

# Fabrication de composés modèles simulant le MOX irradié : hétérogénéités cationiques et produits de fission

L. Callejon, L. Claparede, N. Dacheux

*ICSM, Univ Montpellier, CNRS, CEA, ENSCM, Site de Marcoule, Bagnols-sur-Cèze, France*

*Lorenzo.CALLEJON@cea.fr*

---

Au cours de son irradiation en réacteur, les combustibles MOX (Mixed Oxide) composés d'oxydes d'uranium et de plutonium subissent de fortes modifications élémentaires et microstructurales. Les combustibles irradiés présentent une hétérogénéité cationique, avec la présence de zones enrichies en plutonium réfractaires à la dissolution au-delà d'une teneur précise, à savoir  $x \approx 0,35$  au sein des composés  $U_{1-x}Pu_xO_2$  [1]. L'irradiation conduit également à la formation de produits de fission (PF), présents sous forme gazeuse, de précipités métalliques et d'oxydes, ainsi que ceux inclus dans la matrice [2]. Ainsi, la présence de ces hétérogénéités et des PF sont de nature à modifier la cinétique de dissolution du combustible pendant le retraitement et à conduire à la formation de résidus insolubles. La littérature existante n'offre que très peu d'indications sur la dissolution des combustibles hétérogènes irradiés. Néanmoins, une étude très récente [3] s'est concentrée spécifiquement sur la dissolution de composés modèles hétérogènes (U,Th) $O_2$  présentant différents teneurs en hétérogénéités. Par conséquent la préparation, puis la dissolution de tels composés modèles hétérogènes (U,Th) $O_2$  complexes incorporant des éléments métalliques (Ru, Rh, Pd, Mo, Re) et des lanthanides (La, Ce, Pr, Nd) présentent un grand intérêt. Ce travail porte donc sur l'élaboration de composés modèles présentant des hétérogénéités de composition et des produits de fission. Le thorium et le rhénium sont respectivement considérés comme des substituts du plutonium et du technétium. Les solides ont été synthétisés par voie humide et plus précisément par précipitation d'hydroxyde [4], en employant un débit contrôlé et régulier d'ajout. L'avantage de cette méthode de synthèse réside dans la capacité des éléments à précipiter simultanément, ce qui permet d'obtenir une poudre homogène présentant une surface réactive élevée propice au frittage. Le mélange de poudres homogènes, à différentes teneurs en thorium, calcinées à différentes températures (pour éviter la diffusion du thorium dans les pastilles) a été réalisé afin de former, au moment du pastillage, des hétérogénéités cationiques reflétant la présence de zones enrichies en thorium. Ensuite, les éléments dopants (PGM, Mo, Re ou lanthanide) simulant les PF ont été introduits directement dans la solution contenant l'uranium et le thorium pour favoriser leur précipitation. Une expérience ultérieure sera également consacrée à l'incorporation simultanée de tous les PF étudiés.

[1] D. Vollath, H. Wedemeyer, H. Elbel, E. Günther, On the dissolution of (U,Pu) $O_2$  Solid Solutions with Different Plutonium Contents in Boiling Nitric Acid, Nuclear Technology, 71 (1985) 240-245.

[2] H. Kleykamp, The chemical state of the fission products in oxide fuels, Journal of Nuclear Materials, 131 (1985) 221-246.

[3] C. Hours, L. Claparede, N. Reynier-Tronche, I. Viillard, R. Podor, N. Dacheux, Dissolution of (U,Th) $O_2$  heterogeneous mixed oxides, Journal of Nuclear Materials, 586, (2023), 154658.

[4] J. Martinez, N. Clavier, A. Mesbah, F. Audubert, X.F. Le Goff, N. Vigier, N. Dacheux, An original precipitation route toward the preparation and the sintering of highly reactive uranium cerium dioxide powders, Journal of Nuclear Materials, 462 (2015) 173-181.