



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **18 décembre 2017**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **SARRASIN Lola**

Titre de la thèse : « **Mécanismes d'incorporation et de migration du molybdène dans le dioxyde d'uranium stœchiométrique et sur-stœchiométrique** »

Résumé



Afin d'améliorer les modèles prédictifs permettant l'évaluation des rejets de produits radioactifs lors d'un accident du cœur d'un réacteur à eau sous pression (REP), il est nécessaire d'évaluer le relâchement des produits de fission (PF) hors du combustible nucléaire. Le PF étudié ici est le molybdène, abondamment produit lors de la fission (6% des fissions de ^{235}U), qui est un élément clé de la chimie du combustible. Son comportement est fortement lié à l'évolution du potentiel oxygène dans la matrice combustible. De plus, en situation accidentelle, le molybdène peut former de nouveaux composés avec d'autres PF modifiant ainsi leur comportement.

L'objectif de cette thèse est d'étudier le comportement du molybdène dans UO_2 et UO_{2+x} sous l'effet de hautes températures et /ou d'irradiations dans différents domaines d'énergie afin de découpler les types d'endommagement (balistique ou électronique). La première étape a consisté à élaborer des échantillons d' UO_{2+x} par deux méthodes d'oxydation, sous flux gazeux ou en atmosphère humide. Ensuite, le molybdène a été introduit dans des échantillons d' UO_2 (oxydé ou non) par implantation ionique. Les échantillons ont subi des recuits à haute température couplés ou non à des irradiations. Les profils de concentration du Mo implanté ont été suivis par SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) avant et après traitement des échantillons. Les résultats montrent que le molybdène est peu, voire pas, mobile dans UO_2 et UO_{2+x} sous effet thermique. Cela est mis en regard avec les résultats de calculs *ab-initio* montrant que cet élément se stabilise dans la structure UO_2 au sein d'octaèdres d'atomes d'oxygène. L'effet combiné de l'irradiation et de la température induit une mobilité du Mo, avec un fort impact des excitations électroniques. Les analyses Raman et DRX montrent que la migration du Mo est directement liée à la restructuration du matériau, l'effet étant amplifié dans l' UO_2 sur-stœchiométrique.