l'impact de la chaleur sur la composition de l'eau porale est réalisée dans le laboratoire souterrain HADES, dans le cadre du projet PRACLAY Heater Experiment. Ce test permet aux chercheurs de vérifier le comportement de l'argile de Boom au niveau thermique, hydromécanique et chimique lorsqu'elle se réchauffe par contact avec des déchets hautement radioactifs.



Mieke De Craen et Miroslav Honty
dans le laboratoire souterrain HADES



Recherche sur la charge thermique

L'une des recherches a pour but d'étudier les modifications chimiques éventuelles provoquées par le réchauffement de l'argile sur une période de dix ans. Comment allons-nous procéder ? Les chercheurs Mieke De Craen et Miroslav Honty nous emmènent 225 mètres sous terre : « Nous prélevons à intervalles réguliers dans le laboratoire des échantillons d'eau porale et les gaz qui y sont dissous. Nous forons un trou dans la couche d'argile et nous y installons un piézomètre, une sorte de tuyau métallique avec, à différents endroits, un filtre qui récolte l'eau. Cette eau coule via des conduites fines dans la structure expérimentale du laboratoire souterrain. Dans des conditions normales, l'eau porale, à cette profondeur, a une température de 16°C, mais avec le réchauffement induit par le test PRACLAY, la température au niveau des filtres s'élève actuellement à 55°C. Cette température peut perturber l'équilibre chimique et c'est exactement ce que nous voulons étudier. L'installation expérimentale permet de mesurer un certain nombre de paramètres spécifiques et d'échantillonner séparément l'eau porale et les gaz qui y sont dissous. Les échantillons partent alors vers le laboratoire en surface pour des analyses ultérieures. »

« Les mesures de température et de pression d'eau porale dans l'argile confirment les calculs préalables réalisés par les chercheurs sur base d'expériences antérieures de chauffe à petite échelle. »



TEST DE CHAUFFE PRACLAY

Le PRACLAY Heater experiment se déroule dans une galerie latérale longue de 45 mètres de HADES, le laboratoire de recherche unique géré par le GIE EURIDICE, un groupement d'intérêt économique entre le SCK-CEN et l'Organisme national des déchets radioactifs et des matières fissiles enrichies (ONDRAF).

Lancée en 2014, la phase de chauffe durera dix ans. En août 2015, l'essai a atteint la température souhaitée de 80°C au point de contact entre la paroi de la galerie en béton et l'argile.

Les mesures de température et de pression d'eau porale réalisées jusqu'à présent dans l'argile confirment les calculs préalables réalisés par les chercheurs sur base des résultats d'expériences antérieures de chauffe à petite échelle. Cette confirmation, à une échelle représentative d'un véritable stockage, est l'un des principaux objectifs de l'expérience. En outre, le test offre également la possibilité de tester les modifications géochimiques dans l'argile, la stabilité de la paroi en béton et de la fiabilité des instruments de mesure à température plus élevée.

Comparaison des résultats avec les prévisions

La chauffe entraîne des réactions chimiques qui affectent l'eau porale. Les chercheurs veulent savoir dans quelle mesure cela se produit et si cela a un effet sur le comportement des radionucléides. Mieke De Craen et Miroslav Honty : « Nous disposons d'une grande base de données sur l'eau porale à une température naturelle de 16°C. Et nous avons également des modèles géochimiques pour prédire la composition de l'eau porale à des températures élevées. Mais jusqu'à présent, nous ne pouvons en vérifier la validité à l'aide de données expérimentales. »

C'est maintenant possible à grande échelle grâce au test de chauffage dans HADES. Les chercheurs déterminent la composition de l'eau porale et comparent les résultats avec leurs prédictions. « Grâce aux nouvelles données, nous serons en mesure d'étudier en détail la situation à des températures plus élevées. Entretemps se déroule également une étude en étroite collaboration avec le groupe Microbiologie afin de tester la présence et l'activité des micro-organismes dans l'eau porale de l'argile de Boom sous sollicitation thermique. »

U₃O₇ : la pièce manquante du puzzle

Meilleure compréhension du processus d'oxydation

Le dioxyde d'uranium (UO₂) est le combustible nucléaire le plus largement utilisé. Exposé à l'air ou à l'eau, l'UO₂ s'oxyde en U₃O₈ : le matériau se dilate alors d'au moins un tiers de son volume et pour les poudres très fines, ce processus peut aller très vite. La science étudie depuis plus de 70 ans déjà les structures complexes qui sont formées lors de l'oxydation de l'UO₂ en U₃O₈, mais une phase intermédiaire importante, à savoir l'U₃O₇, reste inconnue à ce jour. Dans sa thèse de doctorat, Gregory Leinders est parvenu à lever un coin du voile.

Les poudres d'uranium et les pastilles de combustible cylindriques s'oxydent toujours au contact de l'air. Cela peut avoir des conséquences négatives, tant lors de la production de combustible nucléaire que lors du stockage du combustible utilisé. Pendant la réaction d'oxydation, il se dégage une quantité de chaleur considérable qui entraîne un risque de combustion spontanée pour les poudres très fines. Avec tous les risques pour la sécurité que cela engendre, car dans un processus de production, l'incendie est à éviter.

Ce n'est pas tout. Dès que l'oxydation se produit de manière non contrôlée, il se forme un oxyde U₃O₈ plus stable. Cette forme d'oxyde n'est pas utilisable pour la production du combustible nucléaire. Lors de la transition cristallographique vers l'U₃O₈, le volume augmente de

36 pour cent. Les conteneurs de stockage peuvent de cette manière se fissurer, non seulement dans le processus de production, mais aussi lors du traitement et du stockage du combustible utilisé.

Données en contradiction

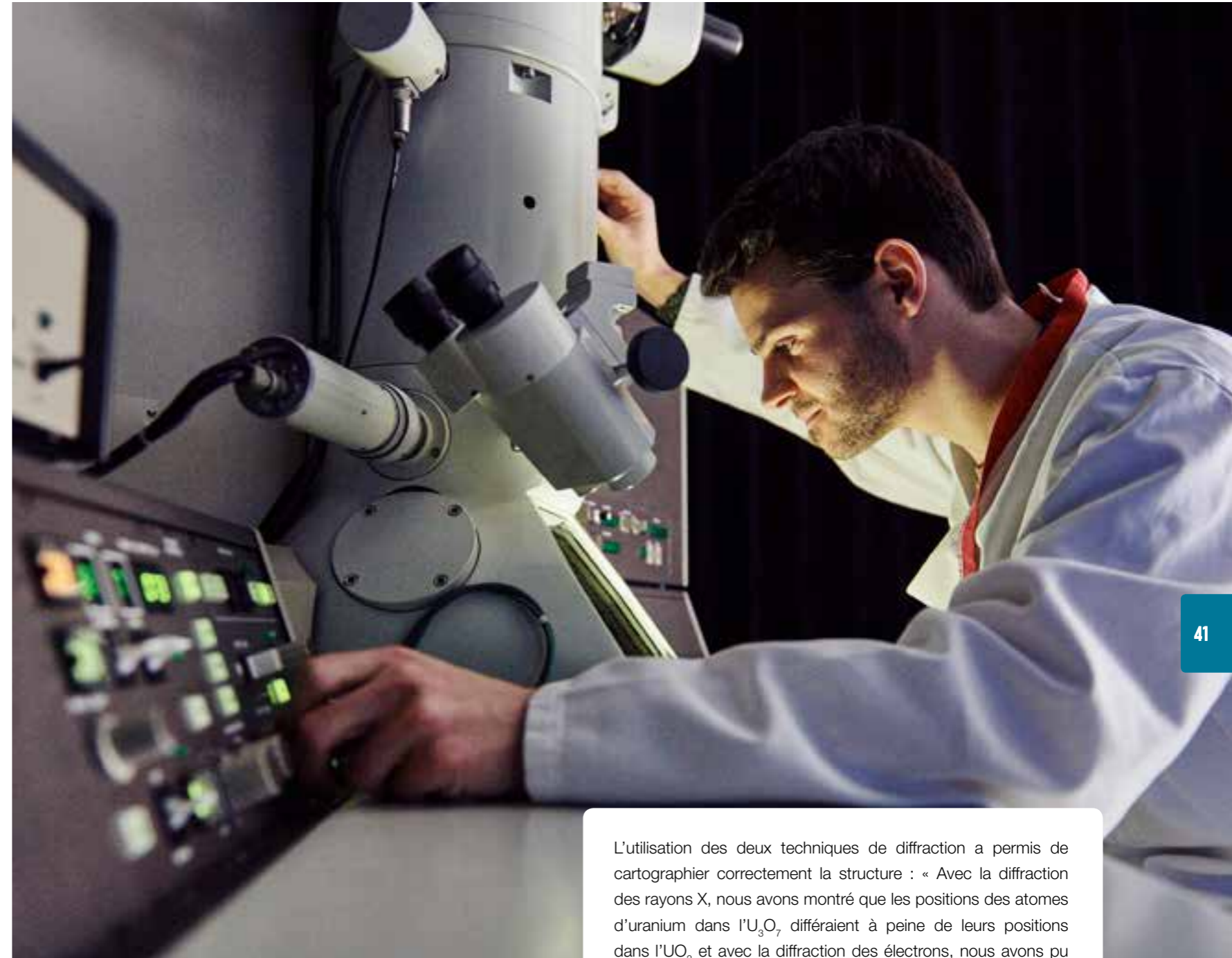
Gregory Leinders a examiné avec ses collègues du groupe *Matériaux de combustible* l'interaction de l'oxygène avec les poudres d'UO₂ : « J'ai vérifié de quelle manière et à quel rythme l'oxydation se produit. Les conditions étaient liées à celles

de la production de combustible nucléaire et du stockage de poudres et de pastilles de combustibles d'UO₂. En pratique : une concentration maximale d'oxygène semblable à celle de l'air et des températures jusqu'à 250°C. »

L'oxyde d'uranium U₃O₇ intermédiaire apparaît avant que l'U₃O₈ ne soit formé dans ces conditions. Gregory Leinders explique : « Bien que cet oxyde soit connu depuis 70 ans déjà, l'on manque d'informations sur sa structure cristalline complexe. Les données sont parfois contradictoires. Avec mes collègues, nous avons réussi à développer un modèle cohérent pour cette structure, sur la base de nouveaux résultats expérimentaux. »

Planification périodique

Lorsque les poudres d'U₃O₇, polycristallines ont été créées dans les laboratoires du SCK•CEN, les chercheurs ont utilisé la diffraction des rayons X et la diffraction des électrons pour l'analyse structurale : « Nous faisons cela avec un faisceau

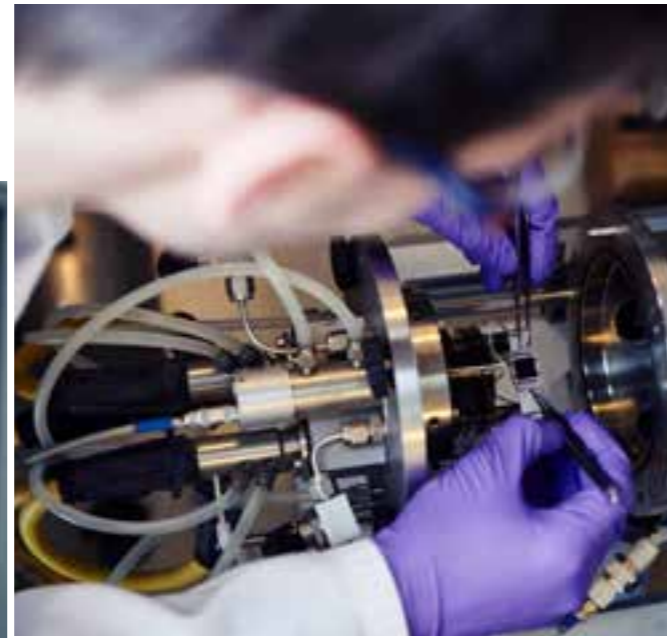


L'utilisation des deux techniques de diffraction a permis de cartographier correctement la structure : « Avec la diffraction des rayons X, nous avons montré que les positions des atomes d'uranium dans l'U₃O₇ différaient à peine de leurs positions dans l'UO₂ et avec la diffraction des électrons, nous avons pu déterminer le groupement des atomes d'oxygène supplémentaires. En moyenne, la structure ressemble fortement à l'UO₂, mais des anions supplémentaires sont groupés dans des agglomérats d'oxygène cuboctaédriques, ordonnés à plus grande échelle. La maille cristalline peut ensuite être décrite avec une cellule unitaire élargie qui contient 15 sous-cellules de type fluorine. »

Les scientifiques se cassaient la tête sur ce problème depuis plus de 70 ans. Les chercheurs du SCK•CEN ont enfin trouvé un modèle cohérent pour la structure cristalline complexe de l'U₃O₇.

de rayons X et un faisceau d'électrons afin que se produise un processus de diffusion sensible à la position des atomes dans la structure. Il en résulte un schéma d'interférences que nous mesurons. Ces diffractogrammes nous donnent des informations sur la position et la distance entre les atomes et la symétrie de la structure cristalline. »

« Nous avons enfin mis au point un modèle cohérent pour la structure cristalline complexe de l' U_3O_7 . »



Vers une interprétation quantitative

Avec la détermination de la structure cristalline U_3O_7 , le SCK•CEN a découvert une pièce manquante essentielle du puzzle du mécanisme d'oxydation de l' UO_2 . Mais la recherche ne s'arrête pas là. « La cellule unitaire en elle-même nécessite une recherche plus approfondie. Dans une étude de suivi, nous tenons à démêler les informations structurales supplémentaires sur la base de techniques de qualité. Notamment avec la spectroscopie d'absorption de rayonnement X synchrotron (XAS) pour déterminer la valence des atomes d'uranium. Et avec la diffraction des électrons de précession pour un affinement de la structure cristalline – une technique plus avancée qui permet de déterminer et d'interpréter de manière quantitative les intensités dans un diffractogramme électronique. Tous ces résultats aideront à comprendre la formation du produit final important de l'oxydation : U_3O_8 . »

De nouvelles perspectives dans le traitement contre le cancer

Des capsules de thorium précieuses pour la Targeted Alfa Therapy

Le passé recèle parfois de précieux trésors pour l'avenir. Le SCK•CEN a produit dans les années '70 des sources de thorium et est aujourd'hui l'un des rares instituts de recherche au monde à être en possession de thorium-229. Ce radioisotope, aussi rare que prometteur, offre un réel potentiel dans le traitement contre le cancer.

Le thorium-229 (Th-229) est un radioisotope précieux utilisé dans les horloges nucléaires, par exemple. Mais ce n'est pas tout : les produits de décroissance, l'actinium 225 (Ac-225) et le bismuth 213 (Bi-213), présentent un grand potentiel dans le traitement contre le cancer. Un profil prometteur, qui comporte bien un problème de taille : la quantité mondiale de Th-229 est très limitée. Mais le SCK•CEN est parvenu à révéler des quantités intéressantes de Th-229 dans les sources historiques de thorium, ce qui a permis de démarrer la recherche et le développement de produits radiopharmaceutiques. L'intérêt augmente en particulier pour le produit de désintégration Ac-225, tant pour les applications directes que pour la création d'un générateur de Bi-213.



Targeted Alpha Therapy

L'Ac-225 et le Bi-213 peuvent être liés à des anticorps spécifiques. Un anticorps est un type de molécule de transport à laquelle une particule radioactive de courte durée peut être accrochée. L'anticorps lié aux Ac-225 ou Bi-213 se déplace ensuite dans le corps et se lie spécifiquement à une cellule cancéreuse comme une clé dans une serrure. Lors de la désintégration radioactive des Ac-225 et Bi-213, des particules alpha se libèrent et vont détruire les cellules cancéreuses. C'est le principe de ce que l'on appelle la « Targeted Alpha Therapy (TAT) ».

Un des seuls au monde

Le SCK•CEN est l'un des seuls instituts de recherche au monde à être en possession de Th-229 comme source d'Ac-225 et de Bi-213. Au cours de l'examen des sources historiques de thorium, la quantité disponible de Th-229 a été déterminée à l'aide d'une méthode de mesure non destructive basée sur la spectrométrie gamma et la modélisation mathématique. La méthode qualitative appliquée offre l'avantage que le joint hermétique des capsules historiques est resté intact et que la pureté du produit coûteux n'a pas été affectée. Les connaissances et l'expérience du groupe d'expertise *Démantèlement, Décontamination et Déchets* ont été cruciales pour la détermination de l'appareillage de mesure et de l'interprétation des résultats. Le thorium – seulement 1 mg ! – se trouvait dans des capsules qui ont dû être ouvertes avec le plus grand soin.

« Le SCK•CEN est l'un des seuls instituts de recherche au monde à être en possession de Th-229, un précieux radioisotope. »

« Avec notre examen pré-clinique, nous voulons convaincre le secteur médical de la grande valeur ajoutée de la Targeted Alpha Therapy. Ces informations peuvent permettre au SCK•CEN de développer une production d'isotopes à grande échelle. Un avenir résolument prometteur ! »

Opération réussie

L'ouverture de la capsule a eu lieu en décembre 2016. Avec succès ! Des actions ont immédiatement démarré sous la forme du projet SERAPHIM (*Separation of thorium-229 from historical sources for the production of radioisotopes for targeted alpha immunotherapy*). Le contenu radiologique a d'abord été traité pour la séparation du Th-229. L'objectif est ensuite de produire un générateur Ac-225/Bi-213, d'où le Bi-213 sera extrait pour le développement des anticorps associés au Bi-213 pour la thérapie des cancers des ovaires et du sein. Un programme réalisé dans le cadre du doctorat de Yana Dekempeneer, une collaboration réussie entre le groupe d'expertise *Radiochimie* et la Vrije Universiteit Brussel (VUB).

Thomas Cardinaels, à la tête du projet, est convaincu que ces isotopes émetteurs alpha ont un grand avenir : « Avec notre examen pré-clinique, nous voulons convaincre le secteur médical de la grande valeur ajoutée de la Targeted Alpha Therapy. Ces informations peuvent permettre au SCK•CEN de développer une production d'isotopes à grande échelle. Un avenir résolument prometteur ! »