

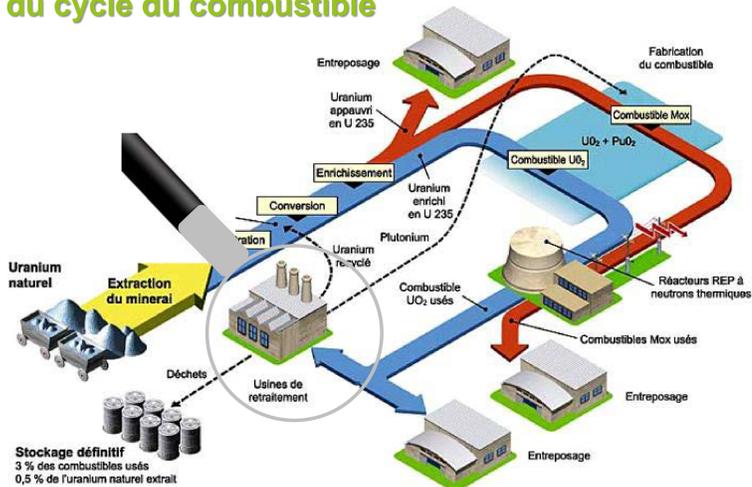
APPROCHE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION DE L'EXTRACTION DES PRODUITS DE FISSION ET ACTINIDES MINEURS PAR LES MONOAMIDES

P. Moeyaert^a, C. Sorel^a, M. Miguiditchian^a, J.-F. Dufrêche^b, É. Bossé^c, S. De Sio^c

a- CEA, DEN, Marcoule, Département de RadioChimie et Procédés, F-30207 Bagnols sur Cèze, France
 b- ICSM, F-30207 Bagnols sur Cèze, France
 c- AREVA NC, BG Aval. F-92084 Paris La Défense Cedex, France

INTRODUCTION

Aval du cycle du combustible



Le multi-recyclage de l'uranium et du plutonium

Enjeu du multi-recyclage :

- Limiter le recours à l'usage d'uranium naturel
 - Limiter les déchets
 - Renforcer la sécurité des installations nucléaires
- Recycler proprement et efficacement les combustibles nucléaires

Avantages d'un procédé utilisant les monoamides comme extractant^{1,2} :

- Cycles de séparation par extraction liquide/liquide réduits // TBP pour atteindre un niveau de purification et de décontamination suffisant des matières recyclées
- Pas de rédox au cours de la partition U/Pu

But de l'étude

- Identifier les mécanismes d'extraction des produits de fission et des actinides mineurs (Ru, Tc, Cs, Eu, Am) par les monoamides
- Modéliser les phénomènes mis en jeu

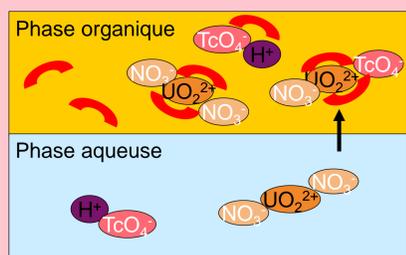
MODÉLISATION PHÉNOMÉNOLOGIQUE – EXEMPLE DE L'URANIUM ET DU TECHNÉTIUM

Extraction liquide liquide - généralités

Mesure de coefficients de distribution :

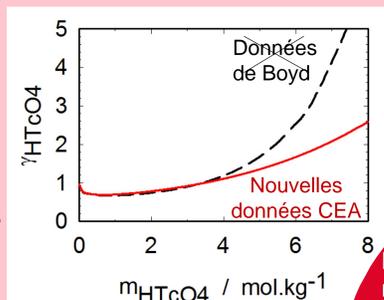
$$D = \frac{[Tc]_{org}}{[Tc]_{aq}}$$

Etude de la variation de D en fonction de différents paramètres

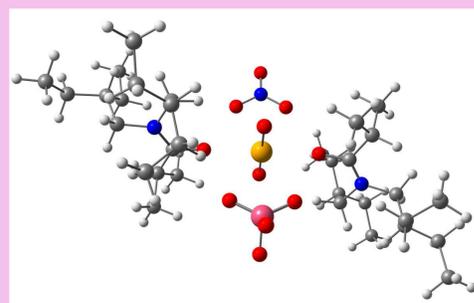


Acquisition de données thermodynamiques (coefficients d'activité)

Caractérisent les effets de milieu
Calculés selon le modèle du NIST³

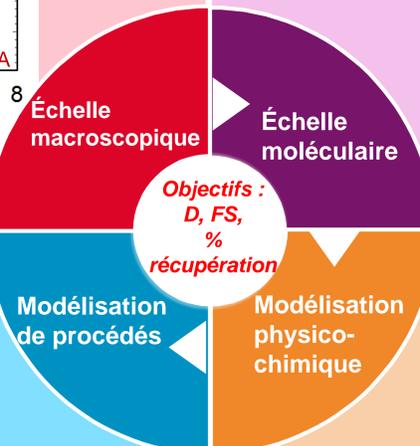


Structure chimique envisagée en phase organique :



Pour confirmer (à venir – décembre 2015) :

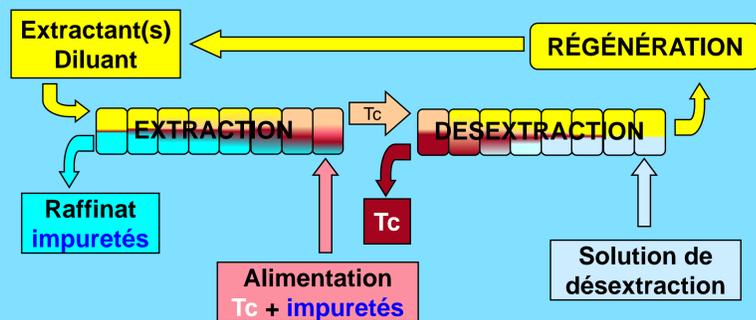
- Acquisition de spectres d'absorption des rayons X sur la ligne ROBL BM20 de l'ESRF (collaboration SMCS/LILA)
- Calcul de chimie théorique (collaboration SMCS/LILA)
- Spectroscopie IR
- ESI-MS



Développement de schémas de procédés Simulation du Tc dans le procédé

- Conduite des essais
- Analyse de sensibilité

Code de simulation PAREX



Identification du mécanisme d'extraction prépondérant :



Écriture de la constante d'extraction :

$$K = \frac{[UO_2(NO_3)(TcO_4)L_2][HNO_3]}{[L]^2[UO_2(NO_3)_2][HTcO_4]} \frac{Y_{UO_2(NO_3)(TcO_4)L_2} Y_{HNO_3}}{Y_{UO_2(NO_3)_2} Y_{HTcO_4} Y_L^2}$$

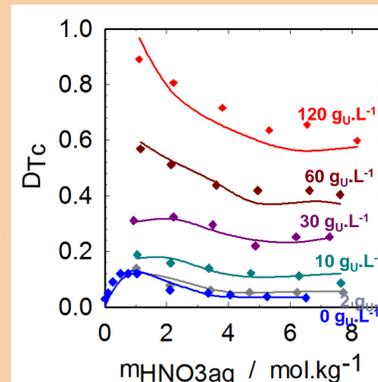
Hypothèses sur les coefficients d'activité :

- Négligés en phase organique
- Calculés selon la théorie des solutions simples en phase aqueuse

Méthode :

- Spéciation (calcul des espèces libres)
- Résolution de bilans de matière pour U, Tc, H (équilibres acido-basiques et de complexation) en phase aqueuse
- Résolution d'un bilan de matière pour l'extractant en phase organique

K_{ex} déterminée par minimisation de l'écart relatif entre $[Tc]_{org}$ exp et calc $\rightarrow K_{ex} = 9,30$



CONCLUSION & PERSPECTIVES

- Démarche analytique consistant à identifier et modéliser les principaux phénomènes en s'appuyant sur des déterminations expérimentales ciblées
- Démarche mise en oeuvre sur Ru, Cs, Eu, Am ...
- Utilisation du code de calcul PAREX pour construire un schéma de procédé à contre-courant⁴

RÉFÉRENCES

1. N. Condamines, Contribution à l'étude de l'extraction d'acide minéraux et de cations actinides aux degrés d'oxydation (IV) et (VI) par des N,N-dialkylamides, 1989.
2. N. Condamines, Étude de l'extraction du technétium à l'état d'oxydation (VII) par des molécules à fonction amide. État d'avancement, Note technique DRDD/SEMP/SEC - NT94-11, CEA, 1994.
3. P. Moeyaert, L. Abiad, C. Sorel, J. F. Dufrêche, P. Moisy, A. Ruas and M. Miguiditchian, The Journal of Chemical Thermodynamics, 2015.
4. C. Sorel, M. Montuir, C. Balaguer, P. Baron, B. Dinh, X. Hérés and R. H., ISEC 2011, 2011.