

Étude de l'altération du combustible MOx en condition insaturée

P-H. Imbert [1], S. Szenknect [1], N. Dacheux [1], M. Autillo [2], C. Jegou [2]

[1] ICSM, Univ Montpellier, CNRS, CEA, ENSCM, Marcoule, France

[2] CEA, DES, ISEC, DPME, SEME, Univ Montpellier, Marcoule, France

Paul-Henri.Imbert@cea.fr

Le stockage direct des combustibles nucléaires usés en formation géologique profonde est approuvé en Suède et en Finlande. D'autres pays envisagent cette solution et la France ne fait pas exception. Bien que le retraitement du combustible usé demeure la voie de référence, le stockage direct est également étudié dans le cadre du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR). Cette approche est examinée plus particulièrement pour la gestion des combustibles MOx (Mélange d'Oxydes) bien que le multi recyclage soit la voie privilégiée à court terme. La mise en œuvre d'un stockage direct des combustibles nucléaires requiert une compréhension approfondie des mécanismes et des cinétiques d'altération mis en jeu dans les conditions du site de stockage retenu par l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA). Les scénarios envisagés pour l'évolution des conditions d'altération des combustibles en situation de stockage géologique mettent en évidence une période dite insaturée pendant laquelle le colis de déchet sera au contact de la vapeur d'eau. La génération importante d'hydrogène issu de la corrosion anoxique des éléments métalliques présents dans le stockage ralentira la resaturation du site sur des périodes pouvant atteindre plusieurs dizaines de milliers d'années. Ainsi, dans le cadre d'un stockage direct, les combustibles irradiés subiront une étape d'altération par de la vapeur d'eau avant qu'ils ne soient altérés en milieu saturé par l'eau du site de stockage. Évaluer l'état du combustible (état d'oxydation de la surface, microstructure, nature des phases secondaires, répartition / relâchement des radionucléides...) à l'issue de cette période insaturée est un enjeu majeur en lien avec l'établissement de modèles décrivant le relâchement des radionucléides dans le champ proche des alvéoles de stockage. À ce stade la majorité des études s'est focalisée sur le comportement du combustible en milieu saturé et il est aujourd'hui essentiel de mettre en place une méthodologie d'étude et d'obtenir des premiers éléments de connaissance en milieu insaturé.

Afin de répondre à ces questions, un programme a été initié en 2023 afin de développer les outils d'étude et de caractérisation de la cinétique d'altération des combustibles nucléaires en phase vapeur d'eau et d'appréhender les mécanismes d'altération à partir d'informations sur matériaux modèles de complexité croissante de type UO_2 , $(\text{U,Ce})\text{O}_2$ et $(\text{U,Pu})\text{O}_2$.

Deux types d'enceintes climatiques seront utilisés pour reproduire au mieux les conditions de stockage attendues au cours de la phase transitoire de resaturation (humidité relative de 95% à 70°C) : une enceinte climatique commerciale et une enceinte climatique nucléarisée spécifiquement. Une comparaison de ces deux outils sera réalisée afin de concevoir les protocoles adaptés à l'étude de la cinétique d'altération des combustibles usés. En complément, les premières expériences réalisées en enceinte climatique commerciale permettront d'évaluer l'efficacité des outils expérimentaux de caractérisation des surfaces disponibles (DRX sous incidence rasante, MEB, Raman) pour la mesure de cinétique d'altération sous vapeur d'eau des composés modèles UO_2 et $(\text{U,Ce})\text{O}_2$. La connaissance acquise sur ces matériaux permettra ensuite de transposer ces études au MOx qui se dérouleront en boîte à gants inerte dans l'enceinte climatique nucléarisée.