

**DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

**N° d'ordre :**

**NOM/PRENOM DU CANDIDAT : OBADA Dorel**

Ecole doctorale : ED104 Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Laboratoire : Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère (PC2A)

Discipline : Chimie et chimie physique

Si cotutelle, établissement partenaire :

**JURY :**

- Directeur(s) de thèse : Laurent GASNOT, Pr. Université Lille 1
- Encadrants : Anne-Cécile GREGOIRE, Ingénieur-Chercheur IRSN ; Anne-Sophie MAMEDE, MdC ENSC Lille
- Rapporteurs : Gérard COTE, Pr. Chimie ParisTech ; Anouk Galtayries, MdC HDR Chimie ParisTech
- Examineurs : Jean-François PAUL, Pr. Université Lille 1 ; Sophie SOBANSKA, CR CNRS ISM Bordeaux ; Mathieu JAMET, Ingénieur EDF

**SOUTENANCE : 04/12/2017 à 13h30 au Château de Cadarache**

**TITRE DE LA THESE :**

Evaluation de rejets moyen-terme en situation accidentelle grave d'un Réacteur à Eau Pressurisée : étude expérimentale de la re-vaporisation de dépôts de produits de fission (Cs, I)

**RESUME :**

En cas d'accident grave sur un Réacteur à Eau Pressurisée, l'évaluation de la quantité d'iode susceptible d'être rejetée dans l'environnement revêt une grande importance du fait de la radiotoxicité et de la volatilité de cet élément. Ainsi, une connaissance de tous les phénomènes physico-chimiques se produisant est nécessaire. Ce travail s'est focalisé sur la re-vaporisation, jusqu'à 750°C, de dépôts des PFs contenant de l'iode, particulièrement le CsI et l'AgI, depuis la surface du circuit primaire composée d'acier 304L, 316L et Inconel 600 partiellement oxydés. Les résultats ont montré une influence significative de la composition de l'atmosphère sur les quantités et les formes chimiques de césium et d'iode re-vaporisés. Ainsi, sous vapeur d'eau l'iode et le césium se re-vaporisent intégralement depuis la surface métallique, sous forme de CsI. En présence d'air, l'iode est relâché intégralement, sous forme d'I<sub>2</sub>(g) majoritairement, tandis que le césium est partiellement retenu à la surface sous forme de chromate de césium, résultant de l'interaction entre le césium et l'oxyde de chrome (III) de la couche d'oxyde. L'utilisation de la technique de spectroscopie optique en ligne IBB-CEAS a permis d'établir la cinétique de relâchement d'I<sub>2</sub>(g), celle-ci présentant deux pics de relâchement, indiquant l'existence de plusieurs mécanismes conduisant à la formation de cette espèce. Un résultat similaire a été observé pour la re-vaporisation d'AgI en présence d'air. Finalement, des calculs à l'équilibre thermodynamique ont été entrepris afin d'identifier les voies réactionnelles principales pouvant conduire à la formation d'I<sub>2</sub>(g) lors de la re-vaporisation de CsI en présence d'air.

**DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

N° order :

**NAME/SURNAME OF THE CANDIDATE : OBADA Dorel**

Doctoral School : ED104 Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Laboratory : Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère (PC2A)

Discipline : Chemistry and physical chemistry

In case of co-tutorial thesis, provide the partner institution :

**THESIS COMMITTEE :**

- Thesis supervisor(s) : Pr. Laurent GASNOT, Université Lille 1
- Thesis tutors : Dr. Anne-Cécile GREGOIRE, Research Engineer at IRSN ; Dr. Anne-Sophie MAMEDE, Mdc ENSC Lille
- Referees : Pr. Gérard COTE, Chimie ParisTech ; Dr. Anouk Galtayries, Mdc HDR Chimie ParisTech
- Examiners : Pr. Jean-François PAUL, Université Lille 1 ; Dr. Sophie SOBANSKA, CR CNRS ISM Bordeaux ; Mathieu JAMET, Engineer at EDF

**DEFENSE : 04/12/2017 at 13h30 at Chateau de Cadarache**

**TITLE OF THE THESIS :**

Assessment of medium-term radioactive releases in case of a severe nuclear accident on a Pressurized Water Reactor : experimental study of fission products re-vaporisation from deposits (Cs, I)

**ABSTRACT :**

In case of a severe nuclear accident on a Pressurized Water Reactor, radioactive fission products can be released in the environment and represent a hazard for the human. In order to better predict the progress of the accident and the release of fission products with the use of dedicated simulation tools, the knowledge of all physicochemical phenomena is necessary. This research is focused on the re-vaporisation, up to 750°C, of iodine-containing fission products' deposits, particularly CsI and AgI, from the surface of the primary circuit, composed of partially oxidized 304L, 316L steels and Inconel 600 alloy. The results have revealed a strong influence of the re-vaporisation atmosphere composition on the quantities and the chemical species nature of re-vaporized caesium and iodine. In steam atmosphere, iodine and caesium are released integrally from the surface, mainly as CsI. In presence of air, iodine is released integrally, mainly as I<sub>2</sub>(g), whereas caesium is partially retained on the surface of the steel as caesium chromate, resulting from the interaction between caesium and chromium (III) oxide present in the oxide layer. The use of an online optical spectroscopic technique such as IBB-CEAS allowed to follow the I<sub>2</sub>(g) re-vaporisation kinetics. The latter exhibits two release peaks, suggesting several mechanisms leading to I<sub>2</sub>(g) formation. A similar result has been observed during the re-vaporisation of AgI in presence of air. Finally, thermodynamic equilibrium computations have been performed in order to identify the main reaction pathways leading to the formation of gaseous molecular iodine in presence of air.