

Impact de la voie de synthèse sur l'homogénéité des oxydes mixtes (U,Pu)O₂ à différentes teneurs en plutonium

(English version below)

Mots clés : combustible, MOX, plutonium, précipitation, calcination, caractérisation

Afin d'économiser les ressources en uranium, et dans le souci de réduire encore l'empreinte écologique des déchets radioactifs ultimes, l'emploi généralisé des combustibles MOX (à base d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium (U,Pu)O₂) apparaît comme une solution d'avenir. Cet objectif ambitieux implique un multi-recyclage du plutonium, c'est-à-dire de retraiter les combustibles MOX usés, ce qui n'est pas le cas à l'heure actuelle. Un des défis associés réside dans la capacité à dissoudre complètement ces combustibles lors de leur retraitement pour extraire l'intégralité du plutonium qu'ils contiennent. Le combustible MOX actuel étant polyphasé [1], relever ce défi nécessite une connaissance approfondie des différentes phases constituant sa microstructure.

L'objectif du stage proposé est de contribuer à approfondir ces connaissances *via* la synthèse et la caractérisation de composés modèles représentatifs des trois phases principales rencontrées dans les combustibles MOX [1]. L'étudiant(e) retenu(e) devra ainsi synthétiser des oxydes mixtes U_{1-y}Pu_yO₂ à trois teneurs en Pu différentes (y = 0, y = 0,1 et y = 0,3 environ). Il s'appuiera pour cela sur des méthodes de co-précipitation oxalique [2] et de calcination établies, qu'il/elle devra optimiser pour produire des composés U_{1-y}Pu_yO₂ monophasés, chimiquement homogènes, et de morphologies semblables aux trois teneurs visées.

Après un travail d'analyse bibliographique, le/la stagiaire testera dans un premier temps le protocole de synthèse retenu *via* l'élaboration de composés (U,Ce)O₂ dans lequel le plutonium sera simulé par du cérium. Il vérifiera la qualité des synthèses réalisées en caractérisant les composés produits par différentes méthodes (DRX, Raman, MEB...), et fera si nécessaire évoluer le protocole de synthèse jusqu'à l'obtention de résultats satisfaisants. A l'issue de cette première étape, la seconde partie de ce travail sera consacrée à la production des lots de composés modèles incorporant le plutonium. Le/la stagiaire devra notamment s'assurer au cours de cette étape que les lots produits présentent des caractéristiques texturales et morphologiques similaires pour les trois teneurs en Pu d'intérêt. Il/elle devra pour cela caractériser la morphologie, la granulométrie et la surface spécifique des poudres synthétisées. Des opérations de tamisage visant à isoler des fractions granulométriques équivalentes au sein des trois lots de poudre étudiés seront éventuellement nécessaires.

Le stage se déroulera au sein de l'installation ATALANTE (CEA Marcoule), dans des laboratoires dotés de boîtes-à-gants dédiées à la manipulation des matériaux plutonifères. Le/La stagiaire aura accès à l'ensemble des moyens de synthèse, préparation et de caractérisation nécessaires pour réaliser cette étude.

Il est à noter qu'un sujet de thèse est également proposé dans la continuité de ce travail de stage (financement CEA pour la rentrée 2021). Les composés modèles élaborés au cours du stage seront d'ailleurs au centre de ce travail de thèse. Pour plus d'informations, n'hésitez pas à contacter l'équipe encadrante.

Impact of synthesis route on (U,Pu)O₂ mixed oxides homogeneity

Keywords: nuclear fuel, MOX, plutonium, precipitation, calcination, characterization

In order to keep a low-carbon energy production while saving natural resources and further reducing the ecological footprint of ultimate radioactive waste, the widespread use of (U,Pu)O₂ mixed oxide nuclear fuels (MOX) is the best option. This ambitious goal implies the multi-recycling of plutonium through the reprocessing of MOX spent fuels, which is not currently carried out in France. One of the associated challenges lies in achieving a complete dissolution of these MOX fuels to retrieve all of the plutonium. As this dissolution step is strongly linked to the MOX fuel microstructure, a thorough knowledge of the different phases constituting the latter [1] is therefore necessary. This constitutes the main goal of the internship.

The experimental study proposed here will focus on the synthesis and the characterization of model compounds representative of the three main phases encountered in MOX [1]. The selected student will thus have to synthesize U_{1-y}Pu_yO₂ mixed oxides with three different Pu contents ($y = 0$, $y = 0.1$ and $y = 0.3$ approximately). For this, he will rely on established method based on oxalic co-precipitation [2] followed by a calcination step. The selected student will have to optimize this synthesis route in order to produce single-phase U_{1-y}Pu_yO₂ compounds, chemically homogeneous, and showing similar morphologies regardless of the Pu content investigated.

Based on a literature review, the trainee will first test the chosen protocol *via* the synthesis of (U,Ce)O₂ compounds in which Pu will be simulated by Ce. He will check the quality of produced compounds by characterizing them by different methods (DRX, Raman, SEM, *etc.*), and if necessary will adjust the synthesis protocol until satisfactory results are obtained. The optimized protocol will then be applied to the production of batches of U_{1-y}Pu_yO₂ model compounds. During this step, the trainee must in particular ensure that the powders produced have similar morphological characteristics regardless of the Pu content studied. To do this, he will have to characterize the morphology, the particle size and the specific surface area of the synthesized powders, and sieve them if necessary.

To carry out this work, the student will join the CEA's "Research Department of Mining and Fuel Recycling" (DMRC) at ATALANTE facility (Marcoule, France). He will thus have access to laboratories equipped with glove boxes dedicated to the handling of Pu containing materials, and to all the synthesis, preparation and characterization tools needed to carry out this study.

It should be noted that a PhD thesis is also proposed as a continuation of this internship work (CEA funding for the start of 2021 school year). The model compounds produced during the internship will be at the heart of this PhD work. For more information, do not hesitate to contact the supervising team.

Références/References

- [1] G. Oudinet *et al.*, Journal of Nuclear Materials 375 (2008) 86–94.
- [2] B. Arab-Chapelet *et al.*, Dalton Transactions 45 (2016) 6909–6919.



Stage de Master 2 (≈ 6 mois en 2021)
End of study internship (≈ 6 months in 2021)

Page 3 / 3

Profil recherché

Le (la) candidat(e) devra préparer un Master 2 et/ou un diplôme d'ingénieur en physico-chimie des matériaux. Une première expérience des expérimentations en environnement nucléaire acquise au cours d'un stage précédent serait également appréciée. Doté(e) d'une grande curiosité scientifique, et de bonnes capacités de synthèse, le (la) candidat(e) sera force de proposition, et capable de travailler de manière autonome mais aussi de collaborer avec les différentes équipes impliquées dans ce projet.

Encadrement :

- Philippe Martin, CEA – Centre de Marcoule, ISEC/DMRC/SASP/LMAT, philippe-m.martin@cea.fr
- Loïc Marchetti, CEA – Centre de Marcoule, ISEC/DMRC/SPTC/LDCI, loic.marchetti@cea.fr
- Loïc Favergeon, Ecole des Mines de S^t Etienne, SPIN/PTSI, loic.favergeon@mines-stetienne.fr

Détails pratiques

- Le stage se déroulera au CEA sur le centre de Marcoule, pour une durée de 6 mois environ.
- Le stage débutera entre janvier et mars 2021, la date précise de début du stage étant flexible.
- La rémunération mensuelle sera comprise entre 700 € et 1300 € euros selon le cursus de l'étudiant(e) retenu(e). Une prime de fin de stage pouvant aller jusqu'à 10% du montant total perçu au cours du stage pourra également être attribuée.
- Une aide au logement pouvant aller jusqu'à 229 € par mois est également prévue sur présentation des justificatifs.

Candidatures

Pour postuler, merci d'adresser aux encadrants mentionnés précédemment votre CV avec références et une lettre de motivation.