RÉSUMÉ

Titre : Corrosion du combustible nucléaire (UO₂) à l'intérieur d'un conteneur de combustible nucléaire défectueux – Revue de la recherche effectuée dans le cadre de l'entente sur la Chaire de recherche industrielle conclue entre la CNRSG, la SGDN et l'Université Western (janvier 2006 à décembre 2010)

Rapport n° : NWMO TR-2012-09

Auteurs : Heming He, Michael Broczkowski, Kevin O'Neil, Derrick Ofori, Oleg Semenikhin et David Shoesmith

Organisation : Université Western

Date : Mai 2012

Résumé

Ce rapport examine la recherche réalisée au cours du second mandat (2006 à 2010) d'une chaire de recherche industrielle dont le mandat consiste à déterminer le comportement des déchets de combustible CANDU à l'intérieur d'un conteneur de combustible défectueux. La recherche portait sur trois principaux aspects : (i) l'influence des propriétés du combustible sur sa corrosion; (ii) l'existence possible de conditions chimiques locales, en particulier un pH faible, au sein des dépôts de produits de corrosion et la possibilité de défauts du combustible, et (iii) l'influence de l'H₂ dissous de l'acier corrodé sur le processus de corrosion du combustible. Diverses techniques expérimentales ont été utilisées, y compris des méthodes électrochimiques, la spectroscopie Raman, la spectroscopie photoélectronique à rayons X, la microscopie à force atomique et à force atomique par détection de courant et la spectrométrie de masse à ionisation secondaire.

Un examen des propriétés du combustible irradié indique que les principales modifications des propriétés du dioxyde d'uranium se produisant dans le réacteur et susceptibles d'influencer sa corrosion sont : (i) le dopage aux terres rares de la matrice d'UO₂, (ii) la production de particules de métaux nobles et (iii) l'introduction d'une non-stœchiométrie.

Le dopage aux terres rares semble influencer légèrement l'inhibition de la corrosion du combustible, bien que le mécanisme par lequel cela survient doive être étudié plus avant. L'introduction d'une non-stœchiométrie semble influencer de façon importante la réactivité du combustible, qui s'est accrue par un facteur de 1 000 dans la gamme $x = 0,002$ à $x = 0,23$ (dans UO₂ + x). Cette augmentation était due à la formation de grappes de défauts à mesure que la non-stœchiométrie augmentait. Puisque l'augmentation de la non-stœchiométrie résultant de la génération d'un surplus d'oxygène dans le réacteur est susceptible d'être restreinte à $x \leq 0,007$, seule une faible augmentation de la réactivité chimique (facteur de ≤ 5) du combustible est anticipée.

Selon les calculs de modélisation effectués antérieurement, le développement de conditions acides dans les parties occluses de la surface du combustible serait négligeable. Cela a été vérifié dans le cadre d'une série d'expériences simulantes, dans la

mesure du possible, les conditions superficielles prévues. Les résultats de ces expériences indiquent que l'acidification aux débits de dose de rayons alpha est fort peu probable. Ces études incluent des expériences visant à évaluer les conséquences de l'exposition à un pH faible sur la dissolution du combustible et la réduction du peroxyde.

Les métaux nobles semblent agir comme des anodes catalytiques pour l'oxydation de l' H_2 , inhibant par conséquent la corrosion du combustible par le couplage galvanique de ces particules à la matrice conductrice d' UO_2 dopée aux terres rares. Puisque ces particules peuvent également agir comme des cathodes catalytiques pour la réduction de l' H_2O_2 et peuvent ainsi accélérer la corrosion du combustible par le biais d'un processus semblable de couplage galvanique, leur influence en présence d' H_2O_2 et d' H_2 a également été examinée. Pour un SIMFUEL à % at. de 1,5 (simule approximativement les taux de combustion du combustible CANDU), la protection complète du combustible contre la corrosion pourrait être atteinte, pourvu que le ratio de concentration d' H_2/H_2O_2 soit > 106 .