

RÉSUMÉ

Titre : L'effet de l'hydrogène dissous sur la corrosion/dissolution du combustible nucléaire irradié
Rapport n° : NWMO TR-2008-19
Auteur : David W. Shoesmith
Société : Université Western Ontario
Date : Novembre 2008

Résumé

La littérature sur les études de dissolution du combustible nucléaire et de libération de radionucléides en solutions aqueuses contenant de l'hydrogène dissous a été examinée. Ces études incluent des recherches à partir de combustible irradié de réacteurs REP et de combustible MOX, des spécimens de combustible dopés d'émetteurs alpha pour imiter le combustible « vieilli », de SIMFUEL fabriqués pour simuler les propriétés du combustible irradié, et de pastilles et poudres de dioxyde d'uranium non irradié. Toutes ces études indiquaient que l'hydrogène dissous inhibait la corrosion du combustible et, dans les études sur le combustible irradié, inhibait la libération de radionucléides.

Quelques mécanismes ont été soit démontrés ou proposés pour expliquer ces effets et tous ces mécanismes concernaient l'activation de l'hydrogène pour produire le radical hautement désoxydant $\text{OH}\cdot$ qui piège les oxydants radiolytiques et inhibe l'oxydation et la dissolution du combustible (c.-à-d. la corrosion). Il a été démontré que les rayonnements gamma et alpha produisaient tous deux des espèces $\text{OH}\cdot$ superficielles. Dans le cas des rayons gamma, cela impliquerait l'absorption d'énergie gamma par le solide, ce qui entraînerait la décomposition de l'eau en radicaux $\text{OH}\cdot$ et $\text{H}\cdot$, et la subséquente réaction du radical $\text{OH}\cdot$ avec l'hydrogène pour produire un $\text{H}\cdot$ supplémentaire. Ce dernier radical inhiberait alors l'oxydation du combustible et piégerait les oxydants radiolytiques. Dans le cas des particules alpha, la nécessité de neutraliser les lacunes d'oxygène générées par les reculs peut lancer le même processus en décomposant l'eau. En l'absence de champs de rayonnements, une activation peut se produire sur la surface des particules d'un métal noble (epsilon). Étant donné que ces particules sont en interaction galvanique avec la matrice de combustible, elles agissent comme des anodes pour l'oxydation de l'hydrogène (qui s'effectue via les espèces $\text{H}\cdot$ superficielles) et forcent l' UO_2 à offrir un faible potentiel. De plus, certains indices donnent à penser que l' H_2 peut s'activer sur la surface d' UO_2 en présence de peroxyde d'hydrogène, mais ce processus semble inefficace.

Selon les champs de rayonnement présents et la densité numérique des particules d'epsilon, une inhibition complète de la corrosion du combustible semble possible, même dans le cas de pressions d'hydrogène aussi basses que 0,1 à 1 bar. Puisque la corrosion des revêtements d'acier à l'intérieur des conteneurs de combustible fissurés pourrait produire des pressions d'hydrogène aussi élevées que 50 bar, la corrosion du combustible pourrait être entièrement inhibée dans les conditions à long terme prévues des dépôts scellés.

