

Soutenance de thèse

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

THÉO CORDARA

soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Effet de la présence de produits de fission sur les mécanismes de dissolution de composés modèles à base de dioxyde d'uranium

Soutenance prévue le **lundi 27 novembre 2017 à 10h00**

dans l'Auditorium de l'ICSM

L'étape de dissolution des combustibles nucléaires usés, réalisée en milieu nitrique concentré, est complexe notamment du fait de leur complexité chimique et microstructurale à l'issue de leur passage en réacteur. Ainsi, la présence de produits de fission (PF) localisés au sein des différentes phases cristallines constitutives du combustible usé peut en impacter la vitesse de dissolution. Dans ce cadre, trois systèmes représentatifs du matériau combustible initial UO_2 , de UO_2 contenant des PF dissous au sein de la phase fluorine ou formant de précipités métalliques ont été obtenus par conversion de précurseurs préparés par voie humide (oxalate, hydroxyde). Pour chaque système, des pastilles denses et de microstructures proches de celle retrouvée au sein du combustible usé ont été préparées à l'issue d'une étape de mise en forme suivie d'un traitement thermique à haute température.

L'étude multiparamétrique de la dissolution (approche macroscopique) conduite dans plusieurs solutions d'acide nitrique et à diverses températures a souligné l'impact important joué par la composition chimique sur la durabilité chimique des échantillons. Ainsi, l'incorporation d'éléments lanthanide a conduit à une augmentation de la vitesse de dissolution par rapport à l'échantillon UO_2 de référence, laquelle est demeurée largement inférieure à celle relevée en présence d'éléments platinoïde. Par ailleurs, les effets de l'acidité et de la température du milieu sur la vitesse de dissolution ont été examinés et des modifications significatives dans le mécanisme de dissolution prépondérant ont été suggérées pour des concentrations d'acide nitrique supérieures à $0,5 \text{ mol.L}^{-1}$.

Pour les trois systèmes sélectionnés, l'évolution de l'interface solide/solution a également été suivie en cours de dissolution à travers une étude *operando*, réalisée par Microscopie Electronique à Balayage en mode Environnemental (approche microscopique). En présence d'éléments lanthanide ou à proximité des éléments platinoïde métalliques, ce suivi a démontré l'existence de zones de dissolution préférentielles dont les joints de grains et les jonctions triples. Le couplage des résultats obtenus à travers ces deux approches a permis de fournir des données complémentaires en vue d'une meilleure compréhension des mécanismes de dissolution mis en jeu en présence des différents PF considérés

Mots clés : UO_2 ; produits de fission ; composés modèles ; dissolution.

