RÉSUMÉ

Titre : **Corrosion/dissolution du combustible nucléaire irradié dans un dépôt géologique en profondeur**
Rapport nº : **NWMO-TR-2022-09**
Auteurs : Martin Badley et David Shoesmith
Société : Université Western
Date : Avril 2022

Ce rapport examine les propriétés de base du combustible nucléaire UO_2, la manière dont elles sont modifiées par l'irradiation dans le réacteur et l'influence de ces modifications sur le comportement du combustible à l'intérieur d'un conteneur de combustible nucléaire irradié placé dans un dépôt géologique en profondeur (DGP). Les études menées sur l'UO_2 (pastille/poudre), le combustible irradié simulé (SIMFUEL), l'UO_2 dopé alpha et le combustible irradié ont été examinées. Les radionucléides peuvent être répartis en deux catégories : ceux qui sont libérés rapidement au contact des eaux souterraines (fraction de libération instantanée [IRF]) et ceux qui sont libérés à une cadence contrôlée par le taux de dégradation de la matrice de combustible (inventaire de la matrice). Pour un combustible actuel à taux de combustion typique, l'IRF sera faible, l'inventaire matriciel comprenant > 90 % des radionucléides. La corrosion du combustible et le taux de libération des radionucléides qui en résulte seront régis par les conditions d'oxydoréduction produites à la surface du combustible par la radiolyse de l'eau (pour produire principalement les éléments H_2O_2 et H_2) et par la corrosion anoxique de la coque en acier en présence d'eau souterraine pour produire les réducteurs potentiels Fe^{2+} et H_2. En présumant une période de confinement raisonnable du combustible nucléaire dans les conteneurs avant le contact des eaux souterraines avec le combustible, la radiolyse alpha constituera la source de rayonnement dominante.

Si l'on ne tient pas compte des réducteurs Fe^{2+} et H_2, le taux de libération lié à la corrosion du combustible sera proportionnel à l'intensité de la source de rayonnement alpha, l'oxydant dominant étant H_2O_2. Plus de 95 % de l'H_2O_2 produit radiolytiquement subira une décomposition en H_2O et en O_2, un oxydant beaucoup moins agressif, du fait de la stabilisation de la matrice d'UO_2 par le dopage des produits de fission. Parmi les espèces d'eaux souterraines auxquelles le combustible sera exposé, seul HCO^{3-} pourrait entraîner une augmentation de la vitesse de corrosion, Ca^{2+} et le silicate entraînant une suppression de la vitesse de corrosion. Toute influence du pH des eaux souterraines sera négligeable à l'intérieur de la gamme de pH des eaux souterraines prévues dans un DGP.

Le Fe^{2+} et l'H_2 entraînent tous deux la suppression de la corrosion du combustible et du rejet de radionucléides, l'H_2 exerçant la plus grande influence. Des études expérimentales approfondies et des calculs modélisés montrent que même de petites concentrations (micromolaires) de H_2, inférieures de plusieurs ordres de grandeur à celles produites par la corrosion de l'acier, peuvent supprimer complètement la corrosion du combustible. Cela peut être attribué à la capacité de l'H_2 d'utiliser à la fois la surface de l'UO_2 et les particules de métaux nobles (produites dans le combustible par le processus de fission du

réacteur) pour catalyser sa réaction avec H_2O_2, conduisant à leur recombinaison en H_2O, ce qui inhibe la corrosion de la matrice d'UO_2 par l'établissant des conditions réductrices.

Dans ces conditions réductrices, seule la dissolution chimique peut conduire à la destruction de la matrice du combustible et au rejet de radionucléides. Étant donné qu'à l'état réduit, la solubilité de l'U^{IV} présent dans le combustible est extrêmement faible, et que la transformation de la matrice d'UO_2 en une phase plus stable (comme la coffinite) est très peu probable, la dissolution du combustible conduisant au rejet de radionucléides devrait être extrêmement lente. Cette conclusion est fortement étayée par les analyses du gisement d'uranium de Cigar Lake, qui démontre la stabilité de l'uranium à l'état principalement réduit (sous forme d'U^{IV}). Les observations géochimiques, les analyses chimiques et les calculs du modèle de radiolyse effectués sur ce gisement d'uranium démontrent le rôle majeur de l'H_2 dans le maintien de l'U à l'état d'U^{IV} réduit.