Pour citer cet article : Peillon *et al.*, (2018), Prélèvement et analyse des aérosols issus de la découpe laser de simulant de corium, Congrès Français sur les Aérosols 2018, Paris

PRELEVEMENT ET ANALYSE DES AEROSOLS ISSUS DE LA DECOUPE LASER DE SIMULANTS DE CORIUM

S. Peillon*[1], E. Porcheron[1], C. Chagnot[2], C. Journeau[3] et D. Roulet[4]

[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/DM2S/SEMT/LTA, 91191 Gif-sur Yvette, France
[3]Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), DEN/DTN/SMTA/LPMA, 13108 Saint-Paul-lez-Durance, France
[4]ONET Technologies, 26701 Pierrelatte, France
*Courriel de l'orateur : samuel.peillon@irsn.fr

TITLE

Sampling and analysis of aerosols produced by laser cutting of corium simulants

ABSTRACT

In the framework of the Fukushima Dai-ichi international calls for projects for the fuel retrieval, laboratories from CEA Saclay are performing a study on laser cutting process. IRSN has been assigned as a project subcontractor by CEA/DM2S in order to realize a characterization of aerosols emitted during laser cutting of corium simulant. Thus, laboratory tests have been conducted in the DELIA 2 facility developed and operated by the CEA Saclay with two main objectives: 1- the demonstration of the feasibility of fuel debris cutting by laser, 2- the characterization of the aerosols generated through the laser cutting of corium fuel debris surrogates, with a particular attention paid to the comparison of airborne particulate emissions for cuts in air and under-water configurations. This article presents the results on aerosol concentrations, particle size distributions and morphology for laser cutting realized with two corium simulants.

RESUME

Dans le cadre des appels à projets internationaux de Fukushima Dai-ichi pour la récupération du combustible nucléaire, ONET Technologies et des laboratoires du CEA effectuent une étude sur un procédé de découpe laser. L'IRSN a été assigné par le CEA/DM2S comme sous–traitant pour réaliser une caractérisation des aérosols émis lors de la découpe laser de simulants de corium. Des essais en laboratoire ont donc été effectués sur l'installation DELIA 2 développée et exploitée par le CEA Saclay avec deux objectifs : 1- la démonstration de la faisabilité de la découpe laser de débris de combustible, 2- la caractérisation des aérosols générés par la découpe laser de simulants de corium avec une attention particulière donnée à la comparaison des émissions de particules lorsque les découpes sont réalisées en air et sous eau. Cet article présente les résultats concernant les concentrations en aérosols, les granulométries, ainsi que la morphologie des particules mesurées lors de ces découpes laser de simulants de corium.

KEYWORDS: laser cutting, aerosol sampling, corium / **MOTS-CLÉS:** Découpe laser, prélèvement d'aérosol, corium.

1. CONTEXTE DE L'ETUDE

Le démantèlement des réacteurs accidentés de la centrale de Fukushima-Daiichi nécessite le retrait du corium encore présent dans les bâtiments des réacteurs N°1, 2 et 3.
Dans ce cadre, un projet de recherche mené conjointement par ONET Technologies et différents laboratoires du CEA a eu pour objectif de conduire des expériences de découpe de simulants de corium à l'aide d'un laser de puissance dans une enceinte dédiée à ce type d'opérations. Cette plateforme expérimentale située à Saclay permet de découper différents matériaux en air ou bien immergés sous différentes profondeurs d'eau (Chagnot *et al.*, 2010).
Deux types de corium représentatifs des accidents graves des réacteurs à eau bouillante de Fukushima Dai-ichi ont été synthétisés au CEA-Cadarache (DTN/SMTA/LPMA - Plateforme PLINIUS) et caractérisés (Journeau *et al.*, 2017). Un premier simulant de corium est représentatif des conditions accidents graves de progression du corium en cuve ; à ce titre, il possède une phase métallique résiduelle à base de zirconium. Un second simulant de corium est représentatif des conditions accidents graves de progression du corium hors cuve ; à ce titre, il est plus oxydé.
L'IRSN Saclay a été assigné par le CEA pour conduire les mesures et les analyses des aérosols émis lors des découpes laser de ces matériaux spécifiques. En effet, lors de la découpe laser d'éléments métalliques, des aérosols sont formés par vaporisation du métal suivie de mécanismes de nucléation, condensation et coagulation/agrégation. Pour limiter la dispersion de trop grandes quantités de matière radioactive et gérer un confinement adéquat lors des opérations de découpe, il est nécessaire de connaître la perte de masse sous forme aérosols engendrée par la découpe laser, ainsi que les morphologies et distributions granulométriques de ces aérosols.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12553

2. INSTALLATION EXPÉRIMENTALE

Les paramètres et propriétés qui ont été enregistrés par l'IRSN pour caractériser les aérosols émis lors des découpes laser sont les suivants :

- la concentration massique de l'aérosol par échantillonnage sur filtre grand débit (120 l/min),
- l'évolution de la concentration en masse d'aérosol en fonction du temps (Pegasor PPS-M),
- la distribution granulométrique des aérosols selon le diamètre aérodynamique (impacteur DLPI),
- le débit volumique d'air dans la ligne d'échantillonnage,
- la composition physico-chimique des particules collectées par spectroscopie des rayons X (EDS).

La ligne de prélèvement est un tube cylindrique en acier inoxydable d'un diamètre intérieur de 11 cm. La ligne est reliée au sommet de la cheminée d'évacuation de l'enceinte à une hauteur de 5 m. La ventilation dans l'installation est produite par de l'air comprimé injecté dans la tête de découpe laser située à l'intérieur de l'enceinte DELIA 2. Le débit d'air dans la ligne d'échantillonnage a été validé à l'aide de plusieurs mesures in-situ. Nous avons établi que les découpes laser seront réalisées avec un débit d'air de 120 m^3/h dans l'installation, ce qui correspond à une vitesse moyenne d'écoulement d'air de 4,2 m/s dans la ligne d'échantillonnage (nombre de Reynolds autour de 25 000). Pour les conditions sous-eau, l'humidité relative varie entre 90% et 100% en fonction du niveau d'eau dans DELIA 2. Une concentration élevée de gouttelettes d'eau a été remarquée avec une taille submicronique, tandis que la concentration des particules sèches est négligeable.

2.1. Transport des particules dans la ligne de prélèvement

Tous les mécanismes impliqués dans le transport et le dépôt de particules dans une ligne d'échantillonnage cylindrique ont été intégrés dans un outil numérique spécifique nommé *Aerocalc* (Baron & Willeke, 2001). Ce logiciel peut calculer, pour différents types de géométries et de singularités, la fraction de dépôt d'aérosol dans la ligne d'échantillonnage (ou la fraction pénétrante d'aérosol) en fonction des conditions d'écoulement et des diamètres aérodynamiques des particules.

Pour les diamètres aérodynamiques les plus petits, soit 0,03 µm et 1 µm, les fractions pénétrantes sont égales à 99%, ce qui signifie que les pertes dans la ligne d'échantillonnage en amont des différents instruments sont négligeables. D'autre part, pour un diamètre aérodynamique de 5 µm, environ 20% des particules sont perdues dans la ligne avant d'atteindre les différents instruments et les pertes sont encore plus importantes pour les particules de 10 µm, avec 60% des pertes au niveau du premier prélèvement mis en œuvre sur la ligne d'échantillonnage. Soulignons que les travaux antérieurs sur la caractérisation des particules produites lors de la découpe laser des équipements en acier (Peillon *et al.*, 2017) ont montré que la distribution granulométrique est bimodale avec un mode principal autour de 0,45 µm et un deuxième mode inférieur à 2 µm.

2.2. Concentration massique

Pour la mesure de la concentration massique globale (sur la totalité de la découpe), nous utilisons un prélèvement sur filtre. Les filtres utilisés sont des filtres Whatman QM-H (100% fibre de quartz) d'une taille initiale de 130 mm de diamètre que l'on place dans un porte filtre en acier inoxydable. Le porte filtre est isolé de la ligne de prélèvement par une vanne manuelle qui permet l'installation et le retrait du filtre lors des expériences. Un débitmètre Brooks® est connecté entre le porte-filtre et la pompe pour la régulation du débit d'air. Ce débit d'échantillonnage est fixé à 120 l/min, ce qui correspond à une vitesse de filtration de 11,3 cm/s.

La concentration massique C_{M1} (en mg/m^3) en aérosol dans la veine d'extraction de DELIA 2, dans les conditions standards (T_S = 20°C et P_S = 1013 hPa), s'exprime grâce à la relation :

$$C_{M1} = \frac{\Delta m}{V_S} = \frac{\Delta m}{10^{-3}.t.Q_S},$$

avec Δm la masse nette d'aérosols prélevés (mg), V_s le volume prélevé ramené aux conditions standards (m^3 à 20°C et 1013 hPa), Q_s le débit de prélèvement dans les conditions standards (L/min à 20°C et 1013 hPa) et t la durée de prélèvement (min).

2.3. Distribution granulométrique

Pour mesurer la distribution granulométrique de l'aérosol, nous avons utilisé un impacteur basse pression (Dekati® DLPI). Cet appareil est constitué de 13 plateaux d'impaction disposés en cascade qui permettent de recueillir des particules dont les diamètres dépendent de la géométrie des étages et du débit utilisé. Chaque étage d'impaction est composé de deux plaques parallèles, la première est perforée par des trous de diamètres calibrés, tandis que la deuxième accueille le substrat de collecte. Pour chaque fraction de taille, les particules sont collectées sur des substrats en aluminium de 25 mm de diamètre qui sont pesés avant et après le prélèvement pour obtenir la distribution granulométrique en masse. Afin de limiter le rebond

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12553

des particules entre les différents étages, les feuilles d'aluminium sont graissées (Apiezon-L) suivant la recommandation du fabricant. Les feuilles d'aluminium sont ensuite pesées avec une procédure spécifique décrite par la norme ISO15767 et installées sur les 13 étages de l'impacteur.

3. RÉSULTATS POUR LE SIMULANT DE CORIUM EN CUVE

Les concentrations massiques globales obtenues lors de la découpe en air et sous eau du simulant de corium en cuve à partir du prélèvement sur filtre grand débit sont présentées dans le Tableau 1.

Tableau 1- Concentrations massiques obtenues pour la découpe du simulant en cuve en air et sous 0,35 m d'eau

				Concentration massique globale (mg/m^3)	
Conditions	N° test	épaisseur (mm)	vitesse de découpe (cm/min)	C_{M1}	$U(C_{M1}) = 2\sigma_{CM1}$
en air	X4	30	6	226,64	9,89
0,35 m d'eau	X2	30	6	145,28	5,74

La concentration massique globale de l'aérosol produit lors de la découpe du simulant de corium en cuve en air est égale à 226,64 (± 9,89) mg/m^3 et correspond à un temps d'intégration de 120 secondes après le démarrage du laser. Pour la découpe sous 0,35 m d'eau, la concentration massique globale est de 145,28 (± 5,74) mg/m^3. Les distributions granulométriques obtenues avec le DLPI pour ces deux essais de découpe sont présentées sur la Figure 1~~Figure 1~~ accompagnées de leurs intervalles de confiance à 95 %. Les temps d'intégration utilisés avec le DLPI sont identiques à ceux réalisés avec le prélèvement sur filtre. Un ajustement log-normal est réalisé sur les données de manière à obtenir le diamètre aérodynamique médian en masse et l'écart-type géométrique pour les deux distributions granulométriques.

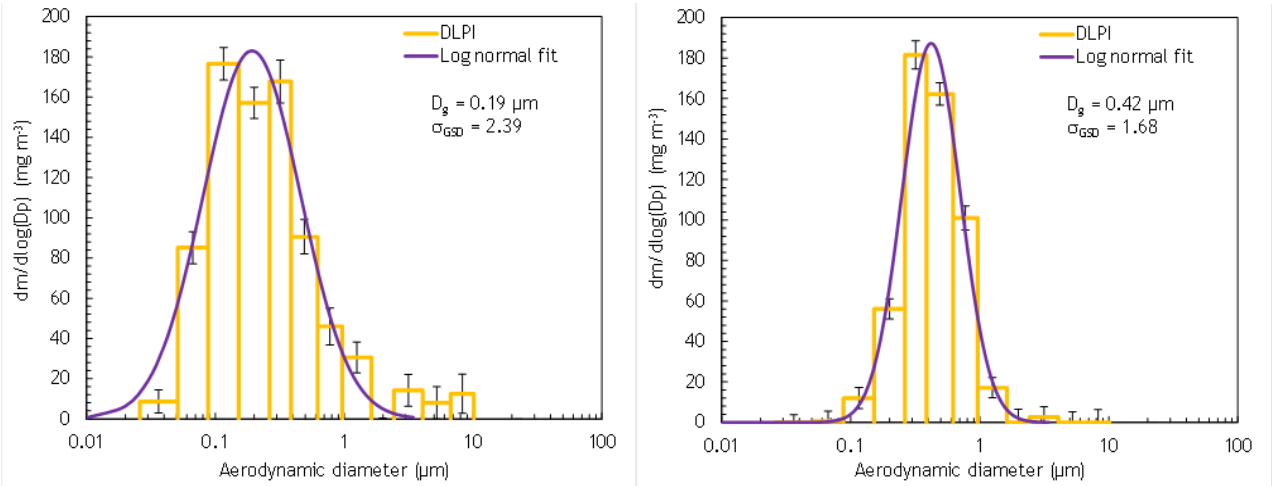

Figure 1 - Distributions granulométriques en masse en fonction du diamètre aérodynamique obtenues avec l'impacteur DLPI pour un essai de découpe de simulant de corium en cuve en air (à gauche, essai X4) et sous 0,35 m d'eau (à droite, essai X2)

Comme on peut le voir, l'accord avec la loi log-normale n'est pas évident pour la distribution granulométrique des particules émises lors de la découpe dans l'air. En effet, l'étalement de la distribution granulométrique est significatif et l'écart-type géométrique est égal à 2,39. Le diamètre géométrique médian est petit et égal à 0,2 µm. On peut également constater la présence d'un second mode dans la distribution granulométrique correspondant à des diamètres aérodynamiques entre 2 µm et 10 µm. Un autre moyen d'estimer le diamètre aérodynamique médian est d'utiliser la distribution granulométrique cumulée (normalisée en pourcentage) afin de déterminer à quelle taille de particules la distribution cumulative atteint 50%. Nous avons constaté que le diamètre médian en masse de l'aérosol était alors de 0,27 µm pour l'essai X4. Pour la découpe sous eau (essai X2), la distribution granulométrique en masse de l'aérosol est en accord avec la loi log-normale et le diamètre médian en masse est de 0,42 µm avec un écart-type géométrique de 1,68. En additionnant la concentration en masse sur les 13 canaux du DLPI, on peut obtenir la concentration massique totale de l'aérosol sur toute l'expérience. Pour la découpe en air, la concentration massique totale est égale à 192,34 (± 26,64) mg/m^3. Pour la découpe sous eau, la concentration massique totale est de 121,42 (± 10,28) mg/m^3. Ces concentrations en masse sont en accord avec celles obtenues avec le filtre de quartz et présentées dans le Tableau 1.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12553

4. DISCUSSIONS

A partir de la concentration massique (mg/m^3) mesurée avec le Pegasor PPS-M, et connaissant le débit de ventilation dans DELIA (120 m^3/h), nous pouvons estimer la masse totale d'aérosols émis pendant chaque essai au cours du temps. Nous représentons sur la Figure 2~~Figure 2~~ la masse cumulée de particules émises durant les découpes du simulant de corium en cuve pour trois conditions (en air, sous 0,35 m et 5,6 m d'eau (essai X3)). Connaissant la vitesse de découpe (6 cm/min), nous pouvons également représenter l'échelle de longueur correspondant aux différentes découpes.

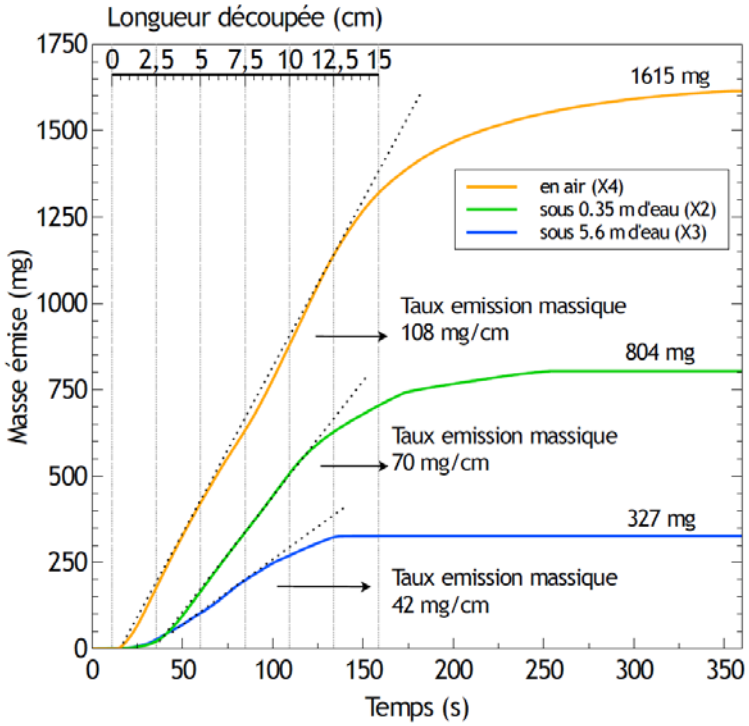

Figure 2 – Masse totale des aérosols émis lors de la découpe du simulant de corium en cuve pour les différentes conditions de découpe

A mesure que la découpe est réalisée, la production de particules augmente jusqu'à ce que le laser soit arrêté et que l'air dans l'installation soit renouvelé. Cette cinétique explique la forme en S des courbes et nous pouvons en extraire des informations intéressantes. Le plateau à la fin de chaque courbe correspond à la masse totale émise pendant la découpe. La pente des courbes détermine quant à elle le taux massique d'émission de particules pour chaque découpe. La fin de la découpe peut être identifiée à l'endroit où les pentes des courbes commencent à changer. On peut donc déduire la masse d'aérosol émise en fonction de la longueur découpée. Pour le test X4, la pente change à 140 secondes, ce qui correspond à une longueur découpée de 12,5 cm avec un taux d'émission massique de 108 mg/cm. Pour les essais X2 et X3, la longueur découpée est d'environ 10 cm avec des taux d'émission massique respectifs de 70 mg/cm (sous 0,35 m d'eau) et 42 mg/cm (sous 5,6 m d'eau).

Nous avons vu que la concentration massique en aérosols est plus importante lorsque la découpe laser a lieu en air. De même, l'efficacité de piégeage des aérosols est d'autant plus grande lorsque la découpe est immergée sous une forte hauteur d'eau. Les diamètres médians en masse mesurés au cours des différents essais augmentent également lorsque la découpe est immergée, de 0,19 µm en air à 0,42 µm sous eau. Ce résultat peut être attribué au phénomène d'agglomération intervenant dans la poche de gaz créée par le laser à proximité immédiate de la zone de découpe, favorisant ainsi l'augmentation de la taille des particules.

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, 2604-2613.

Peillon, S., Fauvel, S., Chagnot, C. and Gensdarmes, F. (2017). Aerosol characterization and particle scrubbing efficiency of underwater operations during laser cutting of steel components for dismantling of nuclear facilities. *Aerosol and Air Quality Research*, 17: 1363-1373.

Journeau, C., Monerris, J., Tormos, B., Brissonneau, L., Excoffier, E., Testud, V., Chagnot, C. and Roulet, D. Fabricating Fukushima Daiichi in-vessel and ex-vessel fuel debris simulants for the development and qualification of laser cutting technique, ERMSAR-2017, European Review Management on Severe Accident Research, Varsovie, Mai 2017.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12553