
Effets de l'irradiation sur l'altération par l'eau des verres nucléaires en situation de stockage

Résumé de la thèse de Sarah Mougnaud - Soutenance prévue en octobre 2016

Démarrée en octobre 2013, sous la direction de Jean-Philippe Renault (UMR 3685 NIMBE) et l'encadrement de Magaly Tribet (CEA/DEN/DTCD), cette thèse porte sur « les effets d'irradiation sur l'évolution de la pellicule d'altération formée lors de la lixiviation des verres borosilicatés. »

Les déchets nucléaires de haute activité, produits en France sous forme de colis de verre lors du traitement du combustible usé, sont destinés à être stockés en couche géologique profonde sur le long terme. La démonstration de la durabilité du verre constitue donc un élément essentiel pour garantir la sûreté de la solution du stockage. Dans ce contexte de stockage en couche géologique profonde, l'arrivée de l'eau de l'environnement au contact du colis est prévue après quelques milliers d'années. De nombreuses études sur la durabilité d'un simulant inactif du verre industriel ont montré que le verre au contact de l'eau s'altère selon plusieurs régimes de vitesse, aboutissant à la formation d'une pellicule d'altération « passivante » et à l'instauration d'un régime de vitesse résiduelle sur le long terme. Cependant, la matrice vitreuse assure le confinement des actinides mineurs et des produits de fission, elle se trouve ainsi soumise à sa propre radioactivité. Ce travail de thèse a pour objectif de se focaliser sur l'influence de l'irradiation sur la pellicule d'altération formée au cours de ce régime de vitesse résiduelle d'un point de vue structural et mécanistique.

Dans ce but, la démarche choisie s'articule selon trois axes complémentaires. Premièrement, des verres modèles simples inactifs ont été altérés et irradiés de façon externe afin d'observer les modifications engendrées par des effets électroniques (irradiations aux électrons et aux particules alpha). Deuxièmement, le comportement à l'altération de ces mêmes types de verres, préalablement endommagés par irradiation aux ions lourds, a été étudié de façon à appréhender l'impact de la dose cumulée par le verre avant l'arrivée de l'eau. Enfin, l'altération d'un verre complexe émetteur α , verre « dopé » au ^{244}Cm , a été mise en œuvre afin de se rapprocher d'une situation plus réaliste, à savoir celle d'un verre ayant cumulé du dommage balistique dans sa structure et comportant un débit de dose α significatif.

Ce travail de thèse a montré qu'une irradiation externe aux électrons sur le verre initial n'avait pas d'influence sur sa cinétique d'altération ni sur la structure de la pellicule d'altération développée. Cette pellicule d'altération apparaît même plus stable à l'irradiation dans ces conditions que le verre initial. En revanche, un endommagement du verre initial avec des ions lourds, simulant l'effet de la dose cumulée « vue » par le verre avant l'arrivée de l'eau, induit une augmentation de l'épaisseur altérée en régime de vitesse résiduelle. Ces résultats permettent de mieux comprendre le comportement du verre complexe radioactif émetteur α dont l'atteinte d'une vitesse résiduelle donnée est retardée par rapport à son équivalent inactif, pour des conditions d'altération identiques (rapport surface de verre/volume d'eau, température).