

## Sujet de thèse ED388

**Titre :** Etudes théorique de la remobilisation des produits de fission déposés sur les surfaces du circuit primaire en vue d'évaluation du terme source différé

Mots clés : terme source différé, chimie des surfaces, remobilisation de PFs, chimie théorique

**Direction :** M. Calatayud (LCT, Sorbonne Université, Paris, France) [calatayu@lct.jussieu.fr](mailto:calatayu@lct.jussieu.fr)  
S. Souvi (IRSN, Cadarache, France) [sidi.souvi@irsn.fr](mailto:sidi.souvi@irsn.fr)

**Déroulement :** oct.2020 – sept 2023. Les premiers six mois de la thèse sont prévus au LCT à Sorbonne Université, où aura lieu l'inscription (ED388) ; la suite est prévue à l'IRSN/LETR à Cadarache, avec des échanges réguliers prévus entre les deux sites.

**Financement :** le/la candidat.e sera salarié.e de l'IRSN avec une rémunération ~ 1600€/mois net, pendant 36 mois. Avantages des salariés de l'IRSN : intéressement, soutien du comité d'entreprise...

**Compétences requises :** Le/la candidate doit avoir un Master en Chimie ou Physique, et avoir effectué un stage de recherche dans un domaine proche de celui du sujet : chimie théorique, modélisation des matériaux. Une connaissance des logiciels de calcul de matériaux (VASP, QE, Gaussian) est nécessaire, ainsi que l'environnement unix. Des bases de programmation au niveau script (python, c+, fortran) sont fortement appréciées. Anglais oral et écrit requis, français souhaité.

**Description du sujet :** Lors d'un accident grave dans un réacteur nucléaire à eau pressurisée, une partie des produits de fission (PFs) est relâchée du cœur et transportée via le circuit primaire à l'enceinte de confinement puis, dans certaines situations, à l'environnement, dans des proportions variantes en fonction du scénario accidentel. Lors de ce transport, une fraction importante de ces PFs est déposée dans les différents compartiments parcourus et constitue un « potentiel réservoir » pour une remobilisation différée. L'évaluation du terme source nécessite une modélisation assez fine des phénomènes physico-chimiques que subissent les PFs lors de ce transport (réactivité en phase gazeuse, à l'interface, nucléation ...).

**L'objectif de cette thèse** est l'amélioration de notre capacité de prendre en compte les effets de la surface, en particulier la condensation non-congruente, dans l'outil de calcul développé à l'IRSN utilisé pour simuler les accidents graves, ASTEC/SOPHAEROS. Les phases condensées  $\text{MoO}_3(\text{c})$ ,  $\text{MoO}_2(\text{c})$  et  $\text{RuO}_2(\text{c})$  et leur réaction avec des espèces susceptibles d'être présentes dans le circuit primaire, seront caractérisées. Le/la thésard(e) aura comme mission de :

- (i) étudier, par calculs ab-initio, les réactions adsorbat-substrat et calculer leurs  $\Delta_f G_{adsorb}^\circ(T)$
- (ii) implémenter ces  $\Delta_f G_{adsorb}^\circ(T)$  dans le code de chimie-transport (ASTEC/SOPHAEROS) afin de modéliser une série d'expériences où le transport du ruthénium et du molybdène est étudié.

**Résultats attendus et compétences développées :** Cette thèse permettra au candidat.e de mettre en place et exécuter des approches permettant de résoudre des problèmes physico-chimiques à l'aide d'outils de simulation, en contact avec des chimistes expérimentateurs, dans le domaine du nucléaire

**Contact :** CV + lettre de motivation + lettre de recommandation à envoyer à

[sidi.souvi@irsn.fr](mailto:sidi.souvi@irsn.fr) [calatayu@lct.jussieu.fr](mailto:calatayu@lct.jussieu.fr)

avant le 25 mai 2020

## PhD project ED388

**Title :** Theoretical study of the fission products remobilisation on primary circuit surfaces for the evaluation of the differed source term

Keywords: delayed source term, surface chemistry, PFs' remobilization, theoretical chemistry

**Supervision :** M. Calatayud (LCT, Sorbonne Université, Paris, France) [calatayu@lct.jussieu.fr](mailto:calatayu@lct.jussieu.fr)  
S. Souvi (IRSN, Cadarache, France) [sidi.souvi@irsn.fr](mailto:sidi.souvi@irsn.fr)

**Dates, place :** Oct 2020- Sep 2023. First six months at LCT, Sorbonne Université, where registration will take place (ED388) ; the rest at IRSN/LETR in Cadarache, with regular contact between the two of them.

**Salary :** IRSN full-time PhD contract of ~ 1600€/month neto, 36 months

**Backgroug required :** Master degree in Chemistry, Physics or equivalent, with a research internship on theoretical chemistry, materials modelling or related. He/she must know materials modelling codes (VASP, QE, others) and Unix environment. Basic programming skills (python, fortran, c) script level is highly appreciated. Fluent in English oral/written, French recommended.

**Description :** In a severe nuclear accident in a pressurized water reactor, a part of the fission products (FPs) is released from the core and transported vis the primary circuit to the confinement vessel, and in some cases to the environment, in variable proportions according to the scenario. During such transport, an important fraction of the FPs is deposited on the different compartments visited and constitutes a potential reservoir for a differed remobilization. The evaluation of the source term needs a fine modelling of the physico-chemical phenomena related with the FPs in the transpost (gas-phase reactivity, interface, nucleation...)

**The goal of the present PhD project** is to improve our capacity to account for the surface effects, in particular non congruent condensation, in the calculation tool developed at IRSN used for severe accident, ASTEC/SOPHAEROS. The condensed phases  $\text{MoO}_3$ ,  $\text{MoO}_2$  and  $\text{RuO}_2$  and their reaction with the species present in the primary circuit, will be characterized. The PhD candidate will :

- (i) investigate, with ab initio calculations, the reactions adsorbate-substrate, and obtain their corresponding  $\Delta_f G_{adsorb}^\circ(T)$
- (ii) implement the values of  $\Delta_f G_{adsorb}^\circ(T)$  in the code chemical transport ASTEC/SOPHAEROS to model a series of experiments where Ru and Mo are involved

**Expected results and skills developped :** This PhD project will allow the candidate to master theoretical tools to model physico-chemical processes for interest in nuclear processes, in close contact with experimental groups.

**Contact :** CV + motivation letter + recommendation letter

[sidi.souvi@irsn.fr](mailto:sidi.souvi@irsn.fr) [calatayu@lct.jussieu.fr](mailto:calatayu@lct.jussieu.fr)

before May 25<sup>th</sup> 2020