

Soutenance de thèse de Maxime Lainé

Mardi 26 Septembre 2017 à 14h

Amphithéâtre Horowitz, INSTN, CEA Saclay

Etude du comportement de matériaux argileux sous rayonnement ionisant

Le stockage géologique profond est l'alternative choisie par la France afin d'isoler les déchets nucléaires Haute Activité (HA) et Moyenne Activité à Vie Longue (MA-VL) de notre environnement jusqu'à leur décroissance radioactive. Ainsi, c'est une couche argileuse qui va constituer la dernière barrière ouvragée entre les déchets radioactifs et l'extérieur. Il est donc primordial de comprendre comment les rayonnements ionisants affectent de tels matériaux argileux.

Le but de ce travail de thèse a donc été d'étudier et de rationaliser, à l'aide de mécanismes réactionnels, le comportement sous irradiation de différents matériaux argileux. Les systèmes d'intérêt étudiés ont d'abord été le talc synthétique (prototype d'argile non gonflante). Irradié par des électrons accélérés, la production de H₂ dans ce système, uniquement due aux hydroxyles de structure, s'est révélée du même ordre de grandeur que celle obtenue dans l'eau liquide.

Ce rendement est divisé par 30 dans le cas du talc naturel de Luzenac, mettant ainsi en évidence l'importance des impuretés comme capteurs des précurseurs du dihydrogène.

Des smectites synthétiques, qui sont des matériaux gonflants, ont également été étudiées. Les résultats mettent en évidence la radiolyse de l'eau confinée dans l'espace interfoliaire, qui conduit à des rendements de production de H₂ pouvant être 2 à 3 fois supérieurs à ceux mesurés dans l'eau. Ils sont similaires pour la saponite et la montmorillonite, montrant que la localisation de la charge foliaire ne joue qu'un rôle mineur. Enfin, l'étude des hydroxydes doubles lamellaires ou argiles anioniques, prouve que, dans ce cas, c'est la nature de l'anion dans l'espace interlamellaire qui pilote la réactivité. En parallèle à ces mesures, des expériences de spectroscopie paramagnétique de l'électron ont permis de proposer des mécanismes réactionnels.

In France, the deep geological storage is the chosen alternative to isolate High Level (HL) and Longue-Lived Intermediate Level (LL-IL) nuclear waste from our environment until their radioactive decay. Thus, a clay layer constitutes the last barrier between the radioactive waste and our environment. It is therefore essential to understand how ionizing radiation will affect such clay materials.

The aim of this PhD thesis was to study and understand, thanks to reaction mechanisms, the behavior under irradiation of various clay materials. The first studied system was synthetic talc (prototype of a non-swelling clay material). Irradiated by accelerated electrons, the dihydrogen production of this system, only due to structural hydroxyl groups, is comparable to the one obtained in liquid water.

This yield is divided by 30 in the case of natural talc from Luzenac, highlighting thus the importance of impurities as scavengers of dihydrogen precursors.

Synthetic smectites, which are swelling materials, were then studied. The results evidence the radiolysis of water confined in the interlayer space, leading to H₂ yields which may be 2 to 3 times higher than those measured in water. Moreover, they are similar for montmorillonite and saponite, evidencing that charge location plays only a minor role. Finally, the study of double layered hydroxides shows that, in this case, the nature of the anion in the interlamellar space controls the H₂ production.

In parallel, electron paramagnetic spectroscopy experiments allowed proposing reaction mechanisms.