Dissolution de poudres d'UO_2 à différentes morphologies

Y. Ziouane

▶ **To cite this version:**

Y. Ziouane. Dissolution de poudres d'UO_2 à différentes morphologies. Les 16èmes Journées Scientifiques de Marcoule (JSM 2016), Jun 2016, Bagnols sur cèze, France. hal-02441902

HAL Id: hal-02441902
https://cea.hal.science/hal-02441902

Submitted on 26 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.

Dissolution de poudres d'UO_2 à différentes morphologies

Nom, Prénom : ZIOUANE Yannis

Responsable CEA : LALLEMAN Sophie, ARAB-CHAPELET Bénédicte

Directeur universitaire : LETURCQ Gilles

Laboratoire d'accueil :
CEA, Direction de l'Énergie Nucléaire, Département RadioChimie et Procédés, SERA/LED
F-30207 Bagnols sur Cèze, France

Contrat : CTCI

Organisme co-financeur : AREVA

Université d'inscription : Université des sciences de Montpellier

Ecole doctorale : ED459

Date de début de thèse : 20/10/2014

Master : Chimie séparative, matériaux et procédés

I. Introduction :

Le combustible MOx (Mélange d'un oxyde de plutonium et d'uranium) permet de recycler une partie des matières nucléaires issues du traitement des combustibles UOx à l'issue de leurs utilisations dans les réacteurs électronucléaires. Dans l'optique du multi-recyclage de ce combustible, il est important de bien optimiser sa dissolution, première étape du traitement hydro métallurgique. Le combustible MOx n'est pas complétement homogène de par sa méthode de fabrication. Cette hétérogénéité n'a pas de conséquence lors de son passage en réacteur mais elle induit une dissolution plus lente voire incomplète pour les amas riches en plutonium. L'insolubilité de ces amas conduit à des poudres à haute teneur en plutonium en fin de dissolution, appelés résidus de dissolution. Il apparaît alors important de connaitre précisément l'influence de la teneur en Pu mais aussi de la morphologie de ces résidus sur leur cinétique de dissolution. Pour ce faire, l'ensemble des teneurs Pu de la solution solide $(U,Pu)O_2$ doivent être étudiés. Dans un premier temps, une étude a été menée sur le pôle pur UO_2.

II. Synthèses des matériaux d'études :

Diverses voies de synthèses ont été employées pour fabriquer ces différents UO_2 présentant différentes morphologies. Parmi celles-ci, la voie oxalique, basée sur la précipitation d'un oxalate d'actinide suivie d'une calcination sous atmosphère contrôlée. Suivant les conditions opératoires mises en jeu, il est possible d'orienter la morphologie du précipité. Ainsi, deux oxydes d'uranium présentant des morphologies plaquettes et baguettes ont été synthétisés par cette voie (cf. figure 1).
La voie sol-gel a été utilisée pour obtenir une troisième et dernière morphologie pour l'UO_2. Les articles scientifiques présentant ce procédé de fabrication réfèrent à la synthèse de microsphères [1]. Pour cette étude, les protocoles ont été modifiés pour synthétiser des poudres. Cette synthèse consiste en la gélification d'un UO_3 qui, après calcination sous atmosphère réductrice, conduit à un oxyde d'uranium à morphologie définie (cf. figure 1).
Tous les précurseurs synthétisés ont subi les mêmes durées (1h30) et température (1127K) de calcination. Le précurseur présentant une morphologie plaquette a été séparé en 3 lots soumis à des atmosphères de calcinations différentes : Ar, Ar/H_2 et air + Ar/H_2. Ces trois atmosphères permettent toute d'aboutir à des UO_2 de morphologie plaquette présentant toutefois de légères différences structurales (tailles des grains, stœchiométrie, porosité).

Document propriété du CEA – Reproduction et diffusion externes au CEA soumises à l'autorisation de l'émetteur

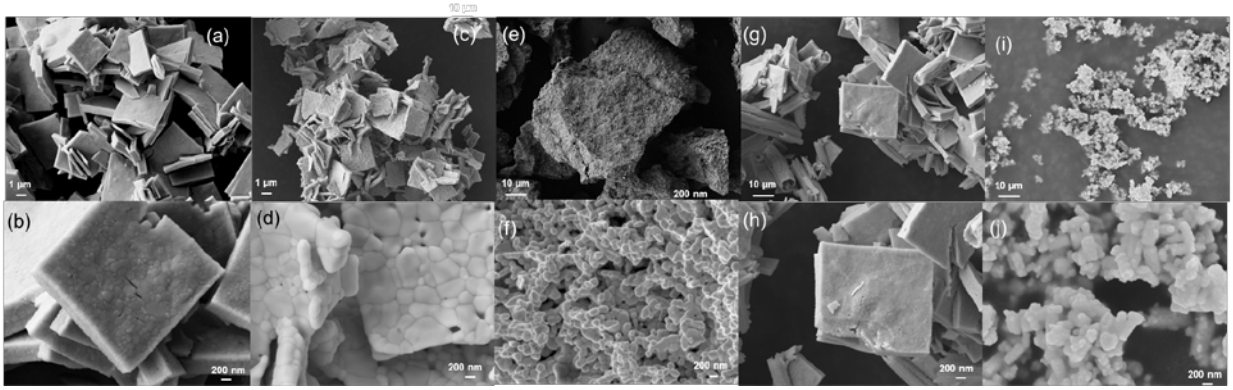

Figure 1 : Micrographie MEB de poudres d'UO_2 : (a) et (b) morphologie plaquette et calcination sous Ar/H_2 - (c) et (d) double cycle de calcination air + Ar/H_2 - (e) et (f) morphologie obtenue par voie sol-gel - (g) et (h) morphologie plaquette obtenue après calcination sous Ar - (i) et (j) morphologie baguette et une seule calcination sous Ar.

III. Dissolution des poudres d'UO_2 :

Dans les mêmes conditions opératoires, trois profils de cinétiques de dissolution différents sont observés suivant la morphologie des composés. Des vitesses de dissolutions variables ainsi que l'existence d'une période d'induction dans le cas de l'UO_2 baguette ont été observée. En confrontant les caractérisations acquises par la microscopie électronique à balayage (MEB), les valeurs de surface spécifique déterminées par la méthode BET et les analyses par diffraction des rayons X (DRX), il devrait être possible de déterminer quel paramètre morphologique ou structural possède un impact ou non sur la cinétique de dissolution de l'UO_2 : cette étude conclut sur l'influence de la morphologie à l'échelle du micromètre mais aussi sur celle de la stœchiométrie en oxygène des composés. Des études complémentaires sont en cours pour essayer, entre autres, de différencier dès la caractérisation des poudres celle qui seront sujettes à une période d'induction et la durée de celle-ci.
Cette étude est également présentée à ATALANTE 2016 sous la forme d'un article [2].

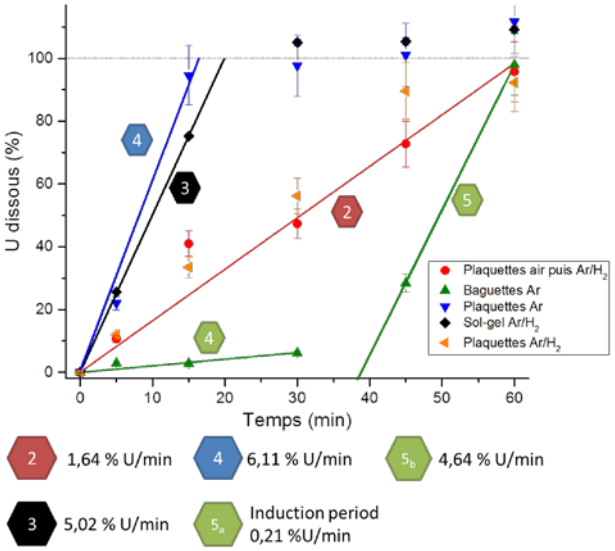

Figure 2 : Cinétiques de dissolution des poudres d'UO_2 à différentes morphologies dans les conditions suivantes : $[HNO_3]$=1,5M ; T°=50°C ; 300 rpm.

[1] Vaidya V.N (2008) Sol-gel process for ceramic nuclear fuels. Journal of Sol-Gel Science and Technology: 369-381.
[2] Ziouane Y, Arab-Chapelet B, Lalleman S, Leturcq G (2016) Effect of the microstructural morphology on UO_2 powders, ATALANTE 2016.

Document propriété du CEA – Reproduction et diffusion externes au CEA soumises à l'autorisation de l'émetteur