



Vous êtes cordialement invité(e) à
la soutenance de thèse de **Mélina ODOROWSKI**

**Etude de l'altération de la matrice (U,Pu)O₂ du combustible irradié
en conditions de stockage géologique :
approche expérimentale et modélisation géochimique**

**qui aura lieu lundi 7 décembre 2015 à 14 h 00
à l'Institut de Chimie Séparative de Marcoule, à Bagnols-sur-Cèze**

devant le jury composé de :

| | |
|--|------------|
| M. Nicolas DACHEUX, Université de Montpellier, LIME site de Marcoule | Rapporteur |
| M. Katriot SPAHIU, Université de Stockholm | Rapporteur |
| M. Olivier BILDSTEIN, CEA Cadarache | Examineur |
| M. Joan DE PABLO, Université de Catalogne | Examineur |
| M. Christophe JEGOU, CEA Marcoule | Examineur |
| M. Laurent DE WINDT, MINES ParisTech | Examineur |
| M. Antoine AMBARD, EDF R&D, Moret-sur-Loing | Invité |
| Mme Christelle MARTIN, ANDRA Châtenay-Malabry | Invitée |

Résumé : Afin d'évaluer les performances du combustible irradié en situation de stockage géologique, des recherches sont menées sur le comportement à long terme des combustibles irradiés (UOx et MOx) en conditions environnementales se rapprochant de celles du site de stockage français. L'objectif de cette thèse est de déterminer si la géochimie de la couche géologique d'argilites du Callovo-Oxfordien (COx) et la corrosion des conteneurs en acier (produisant du fer et de l'hydrogène) ont un impact sur la dissolution oxydante de la matrice (U,Pu)O₂ sous radiolyse alpha de l'eau.

Des expériences de lixiviation ont été réalisées avec des pastilles de UO₂ dopées en émetteurs alpha (Pu) et du combustible MOx MIMAS (non irradié ou irradié en réacteur) afin de mettre en évidence l'influence de l'eau du COx et de la présence de fer métallique sur la dissolution oxydante de ces différents matériaux induite par la radiolyse de l'eau. Les résultats indiquent un effet inhibiteur de l'eau du COx sur la dissolution oxydante de la matrice UO₂. D'autre part en présence de fer, deux régimes différents sont observés. Sous irradiation alpha dominante telle que celle attendue en stockage géologique, la dissolution oxydante de la matrice UO₂ et du combustible MOx est très fortement inhibée du fait de la consommation des espèces radiolytiques oxydantes par le fer en solution avec précipitation d'hydroxydes de Fe(III) à la surface des pastilles. En revanche, sous forte irradiation beta/gamma comme dans le cas du combustible irradié, les traceurs de l'altération indiquent que celle-ci se poursuit en présence de fer tandis que la concentration en uranium en solution est contrôlée par la solubilité de UO₂(am,hyd). Ceci est expliqué par le déplacement du front redox de la surface du combustible vers la solution homogène ne protégeant plus le combustible. Les modèles géochimique (code CHES) et de transport réactif (code HYTEC) développés représentent correctement les principaux résultats et mécanismes mis en jeu.

Mots-clés : combustible irradié MOx, uranium, radiolyse, environnement, lixiviation, modélisation CHES HYTEC

Vous êtes cordialement invité(e) au pot amical qui suivra la soutenance

**Study of (U,Pu)O₂ spent fuel matrix alteration
under geological disposal conditions :
Experimental approach and geochemical modeling**

ABSTRACT : To assess the performance of direct disposal of spent fuel in a nuclear waste repository, researches are performed on the long-term behavior of spent fuel (UO_x and MO_x) under environmental conditions close to those of the French disposal site. The objective of this study is to determine whether the geochemistry of the Callovian-Oxfordian (COx) clay geological formation and the steel overpack corrosion (producing iron and hydrogen) have an impact on the oxidative dissolution of the (U,Pu)O₂ matrix under alpha radiolysis of water.

Leaching experiments have been performed with UO₂ pellets doped with alpha emitters (Pu) and MIMAS MO_x fuel (un-irradiated or spent fuel) to study the effect of the COx groundwater and of the presence of metallic iron upon the oxidative dissolution of these materials induced by the radiolysis of water. Results indicate an inhibiting effect of the COx water on the oxidative dissolution. In the presence of iron, two different behaviors are observed. Under alpha irradiation as the one expected in the geological disposal, the alteration of UO₂ matrix and MO_x fuel is very strongly inhibited because of the consumption of radiolytic oxidative species by iron in solution leading to the precipitation of Fe(III)-hydroxides on the pellets surface. On the contrary, under a strong beta/gamma irradiation field, alteration tracers indicate that the oxidative dissolution goes on and that uranium concentration in solution is controlled by the solubility of UO₂(am,hyd). This is explained by the shifting of the redox front from the fuel surface to the bulk solution not protecting the fuel anymore. The developed geochemical (CHESS) and reactive transport (HYTEC) models correctly represent the main results and occurring mechanisms.

Keywords : MO_x spent fuel, uranium, radiolysis, environment, leaching, CHESS HYTEC modeling