



**HAL**  
open science

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

T. Cordara, Stephanie Szenknect, Laurent Claparede, N. Dacheux, Renaud Podor, Adel Mesbah, Bruno Corso

### ► To cite this version:

T. Cordara, Stephanie Szenknect, Laurent Claparede, N. Dacheux, Renaud Podor, et al.. Effet de la présence des produits de fission sur les mécanismes de dissolution de composés modèles à base de dioxyde d'uranium. Journées Scientifiques de Marcoule (JSM 2015, Jun 2015, Bagnols sur Cèze, France. cea-02489547

**HAL Id: cea-02489547**

**<https://cea.hal.science/cea-02489547v1>**

Submitted on 24 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.

# EFFET DE LA PRESENCE DE PRODUITS DE FISSION SUR LES MECANISMES DE DISSOLUTION DE COMPOSES MODELES A BASE DE DIOXYDE D'URANIUM

T. Cordara<sup>1</sup>, S. Szenknect<sup>1</sup>, L. Claparède<sup>1</sup>, N. Dacheux<sup>1</sup>, R. Podor<sup>1</sup>, A. Mesbah<sup>1</sup>, B. Corso<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> ICSM – UMR 5257 CNRS/CEA/UM2/ENSCM, Site de Marcoule - Bât. 426, BP 17171, 30207 Bagnols/Cèze cedex

## CONTEXTE

**Combustible nucléaire type UOx après son passage en réacteur**

Composé à :

- 95 %m de UO<sub>2</sub>
- 1 %m de plutonium
- 4% de produits de fission (40 PF)
- 0,1% d'actinides mineurs

**PRODUITS DE FISSION**

Production ? Distribution ? Localisation ? Teneurs ?

Retraitement du combustible usagé / Stockage en couche géologique profonde

**Problème de hiérarchisation du rôle des différentes phases présentes au sein du solide sur les mécanismes de dissolution**

Type de produit de fission	Nature chimique	Proportion des principaux PF	
Gaz	Kr	2.1	0.9
	Xe	13.7	12.3
	Cs	7.5	10.8
Volatils	I	0.4	1.1
	Te	1.1	1.7
	Ru	6.1	10.9
Métaux (Inclusions)	Pd	0.8	7.5
	Tc	3.2	3.1
	Rh	1.4	3.6
Mixte	Mo	12.9	11.6
	Ba	3.4	3.6
Oxydes insolubles (Inclusions)	Sr	1.9	0.7
	Zr	16.5	9.7
Oxydes solubles	Ce	6.7	5.6
	Y	2.5	0.9
	Nd	10.5	8.2
Autres éléments mineurs	Pr	3.0	2.7
	La	3.6	2.9
		3.2	2.1

## SYNTHESES

**OBJECTIFS**

- Identifier et localiser les produits de fission
- Incorporer ces produits de fission au sein des composés modèles à base de UO<sub>2</sub>
- Déterminer les limites d'incorporation de ces produits de fission
- Identifier d'éventuelles nouvelles phases

**Se rapprocher au plus près du combustible réel utilisé**

**Différentes synthèses envisagées :**

- Structure fluorine
  - Insertion d'éléments divalents (Ba, Sr)
  - Insertion d'éléments monovalents (Cs, Rb)
  - Insertion d'éléments lanthanides (+III)
- Métaux aux joints de grain : Platinoïdes
- Structure pérovskite

**VOIES DE SYNTHESE**

**OXALIQUE**

$$xMY^{+} + 1-xN^{2+} + 2H_2C_2O_4 + 2H_2O + nH_2O \rightarrow M_xN_{1-x}(C_2O_4)_2 \cdot nH_2O + 4H^{+}$$

**HYDROXYDE**

$$xMY^{+} + 1-xN^{2+} + 4NH_4OH \rightarrow M_xN_{1-x}(OH)_4 + vNH_4^{+}$$

**Voie oxalique**

10 % mol en Ln (+III)  
 U<sub>0,9</sub>H<sub>0,1</sub>Ln<sub>0,1</sub>(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>2</sub> · 2H<sub>2</sub>O  
 avec Ln = Y 7,4% ; La 13% ; Ce 25,6% ; Pr 12% ; Nd 42%

→ Intégration des lanthanides réussie

**Voie hydroxyde**

10 %m en Ln (+III)  
 U<sub>0,9</sub>Ln<sub>0,1</sub>(OH)<sub>4</sub>  
 avec Ln = Y 0,074 ; La 0,13 ; Ce 0,256 ; Pr 0,12 ; Nd 0,42

→ Intégration des lanthanides réussie

**PF Ln (+III) INSERES DANS LA MATRIxE UO<sub>2</sub>**

Éléments	Teneurs visées	Teneurs réelles
U	0,90	0,94
Ln (+III)	0,10	0,06
Y	0,074	0,050
La	0,13	0,11
Ce	0,256	0,326
Pr	0,12	0,03
Nd	0,42	0,49

10 % Ln (+III) (1000°C)

## MISE EN FORME

Poudre calcinée à 1000° C → Pastillage uniaxial (250 MPa) → Pastille (5-8 mm de diamètre) → Traitement thermique (T<sub>max</sub>: 1600°C Ar + 2% H<sub>2</sub>) → Echantillon fritté

**Obtention de pastilles denses de composés modèles de type UO<sub>x</sub> représentant les différentes phases contenant les produits de fission**

## DISSOLUTION

**Etude multiparamétrique selon l'équation de Lasaga :**

$$R_L = k_0 \times e^{-E_a/RT} \times a_{H^+}^n \times g(I) \times \prod a_i^{n_i} \times f(\Delta_R G(\xi, T)) \times x(U)$$

Influence de la température, Influence du pH, O<sub>2</sub> dissout, Ecart à l'équilibre, Composition

**Conditions dynamiques** / **Conditions statiques**

**OBJECTIFS**

- Les mécanismes de dissolution
- La durabilité
- La microstructure
- Les propriétés d'usage

**Connaître au mieux l'étape de dissolution pour un combustible donné**

$R_L(i) \approx R_L(j)$ : Dissolution congruente  
 $R_L(i) \neq R_L(j)$ : Dissolution incongruente