



Sujet de Thèse CEA

Référence du dossier : SL-DRT-20-1058

Contact : valerie.lourenco@cea.fr

SUJET / SUBJECT

Développement de sources surfaciques uniformes par fonctionnalisation pour le démantèlement
Development of uniform surface sources by functionalization for decommissioning & dismantling

DOMAINE DE RECHERCHE / RESEARCH FIELD

Chimie - Métrologie - Sciences des matériaux / Chemistry - Metrology – Materials science
Interaction Rayonnement-Matière / Interaction of ionizing radiations with matter

RÉSUMÉ

Le démantèlement des installations nucléaires ainsi que la gestion des déchets radioactifs produits lors de cette étape sont des préoccupations majeures sans doute destinées à se renforcer avec le vieillissement du parc européen. Améliorer la qualification des dispositifs d'évaluation de la contamination permettrait d'analyser de façon plus précise et d'orienter idéalement plus rapidement les déchets produits vers la filière adéquate pour contribuer à la maîtrise des coûts induits. Le sujet de thèse se focalise sur les cas répandus où l'activité est présente sur/dans des surfaces, planes ou incurvées, ainsi que dans des conduites. L'objectif de la thèse est de réaliser des sources étalons de grande surface (> 100 cm² in fine), uniformes, traçables, planes ou cylindriques, voire déformables, avec une atténuation limitée des rayonnements (cas des émetteurs bêta purs ou alpha). La plus-value associée à la traçabilité de ces sources réside dans la maîtrise du niveau d'activité déposée, quel que soit le radionucléide considéré. L'approche retenue est la fonctionnalisation d'un substrat pour immobiliser et répartir de manière uniforme les radionucléides sans trop atténuer les rayonnements émis, tout en garantissant que la surface reste non contaminante. La formation de liaisons chimiques fortes avec la surface garantira la stabilité de la couche formée et l'affinité chimique avec les molécules complexantes greffées vise à immobiliser durablement l'activité. Le choix de la méthode de fonctionnalisation dépend du substrat sur lequel l'accroche a lieu (métallique, polymère, conducteur ou non, souple ou rigide). L'autre extrémité de ces molécules peut être fonctionnalisée afin de les rendre spécifiques des radionucléides cibles. Les tests de sources surfaciques seront réalisés en premier lieu avec l'Am-241, à la fois émetteur alpha et gamma basse énergie, et des émetteurs bêta, purs ou non, d'intérêt pour l'élaboration des spectres types des déchets. La problématique des grandes surfaces et surtout le critère d'uniformité de la source (variabilité de l'activité surfacique < 10 %, incertitudes comprises) contraignent la méthode à employer pour la fonctionnalisation de la surface. L'évaluation de l'uniformité de la répartition de l'activité sur la source sera notamment réalisée par autoradiographie, technique d'imagerie dont le signal est proportionnel à l'activité.

ABSTRACT

The decommissioning of nuclear installations and the management of the radioactive waste produced during this stage are major concerns for the future, especially with the ageing of the European nuclear plants. Improving the qualification of contamination assessment systems would make it possible to analyse more precisely and ideally identify more quickly the the appropriate waste management channel to help control the resulting costs. The thesis topic focuses on widespread cases where the activity is present on/in surfaces, flat or curved, as well as in pipes. The objective of the thesis is to realize uniform, traceable, flat or cylindrical surface sources, even deformable, with limited radiation attenuation (case of pure beta or alpha emitters). The added value associated with the traceability of these sources lies in the control of the deposited activity level, whatever the radionuclide considered. The approach adopted is the functionalization of a substrate to immobilise and distribute the

radionuclides uniformly without excessive attenuation of the radiation emitted, while ensuring that the surface remains non-contaminating. The formation of strong chemical bonds with the surface will guarantee the stability of the layer formed and the chemical affinity with the grafted complexing molecules aims to permanently immobilise the activity. The choice of the functionalization method depends on the substrate on which the bonding takes place (metallic, polymeric, conductive or non-conductive, flexible or rigid). The other end of these molecules can be functionalized to make them specific to the target radionuclides. The tests of surface sources will be carried out first with Am-241, both alpha and low energy gamma emitter and pure beta or not emitters of interest for the elaboration of typical waste spectra. The problem of large surfaces and especially the criterion of source uniformity (variability of surface activity < 10 %, including uncertainties), constrain the method to be used for the functionalization of the surface. The evaluation of the uniformity of the activity distribution over the source surface will be carried out by autoradiography (imaging technique whose signal is proportional to the activity).

LABORATOIRE D'ACCUEIL / LOCATION

CEA Centre de Saclay
Laboratoire National Henri Becquerel
Bât. 602 PC111
F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex
valerie.lourenco@cea.fr
+33 1 69 08 39 51

<http://www.lnhb.fr/>

DISPONIBILITÉ / START DATE : Octobre 2020 / October 2020

CONTEXTE DU SUJET ET DÉROULEMENT PRÉVISIONNEL DE LA THÈSE

Au vu des enjeux financiers mis en jeu, la maîtrise du coût du démantèlement des installations nucléaires est indispensable, ce qui implique notamment une orientation fiable et rapide des déchets vers la bonne filière. Notre contribution s'inscrit lors des étapes de mesure de la contamination (cartographie ou caractérisation de certains déchets). Sur les chantiers d'Assainissement & Démantèlement (A&D), les signatures radiologiques d'intérêt peuvent être de nature variée (alpha, bêta, gamma, voire neutron) et doivent être détectées dans un environnement mixte (présence simultanée de plusieurs types de rayonnement). Nous proposons de développer des sources étalons de rayonnement de grande surface, caractérisées métrologiquement, permettant de reconstituer et faire varier cet environnement complexe de façon contrôlée et sans contraintes d'accès restreint.

Actuellement, les meilleures sources surfaciques disponibles sur le marché sont des sources métalliques planes et rigides (support en aluminium de 3 mm d'épaisseur), de seulement 150 cm² maximum, avec une variabilité locale de l'activité surfacique légèrement inférieure à 10 %. Elles sont fabriquées par séchage de solutions radioactives sur de l'aluminium poreux et sont ainsi peu représentatives de la réalité des terrains. Nous souhaitons être en mesure de développer des sources modulables tant dans leur forme qu'en termes de radionucléides disponibles.

Le choix de la méthode de fonctionnalisation dépend du substrat sur lequel l'accroche a lieu (métallique, polymère, conducteur ou non, souple ou rigide). Dans le cas de substrats rigides métalliques, de nombreuses possibilités existent : soit électrochimiques, soit chimiques.

L'approche par fonctionnalisation pourrait permettre de couvrir une gamme étendue de radionucléides, car basée sur leurs propriétés chimiques plutôt que radiologiques. Une partie des résultats d'un précédent stage pourrait servir dans le cadre de la thèse : la partie complexation sera transposable aux actinides (U, Am, Cm) mais l'accroche devra être adaptée au substrat choisi. De plus, dans le cadre de cette thèse, des radionucléides d'intérêt pour les spectres types des déchets seront abordés parmi Cl-36, H-3 (problématique de l'acceptation Andra et futur ITER), C-14, Sr-90, Fe-55, Ni-63, Tc-99, I-129 notamment. Cette flexibilité serait un atout pour s'adapter aux spécificités de chaque chantier. Pour qu'elle soit fiable, l'approche par fonctionnalisation doit s'adapter à la chimie de chaque radionucléide. Il sera possible d'en regrouper certains par famille chimique (les lanthanides et actinides trivalents, les alcalins ou les alcalino-terreux), néanmoins, de nombreux cas particuliers vont apparaître (H-3, C-14, I-129 volatil versus Cl-36 alors que tous deux sont des halogènes). Des priorités seront à définir pour adapter et valider l'approche pour chaque famille identifiée sur les 10 années à venir.

Les premiers mois de la thèse seront consacrés au choix de 2 familles de radionucléides prioritaires et les substrats adaptés ainsi qu'à l'évaluation des fonctions d'accroche sur le substrat d'une part et complexante envers le radionucléide d'autre part. Des tests de fonctionnalisation sur les substrats

retenus seront ensuite réalisés sur des surfaces de l'ordre du cm² et plus, en parallèle avec la caractérisation de leur uniformité par des techniques d'autoradiographie.

COLLABORATION

Le Laboratoire d'Analyses en Soutien aux Exploitants (DES/DPC/SEARS/LASE) développe des méthodes de quantification des radionucléides dans de nombreuses matrices complexes (effluents, béton, etc.). P. FICHET y est notamment impliqué dans le développement de systèmes d'autoradiographie digitale, avec des écrans ou des SiPM, permettant de cartographier la distribution des radionucléides sur une surface contaminée, y compris les émetteurs bêta purs. Cette technique est un moyen complémentaire intéressant pour évaluer notamment l'uniformité des sources que nous souhaitons développer, y compris les non planes.