

LA CHIMIE SOUS RAYONNEMENT À L'INTERFACE (U,Pu)O₂/EAU : DE L'EXPÉRIENCE À LA MODÉLISATION

C. Jégou

CEA, DES, ISEC, DPME, Univ Montpellier, Bagnols sur Cèze, France

La compréhension des mécanismes d'altération des oxydes d'actinides et plus particulièrement des composés du type (U,Pu)O₂ reste un sujet d'étude important dans le cadre de l'entreposage et du stockage en situation géologique profonde des combustibles nucléaires UOX et MOX. Cette compréhension nécessite d'étudier le comportement d'interfaces réactionnelles (U,Pu)O₂/eau sous irradiation dans le cadre de scénarios d'évolution plus ou moins complexes tant du point de vue des conditions d'irradiation que des conditions physico-chimiques du milieu d'altération. Dans ce contexte, la radiolyse de l'eau et plus largement la chimie sous rayonnement sont des points essentiels à prendre en considération pour décrire correctement les processus d'altération et in fine la production / consommation de certaines espèces radiolytiques (molécules stables et radicaux) et les relâchements en radionucléides vers le milieu environnant. Cette présentation vise à rappeler les différentes approches expérimentales et la modélisation associée développées ces vingt dernières au travers d'exemples illustrant une démarche progressive allant de l'étude de systèmes simples et modèles à des systèmes intégrant toute la complexité de situations réelles d'évolution.

Concernant l'influence de l'irradiation de nombreux travaux expérimentaux ont cherché à mieux comprendre les mécanismes de dissolution oxydante des composés (U,Pu)O₂ sous radiolyse de l'eau selon la nature du rayonnement et la chimie de l'oxyde. Pour ce faire des études complémentaires associant la mise en œuvre de sources d'irradiation gamma ou alpha, de faisceaux de particules instrumentés et l'utilisation de composés d'actinides modèles ont permis d'étudier spécifiquement ces différents effets. Les limites et les avantages de ces différentes approches seront discutés ainsi que les derniers développements mettant en œuvre des isotopes et des outils de caractérisation originaux basés sur la spectroscopie Raman.

La prise en compte des conditions environnementales est également un sujet d'étude important qui sera abordé. La présence de matériaux d'environnement en situation de stockage géologique contribue à modifier fortement le comportement des interfaces réactionnelles sous irradiation via l'apport d'espèces chimiques réactives pouvant jouer notamment sur des paramètres importants comme le pH et le potentiel redox.

Ces développements expérimentaux seront mis en regard de différents outils de modélisation (déterministe et stochastique) associant différentes échelles d'espace et de temps. La complexité des phénomènes étudiés rend également nécessaire le développement d'outils spécifiques couplant la chimie au transport et impliquant des passerelles entre différentes communautés scientifiques comme celle des géochimistes et les spécialistes de la chimie sous rayonnement.