HAL
open science

Caracterisation de la composition chimique des aerosols issus de la decoupe laser de simulants du corium

Emmanuel Porcheron, Yohan Leblois, Christophe Chagnot, Ioana Doyen, Christophe Journeau, Emmanuel Excoffier, Damien Roulet, Claire Dazon

To cite this version:

Emmanuel Porcheron, Yohan Leblois, Christophe Chagnot, Ioana Doyen, Christophe Journeau, et al.. Caracterisation de la composition chimique des aerosols issus de la decoupe laser de simulants du corium. Congrès Français sur les Aérosols 2020, CFA, Jan 2020, PARIS, France. hal-02635638

HAL Id: hal-02635638

https://hal.science/hal-02635638v1

Submitted on 27 May 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Copyright

CARACTERISATION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES AEROSOLS ISSUS DE LA DECOUPE LASER DE SIMULANTS DU CORIUM

C. Dazon*[1], E. Porcheron[1], Y. Leblois[1], C. Chagnot[2], I. Doyen[2], C. Journeau[3], E. Excoffier[4] et D. Roulet[5]

[1]Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, 91192 Gif-sur-Yvette, France
[2] Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), DEN/SEMT, Université Paris-Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France
[3] Commissariat à l'Energie Atomique, DEN/DTN/SMTA/LEAG, 13108 Saint-Paul-lez-Durance, France
[4] Commissariat à l'Energie Atomique, DEN/DMRC/SA2I/LMAC, 30207, Bagnols-sur-Cèze, France
[5]ONET Technologies, 26701 Pierrelatte, France
*Courriel de l'orateur : claire.dazon@irsn.fr

TITLE

Chemical characterization of airborne particles produced by laser cutting of corium simulants

ABSTRACT

In the context of Fukushima Daiichi fuel debris retrieval, several R&D projects have been launched and subsidized by the Japanese government to study and arrange operations for the corium retrieval. In this framework, a study carried out by ONET Technologies, CEA and IRSN laboratories demonstrated the feasibility of fuel debris cutting by the laser technique in air and underwater conditions. The characterization of aerosols released in terms of concentration and particle size distribution led to useful knowledge for transport and particle deposition for *in situ* management. Two fuel debris simulants were synthetized by CEA-Cadarache for this, and the DELIA facility at CEA-Saclay was used in cooperation with IRSN for aerosol characterization. However, a better occupational and environmental risk management requires the knowledge of both particle size distribution and chemical composition. This article presents the results related to the characterization of chemical composition and particle size distribution for a fuel debris simulant cut by laser technique in air condition on the DELIA facility.

RESUME

Dans le contexte du démantèlement des réacteurs de Fukushima Daiichi, plusieurs projets ont été subventionnés par le gouvernement japonais pour préparer les opérations de retrait du corium. Dans ce cadre, une étude conjointe menée entre ONET Technologies et les laboratoires du CEA et de l'IRSN a permis de démontrer la faisabilité de l'utilisation de la technique de découpe par laser et d'estimer le terme source aérosol ainsi généré. Deux simulants du corium synthétisés et caractérisés par le CEA-Cadarache ont fait l'objet d'essais de tirs laser sous air et sous eau au sein de l'installation DELIA du CEA Saclay, et les aérosols émis ont été caractérisés par l'IRSN. La caractérisation des particules émises en termes de concentration et de distribution granulométrique a permis d'apporter des informations pour prédire notamment le transport et le dépôt des particules, mais la connaissance de la composition chimique par classe de taille est une information nécessaire pour une meilleure gestion des risques professionnels et environnementaux. Cet article présente les résultats concernant la caractérisation de la composition chimique de l'aérosol d'un simulant du corium, en condition de découpe laser sous air, et la distribution granulométrique associée.

MOTS-CLÉS : Découpe laser, aérosol, composition chimique/ **KEYWORDS:** laser cutting, aerosol, chemical composition

1. CONTEXTE DE L'ETUDE ET RETOUR D'EXPERIENCE

Le retrait du corium au sein des réacteurs endommagés de la centrale de Fukushima Daiichi est une problématique qui présente de nombreux challenges en termes de technologie et de sûreté. Dans ce cadre, plusieurs projets de recherche et développement subventionnés par l'état japonais ont été initiés afin d'apporter des réponses à ce sujet. En particulier, le consortium français formé par la société ONET Technologies, le CEA et l'IRSN a été sélectionné afin de mettre en œuvre un programme d'étude relatif à l'utilisation de la technique de découpe par laser pour le retrait du corium. Cette technique a fait l'objet d'un retour d'expérience significatif (Georges *et al*, 2017). Le tableau 1 résume les actions principales affectées aux différents intervenants de ce projet de recherche concernant l'étude de la découpe laser durant les années fiscales japonaises 2016 et 2017.

Pour le projet, deux simulants du corium représentatifs des conditions d'accidents graves des réacteurs à eau bouillante de Fukushima Daiichi ont été étudiés. Ces matériaux, synthétisés au CEA-Cadarache et caractérisés au CEA-Marcoule (Journeau *et al*, 2018), ont été utilisés par la suite sur l'installation DELIA du CEA-Saclay pour la mise en œuvre de la découpe avec un laser de puissance sous air et sous eau (Chagnot *et al*, 2010 ; Porcheron *et al*, 2018). L'IRSN, en charge de la caractérisation des aérosols, a montré au cours de ces expériences que la distribution granulométrique des particules générées lors de la découpe présentait un premier mode compris entre 0,1 et 0,2 µm, et un second mode entre 2 et 10 µm, quel que soit le simulant, pour les conditions de découpe sous air. Pour les conditions sous eau, un mode a été observé pour les deux simulants dans la tranche granulométrique 0,1-0,4 µm. Par ailleurs, il a été montré que la concentration

massique des aérosols issus de la découpe différait entre les deux simulants et était atténuée jusqu'à 75% lors des expérimentations de découpe sous eau pour les hauteurs d'eau les plus élevées de l'ordre de 5 m (Porcheron *et al*, 2018). L'analyse de la morphologie des particules émises a montré que les aérosols étaient principalement de structure fractale. Quant à leur composition chimique globale, les aérosols sont essentiellement constitués des éléments de l'acier (Fer, Nickel, Chrome).

Tableau 1: Intervenants du projet de recherche et actions assignées.

Intervenant	Laboratoire	Site	Actions
ONET Technologies	-	Pierrelatte	Coordination du projet/applicabilité sur site
CEA	DEN/DTN/SMTA/LEAG (plateforme PLINIUS)	Cadarache	Formulation et synthèse des simulants du corium
			Analyse et caractérisation des simulants du corium et des aérosols
	DMRC/SA2I/LMAC	Marcoule	
	DEN/DM2S/SEMT/LTA (installation DELIA)	Saclay	Découpe laser
IRSN	PSN-RES/SCA/LPMA		Prélèvement et caractérisation des aérosols

Ces premiers résultats mettent en évidence l'importance des risques générés par les opérations de retrait du corium via des outils de découpe, notamment l'inhalation potentielle de particules fines par les salariés en charge du démantèlement, et la dissémination de radioéléments dans l'environnement en cas de confinement défectueux. La caractérisation de la taille et de la morphologie des particules émises durant la découpe peut aider à prédire leur transport et leur dépôt au travers de simulations numériques. Cependant, la connaissance à la fois de la composition chimique des particules et de leur distribution en taille est une information clef pour une meilleure gestion de ces risques. Nous présentons dans cet article les résultats de la caractérisation chimique des aérosols émis pour l'un des deux simulants du corium, dit hors cuve, et la distribution granulométrique associée pour des conditions de découpe sous air.

2. CARACTERISATION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DE L'AEROSOL ET DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE DES PARTICULES

2.1. Les simulants du corium

Le corium désigne le combustible nucléaire fondu et divers autres éléments d'assemblage du réacteur entrant en contact avec le matériau en fusion (éléments de la cuve, instrumentation, béton, etc.). A ce titre, il est majoritairement composé d'oxyde d'uranium (UO_2), de zircone (ZrO_2) et d'autres éléments chimiques issus des matériaux rencontrés au cours de sa progression dans le réacteur, suite à un accident. On distingue deux types de progression du corium dans cette étude : le corium progressant hors de la cuve du réacteur et s'enrichissant alors en minéraux issus des structures externes du réacteur, et le corium progressant dans la cuve, moins riche en oxydes métalliques.
Le simulant hors cuve synthétisé par le CEA-Cadarache affiche la composition chimique détaillée dans la figure 1. L'élément hafnium remplace l'uranium dans cette formulation, et le plutonium est remplacé par le cérium. La présence de silice (SiO_2), d'alumine (Al_2O_3) et de chaux (CaO) permet de simuler l'incorporation du béton pour la progression du corium en dehors de la cuve.

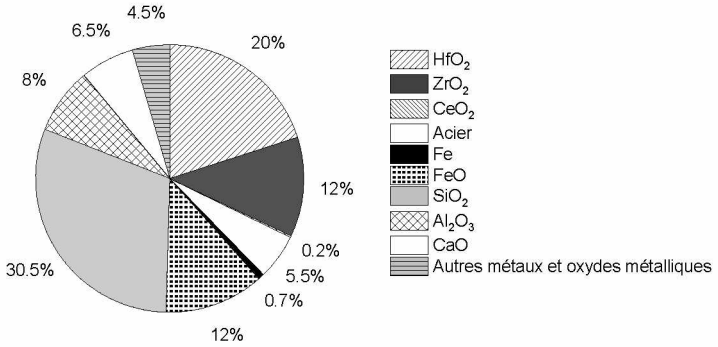

Figure 1: Composition chimique du simulant du corium hors cuve synthétisé au sein de la plateforme PLINIUS du CEA-Cadarache (analyses après mise en solution totale par ICP-MS et ICP-AES). L'oxyde de cérium (CeO_2) est le composant d'intérêt ayant la plus faible teneur (0,2%).

2.2. Dispositif expérimental

L'installation DELIA localisée au CEA-Saclay a permis la réalisation de la découpe laser et la caractérisation des aérosols émis. Le dispositif expérimental décrit par Chagnot *et al*, 2010, permet de découper plusieurs épaisseurs de matériaux à l'aide d'un laser de puissance (8 kW, longueur d'onde 1,03 µm) et dans deux conditions : sous air et sous eau. La ligne de prélèvement des aérosols décrite par Peillon *et al*, 2018, est formée par un conduit cylindrique en acier inoxydable de diamètre intérieur 11 cm. Soulignons que cette ligne de prélèvement a été caractérisée en termes de dépôt de particules avec l'outil *Aerocalc* (Baron & Willeke, 2001). Il a été montré que les pertes dans la ligne pour des découpes laser avec un débit d'air de 120 m^3/h dans la ligne de prélèvement étaient négligeables en amont des instruments de métrologie des aérosols. Sur ce point, les propriétés mesurées sur les aérosols et l'instrumentation associée sont résumées dans le tableau 2.

Tableau 2 : Métrologie des aérosols mise en œuvre sur l'installation DELIA.

Propriété de l'aérosol	Instrument de mesure	Conditions de mesure
Concentration en nombre (#/cm^3) et en masse (mg/m^3)	Sensor Pegasor ® PPS-M	Débit de prélèvement : 5,6 L/min
Distribution granulométrique (30 nm – 10 µm)	DLPI (Dekati®)	Débit de prélèvement : 30 L/min Plateaux d'impaction lisses avec supports de collecte en aluminium préalablement graissés avec de l'Apiezon-L
Concentration massique (mg/m^3)	Echantillonnage sur filtre (100% fibre de quartz)	Débit de prélèvement : 30 L/min
Chimie de l'aérosol	ICP-MS et ICP-AES (post essai) Après mise en solution totale	Analyse des feuilles en aluminium après collecte sur le DLPI

Un essai dans l'installation DELIA consiste en un tir laser de 60 secondes sur un échantillon de simulant du corium après environ 10 minutes de stabilisation de la concentration de l'aérosol en bruit de fond provoquée par l'ouverture de l'enceinte lors du positionnement du matériau. Le signal enregistré par les appareils dure 35 minutes environ.

2.3. Analyse de la composition chimique de l'aérosol

Les supports de collecte du DLPI ont été analysés par le CEA de Marcoule par Plasma à Couplage Inductif (ICP-MS) (AES (iCap 7300) et MS (iCap Q) Thermo Fisher Scientific), selon un protocole développé en interne basé sur la dissolution des feuilles en aluminium dans un mélange d'acides. Les éléments chimiques recherchés pour ces analyses sont : Hf, Zr, Ce, Sn, B, Cr, Fe, Ni, Si, Al, Ca, S, Nd, Mo, Cs, Ba, La, Pd, Pr, Sm, Sr, Y, Te. Notons que l'aluminium n'a pas été considéré dans les résultats en raison d'une surconcentration systématique en cet élément due à la matrice du support de collecte. Par ailleurs, soulignons que l'ICP-MS ne permet pas de distinguer si un élément chimique métallique, comme le Fer par exemple, est associé à une matrice oxydée (Fe_2O_3, FeO) ou au métal brut. L'incertitude de mesure associée pour chaque dosage d'élément est de l'ordre de ± 10%.

3. RESULTATS POUR LE SIMULANT DU CORIUM HORS CUVE POUR UNE DECOUPE LASER SOUS AIR

La figure 2 représente la distribution des éléments chimiques en µg pour chaque diamètre de coupure de l'impacteur DLPI. La répartition des éléments chimiques par classe de taille montre que les particules les plus fines, inférieures à 100 nm, ou entre 100 nm et 1 µm, sont majoritairement composées des éléments de l'acier (Fe, Ni, Cr). Ce résultat est en accord avec celui de la composition chimique globale de l'aérosol prélevé sur le filtre en fibres de quartz sans distinction des tailles des particules. On retrouve, par ailleurs, sur toute la gamme granulométrique les éléments représentatifs de la composition du béton (Si, Ca), ainsi que des éléments métalliques en très faibles quantités (< 10 µg) tels que le barium (Ba) ou l'étain (Sn). Les éléments chimiques associés au combustible (Hf, Zr) sont peu présents dans l'aérosol.

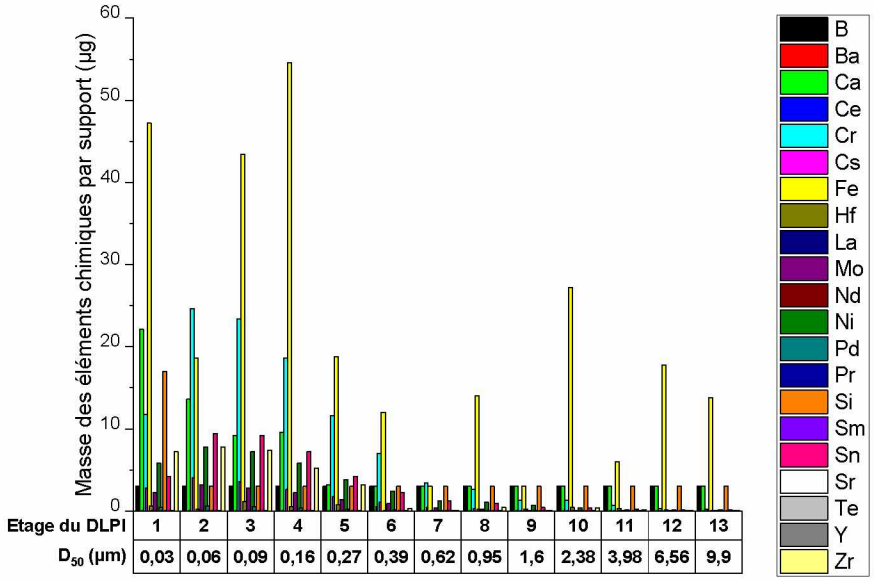

Figure 2 : Distribution des éléments chimiques constituant l'aérosol du simulant du corium hors cuve généré après un tir laser sous air.

Il est possible, à partir de ces données, de convertir les masses en activité radiologique (en Bq) des éléments. Le barium (^{137m}Ba, émetteur γ), le césium (^{137}Cs, émetteur β), le zirconium (^{93}Zr, émetteur β), le palladium (^{107}Pd, émetteur γ) ou encore l'étain (^{121m}Sn, émetteur γ), bien que retrouvés en très faibles quantités dans l'aérosol, participent pour plus de 50% de l'activité radiologique totale, cette dernière étant de l'ordre de 10^7 Bq. Le plus grand contributeur à l'activité radiologique est le barium. Les tailles de particules concernées par cette activité sont inférieures à 100 nm.

4. PERSPECTIVES DU PROJET DE RECHERCHE

La caractérisation de la composition chimique des aérosols issus de la découpe des matériaux radioactifs, couplée à la mesure de la distribution granulométrique, est une information essentielle pour une meilleure gestion des risques professionnels et de contamination de l'environnement. Dans le cadre de l'étude de l'outil de découpe laser d'un simulant du corium (dit hors cuve), le consortium français constitué par ONET Technologies, le CEA et l'IRSN, a montré que les aérosols formés lors de la découpe avec cette technique possédaient une distribution granulométrique en masse avec au moins un mode submicronique, ce dernier étant principalement composé de particules contenant les éléments caractéristiques de l'acier (Fe, Ni, Cr). Cependant, les éléments d'intérêt radiologique retrouvés en très faibles quantités contribuent largement à une activité non négligeable et ce, pour des tailles de particules inférieures à 100 nm. Le projet visant par la suite à étudier d'autres outils de découpe (disqueuse, carotteuse), il serait intéressant de pouvoir caractériser la composition chimique et la distribution granulométrique des aérosols lors de ces nouveaux essais afin de pouvoir les comparer à celles obtenues avec la découpe laser. Des recommandations pourraient *in fine* émerger pour l'applicabilité sur site.

Baron, P & Willeke, K. (2001). Aerosol measurement: Principles, Techniques, and Applications. Edited by Pramod Kulkarni, Paul A. Baron, Klaus Willeke.

Chagnot, C., de Dinechin, G., Canneau, G., (2010). Cutting performances with new industrial continuous wave ND: YAG high power lasers: For dismantling of former nuclear workshops, the performances of recently introduced high power continuous wave ND: YAG lasers are assessed. *Nuclear Engineering and Design*, 240, Issue 10, 2004-2613.

Georges,C., Roulet, D., Chagnot, C., Journeau, C., Canneau, G., Blanchard, S., Porcheron, E. (2017) Benefits from developments in the field of decommissioning for Fukushima Daiichi fuel debris retrieval: Remote-controlled laser cutting process, Proc. WM2017 Conference, March6-9, Phoenix, AZ, United States.

Journeau, C., Roulet, D., Porcheron, E., Piluso, P. Chagnot, C. (2018) Fukushima Daiichi fuel debris simulant materials for the development of cutting and collection technologies, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 55, Issue 9, 985-995.

Peillon, S., Porcheron, E, Chagnot, C., Journeau, C, Roulet. D. (2018) Prélèvement et analyse des aerosols issus de la découpe laser de simulant de corium, Congrès Français sur les Aérosols, Paris.

Porcheron, E., Peillon, S., Gelain, T., Chagnot, C. Journeau, C., Roulet, D., Analysis of aerosol emission and dispersion during the laser cut-ting of Fukushima fuel debris simulants, ICONE 26, 2018.

Porcheron, E., Peillon, S., Gelain, T., Chagnot, C., Journeau, C., Excoffier, E., Testud, V., Roulet D., Fukushima Dai-ichi fuel debris retrieval: analysis of aerosol emission and dispersion during simulants laser cutting, DEM 2018, 2018, Avignon.