

PIEGEAGE ET DESORPTION DE L'IODE DANS LES
REACTEURS GRAPHITE GAZ.

- J. BARBIER - Département de Radioprotection
Electricité de France
- G. BENEZECH - DSN/SESR
Commissariat à l'Energie Atomique
- B. CADET - Centre de Production Thermique de Chinon
Electricité de France
- J. MIRIBEL - DSN/SESR
Commissariat à l'Energie Atomique
- P. SIGLI - DPr/STEPPA
Commissariat à l'Energie Atomique

Résumé

Les mesures d'exploitation effectuées dans les six réacteurs de type graphite-gaz exploités par Electricité de France ont permis de supposer l'existence de phénomènes de piégeage de l'iode par les structures internes.

Dans le but de confirmer cette hypothèse, une expérience fut entreprise sur le réacteur de Chinon 1. Elle consistait en l'injection d'iode radioactif dans le circuit primaire et en l'étude de l'évolution de sa concentration et de sa forme physico-chimique.

Les résultats montrent que la transformation de l'iode moléculaire en formes pénétrantes est très rapide. On observe une vitesse importante de piégeage par les structures internes. Le phénomène de désorption est lent.

Abstract

In the six gas-cooled reactors, which are operated by Electricité de France, the usual analyses have been leading us to suppose the being of iodine absorption phenomena by internal structures.

In order to corroborate this hypothesis, a test was attempted in Chinon 1 reactor. It consisted in the study of activity evolution and physico-chemical form of iodine after having introduced molecular ^{131}I in the coolant.

The results show a very quick transformation of molecular iodine in penetrating forms. The trapping speed by internal structures is high, the desorption phenomenon is slow.

Introduction

Les six réacteurs de type graphite-gaz exploités par Electricité de France présentent à des niveaux différents d'un réacteur à l'autre, des contaminations en produits de fission résultant de pollution se présentant sous diverses formes.

Parmi les radionucléides produits, les iodes et plus particulièrement ^{131}I font l'objet d'une surveillance soutenue.

Les mesures d'exploitation effectuées dans des conditions opératoires les plus variées montrent systématiquement une activité volumique en ^{131}I beaucoup plus faible que celle que l'on pourrait logiquement attendre de la pollution en Uranium du coeur des réacteurs. C'est ainsi que le rapport entre les activités en ^{131}I calculée et mesurée se situe selon le réacteur et son état de pollution entre 1000 et 10 000. Cette estimation repose sur l'hypothèse que la majeure partie des gaz nobles de fission émis reste dans le fluide caloporteur et que la répartition de l'iode et des gaz nobles entre les différents milieux constituant le réacteur (Uranium, fluide caloporteur, structures internes) se fait

dans les mêmes proportions.

L'importance de ce rapport nous a conduits à envisager un piégeage de l'iode par les structures internes du réacteur et à entreprendre des expériences destinées à mettre ce phénomène en évidence.

L'une d'entre elles, qui fait l'objet de cet exposé, consistait en une injection de quelques Curies d' ^{131}I dans le fluide caloporteur du réacteur de Chinon 1 et à étudier l'évolution de l'activité volumique ainsi que celle de la proportion des formes pénétrantes d'iode.

Conditions expérimentales

Chinon 1 est le premier réacteur à Uranium Naturel, modéré au Graphite et refroidi au Gaz Carbonique, construit et exploité par Electricité de France. La première divergence a eu lieu le 16 Septembre 1962, le premier couplage au réseau est intervenu le 14 Juin 1963. Les principales caractéristiques en sont reportées sur le schéma, figure n°1, qui présente le principe du circuit primaire et permet de localiser les points d'injection de l'iode et de prélèvements.

Dispositif d'injection

Le procédé de génération était fondé sur l'échange isotopique entre du radio-iodure de sodium sous forme solide et des vapeurs d'iode naturel.

Le dispositif d'injection se composait, en série, d'un réservoir de ^{127}I moléculaire et d'un générateur contenant environ 4 Ci de radio-iodure de sodium. Le réservoir de ^{127}I était pourvu d'un circuit de contournement destiné à assurer le réchauffage des circuits avant la génération proprement dite de ^{131}I .

Dispositifs de prélèvement

Le matériel de prélèvement était constitué de "Porte-charbon de Contrôle" doubles¹, d'une part et de dispositifs de type "May-Pack"² d'autre part.

Les Porte-charbon de Contrôle devaient permettre de suivre l'évolution de l'activité volumique totale en ^{131}I du fluide caloporteur. Chaque Porte-charbon de Contrôle était constitué de deux couches successives, de 5 cm d'épaisseur chacune, de charbon imprégné à l'iodure de potassium. Les conditions d'utilisation étaient les suivantes : débit de gaz prélevé 2 m³/h, vitesse frontale sur le charbon 20 cm/s, température du gaz analysé inférieure à 50°C.

Les dispositifs de type May-Pack étaient constitués, successivement dans le sens d'écoulement du gaz échantillonné de :

- 1 filtre en laine de verre comprimée destiné à arrêter ^{131}I fixé sur les aérosols.
- 7 couches de "knit-mesh" en laine de cuivre argenté dans le but de retenir l'iode moléculaire.
- 3 couches de charbon non imprégné.
- 6 couches de charbon imprégné au triéthylènediamine (TEDA).
- 1 filtre en laine de verre comprimée pour arrêter les produits d'érosion des charbons.

Les couches de charbon avaient pour but de retenir les formes pénétrantes de l'iode. Chaque couche d'absorbant avait une épaisseur de 1 cm.

Deux dispositifs de type May Pack, prévus pour fonctionner à la pression du circuit primaire, furent placés, l'un à l'amont, l'autre à l'aval du réacteur. Leur but était de fournir des résultats intégrés sur la durée totale de l'expérience. Le débit de gaz prélevé s'élevait à 1 m³/h.

Les autres appareils, fonctionnant à la pression atmosphérique avaient pour but, de fournir des renseignements sur l'évolution dans le temps de chaque forme d'iode, moléculaire ou pénétrante. Le débit de prélèvement était réglé à 2 m³/h.

Les prélèvements effectués par les dispositifs de type May-Pack destinés à fournir des résultats intégrés sur la durée de l'expérience seront désignés par l'expression prélèvements continus. Les prélèvements effectués à l'aide des autres dispositifs de type May-Pack seront appelés discontinus.

Méthodes de mesure

Les activités ont été mesurées à l'aide de sélecteurs 400 et 4000 canaux à détecteur I Na (4x4in) et Ge-Li.

Déroulement de l'expérience

L'ensemble de l'expérimentation s'est déroulé selon trois phases. L'activité volumique de ^{131}I résultant de la pollution du réacteur avait été préalablement mesurée.

La première phase couvrait l'injection et les évolutions rapides à court terme. L'évolution escomptée de l'activité volumique de ^{131}I étant rapide, il était indispensable d'effectuer des prélèvements de courte durée (5 mn) avec une périodicité de 10 mn. Il était donc nécessaire d'injecter une quantité de ^{131}I suffisante pour que les activités recueillies durant cette première phase soient mesurables.

La seconde phase avait pour objet de suivre l'évolution de l'activité volumique de ^{131}I , dans les conditions normales d'exploitation du réacteur. Les faibles activités volumiques du CO_2 nécessitaient alors des prélèvements de durée accrue (15 mn, puis 30 mn, puis 60 mn).

La troisième phase devait permettre d'évaluer la rapidité de désorption des structures dans des conditions différentes c'est à dire réacteur à l'arrêt et circuits principaux vidangés.

Résultats expérimentaux

Une expérience préalable de génération fut effectuée en Laboratoire pour obtenir l'assurance que la production de formes pénétrantes d'iode ne devait être imputée qu'au réacteur ou au fluide caloporteur. Cette expérience consistait à générer ^{131}I en atmosphère de CO_2 de qualité commerciale. On a observé qu'au maximum 7‰ de l'iode généré était sous forme pénétrante.

On peut donc conclure de ce résultat que toute forme pénétrante constatée au cours de l'expérience principale est imputable à une transformation de l'iode moléculaire dans le réacteur ou les circuits principaux.

Forme physico-chimique de l'iode

Des prélèvements effectués avant l'injection sur dispositifs de type May-Pack ont montré une activité volumique en ^{128}I du fluide caloporteur de $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$, uniquement sous forme pénétrante. Nous n'avons pas pu déterminer avec certitude la source de cette pollution en ^{128}I qui ne peut être attribuée entièrement à l'activation de ^{127}I de fission. Il y a donc lieu de supposer que ^{128}I provient en majeure partie de l'activation d'iode naturel; de forme physico-chimique inconnue, introduit accidentellement dans le réacteur. Malgré ces inconnues, en raison des lois des réactions d'équilibre, on peut penser que les formes pénétrantes de l'iode sont prépondérantes en réacteur.

Les principaux résultats de l'expérience proprement dite sont les suivantes: 1°) Le tableau, figure n°2, regroupe les résultats des mesures d'activité volumique des deux formes de ^{131}I obtenues à partir des dispositifs de type May-Pack.

La colonne 1 indique l'heure de début de prélèvement décomptée à partir de l'instant origine T_0 correspondant à la fin de l'injection. La durée de chaque prélèvement était de 5 minutes. Les colonnes 2 et 3 indiquent l'activité volumique en ^{131}I respectivement sous forme moléculaire et sous forme pénétrante.

2°) La proportion d'iode moléculaire sur les prélèvements continus est voisine de 15% sensiblement identique pour les deux échantillons. Cependant, il y a lieu de signaler que le prélèvement effectué à l'amont du réacteur a été mis en service 12 mn après son homologue, effectué à l'aval du réacteur et que, de ce fait ces prélèvements ne permettent pas, à eux seuls, de conclure quant à la vitesse de formation des formes pénétrantes.

Les principales conclusions sont les suivantes :

1°) Il y a transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante à l'intérieur des circuits principaux. L'examen du tableau, figure n°2, permet de le constater.

2°) La transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante est rapide. En effet, les constatations sont les suivantes :

- la proportion d'iode moléculaire sur le prélèvement continu effectué à l'aval du réacteur est de 15%. Ce prélèvement a débuté au temps T_0 .

- l'échantillon discontinu prélevé à $T_0 + 5mn$ contient 1% d'iode moléculaire.

Il résulte de ces constatations que l'apport d'iode moléculaire sur le prélèvement continu a eu lieu au tout début de l'expérience.

D'autre part, on constate que le second échantillon effectué à $T_0 + 15mn$, à l'aval du réacteur, ne contient plus d'iode moléculaire en quantité mesurable.

La disparition de l'iode moléculaire est donc beaucoup plus rapide que celle des formes pénétrantes. La différence de comportement des deux formes peut être attribuée à la transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante.

3°) La transformation de l'iode moléculaire en forme pénétrante s'effectue au cours du passage dans le réacteur.

En effet, le premier prélèvement discontinu, effectué à $T_0 + 12mn$ à l'amont du réacteur, révèle une proportion d'iode moléculaire de 10%, alors que cette proportion n'est que de 1% sur le premier prélèvement discontinu effectué à l'aval du réacteur. Cette différence nous conduit à penser qu'une partie de l'iode généré est restée fixée sur les tuyauteries situées en amont du point de prélèvement amont. L'iode moléculaire retenu un temps relativement long sur les tuyauteries ne s'étant pas transformé, la conversion de l'iode moléculaire en forme pénétrante est imputable au passage dans le cœur du réacteur et s'effectue pratiquement complètement en un seul passage. Ce temps de passage est de l'ordre de 1 s.

La suite de l'exposé ne portera donc que sur l'évolution de l'iode sous sa forme pénétrante.

Evolution de l'activité volumique totale du fluide caloporteur en ^{131}I

Le diagramme, figure n°3, montre l'évolution de l'activité volumique en ^{131}I suivant deux échelles de temps. La largeur des segments verticaux correspond au temps de prélèvement. On constate que la diminution de l'activité volumique du CO_2 en ^{131}I est extrêmement rapide et que l'état d'équilibre est atteint au bout d'environ 80 heures. Les évolutions relevées à l'amont et à l'aval du réacteur sont identiques.

Ces résultats expérimentaux nous ont permis d'estimer que la constante de temps de piégeage de ^{131}I est inférieure à 10 mn.

Le niveau d'équilibre de l'activité de ^{131}I est resté constant à $4 \cdot 10^{-10}$ Ci/m³ jusqu'à l'arrêt du réacteur qui a eu lieu 20 jours après l'injection.

Désorption de l'iode

L'évolution de l'activité volumique de ^{131}I au cours de la période de fonctionnement aux conditions nominales a permis de fixer une limite inférieure à la constante de temps de désorption de l'iode. On a ainsi trouvé que cette constante de temps devait être plus grande que 40 jours. Il est en effet impos-

sible d'obtenir une meilleure précision en raison d'une activité volumique à l'équilibre en ^{131}I après injection trop peu différente de celle mesurée avant l'expérience.

L'objectif de la troisième phase de l'expérimentation était de déterminer la constante de temps de désorption de ^{131}I . Dans ce but, il fut procédé, à la pression atmosphérique, à un renouvellement aussi intense que possible de l'atmosphère des circuits, afin d'obtenir une activité volumique de ^{131}I la plus faible possible. Une soufflante auxiliaire, destinée normalement à l'évacuation de la puissance résiduelle avait été maintenue en service pour assurer l'homogénéisation de l'atmosphère. Le renouvellement ayant été arrêté, l'évolution de l'activité volumique de ^{131}I fut observée. Cette évolution est indiquée sur la figure n°4. On constate qu'elle présente un maximum au-delà duquel la pente de la courbe tend vers la période de ^{131}I .

La constante de temps de désorption pour les conditions de température et de pression (température moyenne du graphite : 65°C , pression atmosphérique) a été estimée à environ 105 jours.

Cette expérience a permis également de constater que le phénomène d'adsorption de l'iode varie avec les conditions de fonctionnement du circuit. Ainsi, dans les conditions de cette dernière expérience, la constante de temps d'adsorption s'élevait à environ 13 heures, valeur très supérieure à celle trouvée lors du fonctionnement nominal. Le débit de la soufflante auxiliaire étant très faible vis à vis du débit nominal du fluide caloporteur, il est très vraisemblable que le débit de gaz a une influence sur la vitesse d'adsorption de l'iode.

Conclusion

Dans les réacteurs graphite-gaz :

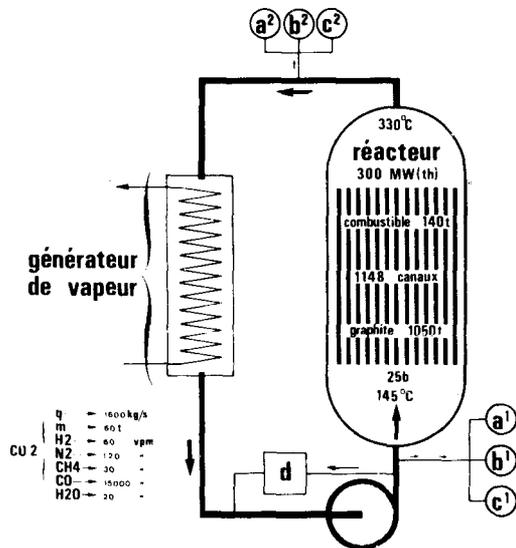
- 1°) Les formes pénétrantes de l'iode - et en particulier l'iodure de méthyle - sont des formes stables et rapidement prépondérantes en réacteur.
- 2°) Il y a piégeage rapide de l'iode par les structures internes. La constante de temps de piégeage, pour les conditions d'exploitation de Chinon 1, a été estimée inférieure à 10 minutes.
- 3°) Le phénomène de désorption est très lent.

Il faut, cependant, être très prudent dans l'utilisation de ces résultats, et en particulier ceux concernant l'adsorption, pour d'autres réacteurs et dans d'autres conditions. Il est, en effet, très probable que la vitesse de piégeage de l'iode dépend, entre autres paramètres, de la configuration des circuits et du réacteur, de la géométrie du canal et du débit de fluide caloporteur. On doit constater, en particulier, une différence de comportement de l'iode, pour un même réacteur, s'il est en marche nominale ou s'il vient d'être arrêté brusquement sur incident de combustible. Cette remarque est fondée sur des observations faites par ailleurs qui ont montré une augmentation appréciable d'activité volumique de ^{131}I alors que le réacteur venait de passer de la pleine puissance à la puissance nulle. Le seul facteur important dans cette évolution croissante semblait être la diminution importante du débit de fluide caloporteur.

Ainsi, en cas d'accident survenant sur le combustible, paraîtrait-il souhaitable de maintenir le débit maximal de fluide caloporteur après la chute de barres afin de conserver le plus longtemps possible le bénéfice des phénomènes décrits dans cet exposé.

Bibliographie

- | | |
|---------------------------|---|
| 1 - F. BILLARD - J. BRION | Contrôle des installations d'épuration de l'air.
Essais de conformité des éléments
Tests in situ. Rapport CEA R 3227-1967 |
| 2 - M.J.MEGAW and F.G.MAY | The behaviour of Iodine released in Reactor
Containers - J.of Nuclear Energy - 1962 |



prélèvements discontinus | c - porte charbon de contrôle
 | a - dispositifs de type "May Pack"
 prélèvements continus | b - dispositifs de type "May Pack"
 | à la pression du circuit
 d - générateur d'iode

Figure n°1 Schéma de principe du circuit primaire de Chinon 1 montrant l'implantation des prises d'injection et de prélèvement

Activité volumique des deux formes de ^{131}I		
Prélèvements discontinus		
temps	^{131}I moléculaire $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$	^{131}I forme pénétrante $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$
1	2	3
Amont réacteur		
$t_0 + 12 \text{ min}$	0,007	0,07
Aval réacteur		
$t_0 + 5 \text{ min}$	0,003	0,278
$t_0 + 15 \text{ min}$	non mesurable	0,05
$t_0 + 35 \text{ min}$	d'	0,02
$t_0 + 45 \text{ min}$	d'	0,01
$t_0 + 55 \text{ min}$	d'	0,005

Figure n°2 Activité volumique des deux formes d'iode obtenue à partir des dispositifs de prélèvements discontinus

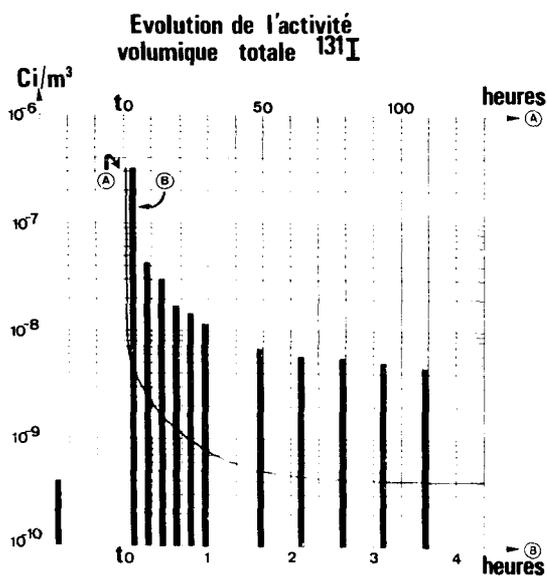


Figure n°3 Evolution de l'activité volumique totale ^{131}I en fonction du temps

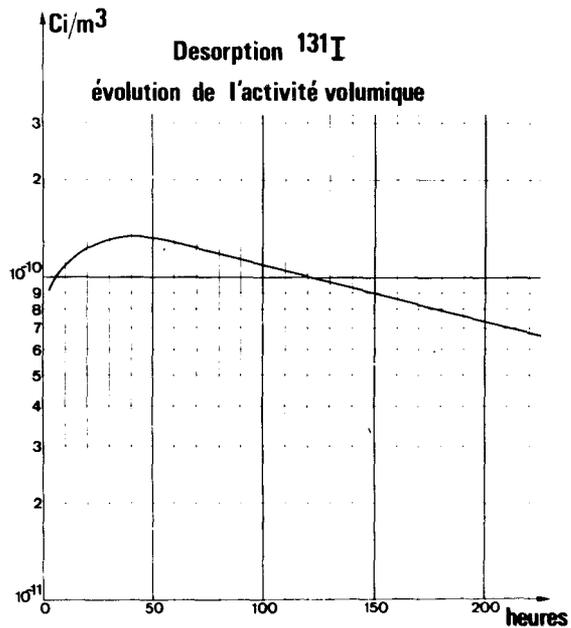


Figure n°4 Expérience de désorption de ^{131}I Evolution de l'activité volumique