AVIS DE SOUTENANCE DE THESE DE
VALENTIN KERLEGUER

Apport de l'étude de matériaux modèles $U_{1-x}Pu_xO_2$ à la compréhension des mécanismes d'altération des combustibles UOx et MOx en stockage géologique

Soutenance prévue **lundi 21 septembre 2020 à 13h30**
Amphithéâtre de l'ICSM ICSM UMR 5257 – CEA / CNRS / UM / ENSCM
Site de Marcoule, Bâtiment 426, 30200 Bagnols sur Cèze

Composition du jury proposé :

Nicolas DACHEUX	Professeur, Université de Montpellier, ICSM/LIME	Rapporteur
Gilles MONTAVON	Directeur de recherche, IMT Atlantique/CNRS, Laboratoire de Physique Subatomique et des Technologies associées	Rapporteur
Enzo CURTI	Senior scientist , Paul Scherrer Institut	Examinateur
Laurent DE WINDT	Directeur de recherche, MINES ParisTech	Examinateur
Christophe JEGOU	Ingénieur de recherche, CEA Marcoule	Examinateur
Nathalie MONCOFFRE	Directrice de recherche, CNRS, Institut de Physique des deux Infinis de Lyon	Examinateur
Christelle MARTIN	Ingénieur de recherche, ANDRA	Invitée
Florent TOCINO	Ingénieur de recherche, EDF – R&D	Invité

Résumé :
L'influence des conditions environnementales du stockage géologique sur la lixiviation de la matrice des combustibles UOx et MOx a été étudiée selon une complexification progressive : eau carbonatée, eau synthétique de l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx), eau du COx avec fer métal ou argilite. Deux matériaux modèles émetteurs alpha ont été sélectionnés : des pastilles de UO_2 faiblement dopées en Pu et des pastilles homogène de MOx $U_{0.73}Pu_{0.27}O_2$. Les protocoles expérimentaux, spécifiquement développés, ne montrent pas un effet important de l'argilite sur l'altération de UO_2. Le plutonium diminue la dissolution oxydante du MOx $U_{0.73}Pu_{0.27}O_2$ et accentue la décomposition de H_2O_2 produit par la radiolyse de l'eau. La dissolution du MOx est réduite en eau du COx et très inhibée en présence de fer suite à la consommation de H_2O_2 par les ions Fe^{2+} produits par la corrosion anoxique du fer, avec précipitation de magnétite sur les pastilles. Les modèles géochimiques (CHESS) et du transport réactif (HYTEC) développés simulent correctement les principaux résultats expérimentaux et mécanismes mis en jeu. Les processus d'altération des matrices de UOx et MOx sont très similaires en conditions environnementales.

Mots-clés : Combustible nucléaire MOx, Callovo-Oxfordien, stockage géologique, transport réactif

UOx and MOx fuels corrosion processes under geological conditions through the study of $U_{1-x}Pu_xO_2$ model materials

Abstract:
The effects of the geological disposal environment on the leaching of the oxide matrices of UOx and MOx fuels was investigated following a step-by-step procedure: carbonated water, synthetic porewater of the Collovo-Oxfordian (COx) argillite, synthetic porewater in presence of iron or argillite samples. Two types of alpha-emitting materials were considered, UO_2 pellets doped with a low Pu content, and pellets of homogenous $U_{0.73}Pu_{0.27}O_2$ MOx fuel. The experimental protocols did not show any significant effect of the argillite on the UO_2 alteration. Plutonium decreased the oxidative dissolution of $U_{0.73}Pu_{0.27}O_2$ and enhanced the disproportionation of the H_2O_2 produced by water radiolysis. The dissolution of the MOx matrix decreased in COx water. It was strongly inhibited in presence of iron which anoxic corrosion liberated Fe^{2+} in solution that fully reacted with the radiolytic H_2O_2, leading to magnetite precipitation on the pellet surface. Geochemical (CHESS code) and reactive transport (HYTEC code) models correctly simulated the main experimental data and the underlying mechanisms. The alteration processes of UOx and MOx matrices were found to be very similar under the present environmental conditions.

Keywords: MOx nuclear fuel, Callovo-Oxfordian, deep geological repository, reactive transport