

Étude théorique de la réactivité des aérosols de CsI et d'AgI en présence de gaz oxydants

En cas d'accident nucléaire grave dans une centrale nucléaire, l'iode rejeté dans l'atmosphère sera l'une des principales sources de radioactivité. Plusieurs travaux expérimentaux et théoriques ont permis de comprendre partiellement et de modéliser les mécanismes conduisant à la formation d'iode gazeux dans le circuit primaire de refroidissement de la centrale nucléaire.

Les travaux expérimentaux de D. Obada ont montré que, sous air, les aérosols CsI / AgI déposés sur des surfaces de type acier inoxydable conduisent à la formation de chromate de césium et d'iode volatil et que la vapeur d'eau tend à limiter la formation d'iode gazeux sans l'empêcher. D. Obada a également illustré l'influence du bore et des NOx sur la formation d'iode volatil dans le circuit primaire. Sous l'effet de la température, les aérosols de CsI déposés sur une surface d'or (chimiquement inerte) se décomposent partiellement en iode volatil (près de 20% dans les tests associés). Ceci indique l'existence de mécanismes de formation d'iode volatil se produisant à la surface de l'aérosol lui-même sans l'intervention du support sur lequel les aérosols se déposent. Ces résultats expérimentaux suggèrent des réactions chimiques impliquant CsI (g) / AgI (g) et / ou CsI (s) / AgI (s) (sous forme d'aérosols avant le dépôt sur une surface) et la phase gazeuse, en particulier les NOx et les espèces borées

H.Hijazi a montré par la chimie théorique que les particules CsI et AgI peuvent conduire à la formation de gaz I₂ en réagissant avec les radicaux HO[°], formés par la radiolyse de la vapeur d'eau, et que la formation d'iode n'est pas favorable thermodynamiquement dans l'absence d'oxydants.

L'objectif de cette thèse est donc de poursuivre le travail de modélisation du comportement de l'iode dans le circuit primaire et de déterminer l'effet des Nox et des borates sur la formation d'iode gazeuse. Pour ce faire, les éventuelles réactions chimiques conduisant à la formation d'iode gazeux dans le circuit primaire seront étudiées théoriquement, au niveau DFT, et les barrières énergétiques associées seront calculées pour les réactions les plus pertinentes pour estimer les vitesses de réaction de formation d'iode. Dans un second temps, la réaction la plus pertinente sera intégrée dans des programmes permettant de modéliser la diffusion du composé radioactif dans l'atmosphère (ASTEC / SOPHAEROS), les résultats théoriques seront ensuite comparés aux tests expérimentaux (CHIP, CHIP +, ESTER et PHEBUS). Enfin, des leçons pourront être tirées en ce qui concerne la sécurité des réacteurs.