

Résumé

Pour la gestion des déchets nucléaires, il est prévu de construire un dispositif un système barrière composé en partie d'un conteneur en acier. Pour des raisons de sureté, les cinétiques de corrosion de ce conteneur doivent être évaluée en condition de stockage anoxique. Sous l'effet des rayonnements, la radiolyse engendre des espèces oxydantes et réductrices pouvant modifier les conditions du milieu et, donc les processus de corrosion. Cette thèse vise à fournir de nouvelles données expérimentales et de simulation à propos de la corrosion sous irradiation en milieu anoxique carbonaté.

Le premier axe de cette thèse concerne l'irradiation gamma d'échantillons de coupon de fer en eau désaérée et carbonatée ou non. Il est montré que l'irradiation peut augmenter les vitesses de corrosion suivant les paramètres de dose. Les phases identifiées sont peu modifiées avec l'irradiation. La chimie des solutions montre une baisse du pH avec la dose liée au comportement du fer en solution. Des espèces organiques sont repérées. Le deuxième axe concerne l'irradiation d'analogues archéologiques avec une couche de produits de corrosion ancienne. La stabilité des phases vis-à-vis de la radiolyse est vérifiée; seuls les produits néoformés changent. Le troisième axe est une approche par simulation cinétique. Il vérifie la baisse de pH sous irradiation.

Résumé en anglais

In France, for nuclear waste management, it is planned to build a storage device with a barrier system composed of steel container. Corrosion is evaluated for the safety of anoxic storage over the long term. With radiation, water radiolysis generates oxidizing and reducing species that can change the corrosion processes. Three aspects are developed in this thesis. The first concerns iron coupon samples experimented in carbonated deaerated water and subjected to gamma irradiation. It is shown that irradiation can increase corrosion rates within the parameters of dose. Identified crystalline phases are little changed with irradiation. Solution chemistry shows a decrease in pH with dose related to iron. Organic species are identified. The second axis is archaeological analogues irradiation with an old corrosion products layer. Structural analysis verified the phase stability with radiolysis, only the newly formed products changes. The third axis is a kinetic simulation approach. It checks the pH drop under irradiation. Taken together, these results allow us to provide new data for the anoxic corrosion under irradiation.

Keywords: Radiolysis, Anoxic corrosion, Iron, Carbonate, Short-and Long-term behavior.