



HAL
open science

Etude de la réactivité du dioxyde d'uranium monocristallin vis-à-vis des processus de dissolution en milieu acide : cinétique et réactivité aux interfaces

S. Bertolotto, Stephanie Szenknect, S. Lalleman, Laurent Claparede, A. Magnaldo, P. Raison, B. Arab-Chapelet, N. Dacheux

► To cite this version:

S. Bertolotto, Stephanie Szenknect, S. Lalleman, Laurent Claparede, A. Magnaldo, et al.. Etude de la réactivité du dioxyde d'uranium monocristallin vis-à-vis des processus de dissolution en milieu acide : cinétique et réactivité aux interfaces. 18èmes Journées Scientifiques de Marcoule (JSM - 2018), Jun 2018, Bagnols Sur Cèze, France. cea-02338596

HAL Id: cea-02338596

<https://cea.hal.science/cea-02338596>

Submitted on 21 Feb 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude de la réactivité du dioxyde d'uranium monocristallin vis-à-vis des processus de dissolution en milieu acide : cinétique et réactivité aux interfaces



S. BERLOLOTTO^{1,2}, S. SZENKNECT², S. LALLEMAN¹, L. CLAPAREDE², A. MAGNALDO¹, P. RAISON³, B. ARAB-CHAPELET¹ et N. DACHEUX²

¹ CEA, DEN, DMRC/SPDS/LED, F-30207 Bagnols-Sur-Cèze, France

² ICSM – UMR 5257, Site de Marcoule, BP.17171, 30207 Bagnols/Cèze cedex, France

³ JRC Karlsruhe, 76344 Eggenstein-Leopoldshafen, Allemagne

Thèse Phare – Amont/Aval 10/2017-10/2020



Dissolution du combustible irradié UO_x en milieu nitrique

De nombreux phénomènes :

- en solution

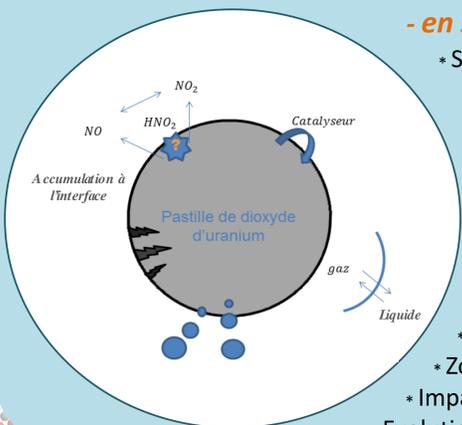
- * Spéciation complexe
- * Présence d'espèces avec un fort pouvoir oxydant^[1]

- à l'interface

- * Accumulation possible à l'interface solide/liquide
- * Réaction triphasique
- * Evolution de la spéciation due aux échanges liquide/gaz
- * Evolution de l'hydrodynamique

- du côté solide

- * Importance de la structure/microstructure
- * Zones d'attaque préférentielles (failles, joints de grains, pores...)^[2]
- * Impact de l'orientation cristalline^[3]
- * Evolution de la surface réactive^[4]



Contributions mal identifiées de chaque phénomène



Interface solide/solution
« simplifiées »

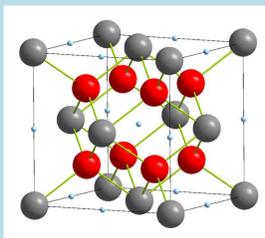


Monocristaux de UO_2 fournis par le JRC Karlsruhe

Nature et préparation des échantillons UO_2 monocristallins

Structure Fluorine

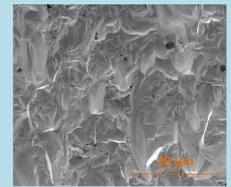
- U (+IV)
- O (-II)
- Site vacant



Répétition périodique

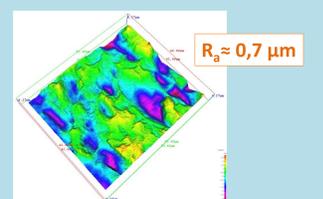


Surface initiale rugueuse

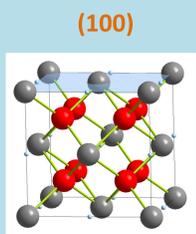


Micrographie MEBE

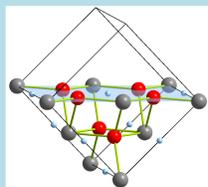
Reconstruction MEBE 3D*



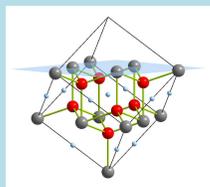
Mesure de la rugosité moyenne (R_a)



(100)

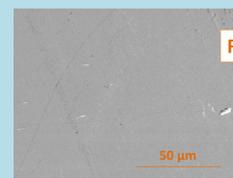


(110)



(111)

Orientations cristallines des monocristaux



R_a à l'AFM

Polissage mécanique



Micrographie MEB

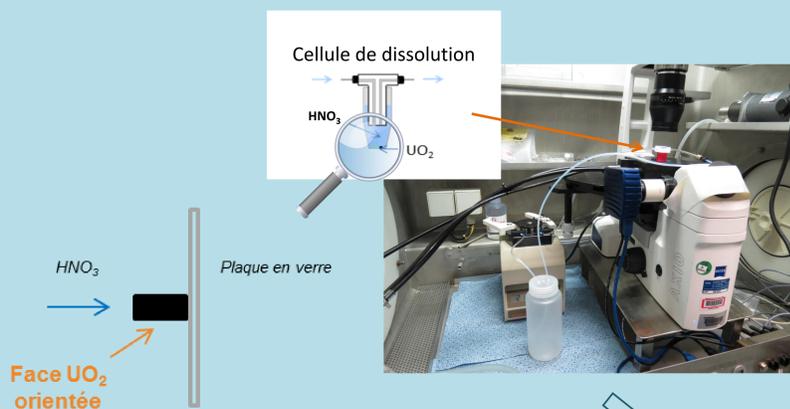
Etude de la dissolution

Caractérisation des échantillons et choix des conditions de dissolution expérimentales

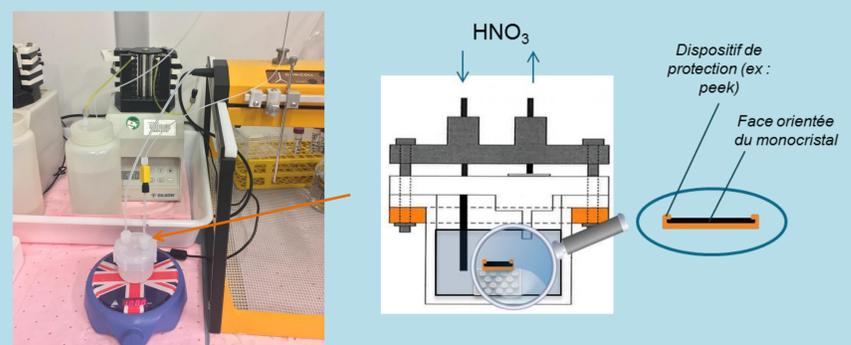
- Mesure des dimensions des monocristaux au microscope optique
- Suivi dynamique de la rugosité
 - au MEBE (échantillons non-polis)
 - à l'AFM et par GI-XRR (échantillon polis)
- Estimation du volume de maille par GI-XRD

- Dissolution dynamique : Choix du débit d'entrée
 - gestion de l'accumulation à l'interface solide/solution
- Concentration en acide nitrique [0,5 – 5 M]
- Température de dissolution [ambiante – 60°C]
- Ajouts d'espèces catalytiques

Etude de la dissolution à l'échelle « macroscopique »^[5]
Mesures de vitesses de retrait des faces orientées grâce au microscope optique (Ombrographie au L17)



Etude de la dissolution à l'échelle « microscopique »
Mesures locales de vitesses de dissolution grâce au MEBE et AFM (LIME/L2ME)



Vitesses de dissolution multi-échelles / Impact de l'orientation cristalline et de la microstructure
⇒ Description de l'évolution de l'interface UO_2/HNO_3 en cours de dissolution
⇒ Amélioration des modèles existants

Réf. : [1] R.F. Taylor et al. AERE Report, Réf. AERE-R 3678, 1962. ; [2] A.L. Uriarte et al. Oak Ridge National Laboratory, ORNL-3695, 1965 ; [3] J. R. A. Godinho et al. Geochim. Cosmochim. Acta 86, 2012, 392–403.

[4] L. Claparède et al. Inorg. Chem. 50, 2011, 9059–9072 ; [5] F. Charlier et al. EPJ Nucl. Sci. Technol. 3, 2017, 26.

*Remerciements à R. Podor et J. Lautru (MEBE L2ME)