**Contribution aux exercices de prospective 2020-2030**

***Contribution to the 2020-2030 prospective reflection***

**Energie nucléaire et environnement**

*Nuclear energy and environment*

**1) Aperçu / *Overview***

Thème de recherche proposé :

Etude du comportement du combustible nucléaire (UO2 ou MOX) en réacteur et lors de son retraitement

Axe principal concerné (**voir la liste des thèmes en fin de document**) :

Radiochimie des matières nucléaires et Irradiation des matériaux nucléaires

Contributeur(s) (et affiliations) de la proposition :

Clotilde GAILLARD, Yves PIPON, Nathalie MONCOFFRE, IP2I Lyon

Frederico GARRIDO, Aurélie Gentils, CSNSM Orsay

Email du contact de la proposition : gaillard@ipnl.in2p3.fr

Résumé (500 caractères max., incluant les espaces) :

Nos études concernent les recherches sur le combustible nucléaire UO2 ou MOX. Deux aspects seront étudiés, qui concernent la sureté des réacteurs REP en cas d’accident et le retraitement du combustible : (i) Etude des mécanismes d’oxydation d’UO2 en UO2+x et son effet sur la diffusion des produits de fission dans le combustible nucléaire ; (ii) Incidence de l’irradiation sur la durabilité chimique des combustibles nucléaires de type (U,Ce/Th)O2 (homologue du combustible MOX).

**2) Description de la question/problématique scientifique rattachée au thème (1 page) / *Description of the scientific issue connected to the topic (1 page)***

Merci d’indiquer le positionnement des objectifs dans l’état de l’art (échelle internationale), les liens avec des projets existants et/ou futurs, la pertinence du cadre académique dans la question abordée.

Les réacteurs nucléaires de type eau pressurisée (REP) constituent les deux tiers du parc nucléaire mondial. Ils sont alimentés par du combustible de type UO2 ou (U,Pu)O2 (appelé MOX) au sein duquel l’énergie est produite par fission. Lors du fonctionnement du réacteur, ce combustible est soumis à de hautes températures (jusqu’à 1000°C) et à l’irradiation produite notamment par la formation des produits de fission. La présence de ces derniers entraine aussi des modifications microstructurales en formant des bulles, précipités ou solutions solides dans le combustible. Ainsi, le comportement du combustible lui-même et celui des produits de fission qu’il contient résultent du couplage complexe de tous ces paramètres.

Le relâchement des produits de fission dans l’environnement en cas de séquence accidentelle est une préoccupation majeure. L’amélioration de la sureté des réacteurs demande de pouvoir évaluer les quantités, spéciations et cinétiques de relâchement de ces produits de fission (PF) afin de modéliser leur comportement en fonction de différents scenarii possibles. Dans ce but, il est nécessaire d’avoir une compréhension fine du comportement des PF en fonction des différents paramètres (température, irradiation, interactions avec d’autres PF..). Nos dernières études menées en collaboration avec ORANO (ex-AREVA) et l’IRSN avaient ainsi pour but de mesurer les coefficients de diffusion et d’identifier les mécanismes de migration des produits de fission Xe, Mo et Cs dans UO2. Notre prochain objectif se focalisera sur l’effet de l’oxydation du combustible en cas d’accident. Cette oxydation est rendue possible suite à une rupture de gaine et la mise en contact d’UO2 avec la vapeur d’eau sous pression. Quelques études montrent que la formation de UO2+x accélère la migration de certains PF mais ce phénomène est encore mal compris.

Un autre aspect de la vie du combustible sera également étudié, son retraitement. Nos études se placent dans le cadre de l’utilisation du MOX dans les centrales actuelles ou dans les RNR, et de son multi-recyclage. La première étape-clé consiste à dissoudre le MOX usé dans de l’acide concentré. Différents paramètres peuvent influer sur la cinétique et la congruence de la dissolution. Nous nous focaliserons sur l’effet de l’irradiation sur la durabilité chimique de ce type de combustible nucléaire.

Collaborateurs (personnes ou organismes) identifiés ou potentiels (dans et hors IN2P3) :

IP2I, Lyon

CSNSM/FLUO, Orsay

Institut Jean Lamour, Nancy

JRC Karlsruhe

ICSM, Marcoule

Instruments/Outils impliqués : plateforme JANNUS

**3) Suggestion de projet(s) pouvant répondre à la question/problématique proposée (1 page max.) / *Suggestion of project(s) addressing the issue proposed (1 page max)***

*Indiquer si possible l’envergure qu’auraient ce ou ces projets (manpower, budget, durée).*

***Mécanismes d’oxydation d’UO2 en UO2+x et effet de la formation d’UO2+x sur la diffusion des produits de fission dans le combustible nucléaire***

En fonctionnement normal de réacteur ou lors d’une séquence accidentelle, le combustible nucléaire UO2 peut se retrouver en contact avec de la vapeur d’eau suite à une rupture de gaine. Cela entraine une oxydation du combustible avec la formation d’UO2+x. Quand ce composé est faiblement sur-stœchiométrique (x<0.03), la structure cristalline de UO2 est conservée et les atomes d’oxygène excédentaires sont incorporés dans la maille. Quelques études ont montré que l’oxydation d’UO2 entraine une augmentation de la diffusion des produits de fission (PF). Une hypothèse est que cela serait lié à un mécanisme de diffusion lacunaire de ces PF dans UO2, facilité par la formation d’UO2+x. Le but de nos études sera :

1. d’étudier les *mécanismes d’incorporation des atomes d’oxygène dans UO2*, notamment en comparant oxydation en atmosphère sèche ou humide. Différentes techniques de caractérisations structurales seront mises en œuvre (spectroscopie Raman, microscopie MET, analyse par RBS-canalisée) ;
2. étudier *l’effet de l’irradiation sur cette microstructure*, en particulier l’effet de dépôt d’énergie électronique. En plus des techniques précédentes citées, des mesures de positons seront éventuellement effectuées afin de quantifier les défauts ponctuels créés ;
3. d’étudier *l’effet de l’oxydation de UO2 sur la diffusion d’éléments chimiques* choisis pour être représentatifs des principales classes de PF (gaz, volatils, solubles), en quantifiant les coefficients de diffusion D et le facteur pré-exponentiel D0 en fonction de la sur-stœchiométrie x. En particulier, on attend une corrélation entre le nombre de lacunes U présentes dans le matériau et les valeurs de D0 obtenues. Les éléments étudiés seront introduits dans les échantillons (pastilles ou monocristaux) par infusion gazeuse et leur diffusion sera mesurée par profilométrie SIMS ou désorption gazeuse. En parallèle à ce volet expérimental, des calculs de dynamique moléculaire seront mis en œuvre afin d’expliciter les mécanismes impliqués dans la diffusion et d’aider à la compréhension des résultats expérimentaux.

***Incidence de l’irradiation sur la durabilité chimique des combustibles nucléaires***

L’utilisation de combustibles de type MOX dans les réacteurs actuels, voire dans les réacteurs à neutrons rapides, pose la question du multi-recyclage et de la fabrication de nouveaux combustibles. Dans ce contexte, le comportement à la lixiviation des combustibles est susceptible d’être fortement impacté par l’irradiation liée aux différentes sources d’endommagement (fragments de fission, particule alpha et noyau de recul). Des systèmes modèles de type U1-xThxO2 et U1-xCexO2 permettent de conduire des études à caractère paramétrique, en s’affranchissant de la présence de plutonium.

L’irradiation aux ions dans des conditions représentatives de conditions siégeant au sein des réacteurs autorise l’étude de l’impact de différents régimes d’endommagement (perte d’énergie balistique ou électronique) sur la vitesse et les mécanismes de dissolution des matériaux d’étude. Des irradiations avec des ions He de quelques MeV, voire des ions lourds, reproduisent les effets d’ionisations alors que des ions lourds créent un endommagement balistique. L’effet synergique de ces deux modes d’endommagement peut également être envisagé en irradiant les matériaux simultanément avec ces deux types de faisceaux. Outre la nature du dépôt d’énergie, le flux de particules et la température des échantillons lors de l’irradiation sont des paramètres importants à faire varier, en raison de leur incidence sur les mécanismes de génération et de la recombinaison des défauts structuraux liés à l’irradiation. Les solides irradiés (et non irradiés) sont ensuite soumis à une étude multiparamétrique de leur dissolution afin de comparer notamment les effets liés à l’incorporation d’éléments tétravalents (Th, Ce) au sein de la matrice UO2 sur la durabilité chimique des solides. La comparaison directe des processus de dissolution relevés pour les échantillons irradiés et non irradiés permet de discriminer l’impact des défauts cristallins et/ou des modifications microstructurales sur la vitesse de dissolution des matériaux frittés.

Un projet structurant sur cette thématique a été déposé dans NEEDS par l’ICSM, avec l’idée de financer une thèse entre IP2I et le CSNSM/IPNO.

\*

**Merci de renvoyer ce document à** [**prosp2020-GT11-copil-l@in2p3.fr**](mailto:prosp2020-GT11-copil-l@in2p3.fr) **avant le   
1er Novembre 2019**

***Please send this document to*** [***prosp2020-GT11-copil-l@in2p3.fr***](mailto:prosp2020-GT11-copil-l@in2p3.fr) ***before   
November 1rst, 2019***

**Liste des thèmes**

* Physique des réacteurs : modélisation et expérimentation, neutronique, thermohydraulique, couplage multi-physique, acquisition de données de base (sections efficaces, évaluation des données nucléaires, données de thermohydraulique), physique de la sous-criticité, études de scénarios, ouverture interdisciplinaire : approche technico-socio-économique (prix, coût, ressources, ...). Application aux réacteurs actuels et innovants, études de scénarios...
* Radiochimie des matières nucléaires : données de base (spéciation, interaction avec ligands), compréhension des processus de dissolution, de séparation, processus de diffusion, modélisation. Application au traitement des combustibles usés, processus de dissolution et d'extraction, conditionnement des radionucléides, diffusion des radionucléides dans un site de stockage (matériaux, barrière, argile)...
* Irradiation des matériaux nucléaires : compréhension des processus d'endommagement par les ions et neutrons, acquisition de données de base, modélisation. Application aux matériaux de structures et combustible, tenue des déchets nucléaires à l'irradiation, impact de l'irradiation dans les gisements...
* Radioactivité et environnement : acquisition de données de base (spéciation, ligands), modélisation, processus de transferts, mesures de très basses radioactivités. Application au comportement des radionucléides dans le biotope, microorganismes, exploration de procédés de remédiation.

***Research topics :***

* Reactor physics : modelling and experimentation, neutronics, thermohydraulics, multi-physics coupling, basic data acquisition (cross sections, evaluation of nuclear data, thermohydraulics data), subcriticality physics, scenario studies, interdisciplinary activities : technical-socio-economic approach (price, cost, resources, etc.). Application to current and innovative reactors, scenario studies....
* Radiochemistry of nuclear materials : basic data (speciation, interaction with ligands), understanding of dissolution, separation, diffusion processes, modelling. Application to the treatment of spent fuels, dissolution and extraction processes, conditioning of radionuclides, diffusion of radionuclides in a storage site (materials, barrier, clay)...
* Irradiation of nuclear materials : understanding of ion and neutron damage processes, basic data acquisition, modelling. Application to structural and fuel materials, resistance of nuclear waste to irradiation, impact of irradiation in deposits...
* Radioactivity and environment : acquisition of basic data (speciation, ligands), modelling, transfer processes, measurements of very low radioactivity. Application to the behaviour of radionuclides in the biotope, microorganisms, exploration of remediation processes.