

Mécanismes mis en jeu dans la stabilité du piégeage des gaz rares radioactifs dans des matériaux poreux innovants



Lieu / Unité	IRSN Saclay (91) –UCCS Lille (59) + séjours à Cadarache (13)
Durée :	3 ans
Date de disponibilité :	10/2024

L'IRSN, Etablissement Public à caractère Industriel et Commercial (EPIC) est l'expert public national des risques nucléaires et radiologiques. Ses missions sont désormais définies par la Loi n° 2015-992 du 17 août 2015 relative à la transition énergétique pour la croissance verte (TECV). L'IRSN concourt aux politiques publiques en matière de sûreté nucléaire et de protection de la santé et de l'environnement au regard des rayonnements ionisants. Organisme de recherche et d'expertise, il agit en concertation avec tous les acteurs concernés par ces politiques, tout en veillant à son indépendance de jugement.

Thématique : Expérimentations pour mieux comprendre les mécanismes de piégeage des gaz rares au sein de matériaux poreux de type Metal-Organic Framework

Le piégeage des gaz rares (Kr, Xe) est un enjeu important de sûreté nucléaire. Ces gaz, produits par les réactions de fission au sein du combustible nucléaire, présentent certains isotopes radioactifs dont la demi-vie pouvant atteindre quelques années. Très peu réactifs chimiquement et très volatils, ils sont difficilement piégeables et séparables. Pour les installations nucléaires, l'enjeu concerne principalement les situations accidentelles (hypothétique accident grave sur un réacteur nucléaire ou dans une installation de retraitement du combustible usé). Ces gaz rares radioactifs peuvent donc être rejetés dans l'atmosphère et produire des doses significatives.

Les matériaux poreux mis en œuvre pour ce piégeage sont principalement des charbons actifs et des zéolithes. Depuis environ une décennie, de nouveaux matériaux poreux hybrides métal-polymères organisés en réseau, appelés MOFs (Metal-Organic-Framework), sont apparus, avec des capacités de piégeage significatives. Ces composés connaissent un essor croissant au vu de leurs aptitudes importantes de fonctionnalisation liées à leur ligand organique, et de leurs propriétés potentielles d'adsorption sélective des gaz.

Dans ce contexte, le sujet de thèse proposé s'inscrit dans la continuité d'une première étude expérimentale sur cette thématique, impliquant l'IRSN et l'UCCS. Dans ce cadre, un important travail bibliographique sur le piégeage des gaz rares par des composés poreux a été effectué. Les nombreux essais réalisés ont permis de mettre en évidence les paramètres importants à considérer lors d'une étude dynamique de piégeage des gaz rares, peu étudiés dans la littérature. Au vu des résultats obtenus avec des isotopes stables de Xe et Kr, certaines formulations s'avèrent être potentiellement intéressantes pour la capture des gaz rares étudiés en jouant sur la nature de ligands/dopants et la structure de MOF. Néanmoins, des efforts de recherche restent à mener pour la conception et de caractérisation d'adsorbants poreux à façon pour les gaz rares étudiés.

Sur la base de ces résultats, l'objectif de la thèse proposée sera d'approfondir les connaissances à la fois sur les mécanismes mis en jeu pour le piégeage des gaz rares au sein des MOFs pour optimiser la structure la plus pertinente, mais aussi d'étudier leur efficacité de rétention vis-à-vis des isotopes radioactifs de Xe et Kr, pouvant perturber les interactions électroniques. Des formulations à optimiser, en jouant sur la taille des pores, la nature des ligands et également la mise en forme (membranes, granulés...), seront élaborées et caractérisées dans le but de piéger sélectivement chacun des gaz étudiés. Ces essais en actif permettront notamment d'étudier l'influence du rayonnement des isotopes piégés sur l'intégrité de l'adsorbant poreux. L'influence de la température et de l'humidité, voire de certains autres contaminants (NOx), pourra également être étudiée en inactif.

Un séjour sera programmé à l'UCCS (Lille), pour l'élaboration (synthèse et mise en forme) et la caractérisation (DRX, ATG, BET,...) de ces matériaux poreux innovants. Leurs performances seront également testées en conditions statiques vis-à-vis de la capture de Xe et de Kr, au moyen d'isothermes d'adsorption à différentes températures.

En résumé, le doctorant aura l'opportunité de mener ce travail au sein de différentes équipes de recherche (IRSN + UCCS), tout en profitant de la complémentarité des dispositifs d'essai (tests d'adsorption multi-échelles) et de méthodologies (synthèse et caractérisation des adsorbants, étude des mécanismes...).

Profil :

Bac +5 : Master 2 ou école d'ingénieur en chimie, physique, matériau ou nucléaire

Idéalement, connaissances des techniques de chimie analytique et/ou analyses de surface ; synthèses organiques (MOF) ; goût prononcé pour le travail expérimental.

Information sur la thèse :

Salaire : ~1800 € net /mois + prise en charge des frais d'inscription à l'école Doctorale par l'IRSN

Personnes à contacter :

Philippe NERISSON (Tuteur IRSN), philippe.nerisson@irsn.fr, tel 04 42 19 95 88

Christophe VOLKRINGER (Directeur de Thèse, UCCS Lille), christophe.volklinger@centralelille.fr

Mechanisms involved in the stability of radioactive noble gases trapping in innovative porous materials

Location	IRSN Saclay (91) –UCCS Lille (59) + stays at IRSN Cadarache (13)
Duration	3 years
Starting date	10/2024

IRSN is a public institution with industrial and commercial activities (EPIC). IRSN's missions have been consolidated by the Act No. 2015-992 of 17 August 2015 concerning Energy Transition and Green Growth (TECV). IRSN is the national public expert on nuclear and radiological risks. IRSN contributes to public policies in the fields of nuclear safety and ionizing radiation protection for public health and environment. As a research and scientific institution it acts in consultation with all stakeholders concerned by these policies, while preserving its independence of judgment.

Thematic: Experiments to better understand trapping mechanisms of noble gases in porous Metal-Organic Frameworks

The trapping of noble gases (Kr, Xe) is an important issue for nuclear safety. These gases, produced by fission reactions within nuclear fuel, present radioactive isotopes which half-lives can reach few years. Chemically unreactive and very volatile, they are difficult to be trapped and separated. For nuclear plants, the issue mainly concerns accidental situations (hypothetical severe accident in a nuclear reactor or a spent fuel reprocessing plant). These radioactive noble gases can be therefore released to the atmosphere leading to significant doses.

The porous materials used classically for this trapping are mainly activated carbons and zeolites. For over a decade, new porous metal-polymer hybrid materials organized in a network, called MOFs (Metal-Organic-Framework), have appeared, with significant trapping capacities. These compounds are experiencing increasing success in view of their significant functionalization abilities linked to their organic ligand, and their potential selective gas adsorption properties.

In this context, the proposed thesis subject is a continuation of a first experimental study on this topic involving IRSN and UCCS. An important state of the art on noble gases trapping by porous compounds has been performed. The performed tests have allowed to highlight the key parameters to consider for noble gases trapping in dynamic conditions, where rare studies exist in the literature. According to the results obtained with stable isotopes of Xe and Kr, certain formulations appear to be potentially interesting for the capture of the considered noble gases by tailoring on both their chemical surface (ligand nature and impregnation) and porous structure. Nevertheless, further research is needed to design dedicated porous adsorbents for these noble gases capture.

Within this frame, the objective of the proposed thesis is to gain knowledge both on mechanisms involved in noble gases trapping within MOFs to optimize the most relevant structure, and also to study their retention efficiency with respect to radioactive isotopes of Xe and Kr, which can disrupt electronic interactions. Formulations to be optimized, by modifying the pore size, the nature of ligands and also the shaping (pellets, granules, etc) will be developed and characterized in order to selectively trap each of the considered gases. The performed tests with radioactive gas will allow to gain insights on the stability of the selected porous adsorbent towards radiation. The influence of temperature and humidity, or even certain other contaminants (NO_x), may also be studied with inactive noble gases.

A working period will be scheduled at UCCS (Lille), for the development (synthesis and shaping) and characterization (XRD, ATG, BET, etc.) of these innovative porous materials. Their performances will also be tested in static conditions with respect to the capture of Xe and Kr, using adsorption isotherms at different temperatures.

The selected PhD candidate will have the opportunity to manage this work within different research teams (IRSN + UCCS), while benefiting from the complementarity of test devices (multi-scale adsorption tests) and methodologies (synthesis and characterization of adsorbents, mechanism and stability study, etc.).

Candidate profile:

Master 2 degree or Engineering school with a speciality in chemistry, physico-chemistry, material science, nuclear science. Interest for experimental work. Knowledge of analytical chemistry technique, organic synthesis and /or surface analysis techniques would be a plus.

Practical informations:

Net salary: ~1800 € /month + tuition fees supported by IRSN

Contact:

Philippe NERISSON (Co-supervisor, IRSN), philippe.nerisson@irsn.fr, tel 04 42 19 95 88

Christophe VOLKRINGER (Thesis Director, UCCS Lille), christophe.volklinger@centralelille.fr