Etudes thermodynamiques en soutien au développement de matrices de conditionnement de déchets par fusion verre/métal

Annabelle LAPLACE [1], Stéphane GOSSÉ [2], Isabelle HUGON [1], Luca SOLDI [2], Théodore COZZIKA [1], Mathieu ROSKOSZ [3]

[1] CEA, DEN, DE2D/SEVT/LDMC – Service d'Etudes de Vitrification et procédés hautes Températures, CEA Marcoule, F-30207 Bagnols-sur-Cèze, France
[2] CEA, DEN, Service de Corrosion et du Comportement des Matériaux dans leur Environnement (SCCME), CEA, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France
[3] Institut de Minéralogie, Physique des Matériaux et Cosmochimie, Museum National d'Histoire Naturelle, 57 rue Cuvier, 75231 Paris Cedex 05, France

Résumé :

De nouveaux procédés de vitrification sont actuellement développés pour le traitement et le conditionnement de différents types de déchets nucléaires de Moyenne Activité à Vie Longue (déchets de démantèlement, déchets technologiques). En particulier, des déchets solides contenant des métaux contaminés en actinides sont considérés. Qu'il s'agisse d'une décontamination de la phase métallique ou d'un conditionnement du déchet dans son intégralité, l'objectif au cours du procédé, est de solubiliser les actinides dans une fonte d'oxydes au contact de la phase métallique fondue [1]. Par rapport aux procédés de vitrification déjà existants, de nouvelles contraintes sont imposées à la fonte verrière avec entre autres des températures plus élevées ainsi qu'un environnement très réducteur lié à la présence d'une ou plusieurs phases métalliques fondues.

En parallèle des études laboratoire et sur pilote, une modélisation thermodynamique Calphad du système mixte fonte/métal liquide a débuté. Une base de données spécifiquement dédiée aux déchets MAVL envisagés est en cours de développement afin de considérer l'influence de la température et du potentiel d'oxygène. Une telle modélisation a différents objectifs dont :

- ✓ La détermination de la répartition des différents éléments (actinides en particulier) entre la fonte verrière et la phase métallique.
- ✓ La description du métal (i) à l'état fondu (T_{fusion}, phases liquides en présence) pour le pilotage du procédé et (ii) une fois refroidi pour la description du colis final.

Au cours de cet exposé nous présenterons l'apport de la modélisation thermodynamique pour ce type de procédés par le biais de différents exemples. En particulier, une comparaison entre les calculs thermodynamiques et les résultats expérimentaux concernant une phase Inox-Cu fondue au contact d'une fonte verrière d'oxyde sera effectuée.

[1] P. Chevreux, « Comportement de l'U et de ses simulants dans les verres d'aluminosilicates en contact avec des métaux fondus », thèse de l'Université de Lorraine, soutenue le 2/12/2016.