



NUCLEAR WASTE
MANAGEMENT
ORGANIZATION

SOCIÉTÉ DE GESTION
DES DÉCHETS
NUCLÉAIRES

ÉTUDES SUR LE COMBUSTIBLE IRRADIÉ ET LA DISSOLUTION DU DIOXYDE D'URANIUM – UNE REVUE

Rapport No : NWMO TR-2007-03

Juillet 2007

D.W. Shoesmith

Université Western Ontario

Déni

Ce rapport ne représente pas nécessairement le point de vue ou l'opinion de la Société de gestion des déchets nucléaires, ou de ses directeurs, administrateurs, employés et agents (la "SGDN") et, à moins d'indication contraire précise, n'est mis à la disposition du public par la SGDN que pour information. Le contenu de ce rapport représente le point de vue des auteurs, qui sont seuls responsables des textes et de ses conclusions, de même que de l'exactitude des données utilisées pour son élaboration. La SGDN n'offre aucune garantie, explicite ou implicite, ni n'accepte une responsabilité légale ou autre quant à l'exactitude, le caractère complet ou l'utilité de toute information révélée et ne prétend pas que son utilisation n'enfreindra pas de droits de propriété. Toute référence à un produit, procédé ou service commercial sous son appellation commerciale, marque de commerce ou nom du manufacturier ne constitue ni ne laisse supposer une acceptation, une recommandation ou une référence de la part de la SGDN.

**ÉTUDES SUR LE COMBUSTIBLE IRRADIÉ ET LA DISSOLUTION DU DIOXYDE
D'URANIUM – UNE REVUE**

Rapport No : NWMO TR-2007-03

Juillet 2007

D.W. Shoesmith

Université Western Ontario

RÉSUMÉ

Titre : ÉTUDES SUR LE COMBUSTIBLE IRRADIÉ ET LA DISSOLUTION DU DIOXYDE D'URANIUM – UNE REVUE
Rapport No : NWMO-TR-2007-03
Auteur(s) : D.W. Shoesmith
Entreprise : Université Western Ontario
Date : Juillet 2007

Résumé

Les études exhaustives sur la dissolution du combustible irradié à l'intérieur d'un conteneur de déchets nucléaires ont été passées en revue. Le facteur le plus important qui agit sur la dissolution du combustible est la condition redox créée à la surface du combustible par la radiolyse de l'eau, la façon dont elle évolue dans le temps à mesure que les champs de rayonnement décroissent et la manière dont elle est influencée par la présence de capteurs d'agents oxydants, particulièrement le H₂, produits par la corrosion de la membrane d'acier à l'intérieur du conteneur.

Si le conteneur fait défaut rapidement et que nous sommes en présence de conditions d'oxydation, le processus de dissolution du combustible sera une réaction de corrosion favorisée par le H₂O₂ produit par radiolyse. À mesure que les champs de rayonnement décroissent et que le niveau d'oxydation diminue, le taux de corrosion du combustible diminue. Le taux, et son évolution dans le temps, seront influencés par la formation de dépôts de produits corrosifs, facilitée par le calcium et le silicate contenus dans l'eau souterraine, qui favorisera la formation d'uranium en état insoluble U^{VI}. Ces dépôts pourraient en partie bloquer le processus de corrosion du combustible, mais ils pourraient aussi amener la formation de zones locales d'acidité, où le taux de corrosion serait accéléré. Ces zones se retrouveraient dans des pores des dépôts et/ou dans des imperfections à la surface du combustible. Si l'eau souterraine contient suffisamment de bicarbonate, la formation des dépôts serait inhibée et le processus de corrosion du combustible serait possiblement accéléré par la formation de complexes de bicarbonate d'uranyle.

À mesure que les conditions redox deviennent moins oxydantes, ces problèmes deviennent moins importants. La production d'acidité à même les dépôts est improbable et étant donné que le taux de corrosion est limité par la concentration d'oxydants disponibles, l'influence du bicarbonate sur le taux de corrosion disparaît. Pour les débits de dose suffisamment faibles, un seuil pour la transition de la corrosion à la dissolution chimique a été identifié de manière électrochimique et validé par des mesures du taux de dissolution sur du combustible irradié et des échantillons d'UO₂ dopés alpha. Dans le cas du combustible CANDU, on estime que ce seuil surviendrait dans la période de 10 000 à 20 000 ans. Au-delà de ce seuil, la dissolution du combustible sera contrôlée par la solubilité et sera très lente.

La transition de la corrosion radiolytique à la corrosion chimique peut être provoquée très rapidement en présence de capteurs d'agents oxydants, particulièrement le H₂. De faibles concentrations de H₂ peuvent supprimer la condition redox au niveau du seuil, même en présence de combustible irradié à rayonnements gamma/bêta élevés. Pour des concentrations suffisamment élevées, la création de la réaction réversible H₂/H⁺ sur des particules epsilon de métal noble peut produire une protection galvanique du combustible contre la corrosion. Cet état pourrait possiblement protéger le combustible contre la corrosion presque dès la défaillance du conteneur. Dans de telles conditions, la dissolution du combustible et les émissions de radionucléides seraient extrêmement faibles.

