



HAL
open science

Lixiviation d'un combustible usé MOX MIMAS dans des conditions représentatives d'un entreposage en piscine

Sarah Mougnaud, Sandrine Miro, Magaly Tribet, Christophe Jegou, Caroline Marques, Sylvain Peuget

► To cite this version:

Sarah Mougnaud, Sandrine Miro, Magaly Tribet, Christophe Jegou, Caroline Marques, et al.. Lixiviation d'un combustible usé MOX MIMAS dans des conditions représentatives d'un entreposage en piscine. R3C 2024 - 3emes rencontres rayonnement radio-chimie, Institut de Chimie Séparative de Marcoule (CEA), Jun 2024, Nîmes, France. cea-04693307

HAL Id: cea-04693307

<https://cea.hal.science/cea-04693307v1>

Submitted on 10 Sep 2024

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.

Lixiviation d'un combustible usé MOX MIMAS dans des conditions représentatives d'un entreposage en piscine

S. Mougnaud, S. Miro, M. Tribet, C. Jégou, C. Marques, S. Peugot

CEE, DES, ISEC, DPME, SEME, Univ. Montpellier, Marcoule (France)
Sarah.mougnaud@cea.fr

En France, les assemblages de combustibles usés de type MOX sont entreposés pendant plusieurs décennies dans des piscines. Les études de sûreté nécessitent la prise en compte d'un scénario incidentel correspondant à un défaut sur la gaine des crayons. Dans ce cas, les processus de corrosion peuvent entraîner un endommagement du crayon et un rejet de radionucléides dans l'eau. Afin d'étudier le comportement du combustible MOX MIMAS usé dans les piscines d'entreposage, une expérience de lixiviation a été réalisée dans des conditions chimiques et radiologiques aussi représentatives que possible de celles de l'entreposage. Dans un crayon de combustible MOX irradié à 47GWj/t, un tronçon gainé de 7 mm de haut a été coupé puis poli d'un côté (section ouverte). Il a été immergé dans une solution d'acide borique (2 g/l), à 27°C, sous air et sous une source de ^{60}Co , fournissant un champ d'irradiation gamma d'environ 70Gy/h pendant toute la durée de la lixiviation (132 jours, soit 4 mois). La solution a été régulièrement échantillonnée et le lixiviat a été analysé afin de mesurer les relâchements en radionucléides (produits de fission et actinides) et la concentration de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) formé par la radiolyse de l'eau. Le tronçon de combustible usé a été régulièrement retiré de la solution afin de caractériser l'évolution de sa surface par microscopie optique couplée à la spectroscopie Raman.

Après 3 mois, les relâchements en uranium se sont stabilisés (fraction totale rejetée d'environ $1,6 \times 10^{-5}$ de l'inventaire), et l'analyse finale du lixiviat a montré une fraction solide importante ($> 0,45 \mu\text{m}$) contenant de l'uranium. Les analyses de solution, les observations de surface et les spectres Raman acquis sur celle-ci ont permis de suivre la précipitation massive de studtite, un peroxyde d'uranium formé par la réaction de UO_2^{2+} avec le H_2O_2 généré par la radiolyse de l'eau. La précipitation de studtite semble contrôler les concentrations d'uranium en solution dans ces conditions. L'uranium n'est ainsi pas traceur de l'altération de la matrice du combustible usé, contrairement au ^{90}Sr et au ^{137}Cs qui sont linéairement libérés dans la solution pendant la lixiviation. Ces résultats expérimentaux sont comparés aux données de modélisation obtenues à partir de simulations de radiolyse et de chimie des solutions.

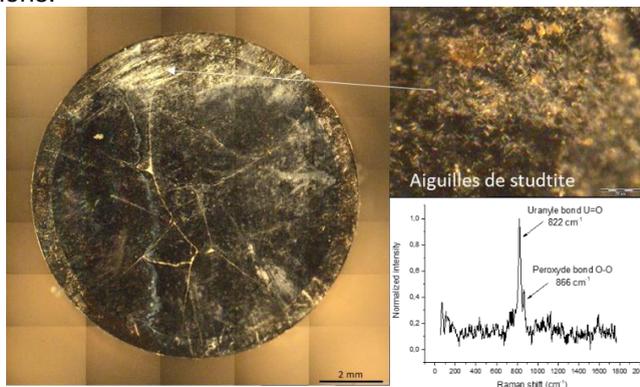


Figure 1 : Reconstruction d'image optique (lumière polarisée) de la surface du tronçon (grandissement 5x, 35 images) après 113 jours de lixiviation – Images optiques (grandissement 100x) d'une zone recouverte d'aiguilles de studtite et spectre Raman correspondant