



HAL
open science

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

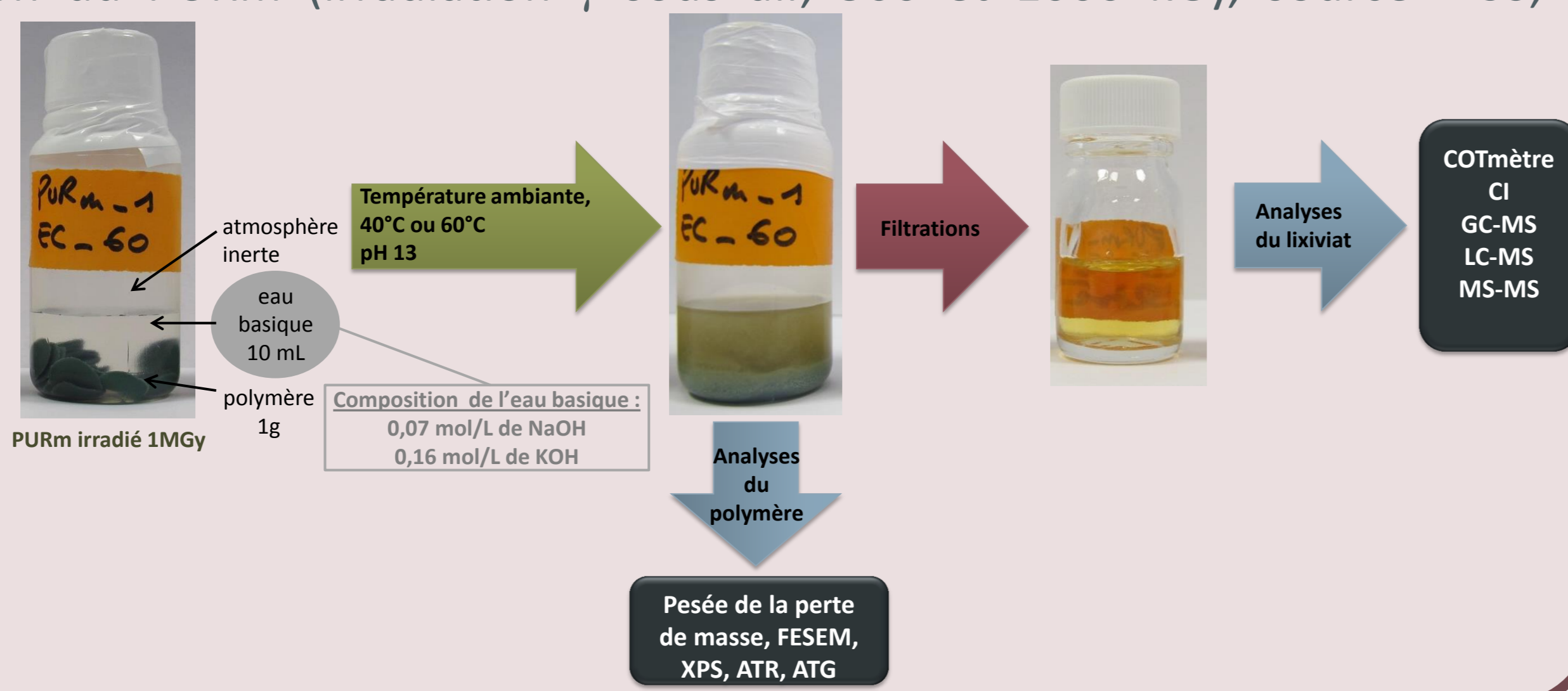
Démarche

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)

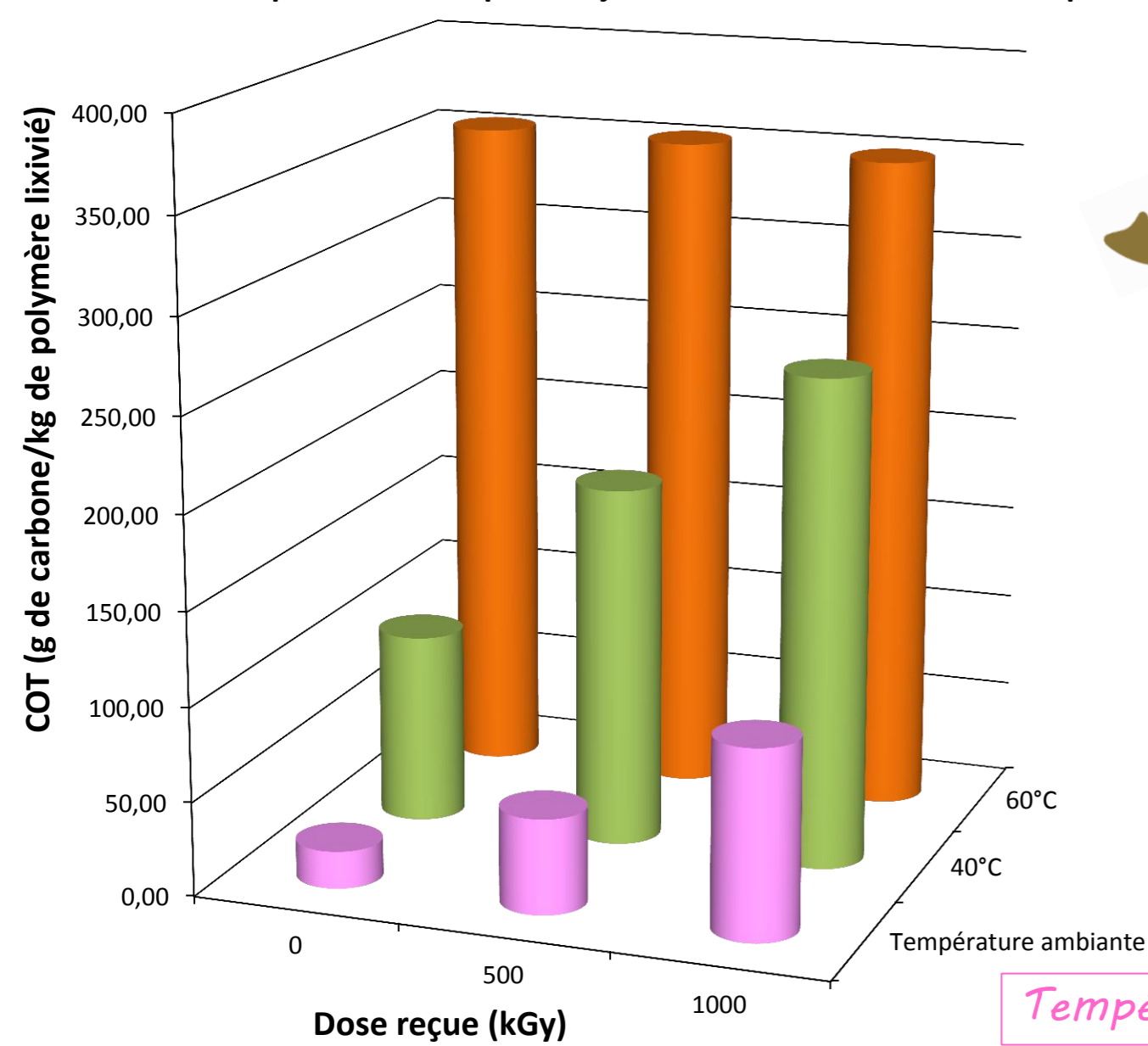
Etape 2 : lixiviation



Lixiviations avec ajustement de pH

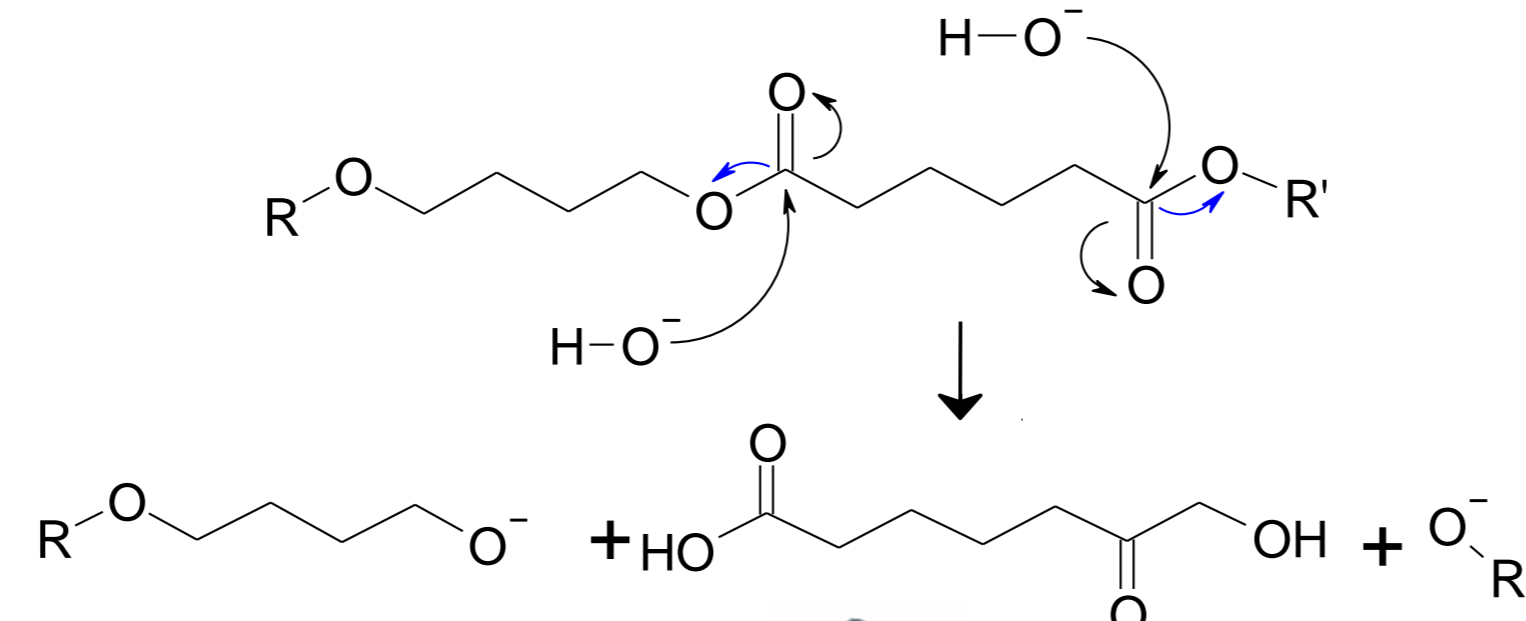
pH maintenu constant et solution non renouvelée

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

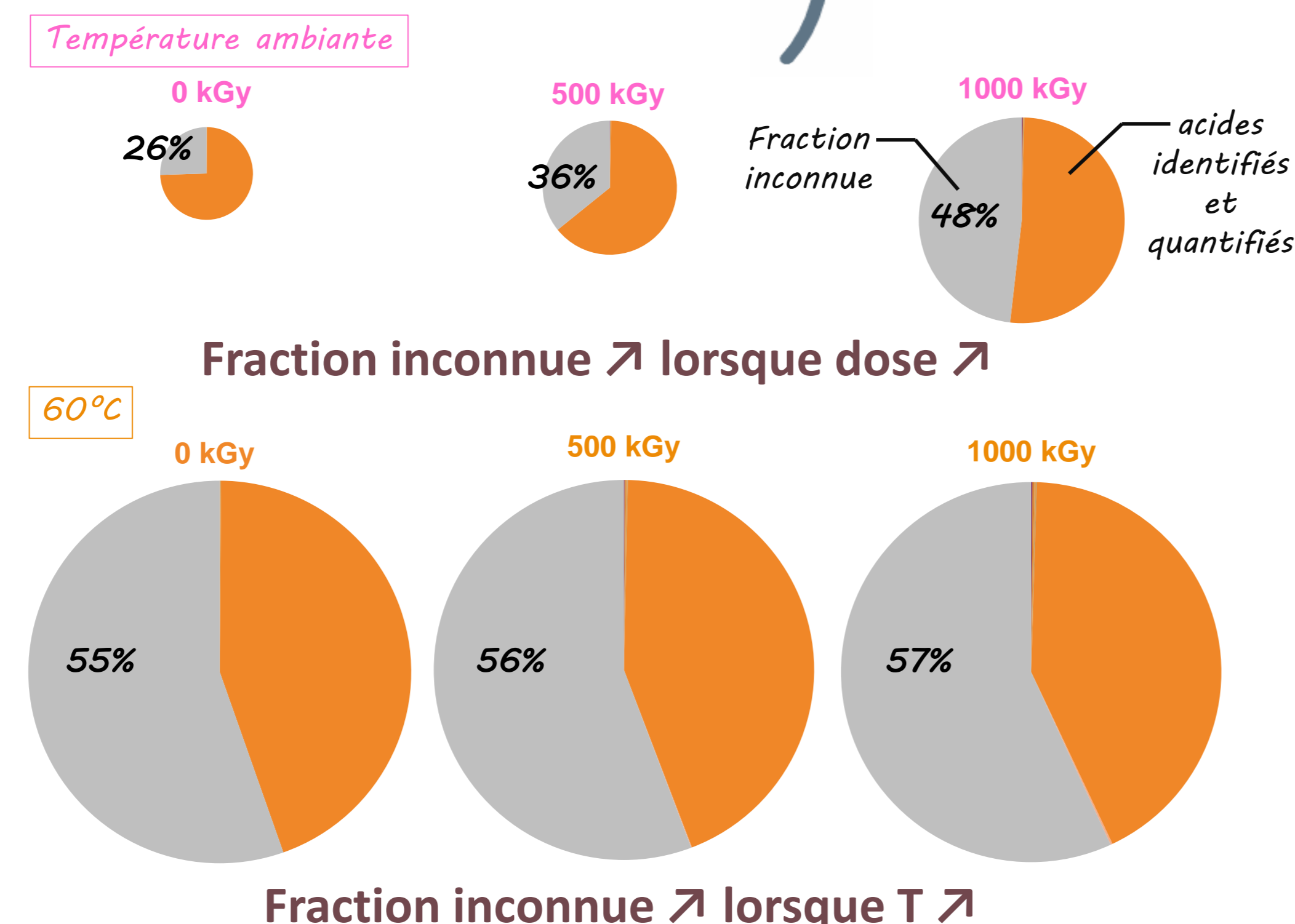


COT \nearrow lorsque T \nearrow

acide adipique : espèce identifiée majoritaire



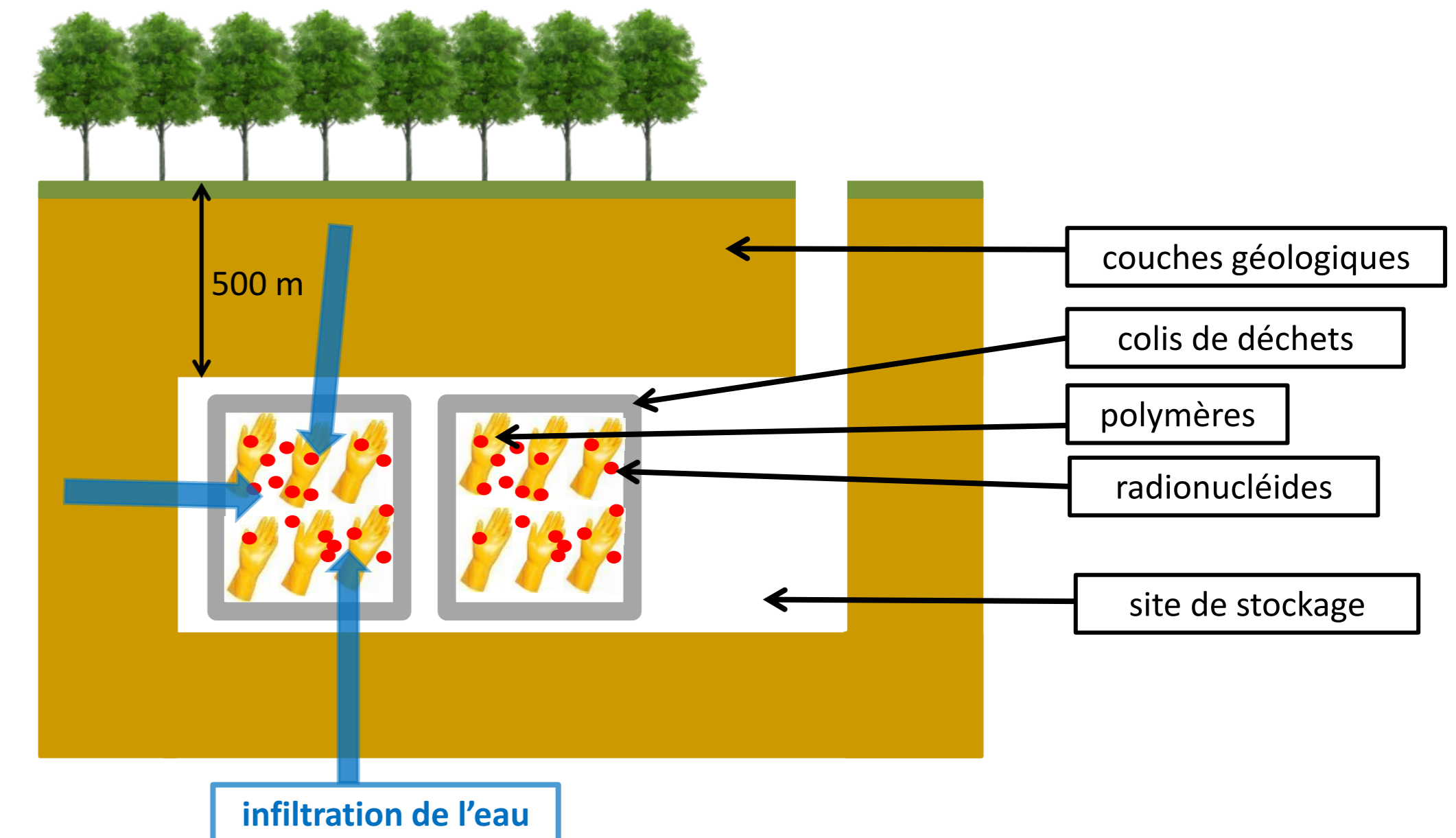
1^{ers} bilans matières obtenus



Perspectives

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

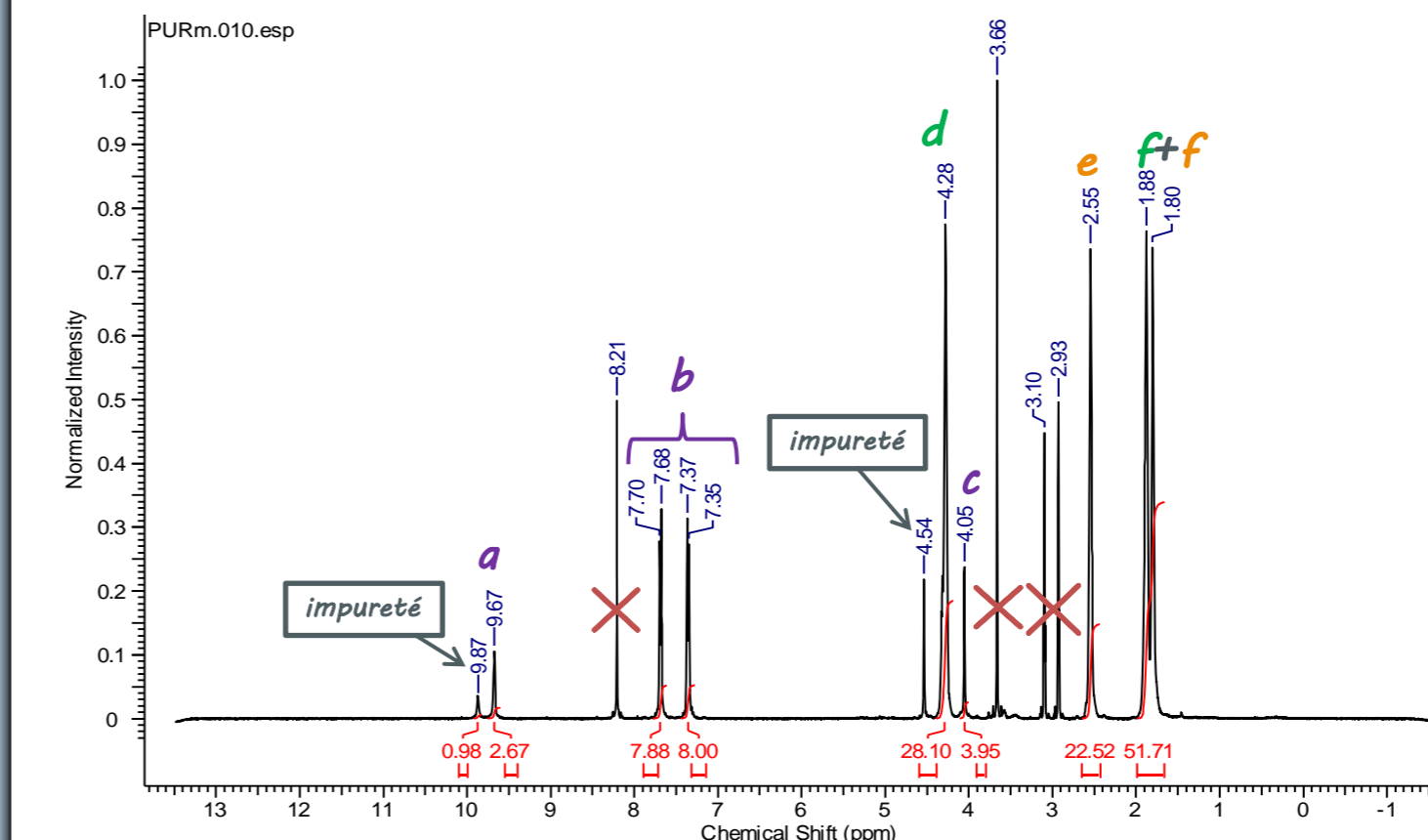
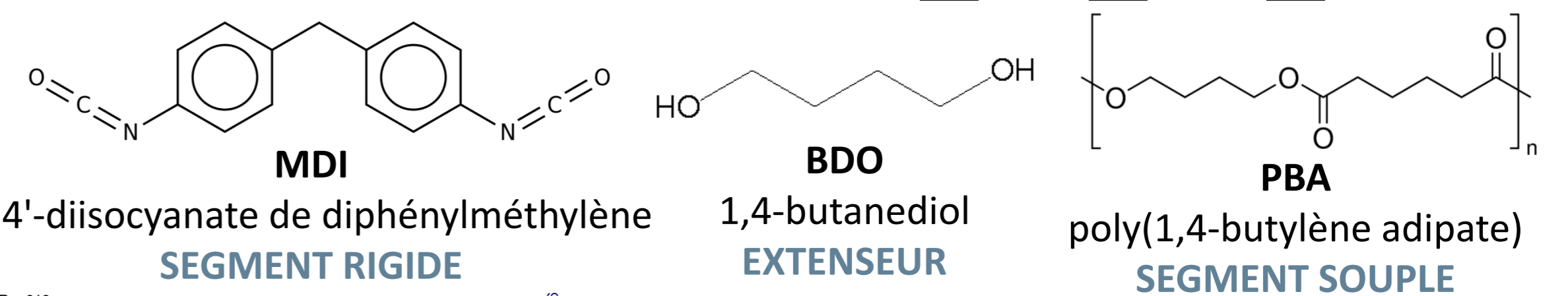
Schéma de l'installation Cigéo :



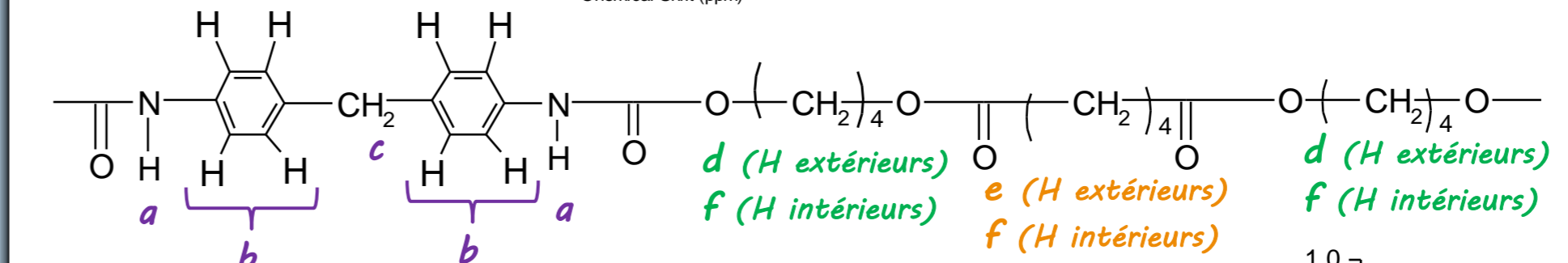
Caractérisation du matériau

Caractérisation du PURm :

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

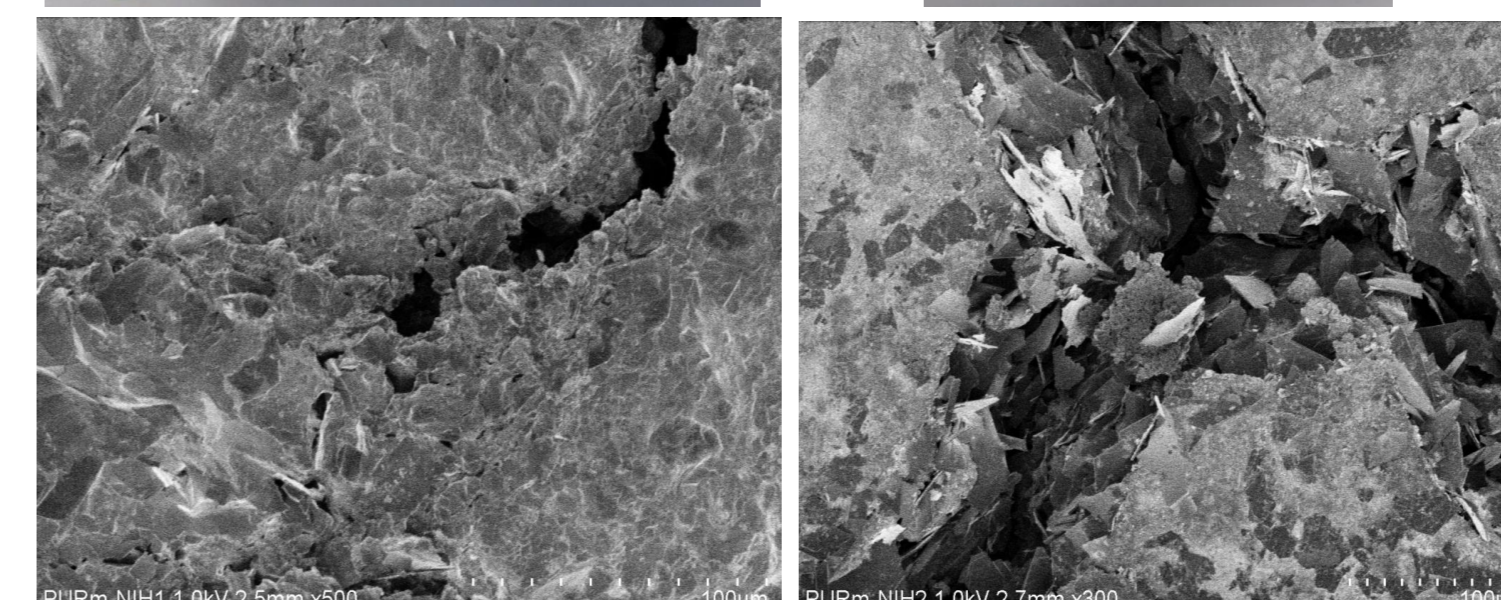


Élément de formulation	% massique
Segment rigide	25,5
Segment souple et extenseur	63,4
Charge inorganique	8,9
Agent réticulant	1,8
Pigment	0,4

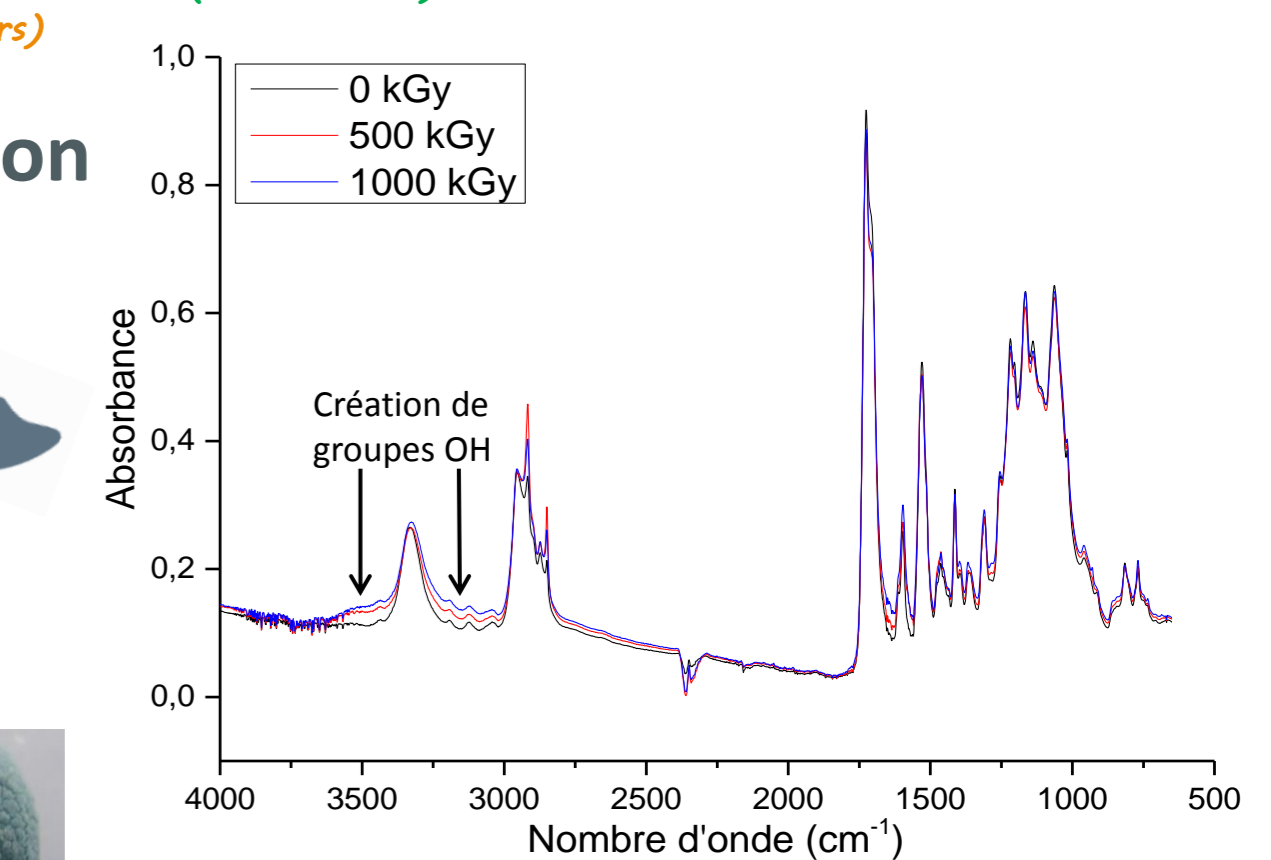


caractérisation du PURm après irradiation
Taux d'oxydation \nearrow lorsque dose \nearrow

observation du PURm après hydrolyse basique

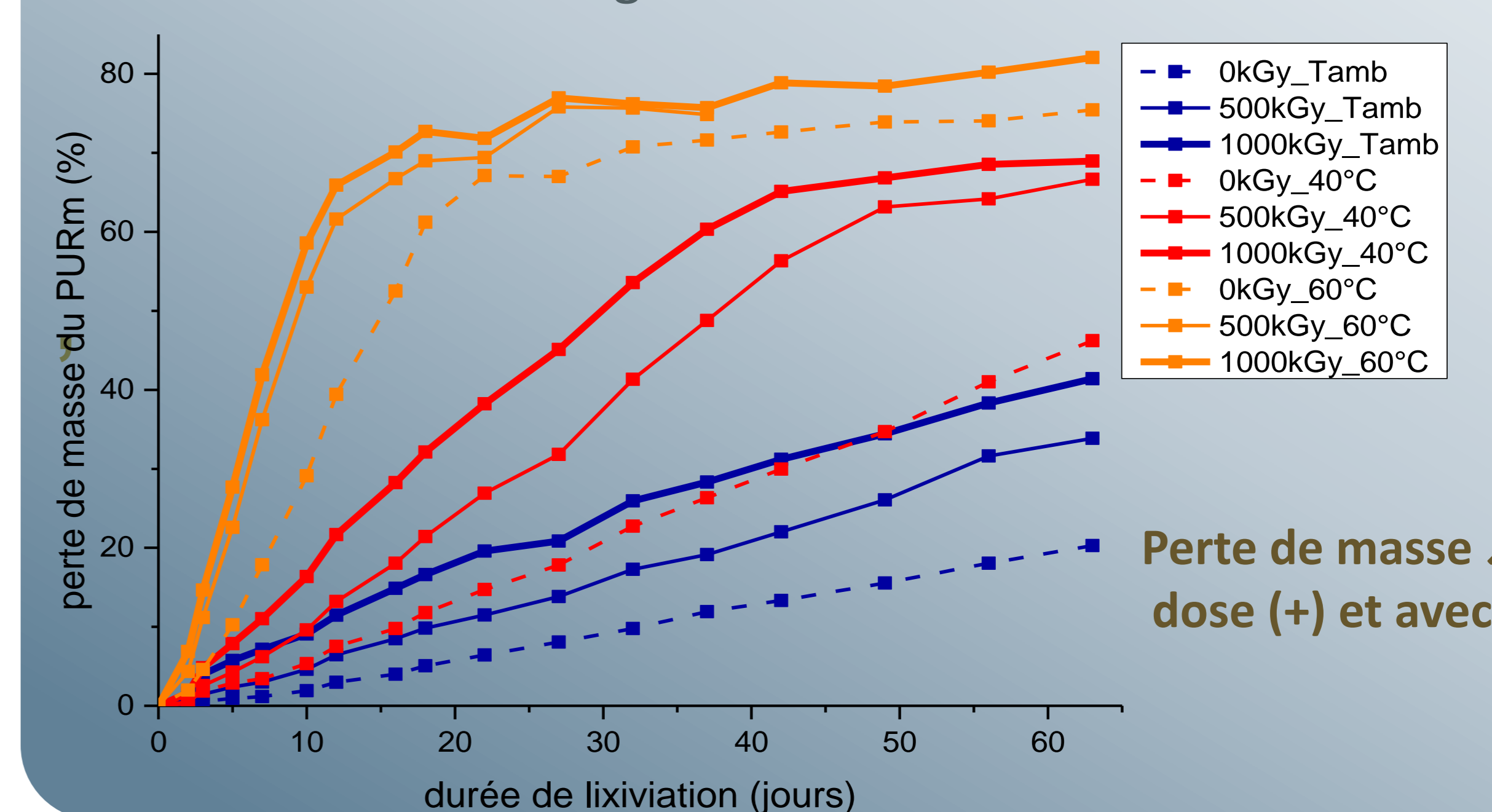


Les deux faces du film sont dégradées, présence de craquelures profondes.

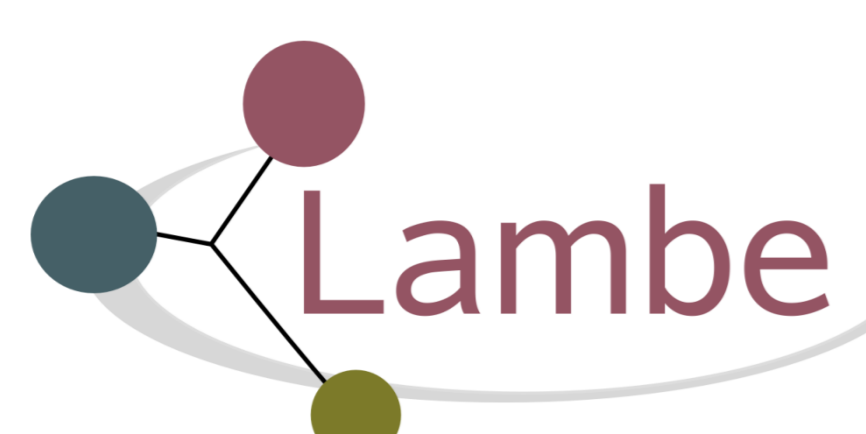


Lixiviations avec renouvellement

solution renouvelée régulièrement



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



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