

Etude de l'altération du combustible MOx en conditions environnementales du stockage géologique

Valentin KERLEGUER

En France, la solution de référence est le retraitement du combustible nucléaire irradié et la valorisation de certaines matières comme l'uranium et le plutonium au travers la fabrication du combustible MOx. Le stockage direct des combustibles (UOx et MOx) en couche géologique profonde est cependant étudié afin de s'assurer que les concepts de stockage français (Cigéo) sont compatibles avec le combustible irradié. A ce titre il est essentiel d'étudier les mécanismes d'altération des matrices (U,Pu)O₂ en présence de matériaux d'environnement afin de se rapprocher, à l'échelle du laboratoire, des conditions représentatives du stockage implanté dans la formation argileuse du Callovo-Oxfordien (COx). La première partie de la thèse porte sur l'approfondissement des mécanismes d'altération des combustibles MOx dans des systèmes simples (étude de MOx homogène ou hétérogène, influence des carbonates sur la dissolution oxydante...) afin de développer des modèles de dissolution sous radiolyse alpha de l'eau, notamment l'effet de H₂O₂. La seconde partie s'intègre dans une démarche de complexification du milieu d'étude en intégrant l'environnement du stockage géologique et notamment la présence d'argilite.

La Figure 1 présente les résultats de l'altération des MOx homogènes à forte teneur en Pu (24% massique). L'eau du COx et la présence de fer métal induisent une forte diminution de l'altération, en partie du fait de la consommation de H₂O₂ par le Fe(II) en solution provenant de la corrosion permanente du fer. Ces résultats sont similaires aux données obtenues sur les MOx hétérogènes et les matrices UO₂. Cependant la dissolution en eau carbonatée, permettant l'étude de la dissolution oxydante seule, montre un effet important de la concentration en Pu et de sa répartition dans la matrice (U,Pu)O₂. Deux régimes consécutifs de dissolution sont observés sur les MOx homogènes. Plusieurs hypothèses ont été formulées et modélisées avec le code géochimie CHESSE développé par MINES ParisTech. Des analyses du solide complémentaires (XPS) aux analyses MEB et Raman sont prévues afin de conclure quant aux mécanismes.

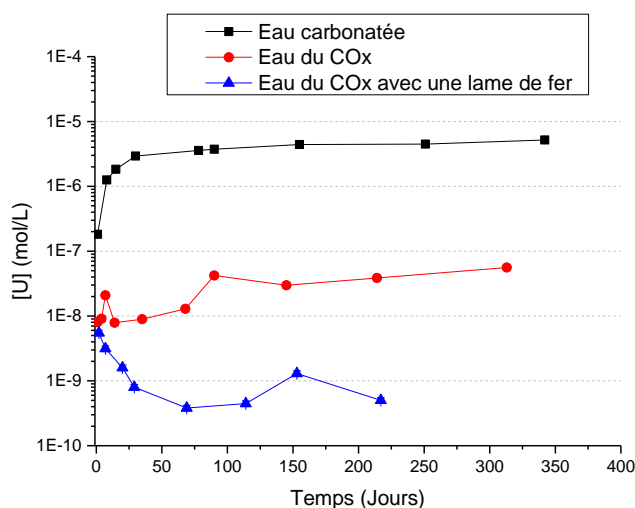


Figure 1: Concentrations en uranium lors de la lixiviation de MOx homogène (24% massique en Pu) dans différentes conditions expérimentales.

Concernant l'effet de l'argilite sur la dissolution du combustible, les analyses en solution n'indiquent pas d'effet notable de la présence d'argilite dans le milieu de lixiviation. Les résultats sont similaires à ceux observées en eau du COx sans argilite. La réactivité accrue de H₂O₂ avec l'argilite par comparaison avec l'eau du COx a par contre été clairement caractérisée. La finalisation de ces expériences en présence d'argilite (bilan matière et caractérisation du solide) et leur modélisation sont en cours.