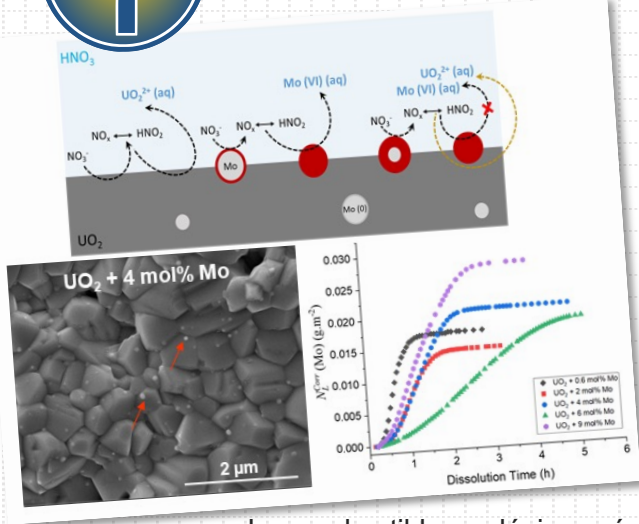




# SOUTENANCE DE THÈSE



## Impact de la spéciation du molybdène sur la cinétique de dissolution du dioxyde d'uranium en conditions de retraitement

Mohammad HUSAINY

Laboratoire Interfaces de Matériaux en Evolution (LIME)



Vendredi 8 novembre 2024



14<sup>H</sup>00



Auditorium ICSM

Le combustible nucléaire usé UOx (CNU) est un système hétérogène complexe en termes de microstructure, de composition chimique et de répartition élémentaire. La dissolution du CNU dans de l'acide nitrique concentré à chaud constitue l'étape initiale du retraitement dans le procédé PUREX. Les produits de fission (PF) qui se forment dans différentes phases selon les conditions d'irradiation peuvent influencer la cinétique de dissolution du CNU. Comprendre l'impact des principaux PF et actinides sur la cinétique de dissolution du CNU est essentiel pour améliorer notre capacité à anticiper son comportement lors du retraitement. L'objectif de ce travail de recherche est d'étudier l'impact du Mo, l'un des PF les plus abondants, sur la cinétique de dissolution de l'UO<sub>2</sub> dans l'acide nitrique, dans des conditions représentatives du procédé PUREX. Dans le CNU, le Mo présente une spéciation complexe liée à son interaction avec le combustible et d'autres PF. Il peut se trouver à différents états d'oxydation (0, +4 et +6) au sein d'inclusions métalliques ou d'oxydes sous des conditions spécifiques d'irradiation. Même après la dissolution du CNU dans l'acide nitrique, le Mo reste un composant important de divers résidus non dissous, ce qui complique les processus de recyclage.

Dans ce contexte, des composés modèles à base d'UO<sub>2</sub> simplifiés, incorporant différents teneurs en Mo à l'état métallique (état prédominant dans le CNU), ont d'abord été préparés par précipitation d'hydroxyde, suivie d'une mise en forme et d'un frittage à haute température sous atmosphère réductrice. Des pastilles denses, avec des propriétés physico-chimiques contrôlées et une microstructure représentative du CNU, ont été produites. Un autre ensemble de composés modèles à base d'UO<sub>2</sub>, incorporant des phases mixtes de Mo, Mo<sup>0</sup> et BaMo<sup>IV</sup>O<sub>3</sub> (analogue de la phase pérovskite grise), ont également été préparés par des étapes successives de précipitation d'hydroxyde, suivies d'une conversion à haute température sous atmosphère réductrice. La spéciation, la morphologie et la distribution spatiale des éléments dans les échantillons convertis ont été déterminées. Des expériences de dissolution ont été réalisées dans des conditions représentatives du retraitement du CNU (4 mol.L<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> à 80°C) en suivant un protocole dynamique. La dissolution des échantillons de référence purs Mo<sup>0</sup>, Mo<sup>IV</sup>O<sub>2</sub>, BaMo<sup>IV</sup>O<sub>3</sub> et BaMo<sup>VI</sup>O<sub>4</sub> a également été effectuée dans les mêmes conditions afin de comprendre séparément leurs mécanismes de dissolution dans l'acide nitrique et d'évaluer leur influence sur la cinétique de dissolution de l'UO<sub>2</sub>. Les résultats obtenus apportent des éclairages essentiels sur les mécanismes de dissolution des différentes phases de Mo et sur le rôle spécifique de l'état d'oxydation du Mo dans la dissolution de l'UO<sub>2</sub> dans l'acide nitrique, offrant ainsi des pistes potentielles pour optimiser le procédé de recyclage.

Mots-clés : Molybdène ; Composés modèles à base d'UO<sub>2</sub> ; Mécanismes de dissolution ; Interface solide-liquide ; Recyclage du combustible nucléaire



# NOUS VOUS ATTENDONS

# NOMBREUX !



UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

