



Sujet de thèse 2023

Condensation des éléments dans les conditions des essais nucléaires souterrains : expériences et modélisation

L'évaluation de l'impact environnemental des essais nucléaires souterrains nécessite une connaissance approfondie des phénomènes qui ont pu se produire suite à l'explosion. Les explosions nucléaires souterraines vaporisent la roche environnante et créent une cavité où coexistent une vapeur et un liquide (généralement silicaté) dont la composition évolue alors que la vapeur se condense lors du refroidissement. Les radionucléides créés par l'explosion correspondent à un grand nombre d'éléments chimiques, dont la plupart sont impliqués dans des chaînes de décroissance radioactive. Selon leur volatilité et l'évolution des conditions de température et de pression, ces éléments vont se distribuer entre le magma formé, les surfaces des roches et la phase vapeur.

L'objectif de cette thèse est d'élaborer un modèle de condensation des éléments dans les conditions des essais nucléaires, par des calculs thermodynamiques et cinétiques alimentés par une approche expérimentale. On mettra pour cela à profit un code de calcul thermodynamique ainsi qu'une nouvelle génération de spectrométrie de masse à multi-collection couplée à une cellule de Knudsen (KEMS, Knudsen Effusion Mass Spectrometry) récemment mise en service à l'École Normale Supérieure de Lyon. Des expériences à haute température seront réalisées afin de déterminer les paramètres thermodynamiques et cinétiques correspondant aux matériaux (silicates fondus) et aux éléments chimiques mis en jeu.

La première année de thèse sera consacrée à l'obtention des données expérimentales. Des échantillons de roches synthétiques seront fondus et dopés en éléments chimiques d'intérêt. La plupart de ces éléments possèdent un ou plusieurs isotopes stables, ce qui permet de ne pas manipuler de radioactivité. Ces échantillons de synthèse seront introduits dans la cellule de Knudsen et les quantités évaporées ainsi que la cinétique seront suivies par KEMS, l'évaporation étant le phénomène inverse de la condensation. Ceci permettra de déterminer les pressions de vapeur saturante, la spéciation et les coefficients d'évaporation des éléments étudiés. Au cours de la deuxième année, les mesures d'évaporation seront utilisées pour calibrer le modèle thermodynamique propre à chaque élément et chaque roche. Le cas des actinides sera traité uniquement par la modélisation à l'aide de paramétrisations issues de la littérature. On couplera le modèle thermodynamique de condensation, assorti des coefficients cinétiques, aux lois de filiation et décroissance radioactive ainsi qu'à une loi de refroidissement des cavités, afin de produire un modèle dynamique de la condensation des radionucléides en fonction du temps. En troisième année, ce modèle sera utilisé pour comprendre la distribution des radionucléides en fonction des différentes composantes d'une cavité nucléaire (types de lave, éboulis, parois, fractures...) et de leur apparition au cours du temps. Les résultats seront confrontés à des données issues de la littérature. Chacune de ces étapes sera l'objet d'une publication dans des revues internationales.

De formation chimie et matériaux, avec des connaissances en thermodynamique et chimie physique, le (ou la) candidat(e) aura un attrait pour les méthodes expérimentales (chimie séparative, instrumentation, spectrométrie de masse) et une ouverture sur les questions environnementales ou géologiques. Ce projet de thèse sera réalisé en collaboration entre le CEA/DAM-Île de France et l'ENS Lyon (Laboratoire de Géologie de Lyon), sous la codirection de Bernard Bourdon (CNRS, ENS Lyon, bernard.bourdon@ens-lyon.fr) et d'Éric Pili (CEA/DAM-Île de France, eric.pili@cea.fr). L'étudiant(e), sous contrat de thèse CEA, sera hébergé(e) à l'ENS Lyon et effectuera de courts séjours au CEA/DAM-Île de France (Bruyères-le-Châtel). Renseignements et inscription auprès des encadrants.