

Discipline : Chimie (Ed. 104)

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : Laurent CANTREL

N° d'ordre : 40854

JURY :

Garant de l'habilitation : Jean-François PAUWELS

Rapporteurs : Laurent CATOIRE, Gérard COTE et Béla VISKOLCZ

Membres : Francis ABRAHAM, Jacques ROGEZ et Didier VOLA (membre invité)

TITRE :

Radiochimie des produits de fission dans un réacteur nucléaire à eau pressurisée en cas d'accident grave

RESUME :

Ce mémoire de HDR résume une quinzaine d'années de recherche, principalement dans le domaine du comportement physico-chimique et radiochimique des produits de fission dans un réacteur à eau sous pression en conditions accidentelles. En cas de rejets, de part l'importance en terme de conséquences radiologiques combinées à leurs aptitudes à former des espèces volatiles, l'iode et le ruthénium sont deux produits de fission qui focalisent beaucoup d'attention dans le cadre de l'actuel R&D sur les accidents graves. Depuis 2009, la majeure partie de ces travaux de recherche se réalise dans la cadre du laboratoire commun C³R créé entre l'IRSN et le laboratoire PC2A de l'université de Lille 1. Les deux thèmes principaux de recherche sont :

▪ **La chimie de l'iode**

La modélisation de la radiochimie de l'iode en phase gazeuse dans l'enceinte de confinement en lien avec la spéciation chimique de l'iode dans le circuit primaire a été l'objectif principal de ces dix dernières années de recherche.

Les principales avancées sont :

- une meilleure connaissance de la réactivité de l'iode en phase gazeuse dans le circuit primaire et la prise en compte de limitations cinétiques dans la modélisation. Ce point fait l'objet de recherches intensives pour aboutir à un modèle prédictif applicable aux conditions accident grave ;
- la prise en compte de la réactivité des produits de la radiolyse de l'air vis à vis de l'iode moléculaire et des iodures organiques ;
- l'intégration récente dans les évaluations de terme-source des oxydes d'iode qui forment de fines particules par nucléation ;
- la réduction des incertitudes relatives aux modèles de production des iodures organiques et de transfert de matière.

Les axes de recherche à moyen terme sont principalement la stabilité chimique des aérosols d'iode (oxydes ou particules métalliques) ainsi que le développement de systèmes de filtration spécifiques au piégeage des iodures volatils pour intégrer le volet mitigation dans la R&D conduite. A plus long terme, lorsque les rejets auront été parfaitement caractérisés et évalués, il faudra intégrer dans les codes de dispersion un schéma réactionnel des espèces iodées dans l'atmosphère, absent à ce jour dans les outils dits de crise.

▪ **La chimie du ruthénium**

La modélisation de la radiochimie du ruthénium dans l'enceinte de confinement a permis de démontrer la persistance d'une fraction volatile sous forme tétraoxyde de ruthénium, RuO₄(g) malgré sa décomposition relativement rapide en atmosphère humide. Une source importante de formation provient de l'oxydation sous rayonnements ionisants des dépôts d'aérosols de RuO₂. Reste à connaître la quantité et la nature du ruthénium susceptible d'arriver dans l'enceinte de confinement après son transit dans le circuit primaire. Le challenge est de caractériser la réactivité des oxydes de ruthénium. Pour cela, un programme expérimental couplé à une approche de modélisation par chimie théorique devrait nous permettre de construire un modèle prédictive.

La finalité de ces recherches est de progresser dans la compréhension des phénomènes chimiques ayant un impact sur les évaluations de sûreté. Les modèles développés et validés sont ensuite intégrés au code de simulation des accidents graves ASTEC pour l'IRSN pour intégrer l'état de l'art dans le domaine de la R&D sur les accidents graves.

Soutenance le 11 juillet 2012 à 10h00 Heures

Lieu : INSTN Cadarache, 13115 Saint Paul lez Durance