



HAL
open science

Dissolution sonochimique et réductrice de PuO₂ en présence de particules de Ti

Xavier Beaudoux, Matthieu Viro, Tony Chave, Gilles Leturcq, Philippe Moisy,
Sergey Nikitenko

► **To cite this version:**

Xavier Beaudoux, Matthieu Viro, Tony Chave, Gilles Leturcq, Philippe Moisy, et al.. Dissolution sonochimique et réductrice de PuO₂ en présence de particules de Ti. Journées Scientifiques Ultrasons et Procédés, Jul 2015, Besançon, France. <hal-04765240>

HAL Id: hal-04765240

<https://hal.science/hal-04765240v1>

Submitted on 4 Nov 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

Dissolution Sonochimique et Réductrice de PuO₂ en Présence de Particules de Ti

Xavier Beaudoux^a, **Matthieu Virot^{b1}**, Tony Chave^b, Gilles Leturcq^a, Philippe Moisy^a, Sergey Nikitenko^b

^a CEA/DEN/MAR/DRCP, Direction de l'Energie Nucléaire, Département de Radiochimie et Procédés,

^b Institut de Chimie Séparative de Marcoule, ICSM-UMR5257 CNRS/CEA/UM2/ENCSM,

Site de Marcoule, BP 17171, 30207 Bagnols sur Cèze, France

Mots-clés: plutonium, dissolution, nucléaire

Le combustible nucléaire français est constitué d'UO₂ ou d'oxyde mixte (U,Pu)O₂ appelé MOX. En sortie de réacteur, le combustible dans lequel s'est accumulé des actinides mineurs et des produits de fission est retraité par des étapes de dissolution et de séparation dans le but de recycler l'uranium et le plutonium et d'immobiliser les éléments chimiques indésirables. Actuellement, les procédés de traitement des oxydes d'uranium permettent la dissolution quasi-totale de ces composés en milieu nitrique avec une très faible quantité de résidus. Le retraitement de combustible MOX implique en revanche une quantité de résidus enrichis en oxyde de plutonium beaucoup plus importante en dépit des conditions chimiques plus dures employées pour leur dissolution. La quantité de ces résidus, appelés fines de dissolution, dépend fortement de la teneur initiale en Pu, des conditions d'irradiation en réacteur et de la méthode de fabrication du combustible. A ces résidus s'ajoute la problématique du retraitement de lots déclarés non conformes lors de la préparation de combustible MOX.

Les milieux actuellement mis en œuvre pour la dissolution de PuO₂ requièrent l'emploi d'ions fluorures F⁻ (dissolution complexante) ou d'ions argentiques Ag²⁺ (dissolution oxydante) en milieu nitrique concentré [1]. Bien qu'efficaces, ces voies de dissolution entraînent de nombreux inconvénients à l'échelle industrielle nécessitant l'étude de solutions alternatives (corrosion des équipements, étapes de traitement/séparation complémentaires, réactions parasites impliquant la surconsommation des réactifs, traitement des effluents, incompatibilité avec les voies de confinement ou d'immobilisation des déchets...). L'existence d'un degré d'oxydation inférieur et stable pour le plutonium (degré III) a impliqué plusieurs études centrées sur la dissolution réductrice de PuO₂ [1]. La voie réductrice permet en effet de s'affranchir des problèmes de corrosion des équipements et de travailler en conditions plus douces. Les travaux effectués dans cette direction restent cependant peu abondants et ne permettent pas d'aboutir à des cinétiques et rendements de dissolution satisfaisants. De plus, cette voie fait souvent appel à des réactifs ou solvants inappropriés pour l'industrie nucléaire.

A ce titre, de nombreuses études ont montré que les effets physiques et mécaniques générés par l'implosion de bulles de cavitation à basse fréquence peuvent conduire à une amélioration significative de la dépassivation métallique et de la dissolution d'oxydes. Ces effets résultent notamment de l'érosion de surface, de la fracturation de grains, de l'augmentation du transfert de masse et de la diminution des couches de diffusion [2]. Les ultrasons de puissance permettent également d'influer sur la nature chimique du milieu et de générer ainsi des espèces pouvant exacerber le caractère oxydant ou réducteur de la solution. Dans ce cadre, la dissolution sonochimique et réductrice de PuO₂ a été étudiée. Des travaux préliminaires ont été réalisés sur CeO₂ comme modèle inactif de PuO₂ du fait de ses propriétés redox et cristallographiques comparables. Un milieu réactionnel a ainsi été développé et a permis de dissoudre la totalité de CeO₂ traité en quelques heures. La dissolution est réalisée en milieu nitrique dilué et requiert la présence de particules de Ti comme générateur d'espèces réductrices. Ces travaux ont pu être transposés avec succès sur PuO₂ après avoir nucléarisé en boîte à gant (Atalante) un montage sonochimique équivalent.

[1]. Nikitina G. P., Y. E. Ivanov, A. A. Listopadov, et L. B. Shpunt, 1997, Radiochemistry, **39**(2), 109-122.

[2]. Mason, T. J. et J. P. Lorimer, 2002, Applied sonochemistry. The uses of power ultrasound in chemistry and processing. Wiley-VCH, Weinheim.