

Voie sol-gel colloïdale pour la préparation d'oxydes mixtes d'actinides

Hélène Barbier [1], Nicolas Clavier [1], Xavier Le Goff [1], Joseph Lautru [1], Diane Rébiscoul [1]

[1] ICSM, Univ Montpellier, CEA, CNRS, ENSCM, Bagnols/Cèze, France

helene.barbier@cea.fr

Afin d'améliorer l'homogénéité de la distribution des actinides dans le combustible MOX et afin d'envisager leur utilisation dans des réacteurs de futures générations, de nouvelles méthodes de synthèse sont à l'étude. Récemment, Lu et al. ont utilisé une voie sol-gel colloïdale pour préparer des sols de colloïdes de thorium nanométriques par un contrôle du pH et l'utilisation d'un agent complexant. Ces deux outils expérimentaux clés permettent de limiter les réactions d'hydrolyse et de condensation des espèces polynucléaires d'actinides $An_x(OH)_n^{(Zx-n)+}$ et donc de contrôler la taille des particules, ainsi que leur interaction, qu'elle soit attractive ou répulsive [1]. Après un processus de lyophilisation et un traitement thermique, la poudre de ThO_2 macroporeuse-microporeuse obtenue est imprégnée par une solution d'actinide et un traitement thermique permet d'obtenir un oxyde mixte d'actinides [1].

Dans ce travail, nous avons étendu la méthode utilisée par Lu et al. à d'autres éléments M: Ce(III) et U(VI). Pour cela, les sols ont été préparés en dissolvant des sels de nitrates de cérium ou d'uranium dans une solution d'acide amino-caproïque (ACA) utilisée comme agent complexant. Les sols stables ont ensuite été lyophilisés pour concentrer et assembler les colloïdes et la pâte a été traitée thermiquement pour obtenir des poudres d'oxydes. Les sols et les matériaux finaux ont été caractérisés par diffusion des rayons X aux petits et grands angles (SWAXS) et par microscopie électronique à balayage et à haute résolution (MEB et HRTEM). Les résultats montrent que la stabilité du sol et la morphologie du matériau final dépendent de M, du rapport M/ACA et du pH. Après traitement thermique, des poudres macro et microporeuses ont été obtenues. Ces poudres sont constituées d'assemblage de nanoparticules de CeO_2 et UO_2 avec une distribution ordonnée de porosité inter-particulaire et, dans certains cas, une fraction de cristallites nanométriques. Leur simple imprégnation par une solution de $HfCl_4$, associés à leur frittage ont permis l'obtention de mélange homogène d'oxydes mixtes. Cette méthode de préparation innovante ouvre de nouvelles perspectives pour la préparation d'oxydes mixtes pouvant être mis en œuvre dans des réacteurs de GEN IV.

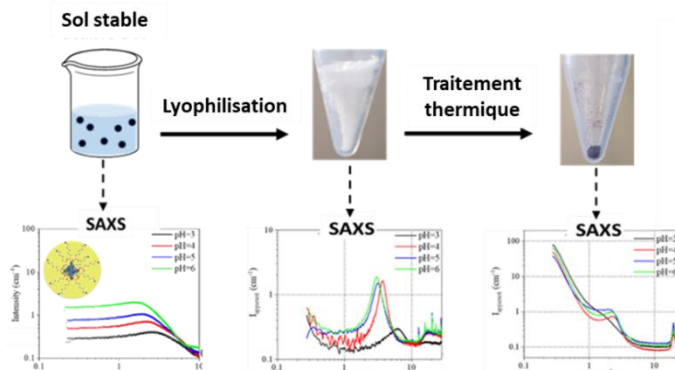


Figure 1: Description de la préparation de la poudre d'oxyde mixte ThO_2 du sol jusqu'au matériau final avec des figures SAXS.

[1]. Z. Lu, T. Zemb, X. Le Goff, N. Clavier, H. Khoder, J. Lautru, D. Rébiscoul, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2022**, 14, 53165-53173.