



HAL
open science

Etude de la dissolution du dioxyde d'uranium dans l'acide nitrique, vers un modèle macroscopique des réacteurs de dissolution

F. Charlier, D. Canion, P. Marc, A. Magnaldo, S. Lalleman, G. Borda, E. Schaer

► To cite this version:

F. Charlier, D. Canion, P. Marc, A. Magnaldo, S. Lalleman, et al.. Etude de la dissolution du dioxyde d'uranium dans l'acide nitrique, vers un modèle macroscopique des réacteurs de dissolution. 15èmes Journées Scientifiques de Marcoule (JSM - 2015), Jun 2015, Bagnols sur Ceze, France. cea-02489566

HAL Id: cea-02489566

<https://cea.hal.science/cea-02489566>

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.

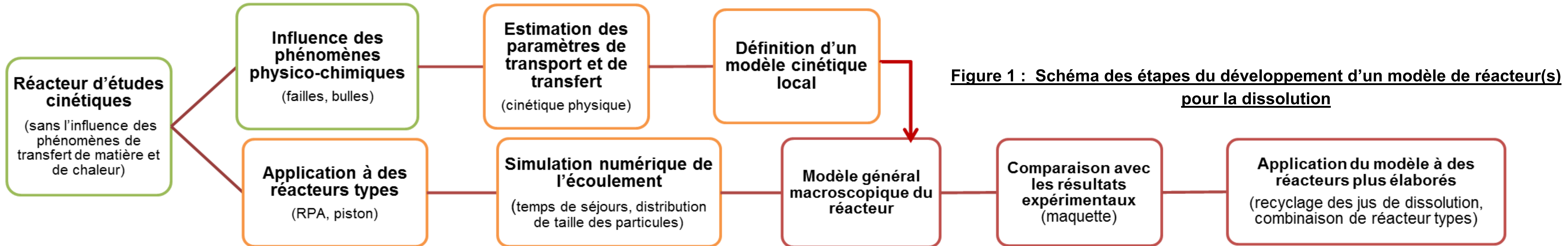
Etude de la dissolution du dioxyde d'uranium dans l'acide nitrique, vers un modèle macroscopique des réacteurs de dissolution

Contexte

La conception de dissolvants nécessite une bonne compréhension des phénomènes physico-chimiques mis en jeu. Pourtant, peu de modèles de réacteurs de dissolution existent actuellement pour des réactions complexes et avec une approche qui s'intéresse aux mécanismes à l'échelle locale. Les enjeux sont pourtant multiples :

- Optimiser les réacteurs existants,
- Proposer une approche multi-échelles pour la conception de nouveaux procédés de dissolution.

L'étude est appliquée à la dissolution de l'UO₂ en milieu nitrique, première étape pour le traitement des combustibles nucléaires par voie hydrométallurgique. Les travaux présentés proposent une démarche en plusieurs étapes, présentées sur la figure 1, en vue du développement d'un modèle pour les réacteurs de dissolution.



Etudes cinétiques

L'étude est réalisée par suivi de grains d'UO₂ via la microscopie à transmission (fig. 2).

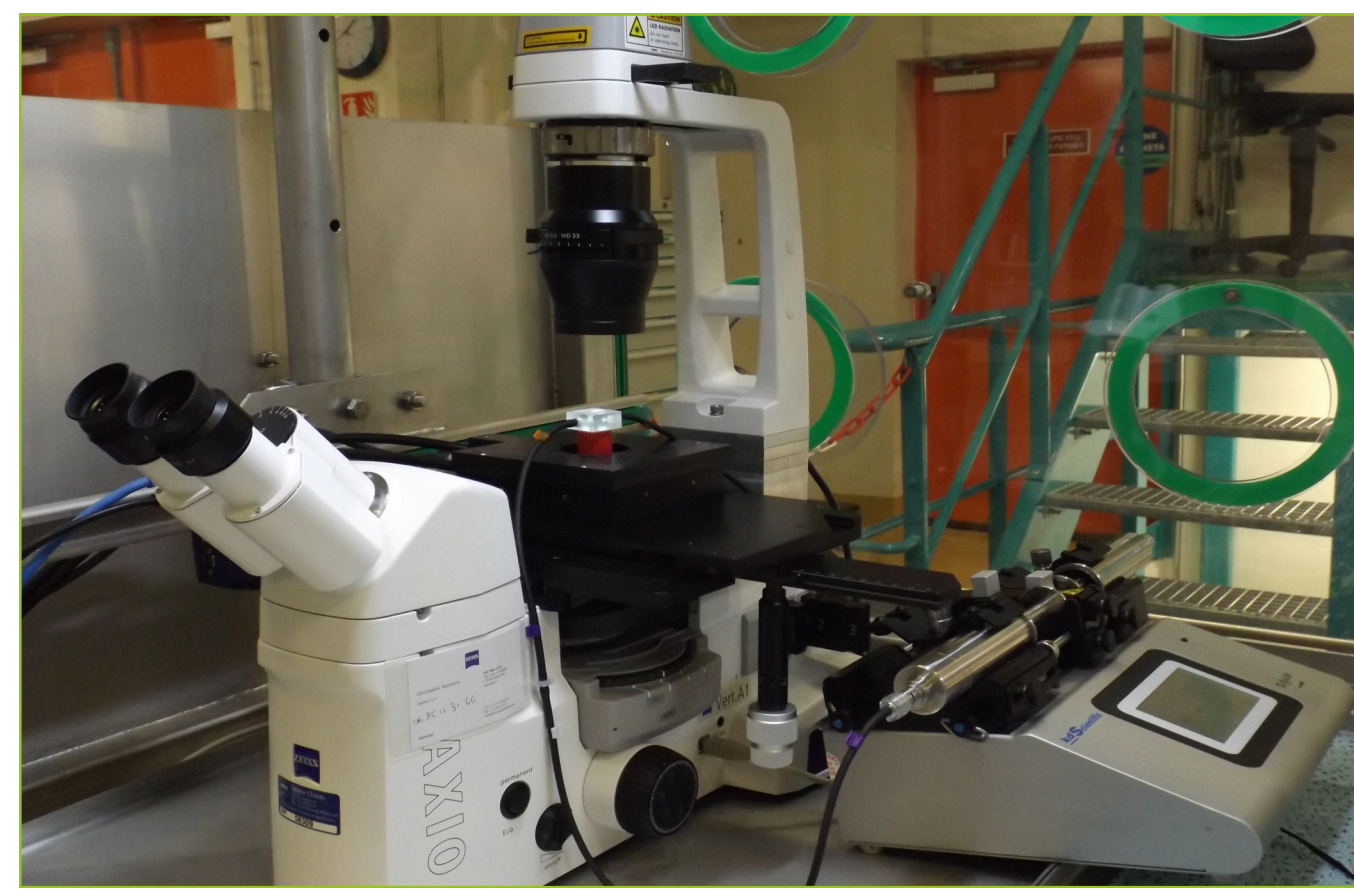


Figure 2 : Cellule de dissolution continue et module à effet peltier

La figure 3 présente l'allure théorique de la courbe de la réactivité en fonction de la concentration relative X. La concentration pour laquelle la réactivité est maximum reste à déterminer.

$$X = [\text{HNO}_3] / [\text{HNO}_3]_{\text{initial}}$$

La réaction est autocatalytique. L'étude consiste à exprimer la vitesse de dissolution en fonction de :

- La température,
- La concentration en acide nitrique
- La concentration en catalyseur.

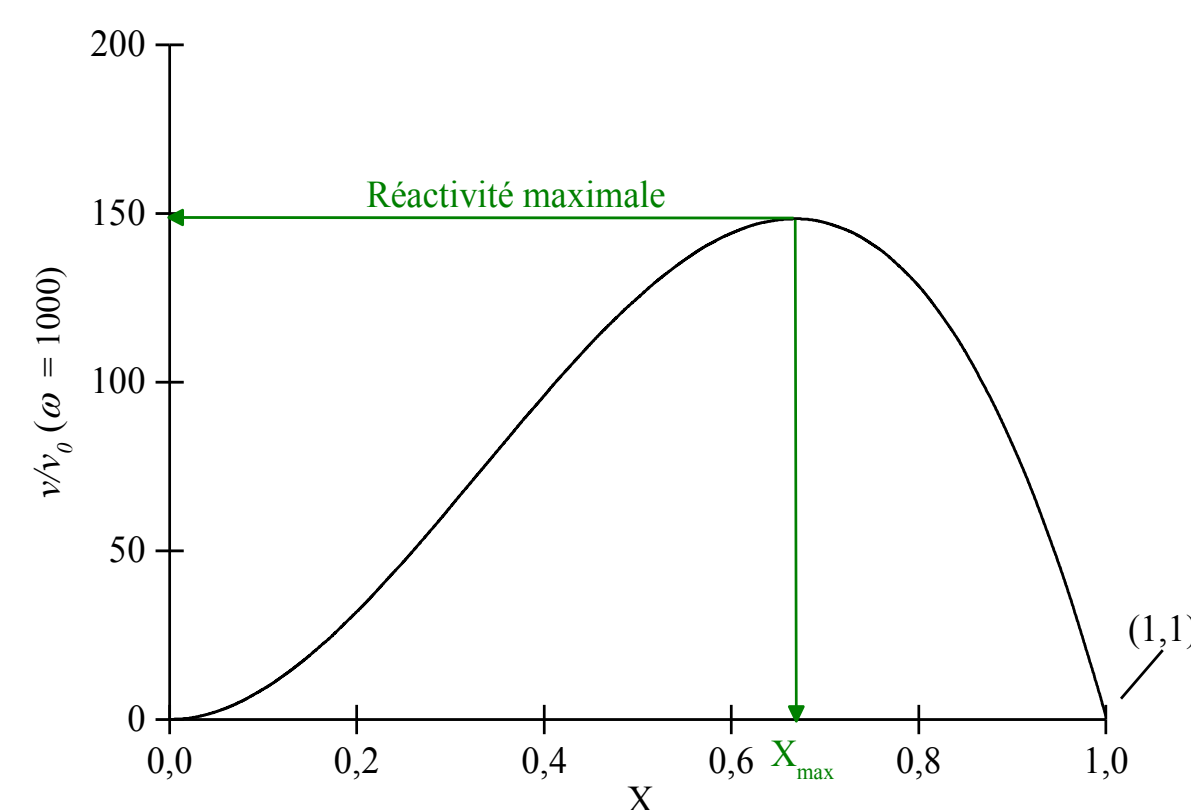
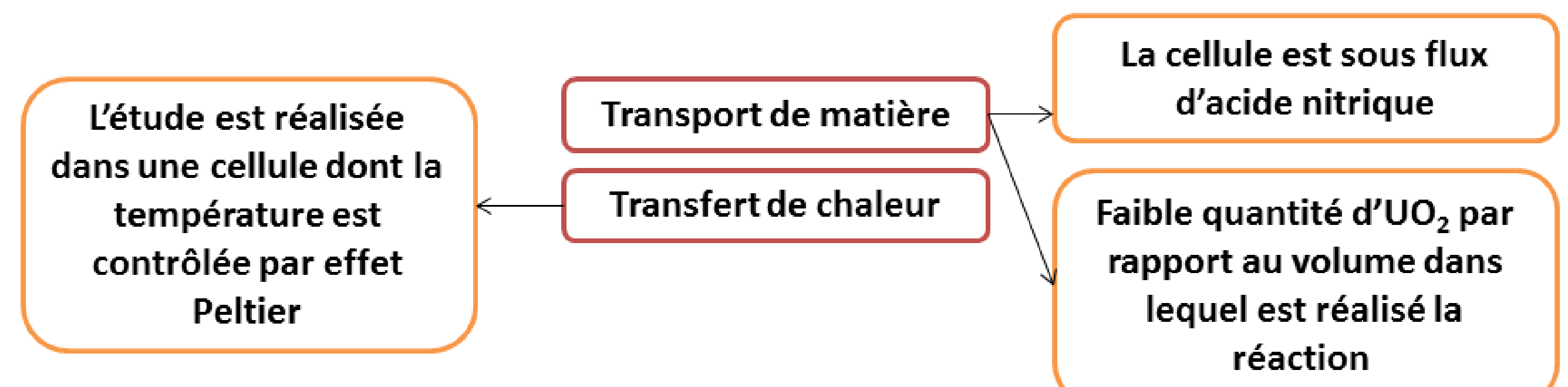
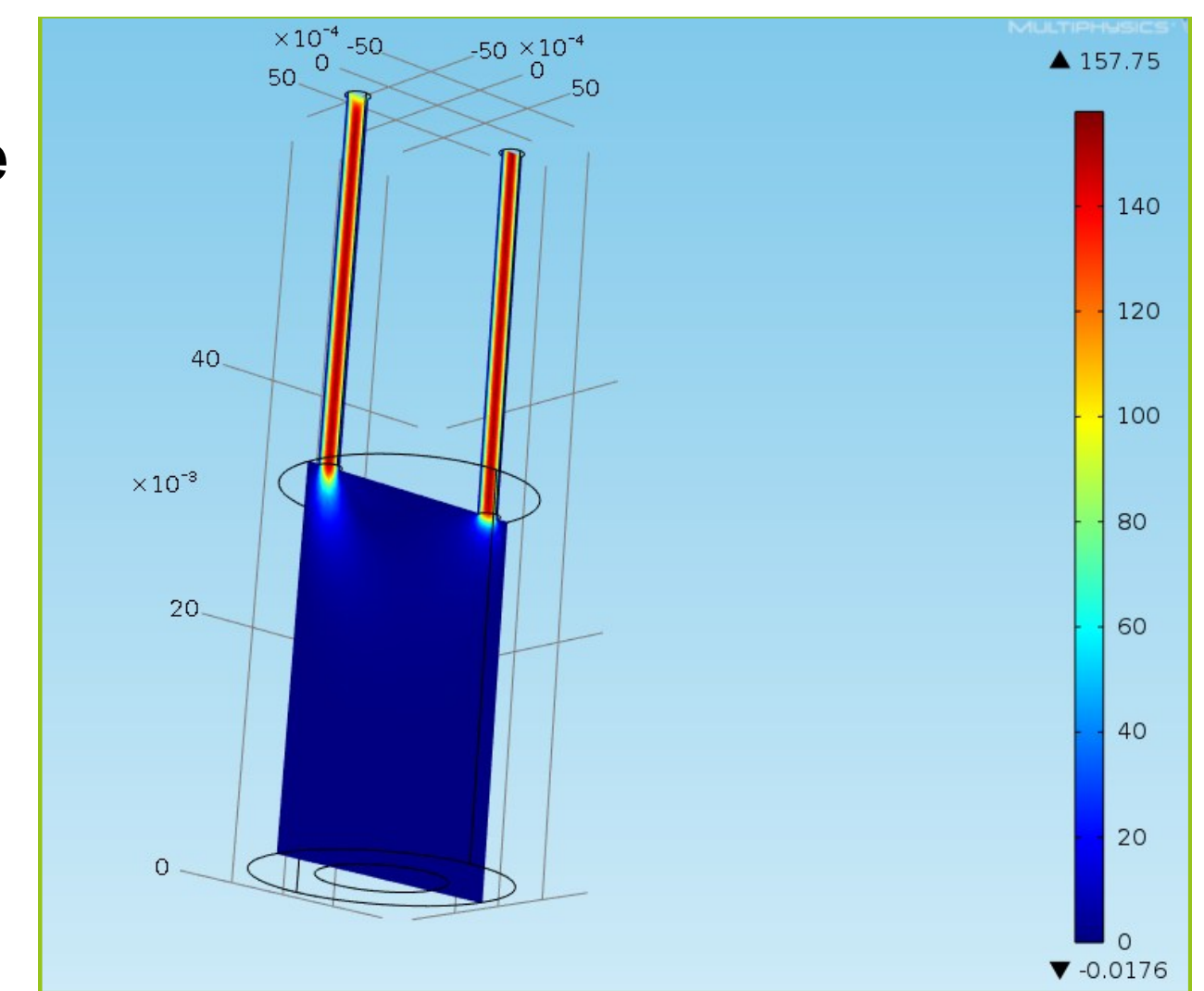


Figure 3 : Evolution de la réactivité en fonction de la concentration relative X de l'acide nitrique.

Le réacteur d'étude cinétique doit s'affranchir des limitations dues aux phénomènes de transport et transfert.



Une simulation sur COMSOL (fig. 4) a été réalisée pour s'assurer que la limitation par le transport de matière peut être négligeable.



Légende : flux apporté - flux consommé

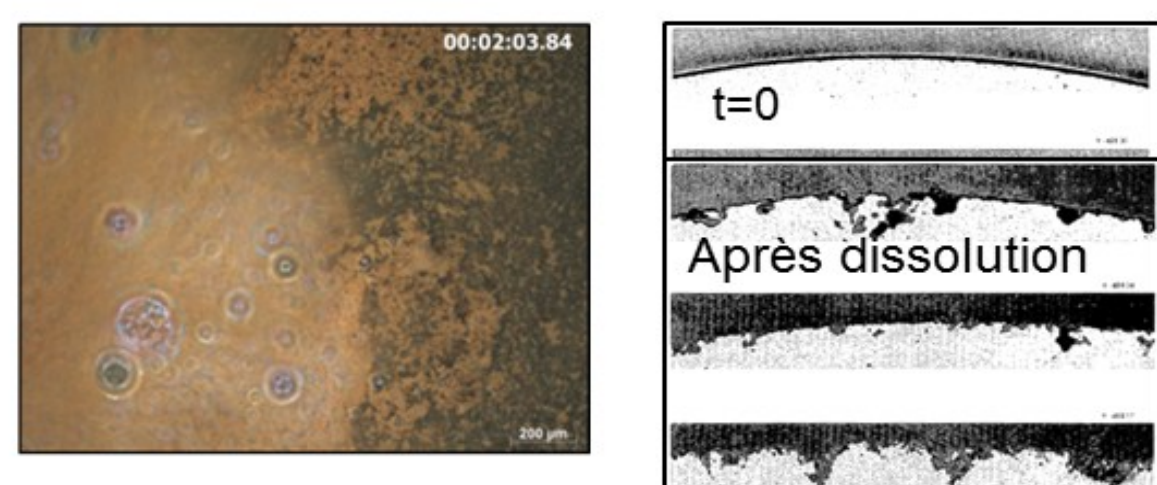
Modèle cinétique local

L'influence de plusieurs phénomènes est à prendre en compte :

- Milieu complexe
 - Nombreuses espèces liées entre elles
 - Évolution des espèces produites (NO et NO₂)

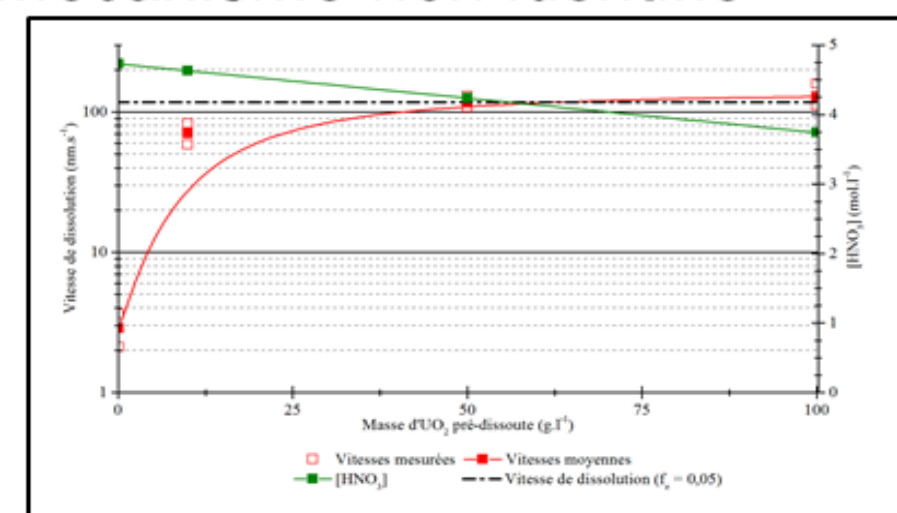
Sites préférentiels d'attaque

- Réactivité plus importante dans les fissures
- Délitement de la pastille



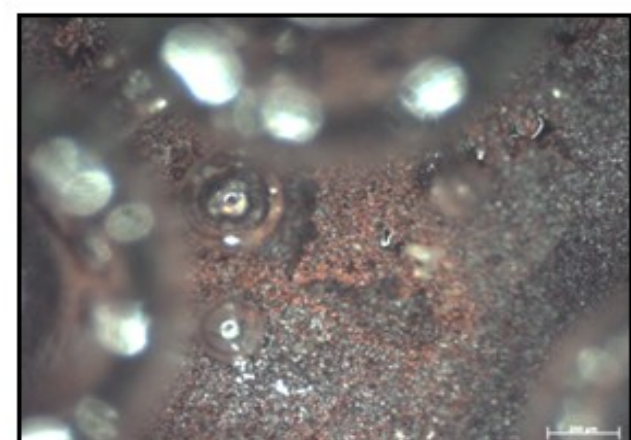
Autocatalyse

- Produits : catalysent la réaction
- Mécanisme non identifié



Réaction triphasique

- Réaction solide-liquide
- Produits gazeux : bulles
- Bulles → renouvelés des réactifs dans les fissures

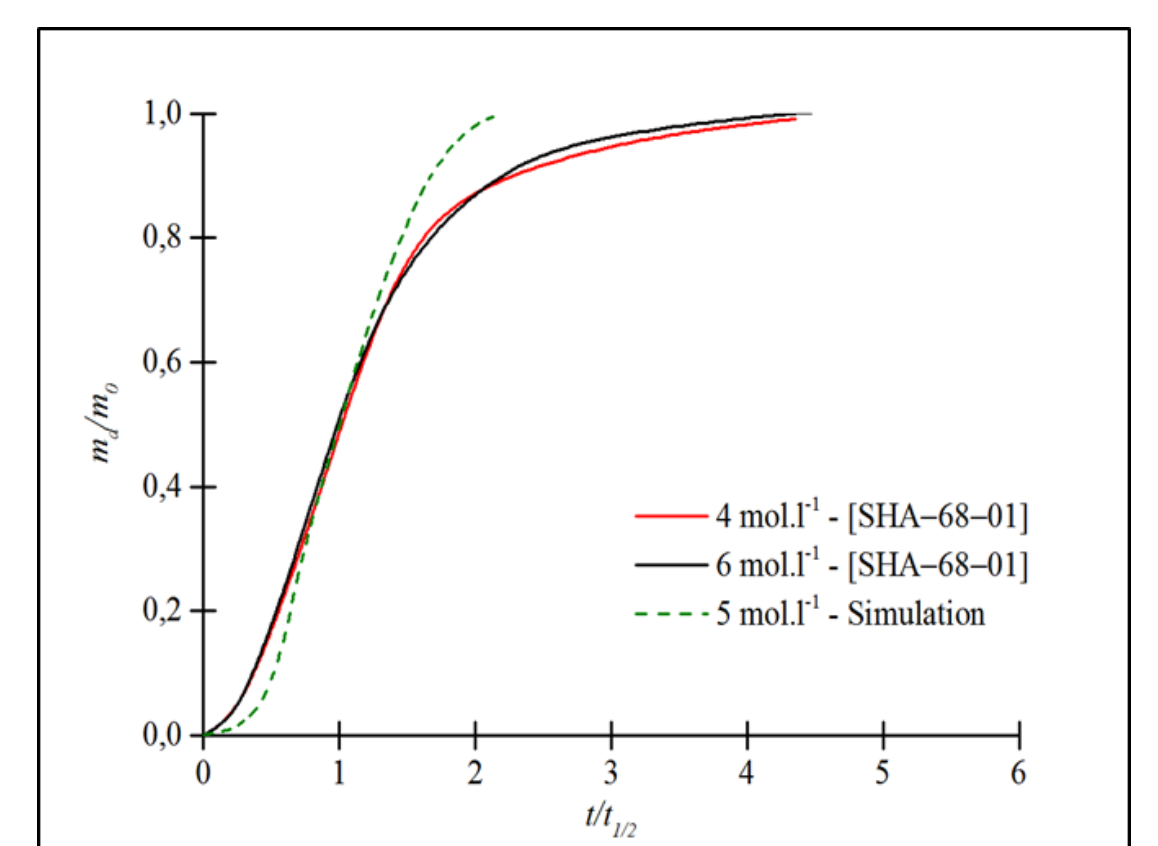


Philippe MARC [MAR-14-01] a proposé un modèle pour la dissolution de pastille d'UO₂ qui prend en compte les phénomènes présentés précédemment.

Les effets issus des phénomènes suivants sont à ajouter à ce modèle :

- L'exothermicité de la réaction,
- Influence de la granulométrie des grains,
- Le transport de matière lors de la dissolution des grains déchaussés,

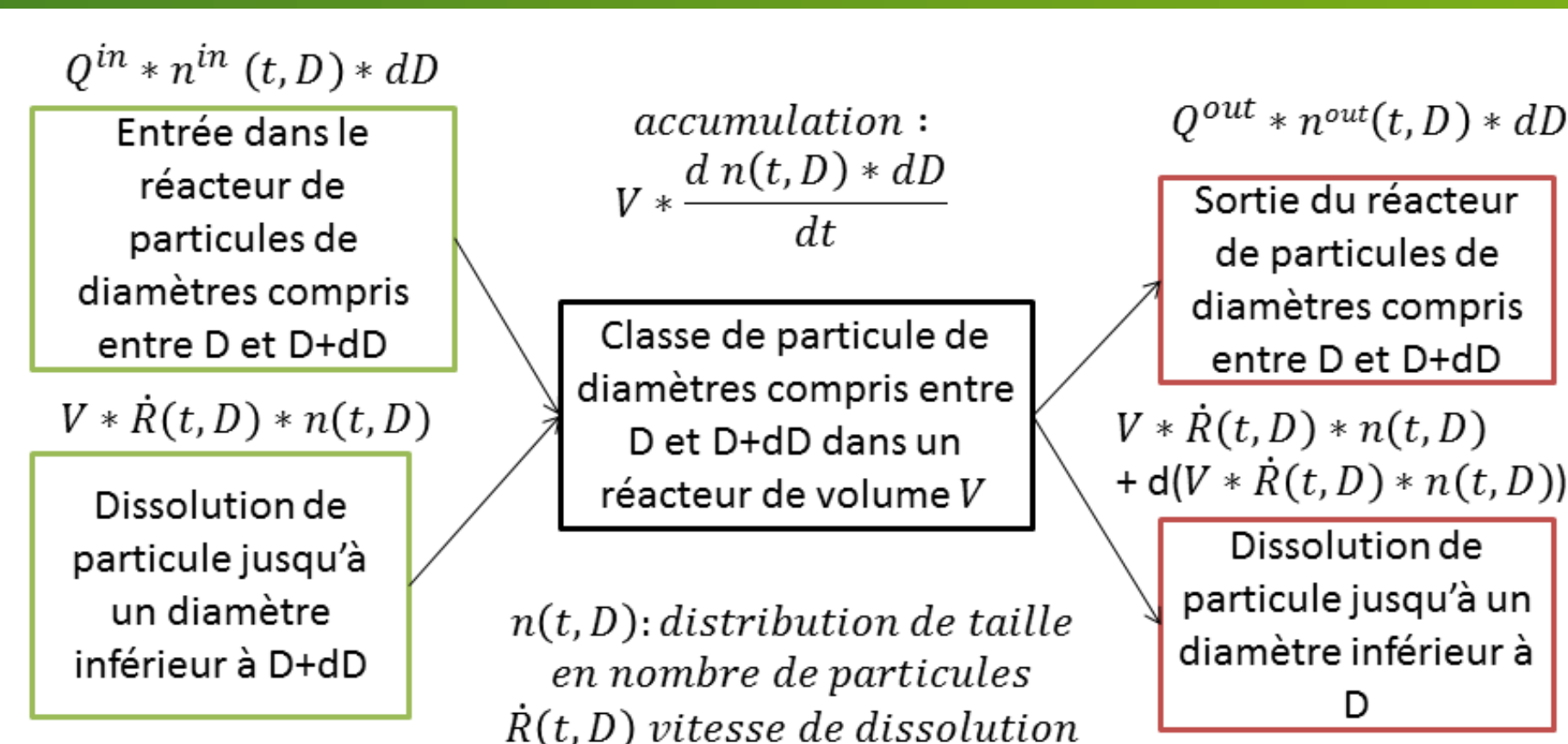
Figure 4: Comparaison des résultats de la simulation avec les résultats de la littérature



Modélisation de réacteurs types

La modélisation de réacteurs types passe par la résolution des bilans suivants :

- Bilans matière
- Bilans thermique
- Bilans de population



Les termes de brisures et d'agrégation de particules sont négligés.

Le bilan de population pour un réacteur continu est le suivant :

$$\frac{d n(t, D)}{dt} = \frac{1}{\tau} [n^{in}(t, D) - n^{out}(t, D)] + \frac{d \dot{R}(t, D) * n(t, D)}{dD}$$

$$\tau = \frac{V}{Q^{in}} = \frac{V}{Q^{out}}$$

Conclusion et perspectives

Une meilleure connaissance des phénomènes impliqués dans la dissolution est nécessaire pour proposer un modèle. Ce modèle général de réacteur permettrait de cerner les paramètres d'importance et d'optimiser la réaction. Les résultats pourront ensuite être extrapolés à des réacteurs plus complexes et mieux adaptés.