
Etude théorique de la chimie du cadmium dans le circuit primaire d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée

Fayçal Allouti^{*1,2}, Florent Louis^{1,2}, and Laurent Cantrel^{3,2}

¹Physicochimie des processus de combustion et de l'atmosphère (PC2A) – CNRS : UMR8522, Université Lille I - Sciences et technologies – Cité Scientifique - bâtiment C11 - 59655 Villeneuve D'Ascq Cedex, France

²Laboratoire Cinétique Chimique, Combustion, Réactivité (C3R) – CNRS : UMR8522, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), Université des Sciences et Technologies de Lille - Lille I – Centre de Cadarache, BP3, 13115 Saint Paul Lez Durance Cedex, France

³Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN, PSN-RES, SAG) – Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire – France

Résumé

Dans un réacteur nucléaire à eau pressurisée, la perte du contrôle de la réaction de fission peut conduire à une élévation importante de la température du combustible et des barres de contrôle, ce qui conduit à une fusion partielle de l'assemblage de combustible. Cette situation qualifiée d'accident grave se caractérise par l'émission de produits radioactifs dans le circuit primaire. De là, ils peuvent atteindre l'enceinte de confinement voire être relâchés dans l'environnement en cas de perte de confinement de l'enceinte.

Pour être capable de prédire avec précision les rejets, il est nécessaire d'étudier les espèces chimiques susceptibles d'être formées et de comprendre leurs évolutions et leurs réactivités dans le circuit primaire. L'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) développe un logiciel de simulation dénommé ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code) pour modéliser l'ensemble des phénomènes thermomécaniques et physicochimiques intervenant lors d'un accident grave. A cette fin, il est associé à une base de données thermocinétiques permettant de calculer la spéciation chimique des espèces en fonction de certains paramètres. Ce logiciel est validé sur un ensemble d'essais expérimentaux.

Ce travail se focalise sur les espèces contenant du cadmium (présent en grande quantité dans les barres de contrôle du réacteur), de l'oxygène et de l'iode (CdOH, Cd(OH)₂, CdI, CdI₂...). La détermination des propriétés thermochimiques (enthalpies standards de formation à 298 K, entropies molaires absolues à 298 K et capacités calorifiques à pression constante en fonction de la température) est réalisée à l'aide de calculs de chimie quantique et d'outils de thermodynamique statistique.

Plusieurs familles de fonctionnelles (GGA, meta-GGA, hybride) ont été utilisées ainsi que plusieurs types de bases d'orbitales atomiques. Nous présentons ici les résultats obtenus ainsi que les corrections dues au couplage spin-orbite pour certaines espèces.

Les résultats obtenus sont discutés par rapport aux données existantes dans la littérature.

*Intervenant

Mots-Clés: iode, cadmium, DFT, Spin orbite, propriétés thermochimiques