



Indiquer dans ce cadre une éventuelle
mention spéciale (Cotutelle, confidentiel)

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE

NOM-PRENOM DU CANDIDAT(E) : JADON Ankita

- Ecole doctorale : SMRE
- Unité de Recherche : PC2A
- Discipline : Chimie théorique, physique, analytique
- Si cotutelle, établissement partenaire :

JURY :

- Directeur(s)-rice(s) de thèse : Pr. Denis PETITPREZ – Université de Lille, Dr. Sidi Souvi – IRSN
- Rapporteurs : Dr. Sophie SOBANSKA - Université de Bordeaux, Dr. Monica CALATAYUD - Université Pierre and Marie Curie
- Examineurs (rices) :Pr. Gérard Côte, Ecole Nationale Supérieure de Chimie Paris, Pr. Olivier Tougait, Université de Lille
- Membres invités : C. Latge, CEA, Dr. N. Girault, IRSN

SOUTENANCE : 20th July 2018, 10:30 Salle de cinéma Midic, St. Paul Lez Durance

TITRE DE LA THESE :

Interactions between sodium carbonate aerosols and iodine fission-products

RESUME :

L'analyse de sûreté des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium de Génération IV nécessite l'étude des conséquences d'un accident grave en cas de rejet dans l'environnement du sodium et des radionucléides qu'il transporte (terme source chimique et radiologique). Le terme source global dépend donc à la fois de la spéciation chimique des aérosols de sodium, issus de la combustion du sodium dans l'enceinte, et de leurs interactions avec les radionucléides. Au cours de cette thèse, les interactions entre le carbonate de sodium et les produits de fission gazeux iodés (I_2 et HI) ont été étudiées aux échelles atomique et macroscopique, via une double approche théorique et expérimentale. Une expression analytique de l'isotherme d'adsorption a été développée. La stabilité relative des surfaces du carbonate de sodium a été déterminée par des calculs ab

initio utilisant la théorie de la densité fonctionnelle. La réactivité de l'iode a été étudiée pour les surfaces les plus stables et les isothermes d'adsorption évaluées. En parallèle, la cinétique de capture de l'iode moléculaire par le carbonate de sodium a été déterminée expérimentalement pour différentes conditions.

L'ensemble des résultats montrent une capture efficace de l'iode moléculaire par le carbonate de sodium à 373 K, variant selon la pression partielle d'iode et la surface du carbonate. Pour les conditions représentatives d'un accident grave, les sites d'adsorption de la surface de carbonate de sodium la plus favorable seront majoritairement vides ou doublement occupés selon la pression partielle d'iode moléculaire, conduisant à une pression d'équilibre inférieure à 2×10^{-4} bar à 373 K.



Enter here any special mention
(Co-tutelle thesis, confidential)

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE

NAME-SURNAME OF THE CANDIDATE: JADON Ankita

- Doctoral School: SMRE
- Laboratory: PC2A
- Discipline: Theoretical chemistry, physical and analytical chemistry
- In case of co-tutelle thesis, provide the partner institution:

THESIS COMMITTEE:

- **Thesis supervisor(s):** Prof. Denis PETITPREZ – Université de Lille, Dr. Sidi Souvi – IRSN
- **Referees:** Dr. Sophie SOBANSKA - Université de Bordeaux, Dr. Monica CALATAYUD, Université Pierre et Marie Curie
- **Examiners:** Pr. Gérard Côte, Ecole Nationale Supérieure de Chimie Paris, Pr. Olivier Tougait, Université de Lille
- **Invited members** C. Latge, CEA, Dr. N. Girault, IRSN

DEFENSE: (20th July 2018, 10:30 Salle de cinéma Midic, St. Paul Lez Durance)

TITLE OF THE THESIS:

Interactions between sodium carbonate aerosols and iodine fission-products

ABSTRACT:

The safety analysis of Generation IV sodium-cooled fast neutron reactors requires the study of the consequences of a severe accident in case of release into the environment of sodium and the radionuclides it carries (term chemical and radiological source). The global source term therefore depends on both the chemical speciation of sodium aerosols, resulting from the combustion of sodium in the containment, and their interactions with radionuclides. During this thesis, the interactions between sodium carbonate and iodinated gaseous fission products (I_2 and HI) were studied at the atomic and macroscopic scales, via a combined theoretical and experimental approach. An analytical expression of the adsorption isotherm has been developed. The relative stability of the sodium carbonate surfaces was determined by ab initio calculations using density functional theory. The reactivity of iodine has been studied for the most stable surfaces and the adsorption isotherms evaluated. In parallel, the kinetics of capture of molecular iodine by sodium carbonate has been determined experimentally for different boundary conditions. The results show an effective capture of the molecular iodine by sodium carbonate at 373 K, varying according to the partial pressure of iodine and the surface of the carbonate sorbent. For the representative conditions of a severe accident, the adsorption sites of the most favorable sodium carbonate surfaces will be mostly bare or doubly occupied depending on the partial pressure of molecular iodine; leading to an equilibrium pressure of less than 2×10^{-4} bar at 373 K.