



Lixiviation des polymères irradiés caractérisation de la solution et complexation des actinides

E. Fromentin, C. Aymes-Chodur, D. Doizi, M. Ferry, P. Reiller, J.-J. Pielawski

► To cite this version:

E. Fromentin, C. Aymes-Chodur, D. Doizi, M. Ferry, P. Reiller, et al.. Lixiviation des polymères irradiés caractérisation de la solution et complexation des actinides. Journée des doctorants DPC-LAMBE (Evry), Nov 2015, Evry, France. hal-02445734

HAL Id: hal-02445734

<https://cea.hal.science/hal-02445734>

Submitted on 20 Jan 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.

Lixiviation des polymères irradiés : caractérisation de la solution et complexation des actinides

Elodie FROMENTIN¹ – DEN/DANS/DPC/SECR/Laboratoire de Radiolyse et de la Matière Organique
2^{ème} année de thèse

Caroline AYMES-CHODUR², Denis DOIZI¹, Muriel FERRY¹, Pascal REILLER³, Jean-Jacques PIELAWSKI⁴

¹CEA/DEN/DANS/DPC/SECR/LRMO, ²Université Paris-Sud 11, Laboratoire Matériaux et Santé, EA 401, IFR141, ³CEA/DEN/DANS/DPC/SEARS/LANIE,

⁴AREVA E&P, 1 place Jean Millier, 92084 La Défense.

Contexte

Cigéo est le projet de stockage en formation géologique profonde pour les **déchets radioactifs de moyenne activité à vie longue (MA-VL)** et de haute activité (HA). Cette thèse se focalise sur le **polymère industriel polyuréthane MAPA (PURm)** pouvant être présent dans les déchets technologiques MA-VL.

La fin de vie de ces déchets se décline en 2 étapes :

- 1) **Entreposage et stockage en profondeur à long terme** : le PURm est dégradé par **la radio-oxydation**
- 2) **Stockage en profondeur à très long terme (après plusieurs milliers d'années)** : le PURm radio-oxydé subit une **hydrolyse basique**.

Objectifs

- Étudier la **cinétique** de l'**hydrolyse basique** du PURm irradié et non irradié
- **Caractériser** les produits de dégradation hydrosolubles du PURm non irradié et irradié
- Identifier les produits pouvant **complexer** les radionucléides
- Proposer des **mécanismes** de dégradation et analyser l'impact de la radio-oxydation sur l'hydrolyse basique

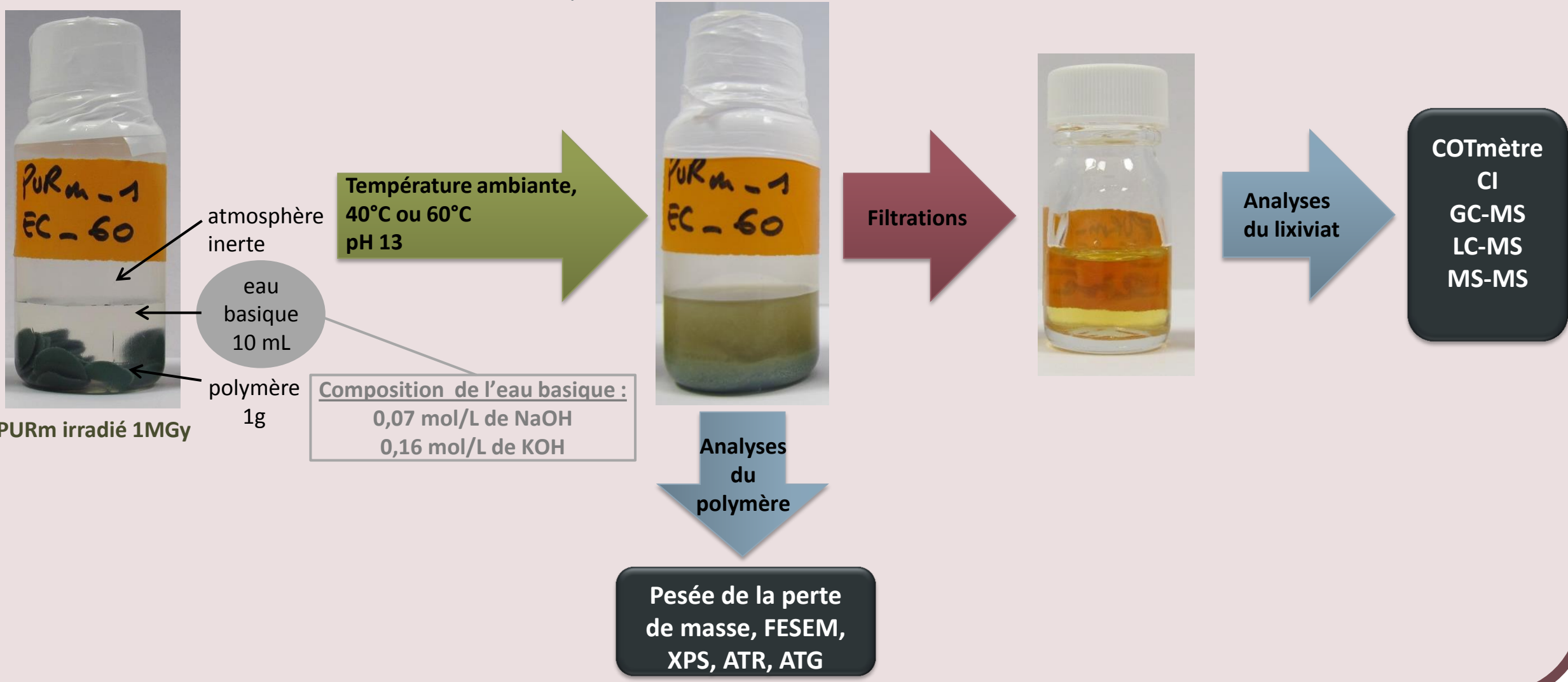
Démarche

1) **Caractérisation du polymère avant dégradation** : RMN ¹H (PURm dans DMF), analyse élémentaire et ATG

2) **Préparation des échantillons et analyses**

Etape 1 : irradiation du PURm (irradiation γ sous air, 500 et 1000 kGy, source ⁶⁰Co, 0,9kGy/h, LABRA)

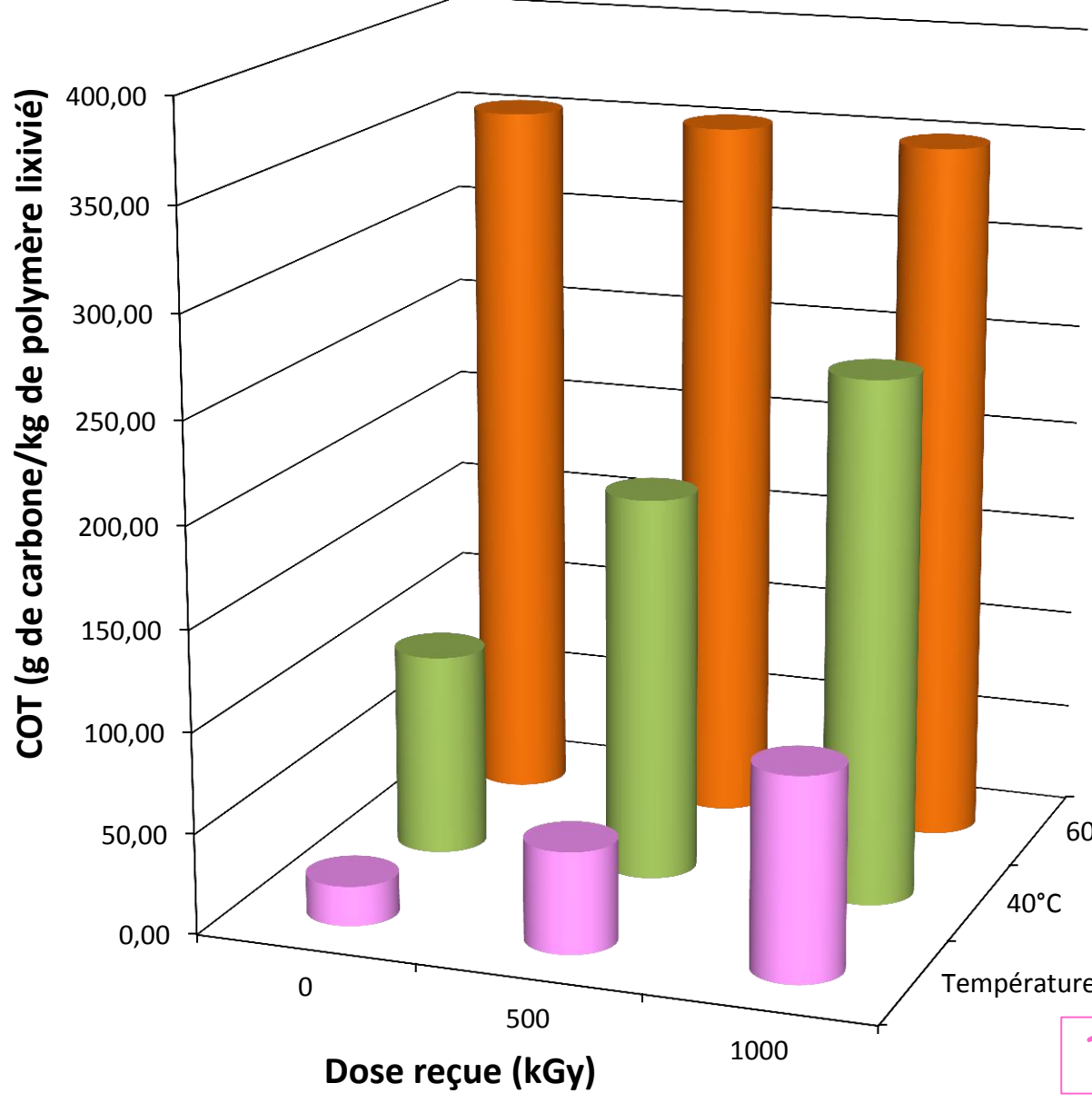
Etape 2 : lixiviation



Lixiviations avec ajustement de pH

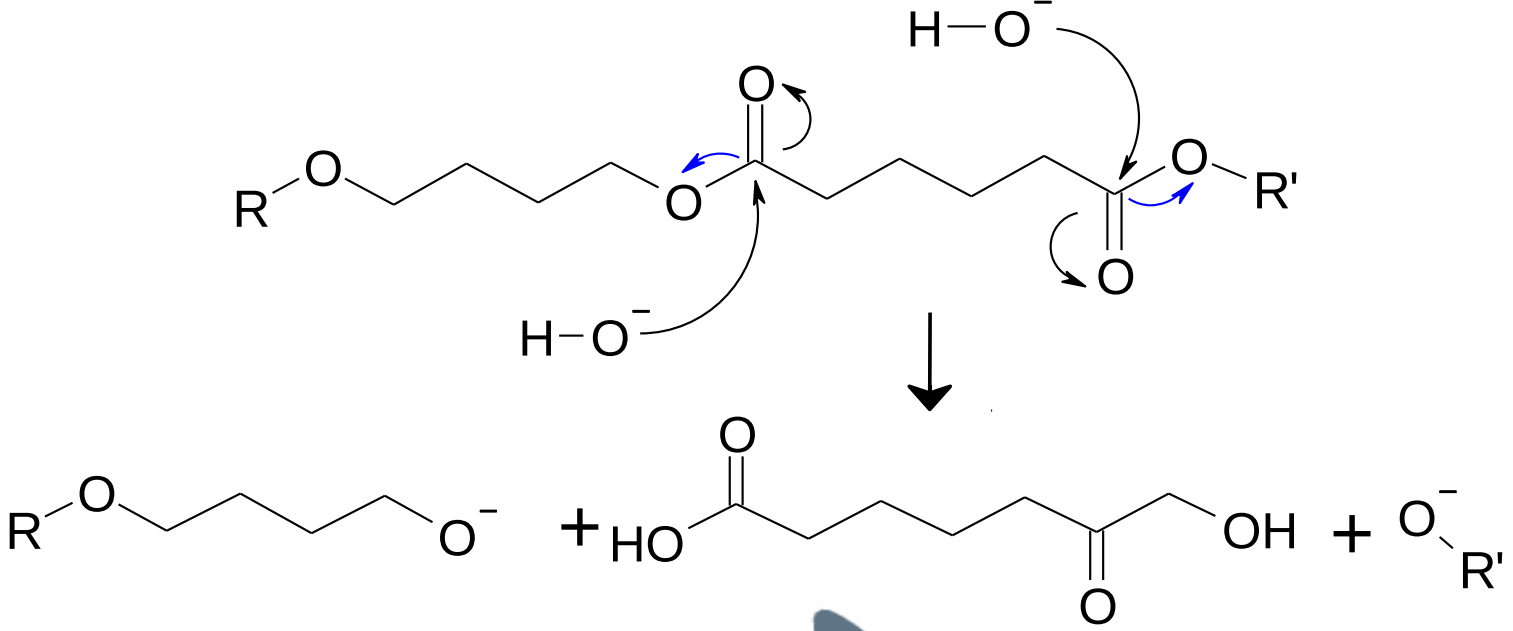
pH maintenu constant et solution non renouvelée

COT relâché par le PURm après 31 jours de lixiviation en eau basique



COT $\nearrow$ lorsque T $\nearrow$

acide adipique : espèce identifiée majoritaire



Température ambiante

0 kGy

26%

500 kGy

36%

1000 kGy

48%

Fraction inconnue
acides identifiés et quantifiés

Fraction inconnue $\nearrow$ lorsque dose $\nearrow$

60°C

0 kGy

55%

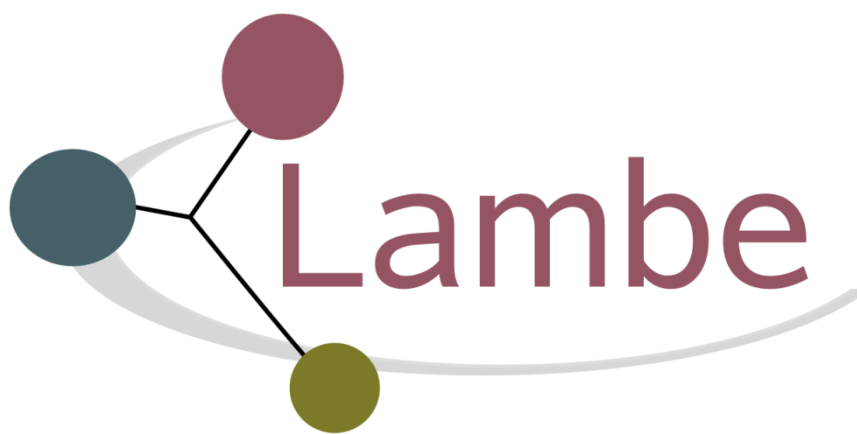
500 kGy

56%

1000 kGy

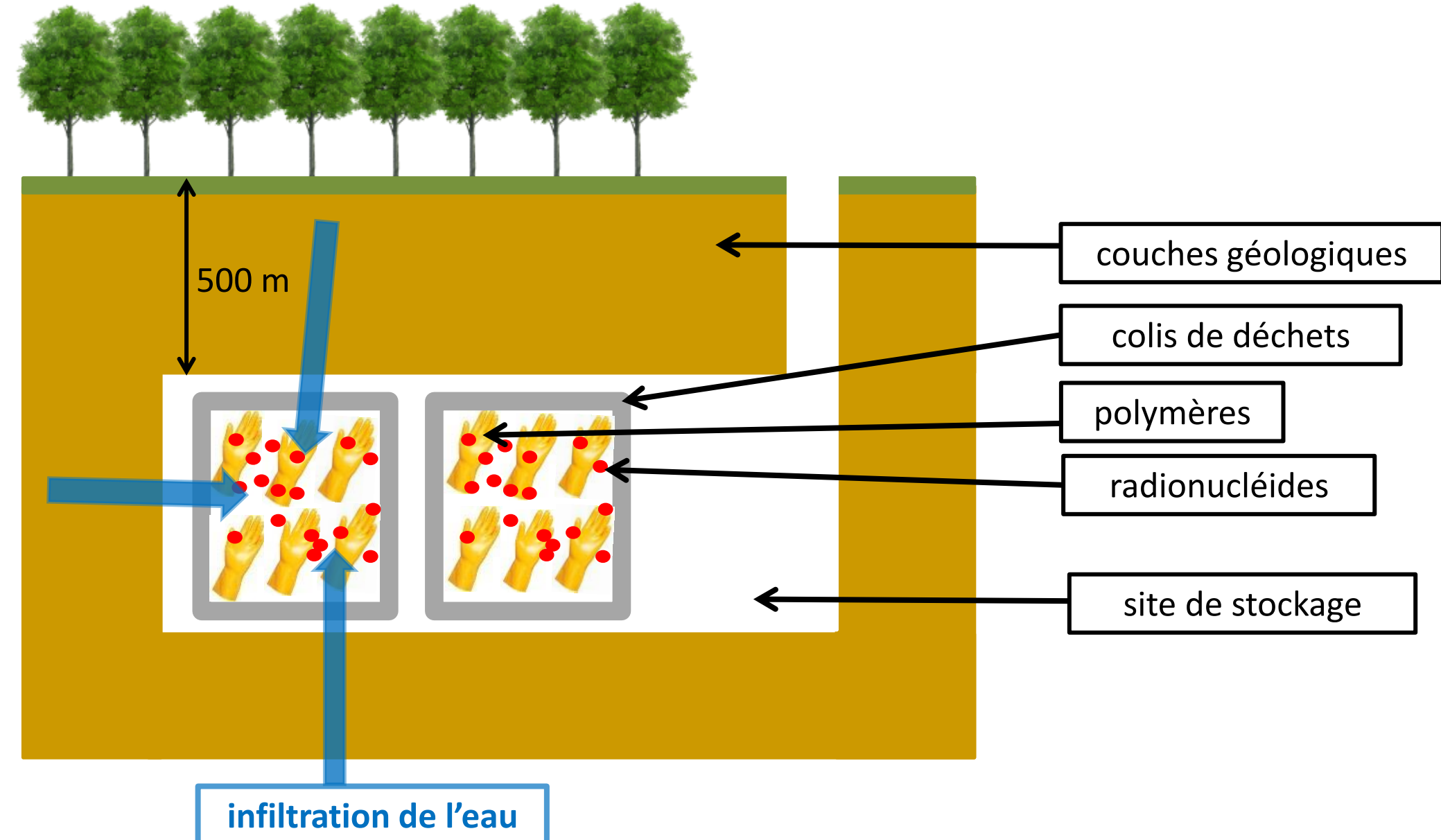
57%

Fraction inconnue $\nearrow$ lorsque T $\nearrow$



Journée des doctorants DPC/LAMBE
13 Novembre 2015 – Université d'Evry

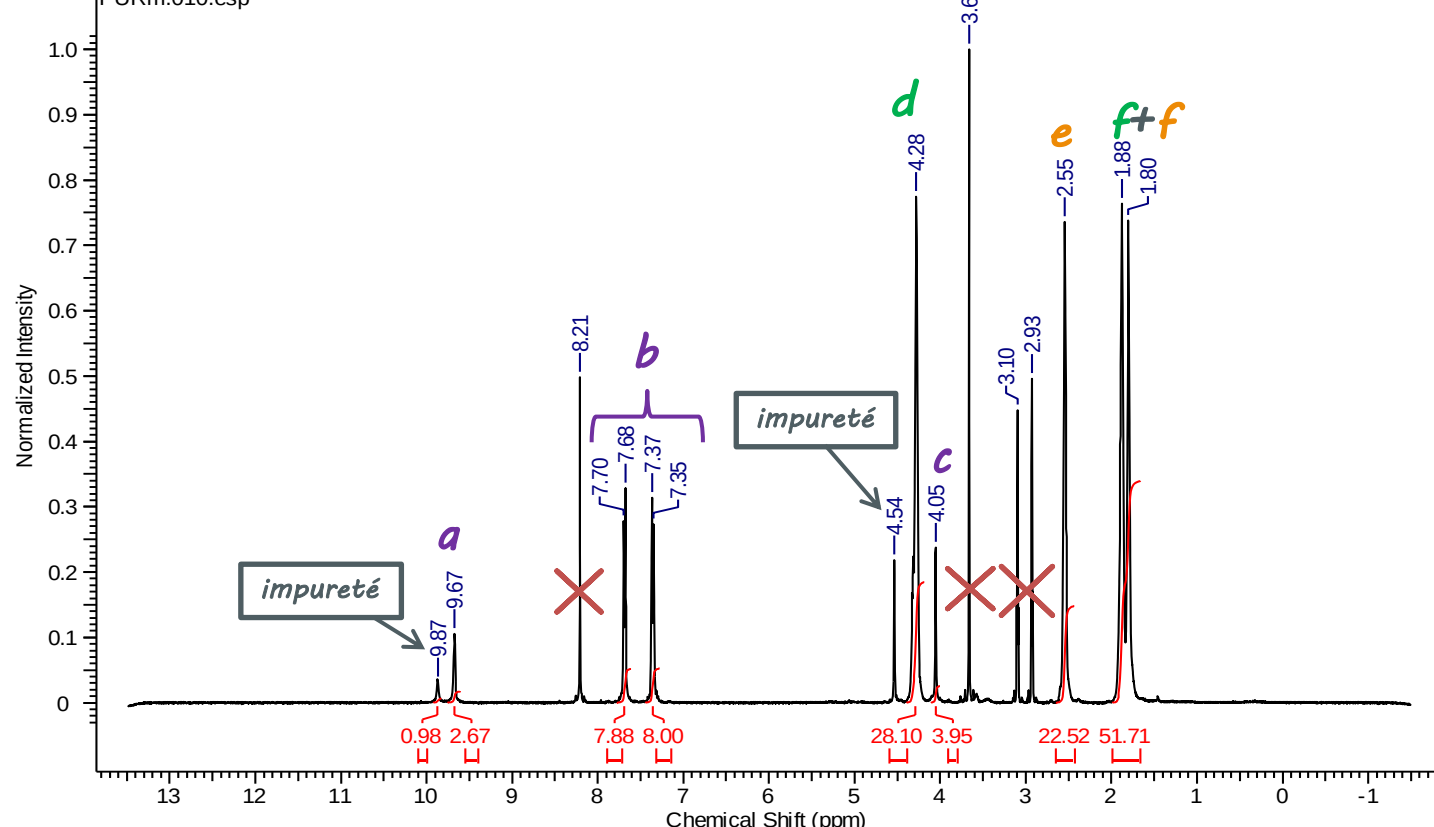
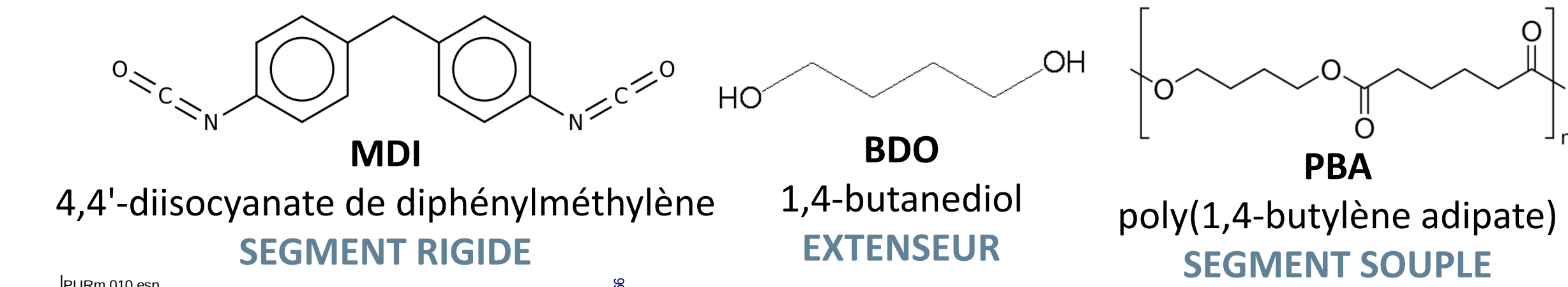
Schéma de l'installation Cigéo :



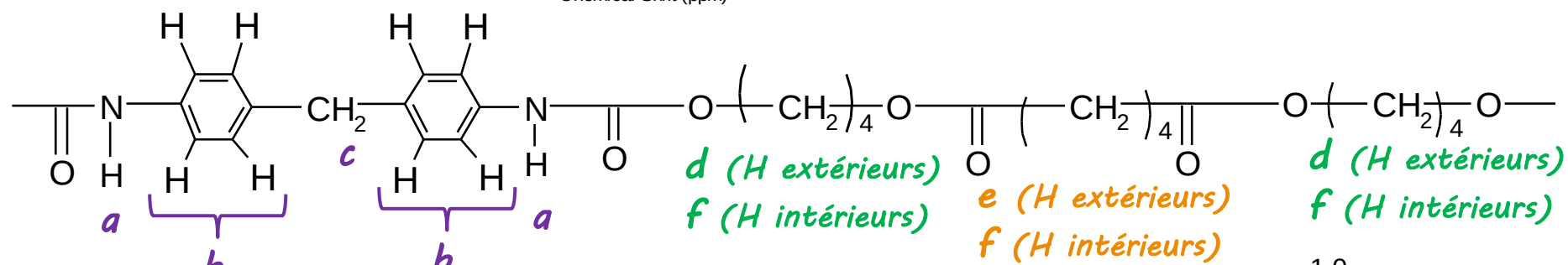
Caractérisation du matériau

Caractérisation du PURm :

PURm synthétisé à partir de 3 segments (MDI)_{0,20}(PBA)_{0,57}(BDO)_{0,23}

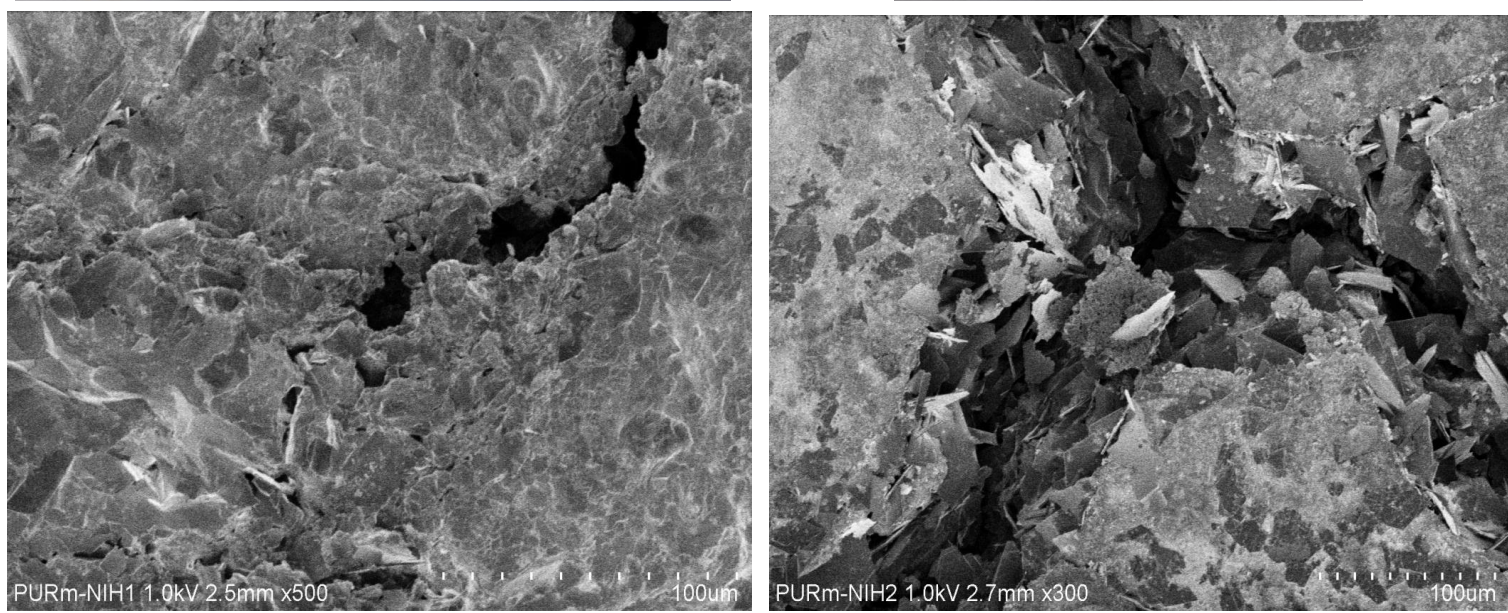
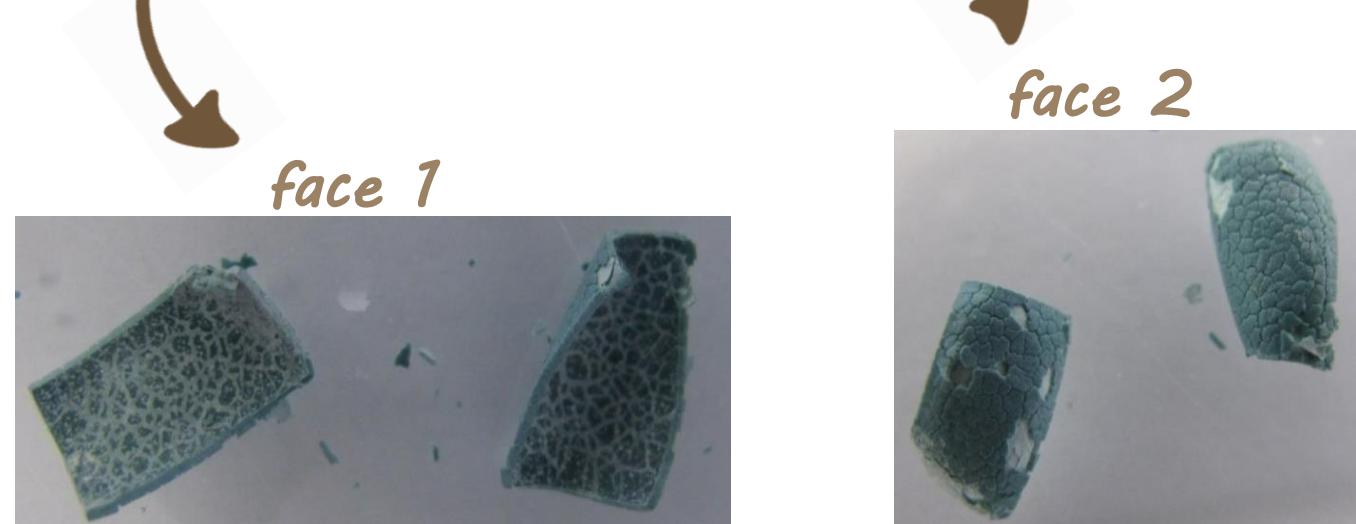


Élément de formulation	% massique
Segment rigide	25,5
Segment souple et extenseur	63,4
Charge inorganique	8,9
Agent réticulant	1,8
Pigment	0,4

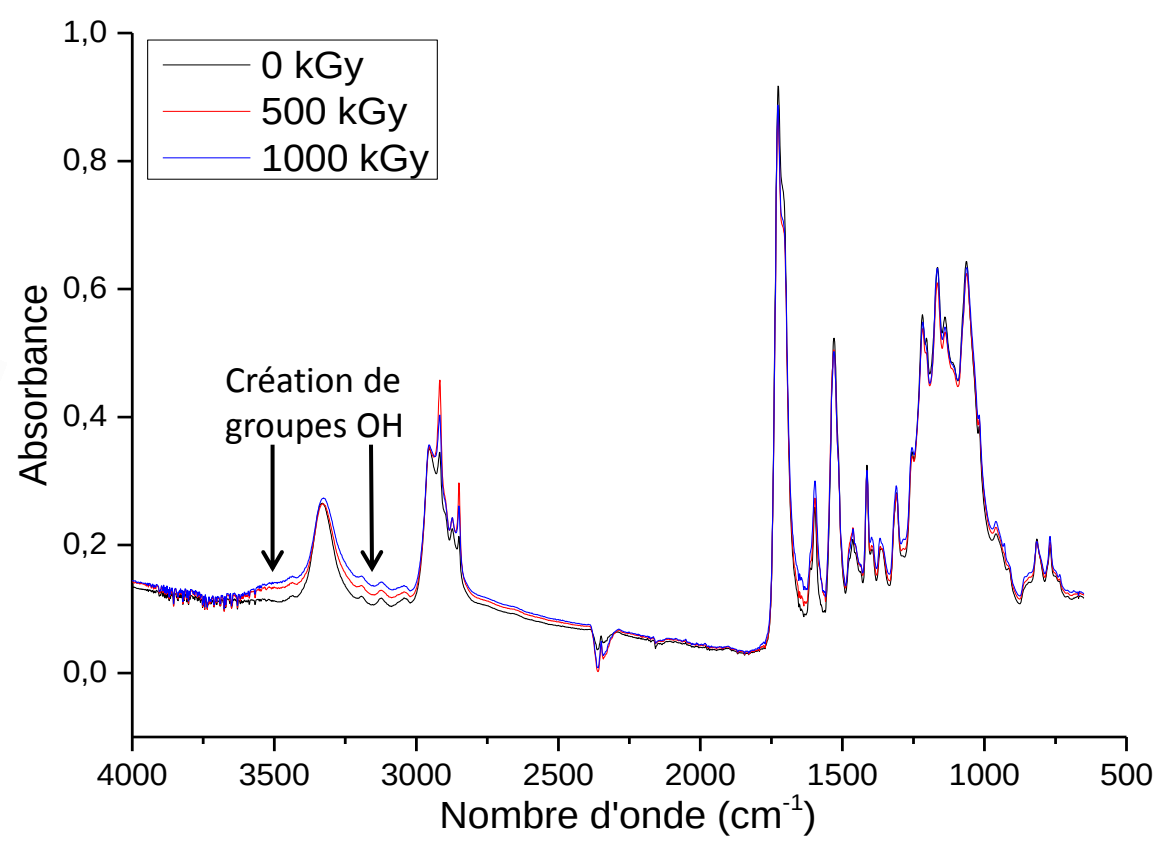


caractérisation du PURm après irradiation
Taux d'oxydation $\nearrow$ lorsque dose $\nearrow$

observation du PURm après
hydrolyse basique

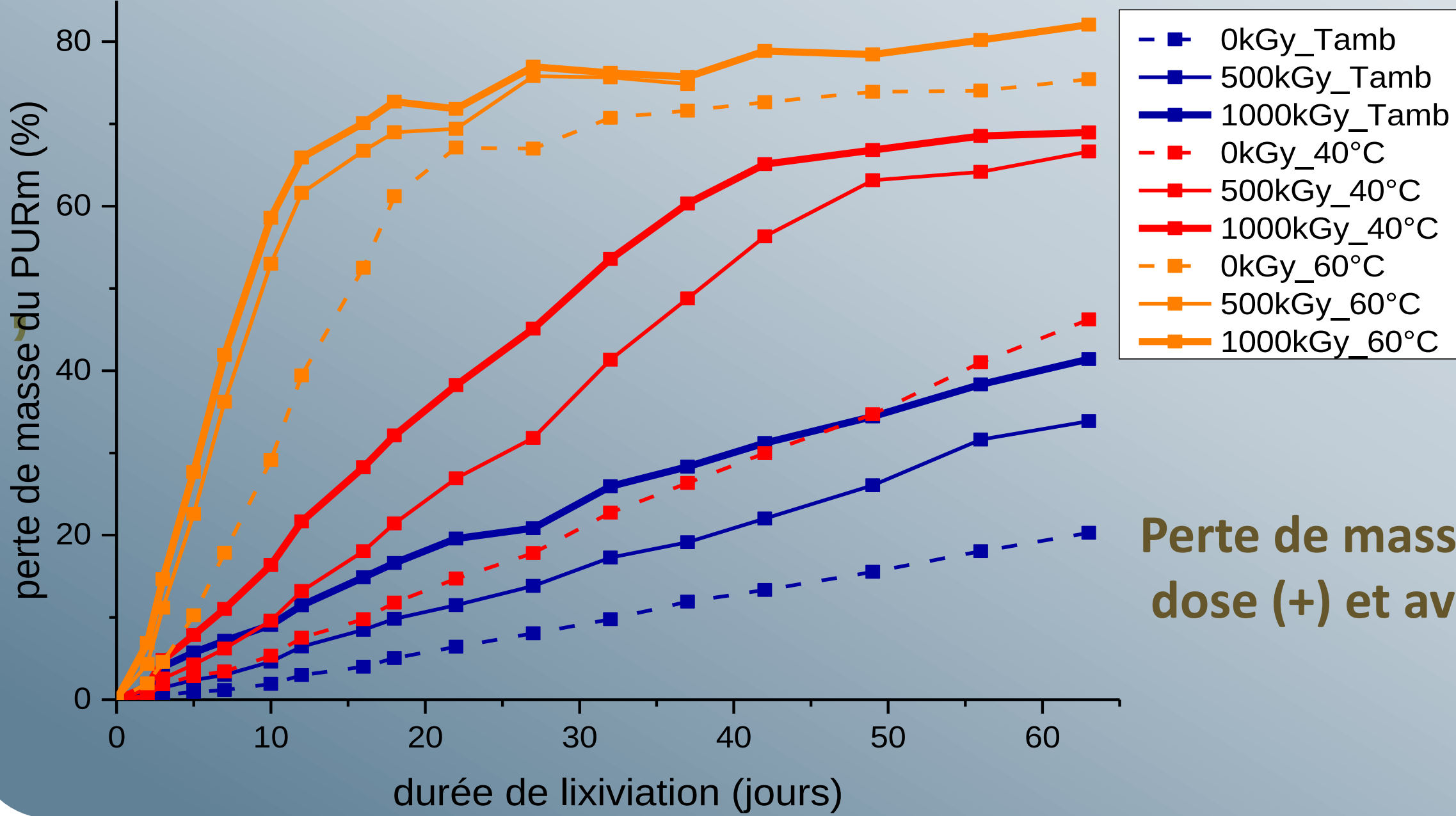


Les deux faces du
film sont dégradées,
présence de craquelures
profondes.



Lixiviations avec renouvellement

solution renouvelée régulièrement



Perte de masse $\nearrow$ avec
dose (+) et avec T (++)

Perspectives

- Compléter le bilan matière avec une semi-quantification en GC-MS
- Étudier le rôle de la surface du polymère lors de la lixiviation
- Mesure de la répétabilité des lixiviations
- Estimation du pouvoir complexant des acides simples