

Conversion assistée par ultrasons de UO_2 en peroxydes de U(VI) dans une solution aqueuse saturée en Ar/O_2

J. Margate [1], M. Viro [1], T. Dumas [2], C. Jégou [3], M. Cot-Auriol [1], T. Chave [1] S.I. Nikitenko [1]

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

[2] CEA, DES, ISEC, DMRC, Univ Montpellier, Marcoule, France

[3] CEA, DES, ISEC, DPME, Univ Montpellier, Marcoule, France

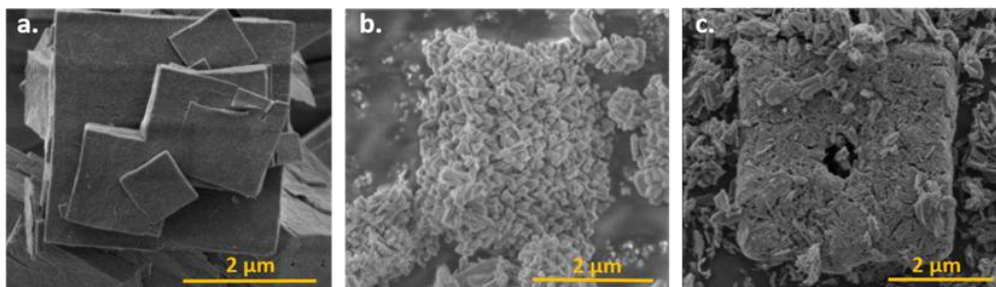
julien.margate@cea.fr

Après avoir été utilisé dans le réacteur, le combustible nucléaire U(IV)O_2 usé est très nocif pour les organismes et doit être confiné en toute sécurité pendant des milliers d'années. Pendant le stockage, l'intrusion potentielle d'eaux souterraines à la suite de défaillances du confinement pourrait entraîner la production d'espèces radiolytiques telles que H_2O_2 , qui peuvent contribuer à la corrosion des matrices à base d' UO_2 et favoriser la dissolution et le rejet de radionucléides dans l'environnement. La sonochimie offre une voie originale pour accumuler lentement H_2O_2 en solution grâce au phénomène de cavitation acoustique [1-3].

Ce travail se concentre sur la sonolyse du dioxyde d'uranium dans l'eau pure et les milieux légèrement acides sous atmosphère oxygénée. Après la préparation de plaquettes de dioxyde d'uranium bien caractérisées par la voie oxalique, leur conversion complète en (méta-)studtite $[(\text{UO}_2(\text{O}_2)(\text{H}_2\text{O})_2) \cdot x\text{H}_2\text{O}]$ est observée sous ultrasons. Des études détaillées sur les solutions restantes (spectroscopie d'absorption UV-Visible et ICP-OES) et les résidus solides (SEM, XRD, et techniques FTIR) nous ont permis d'attribuer ce comportement à la génération sonochimique de peroxyde d'hydrogène et aux effets physique de la sonochimie.

La formation de structures cristallines de studtite a été observée à la surface des plaquettes de dioxyde d'uranium avec une préservation de la morphologie suggérant un mécanisme de formation complexe autre que la dissolution/précipitation classique. Il est intéressant de noter que dans des conditions sonochimiques spécifiques, des plaquettes à trou central sont observées et seront discutées lors de la conférence. [5].

Figure 1: a) SEM image of UO_2 platelets synthesized from the oxalate route b) and c) SEM image of the uranyl peroxide observed after sonication of UO_2 in H_2SO_4 5.10^{-4} M at 346 kHz (20 W.mL⁻¹, 20°C, Ar/O_2 , and 6h)



[1] C. Corkhill and N. Hyatt, Waste management, IOPScience, 2018.

[2] M. Amme, Radiochimica Acta, 2002, 90, 399-406.

[3] P.C. Burns and al. Science, 2012, 335, 1184–1188

[4] P.C. Burns and K. Hughes, American Mineralogist, 2003, 88(7):1165-1168

[5] J. Margate et al., J. Hazard. Mater, 2023, 459, 132059