



Étude de l'influence de la composition des atmosphères de stockage sur les phénomènes de radiolyse alpha de l'eau adsorbée sur les oxydes de plutonium

Contacts : laurent.venault@cea.fr ; lionel.jolly@cea.fr & philippe.moisy@cea.fr

Directeur de thèse & ED	Ph. Moisy (CEA Marcoule) – ED 459 « SCB » - Univ. Montpellier
Tuteurs de thèse	L. Venault (CEA Marcoule) & L. Jolly (CEA Valduc)

Contexte	Objectif
Les composés plutonifères interagissent avec leur environnement par le biais de processus radiochimiques impliquant l'eau résiduelle adsorbée, l'atmosphère de stockage, les matériaux des conteneurs et les enveloppes en matériau plastique. Au travers de ces processus, l'entreposage de ces produits peut notamment se traduire par la production ou la consommation de gaz à l'intérieur des conteneurs, la corrosion tant de la matière entreposée que du conteneur, la dégradation des enveloppes plastiques. Ainsi, les phénomènes radiochimiques, qui peuvent se traduire par la production de gaz tels que l'hydrogène ou le méthane, sont à considérer vis-à-vis de la sûreté.	L'objectif est de développer un modèle fiable, validé par des données expérimentales, permettant d'estimer l'évolution des conditions d'entreposage de la matière nucléaire en fonction du type de produit considéré, de sorte à améliorer les standards de stockage et anticiper leur modification. À terme, ces études devront permettre de disposer d'un outil prédictif, destiné aux études de sûreté qui soit plus pertinent que les approches majorantes généralement utilisées.

Contrat de thèse	"Thèse CEA" d'une durée de 36 mois
Localisation	Les travaux expérimentaux seront majoritairement réalisés au CEA à Marcoule dans l'installation Atalante. Des réunions sont à prévoir au CEA à Valduc.

Déroulement de la thèse

Ces phénomènes de radiolyse ne peuvent être saisis dans leur globalité sans effectuer des études ciblées visant à comprendre les mécanismes élémentaires mis en jeu.

Afin de répondre à cette problématique, le rôle des oxydes de carbone et de la présence de H₂, O₂, H₂O, sur les mécanismes d'évolution de la composition des atmosphères de stockage au travers de la radiolyse alpha de l'eau adsorbée sur les oxydes de plutonium sera étudié. Pour ce faire, différentes conditions expérimentales en combinaison avec plusieurs techniques de caractérisation seront mises en oeuvre. La source de rayonnement sera constituée soit par une source externe (cyclotron, source gamma, ...) soit directement par le plutonium.

L'effet de la nature des surfaces sur la radiolyse de ces gaz devra particulièrement être caractérisé. Pour cela, il est proposé d'exposer durant plusieurs mois à un rayonnement alpha des gaz de compositions initiales connues, dans des conditions de température et de pression déterminées, par mise en contact avec une surface de PuO₂, puis d'analyser les produits obtenus par chromatographie gazeuse et/ou spectroscopie de masse.

Par ailleurs, afin de mettre en évidence l'évolution du degré d'oxydation du plutonium, différentes techniques d'analyse peuvent être envisagées telles que le MEB, l'XPS, le Raman ou la DRX.

Formation par la recherche

Ce projet de thèse offre l'opportunité d'aborder divers domaines scientifiques. Il sera l'occasion de développer des connaissances et des compétences aussi bien en chimie des matériaux, que sur la thématique des interactions rayonnements-matière, en passant par les interactions aux interfaces gaz-solides sans oublier les aspects de chimie rédox, et de radiochimie liés à la mise en oeuvre du plutonium. Un aspect important concerne également le volet chimie analytique de par la diversité des techniques de caractérisation à mettre en oeuvre. Le rapprochement d'équipes de laboratoire universitaire pour des expériences d'irradiation externes ou pour des études sur matériaux simulants fournira une opportunité de découvrir d'autres approches et de confronter les concepts et les idées. Ce sera aussi l'occasion de se constituer un premier réseau en vue d'une poursuite de carrière d'ingénieur ou de recherche.