

Soutenance de thèse

Institut de Chimie Séparative de Marcoule / CEA Marcoule
(UMR 5257, CEA, CNRS, Université Montpellier, ENSCM)

JEREMIE MANAUD

soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Conversion hydrothermale d'oxalates d'actinides tétravalents : de la synthèse au frittage des poudres d'oxydes

Soutenance prévue le **mardi 10 novembre 2020 à 10h00**

dans l'Auditorium de l'ICSM

Dans le cadre du développement de nouvelles filières de réacteurs nucléaires (dites de génération III et IV), des méthodes innovantes de fabrication des combustibles oxydes sont à l'étude depuis plusieurs années. Celles-ci sont en particulier basées sur des voies humides, mettant en jeu la précipitation de précurseurs cristallisés. Une étape de traitement thermique est en revanche nécessaire pour assurer la conversion du précurseur en oxyde et peut occasionner la présence de traces de carbone résiduel dans le composé oxyde final. Lors de ce travail de thèse, une voie de préparation alternative a été abordée, mettant en œuvre la précipitation oxalique d'actinides (U et Th) et/ou de lanthanides puis la conversion hydrothermale directe des précurseurs en oxydes hydratés. Les conditions de formation de dioxydes d'An(IV) hydratés (i.e. température et durée du traitement hydrothermal, pH de la solution initiale) ont tout d'abord été déterminées dans le cas du thorium, qui constitue un système de référence exempt de réactions redox, puis pour l'uranium(IV). En parallèle, une caractérisation complète des solides obtenus a été entreprise, à la fois d'un point de vue structural, chimique et morphologique. De plus, des expériences XAS ont permis, dans le cas de l'uranium, de mettre en évidence des différences de degrés d'oxydation au sein des échantillons, conduisant à des déformations de la maille cristalline. De manière générale, la conversion hydrothermale d'oxalates d'actinides tétravalents à 250°C et pH = 5 pendant 24h, a permis de former des dioxydes quasi-anhydres et présentant un taux de carbone résiduel inférieur à 200 ppm. Par la suite, une étude préliminaire au frittage a mis en évidence une bonne aptitude à la densification des oxydes produits. Une carte de frittage a en outre été établie pour plusieurs poudres UO_{2+x} présentant des morphologies différentes, permettant ainsi d'entrevoir le contrôle de la microstructure finale des pastilles frittées. Enfin, la méthode de conversion hydrothermale développée sur les oxydes simples a été transposée à des systèmes mixtes $U_{1-x}Th_xO_2$ et $U_{1-x}Ce_xO_2$, le cérium étant ici utilisé comme simulant du plutonium.

