

Soutenance de thèse

Institut de Chimie Séparative de Marcoule / CEA Marcoule
(UMR 5257, CEA, CNRS, Université Montpellier, ENSCM)

JULIEN MONNIER

soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Conversion des nitrates d'actinides en oxydes par combustion en solution

Soutenance prévue le **vendredi 22 novembre 2019 à 10h00**

dans l'Auditorium de l'ICSM

Dans le cadre de projets menés dans le but d'optimiser le traitement et le recyclage du combustible nucléaire usé, des recherches ont été entreprises afin d'améliorer ce procédé pour la filière des réacteurs RNR-Na. Les actinides à convertir se présentent généralement sous forme de nitrates métalliques en solution acide nitrique. Les procédés de conversion actuels reposent essentiellement sur un traitement thermique à haute température du précurseur pour éliminer les composés organiques (qui se décomposent et forment des espèces gazeuses) et former les oxydes UO_2 et $(U,Pu)O_2$. Cependant, les poudres ainsi obtenues nécessitent généralement des étapes de traitement thermique et/ou mécanique ultérieures avant d'être utilisées pour la préparation de pastilles de combustible par frittage. Le procédé doit donc être optimisé et la réaction de conversion nitrate-oxyde par combustion en solution (SCS) apparaît comme une voie prometteuse pour le procédé final.

Cette thèse s'articule autour de deux points majeurs : comprendre les mécanismes réactionnels à l'origine de la conversion par réaction SCS et déterminer les conditions optimales permettant d'obtenir des oxydes d'uranium et oxydes mixtes $(U,Pu)O_2$ ayant les propriétés voulues. Dans ce but, nous avons étudié la conversion d'un simulant des actinides, le nitrate de gadolinium, par réaction SCS et l'influence de différents paramètres tels que le combustible choisi, la rampe de montée en température, et la richesse du mélange. Il a été possible de dégager de ces expériences des paramètres optimaux pour l'étude de la conversion du nitrate d'uranyle par SCS. On a pu isoler différentes conditions permettant la conversion directe du nitrate d'uranyle en oxyde d'uranium UO_2 , dont les mécanismes de réduction de l'uranium dépendent du combustible employé. Ces résultats ont servi de base pour l'étude de la co-conversion d'un mélange de nitrates d'uranyle et de cérium pour la synthèse d'oxydes mixtes par voie directe, ce qui diffère grandement des procédés industriels. Enfin, le frittage de pastilles crues préparées à partir des poudres UO_2 et $(U,Ce)O_2$ synthétisées par SCS a été étudié pour apporter une conclusion sur la faisabilité d'une application de la (co-)conversion par SCS pour le procédé final envisagé.

Mots clés : Conversion directe nitrate / oxyde ; Combustion en solution ; Nitrate d'uranyle ; Nitrate de Gadolinium.

