

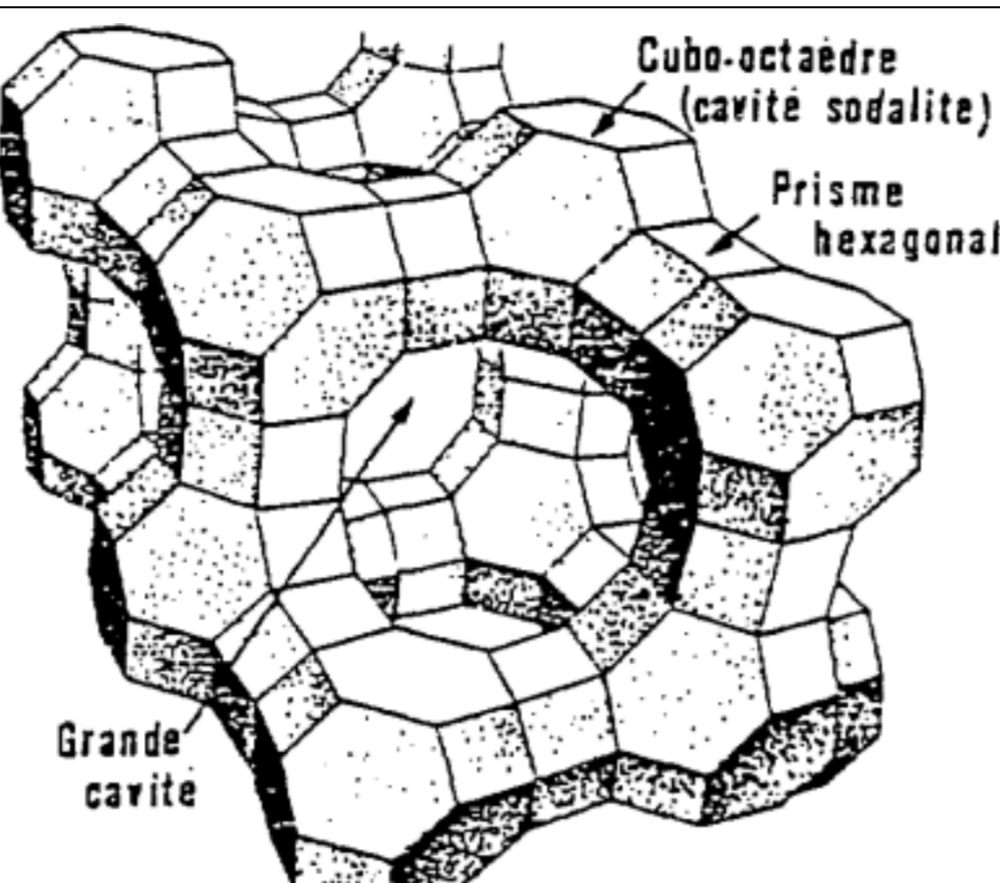
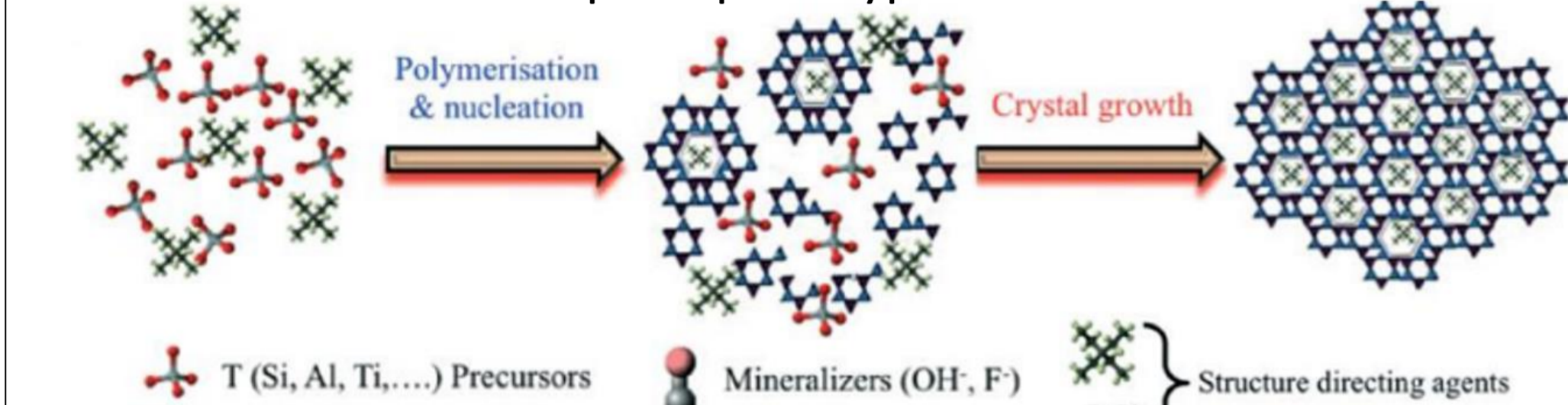
## Introduction

Aujourd'hui, les centrales nucléaires sont de type « réacteur à eau pressurisée » disposant de filtres à base de sable. Ce système ne retient pas tous les radionucléides, présentant donc un risque sanitaire. En cas d'accident nucléaire localisé au niveau du cœur, l'iode, naturellement présent sous forme  $I_2$  et  $CH_3I$ , ne sera pas retenu par les filtres actuellement présents. Des études ont établi de nouveaux systèmes de filtrations utilisant des matériaux poreux capables de retenir les molécules iodées volatiles. L'argent dispersé dans des zéolites de type faujasite a été retenu comme étant le meilleur média pour piéger  $I_2$  et  $CH_3I$  volatil. Ces approches ont permis l'avancement du projet MIRE (Mitigation des Rejets à l'Environnement en cas d'accident nucléaire), lancé en 2013 par l'IRSN. L'objectif majeur est la limitation des rejets radioactifs dans l'environnement en cas d'accident majeur.

Des zéolites faujasites X et Y, quelle est la meilleure candidate pour capter les molécules iodées volatiles dans les filtres d'éventages ?

## I. Zéolithe à l'argent

Ce sont des minéraux aluminosilicatés hydratés microporeux produits artificiellement. Les faujasites sont une famille de zéolithe à large pore et sont utilisés comme adsorbants de molécules organiques pour la purification de l'air et la décontamination moléculaire en orbite. Il en existe deux principaux types : X et Y.



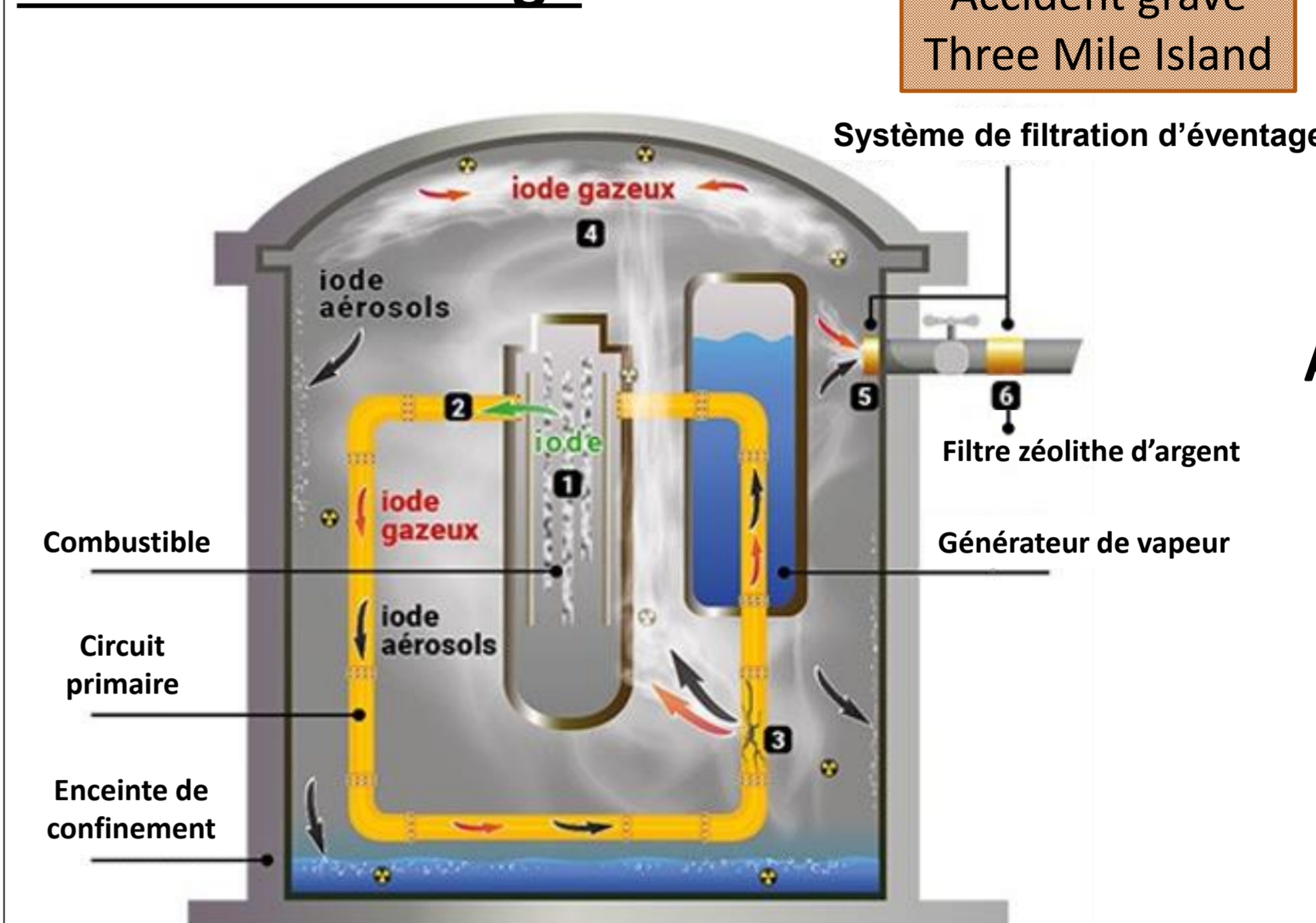
Zéolithe Faujasite	X	Y
Rapport Si / Al	Faible	Elevé
Taille pores	Large	Large

Tableau 1 : Caractéristique X et Y

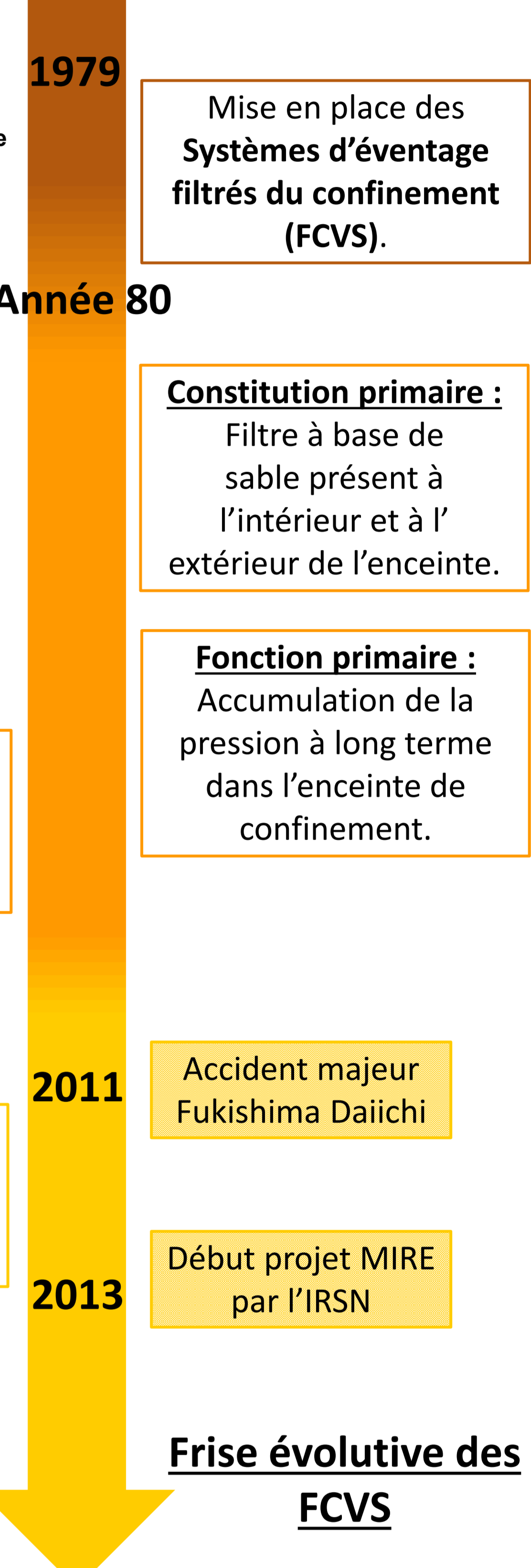
Les rapports en silice et aluminium, Si / Al, influencent la cristallisation, la taille et la distribution des cristaux des zéolites (voir figure 3)

Il s'avère que les zéolites faujasites, enrichies à l'argent, sont les matériaux les plus prometteurs pour capter l'iode volatil en raison de la large taille des pores (voir tableau 1)

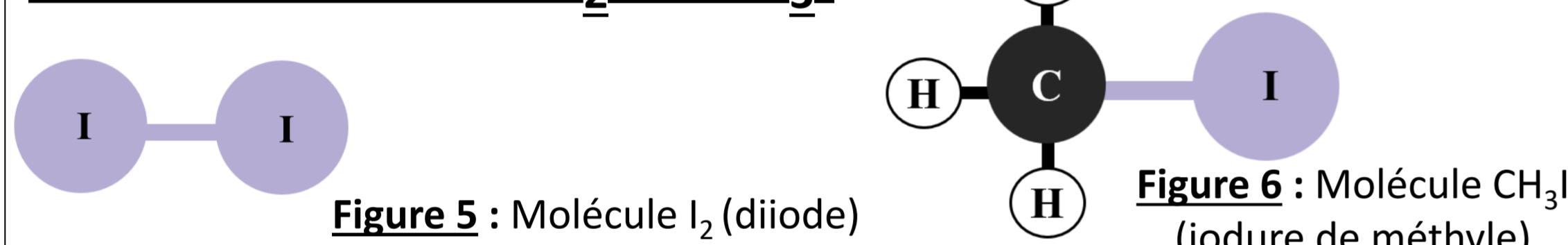
## II. Filtre d'éventage



Objectif : limiter les rejets radioactifs dans l'environnement mais aussi éviter les défaillances de l'enceinte par surpression (voir figure 4)



## III. Iode Volatile : $I_2$ et $CH_3I$



L'iode-131 est un produit de la réaction de fission de l'uranium et du plutonium. Il se situe au niveau du cœur du réacteur. En cas d'accident nucléaire majeur, l' $I^{131}$  produit de l'iode gazeux :  $I_2$  et  $CH_3I$ . En cas d'échappement du réacteur, ces molécules sont néfastes pour la santé.

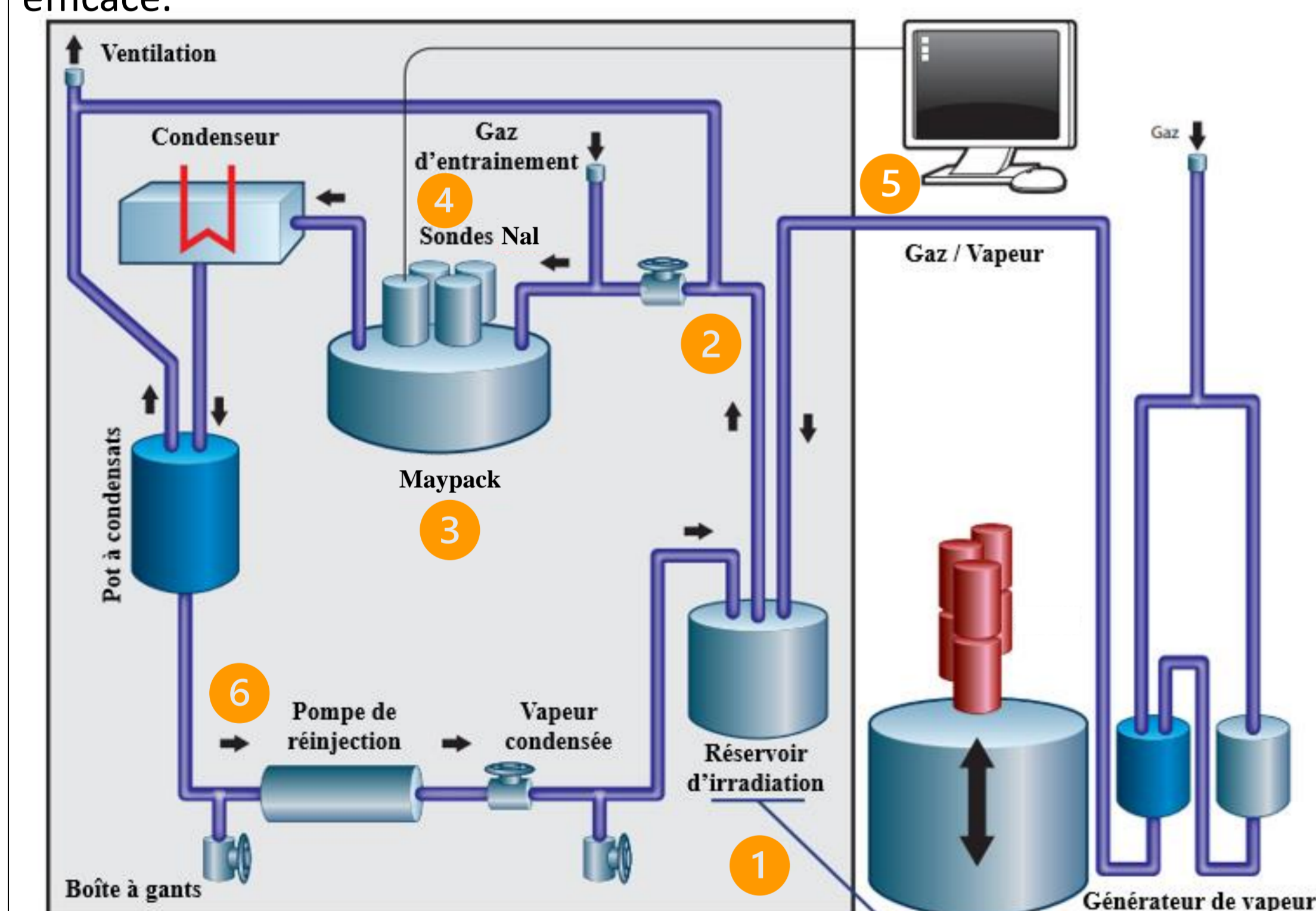
## IV. Expérience zéolithe faujasite d'argent X et Y

Objectif : Savoir quelles zéolites faujasites X ou Y est préférable et quelle concentration en argent rend la captation d'iode plus efficace.

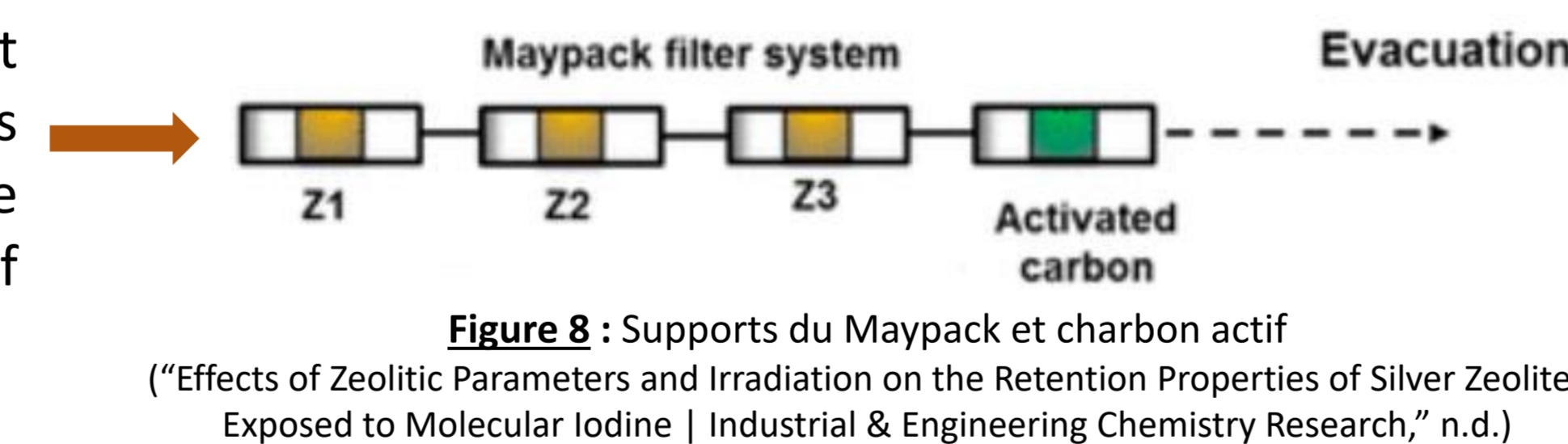
Principe de l'installation Epicure : Utilisée pour vérifier la stabilité du piégeage de l'iode par les zéolites enrichies en argent par échange d'ions dans une situation d'irradiation.

Etapes expérience EPICUR (voir figure 7) :

- 1 Pré irradiation : le réservoir d'irradiation est chauffé à  $120^\circ C$ , pressurisé à 3,5 bar sous une humidité d'air de 60%.
- 2 Transfert des espèces iodées volatiles vers le Maypack par revolatilisation.
- 3 Dispositif Maypack ★
- 4 Mesure en continue pour quantifier la quantité des espèces volatilées puis piégées dans les zéolites.
- 5 Comparaison des mesures des supports zéolites (10% d'incertitude).
- 6 Le Maypack est relié à un condenseur et un pot à condensat afin de recueillir l'eau puis la réinjecter dans le réservoir d'irradiation.



★ Dans le Maypack, les zéolites faujasites 35Ag/13X ou Ag/Y sont testées. Les zéolites étudiées ont été chargées dans chacun des trois supports identiques (Z1, Z2, Z3). Le support final rempli de charbon actif permet d'éviter toute perte d'iode gazeux radioactif pendant l'expérience (voir figure 8).



## Conclusion

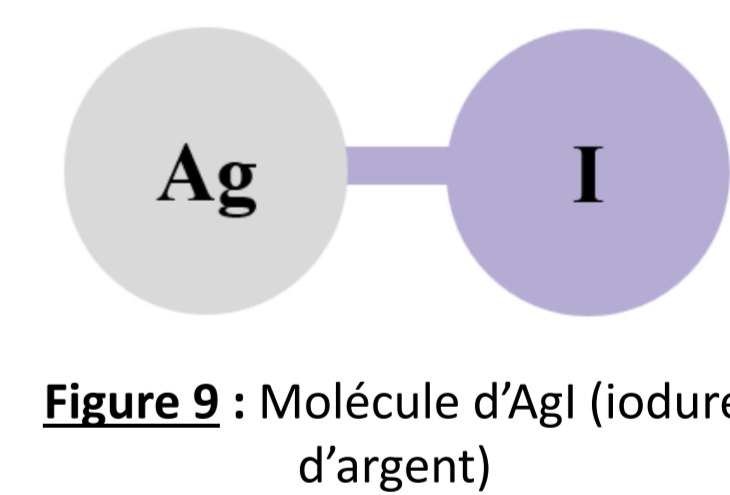
Bien que les espèces iodées gazeuses  $I_2$  et  $CH_3I$  soient de natures chimiques différentes, les zéolites faujasites Ag/Y semblent être les mieux adaptées pour leurs absorptions. L'enrichissement en argent de cette zéolithe d'une teneur de 23% offre les meilleures capacités d'absorption et de stabilité de piégeage de l'AgI. Elle est alors la meilleure candidate pour la rétention de l'iode dans les filtres d'éventages de l'enceinte de confinement. En ce qui concerne les zéolites faujasites Ag/X, la captation d'iode volatil est réversible et n'apporte pas une stabilité de rétention optimale. Dans le cadre du projet MIRE de l'IRSN, ces essais semblent se diriger en faveur de la création de nouveaux FCVS limitants davantage le probable relargage d'espèces iodées volatiles en cas d'accident majeur.

## V. Résultats

Les activités mesurées sur les supports zéolithiques du Maypack avant et après le test d'irradiation sont similaires, ce qui indique une absence de revolatilisation de l'iode.

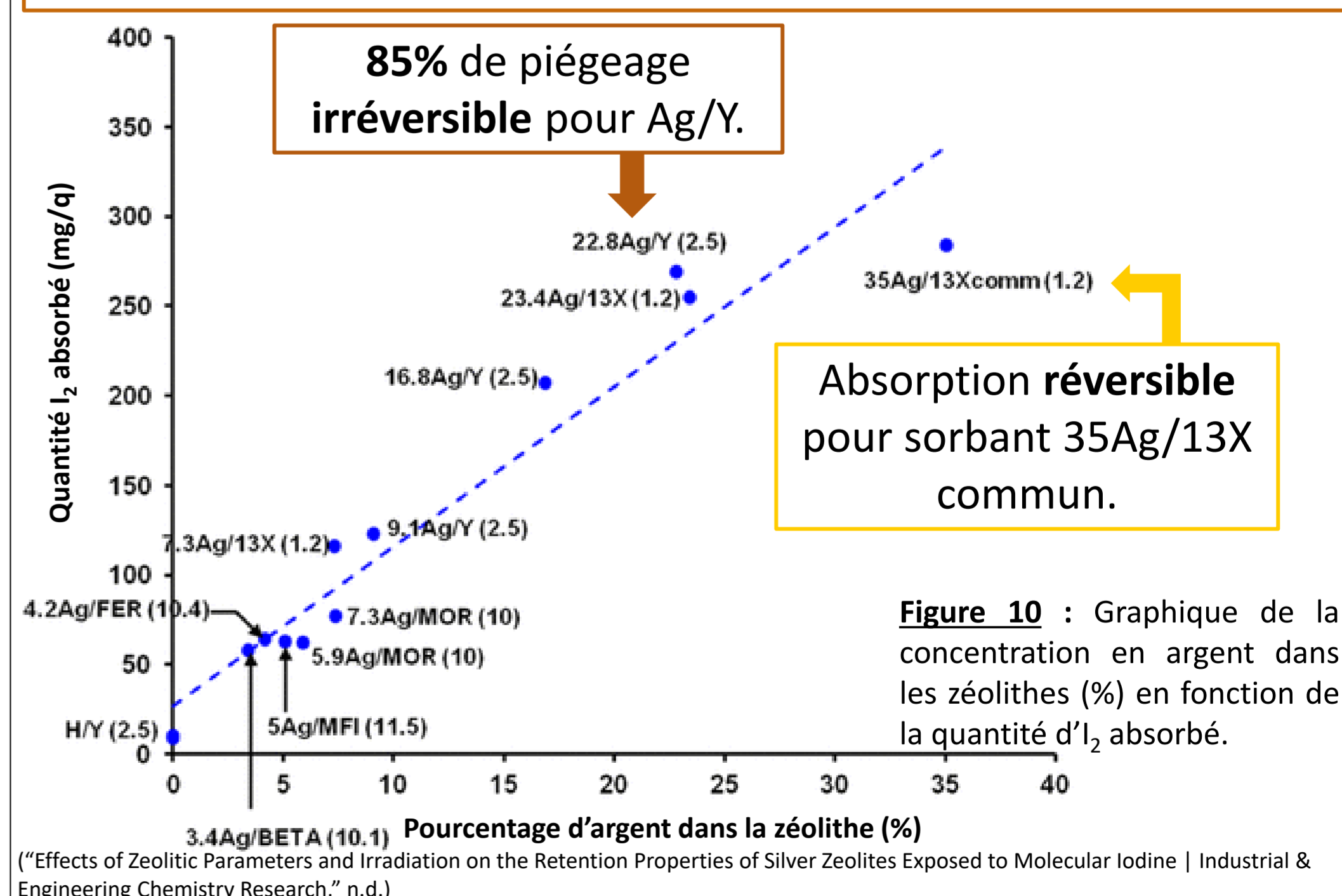
Zéolites faujasites enrichies à l'argent utilisées :

- Ag/Y pour zéolites faujasites Y enrichies à l'argent.
- 35Ag/13X pour zéolites faujasites X communes enrichies à 35% d'argent.



In fine, au cours de l'absorption de  $I_2$  et  $CH_3I$  par les zéolites faujasites X et Y il y a eu formation d'AgI (iodure d'argent).

Différentes teneurs en argent ont été testé pour les faujasites X et Y. Toutes n'ont pas donné les mêmes résultats (voir figure 10)



Azambre, B., Chebbi, M., 2017. Evaluation of Silver Zeolites Sorbents Toward Their Ability to Promote Stable  $CH_3I$  Storage as AgI Precipitates. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 9, 25194–25203. <https://doi.org/10.1021/acsami.7b02366>

Borel, M., n.d. Synthèse de nanocristaux de zéolithe Y stabilisés en absence d'agent organique structurant 221. CAHIER PARTENAIRE IRSN / POUR LA SCIENCE décembre 2020 [WWW Document], n.d. URL <https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/aktis-lettre-thematiques/cahier-partenaire-Pour-la-science/Pages/Cahier-partenaire-PLS-n4-iodo.aspx> (accessed 12.9.22).

Cantrel, L., 2018. Effects of Zeolitic Parameters and Irradiation on the Retention Properties of Silver Zeolites Exposed to Molecular Iodine. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.7b03579>

Chebbi, M., n.d. Piégeage d'espèces iodées volatiles sur des adsorbants poreux de type zéolithique dans le contexte d'un accident nucléaire grave 361.

Effects of Zeolitic Parameters and Irradiation on the Retention Properties of Silver Zeolites Exposed to Molecular Iodine | Industrial & Engineering Chemistry Research [WWW Document], n.d. URL <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/acs.iecr.7b03579> (accessed 12.9.22).

Jacquemain, D., Guentay, S., Basu, S., Sonnenkalb, M., Lebel, L., Allele, H.-J., Liebana, B., Eckardt, B., Ammirabile, L., 2015. Circuits d'éventage filtré des enceintes de confinement dans les pays de l'OCDE. *Rev. Générale Nucl.* 50–63. <https://doi.org/10.1051/rgn/20154050>

Le projet Mire [WWW Document], n.d. URL <https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Organisation/Programmes/projet-Mire/Pages/projet-Mire.aspx?YSM3nIKZPN> (accessed 12.9.22).

PSN\_FICHE\_Installation\_EPICUR\_FR\_ver260515.pdf, n.d.

Zéolites - De la synthèse aux applications : Dossier complet | Techniques de l'ingénieur [WWW Document], n.d. URL <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/fabrication-des-grands-produits-industriels-en-chimie-et-petrochimie-42319210/zeolites-i6675/> (accessed 12.9.22).