

ETUDE DE LA CARACTERISATION D'AEROSOLS GENERES LORS DE LA DECOUPE MECANIQUE DE SIMULANT DU CORIUM : LE PROJET URASOL DANS LE CONTEXTE DU DEMANTELEMENT DE FUKUSHIMA-DAIICHI

R. Berlemont^{*1}, E. Porcheron², A. Bouland², Y. Leblois², C. Journeau³, J. Delacroix³, D. Molina³, C. Suteau³, C. Guevar⁴, V. Testud⁴, Y. Lallot¹, D. Roulet¹, Y. Tsubota⁵, A. Ikeda-Ohno⁵

¹ONET Technologies, 26701 Pierrelatte, France

²Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, 91192 Gif-sur-Yvette, France

³CEA, DES, IRESNE, DTN, SMTA, LEAG, Cadarache, 13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

⁴CEA, DES, ISEC, DMRC, SASP, LMAT, Univ Montpellier, Marcoule, France

⁵International Research Institute for Nuclear Decommissioning (IRID) / Japan Atomic Energy Agency (JAEA), 319-1195 Ibaraki-ken, Japan

*Courriel de l'orateur : rberlemont@onet.fr

TITLE

Characterization Of The Aerosols Generated By Mechanical Cutting Using Fuel Debris Simulant: The URASOL project in the framework of Fukushima Daiichi dismantling

RESUME

Dans le cadre du démantèlement des réacteurs nucléaires de Fukushima Daiichi, ce travail illustre la caractérisation des aérosols générés lors de la découpe mécanique (par technique de carottage) de simulants de corium. Lors de la découpe, les aérosols sont collectés et acheminés à travers des lignes de prélèvement vers les instruments de mesure. Il a été observé que les aérosols sont produits par arrachement mécanique et que leurs tailles sont de l'ordre de quelque micron avec une morphologie angulaire. La taille des particules ne dépend pas de la nature des échantillons (porosité, composition). En revanche, les concentrations massiques en aérosols diffèrent selon la nature des échantillons. La fraction mise en suspension brute a été déterminée à environ 10^{-3} .

ABSTRACT

As part of the dismantling of the nuclear reactors at Fukushima Daiichi, this work illustrates the characterization of the aerosols generated during the mechanical cutting (by core boring technique) of corium simulants. During cutting, the aerosols are collected and conveyed through sampling lines to the measuring instruments. It has been observed that aerosols are produced by mechanical stripping and that their sizes are of the order of few microns with angular morphology. The size of the particles does not depend on the nature of the samples (porosity, composition). On the other hand, the mass concentrations of aerosols differ according to the nature of the samples. The resuspension airborne fraction was determined to be about 10^{-3} .

MOTS-CLÉS: Découpe mécanique, concentration massique, distribution granulométrique, morphologie, mise en suspension / **KEYWORDS:** Mechanical cutting, mass concentration, size distribution, morphology, resuspension

1. INTRODUCTION

L'un des défis majeurs du démantèlement de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi est le retrait du corium ou des débris de combustible dans les réacteurs endommagés. L'évaluation de la contamination par les aérosols radioactifs est fondamentale à l'élaboration d'un dossier de sûreté pour le démantèlement (Porcheron et al. 2021). Des études détaillées sur la génération d'aérosols radioactifs lors de procédés de découpe par divers outils ont été réalisées, soulignant l'influence de chaque outil de découpe et des conditions de fonctionnement. Dans ce contexte, un consortium de sociétés françaises : ONET Technologies, CEA et IRSN, pour le compte de JAEA/CLADS, s'est formé et a réuni des compétences pour la création du projet URASOL (URAnium et aéroSOL) - abréviation pour "*Particle generation test using simulated uranium containing debris*". Ce projet vise à acquérir des données scientifiques sur la génération et la caractérisation des aérosols radioactifs à partir des procédés de découpe mécanique et de dégradation thermique de simulants de corium. Ces données se révèlent indispensables dans l'évaluation des mesures de sécurité/sûreté et radioprotection inhérentes aux opérations de démantèlement du réacteur. Ce document résume l'étude de caractérisation d'aérosols générés par de la découpe mécanique de type carottage. L'étude de caractérisation d'aérosols générés par des essais de dégradation thermique est quant à elle décrite dans un article compagnon (Bouland et al. 2021).

2. MATERIELS ET METHODES

2.1. Procédé de découpe FUJISAN et métrologie des aérosols

Un banc d'essais de découpe mécanique de type carotteuse, portant le nom de FUJISAN, a été développé pour cette étude. Il a été installé dans la plateforme PLINIUS située sur le site du CEA de Cadarache. FUJISAN est un acronyme pour *Fukushima Daiichi Uranium-containing sample Joint Investigations of the Source term of Aerosols and their Nature*. Le procédé est composé d'une carotteuse commerciale, d'une colonne de perçage conçue sur mesure et d'une balance qui sont disposées dans une enceinte de confinement. Un vérin pneumatique permet les mouvements de montée et descente de la carotteuse vis-à-vis du bloc à découper. La balance située au sol de l'enceinte permet quant à elle le contrôle de la force d'appui exercée par l'outil sur le bloc. L'outil de découpe est de type couronne, diamantée en surface (*Diamond Surface Deposit* - DSD). La Figure 1 montre le procédé de découpe FUJISAN dans son ensemble, les instruments de mesure ainsi que les quatre points de collecte retenus.

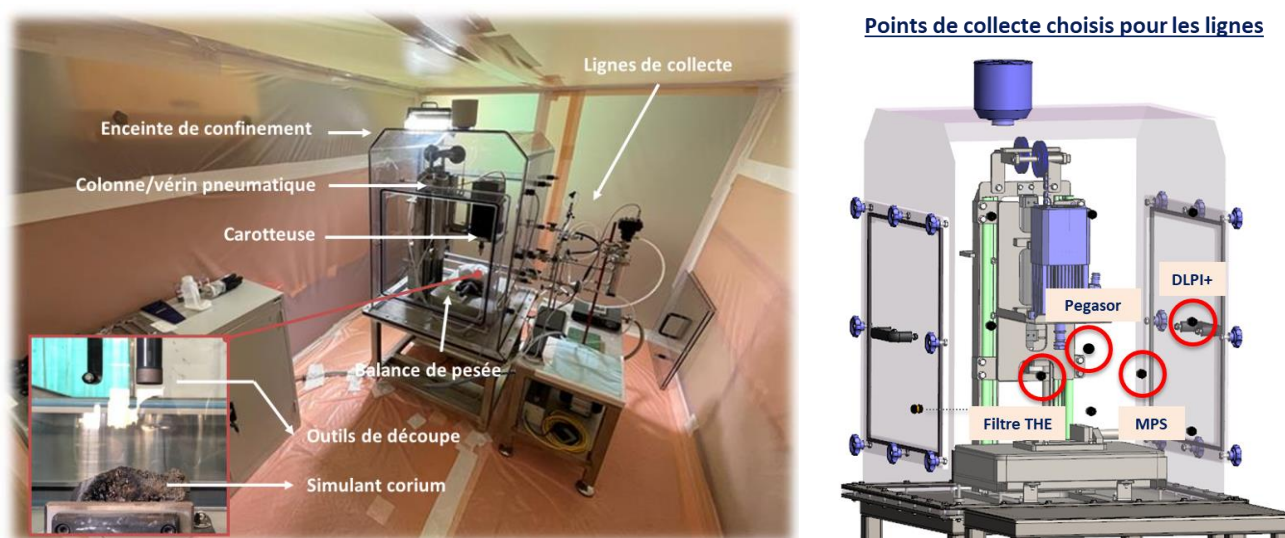


Figure 1. Procédé de découpe mécanique FUJISAN et identification des lignes de collecte des aérosols

Les instruments utilisés pour la caractérisation des aérosols sont directement connectés, un à un, à chacune des lignes de collecte (Porcheron et al. 2021) :

- l'analyseur PEGASOR® pour mesurer la concentration numérique des particules en temps réel ;
- l'impacteur basse pression Dekati DLPI+® pour mesurer la distribution granulométrique des particules ;
- un filtre THE pour mesurer la concentration massique des particules ;
- un support, le *Mini Particle Sampler* (MPS), contenant une grille où sont collectées les particules pour l'analyse dans un second temps par Microscopie Electronique à Transmission (MET) et spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS).

Les débits de prélèvement pour le DLPI+, le filtre THE et la grille MET (MPS) sont générés par des pompes externes. Pour le Pegasor, le débit de prélèvement est assuré via un effet Venturi à une pression effective contrôlée. Chaque instrument dispose de vannes d'isolement afin de contrôler les durées de prélèvement mais aussi les opérations de nettoyage. La température et l'hygrométrie sont relevées lors des essais.

Une étude préliminaire a été réalisée afin de définir les positions adéquates des points de prélèvement des aérosols sur la paroi avant de FUJISAN pour une caractérisation optimale des aérosols. La stratégie expérimentale a été d'injecter des aérosols salins dans l'enceinte afin d'obtenir une concentration stable et homogène. Les résultats montrent que la concentration en nombre de particules est homogène à l'intérieur de l'enceinte en chaque point de collecte. De plus, le moteur de la carotteuse, équipé d'un ventilateur de refroidissement, conduit à une circulation d'air dans l'enceinte qui homogénéise la concentration particulaire.

Par ailleurs, ces lignes ont été conçues aussi courtes et rectilignes que possible afin de limiter les dépôts de particules. Comme l'indique le Tableau 1, les efficacités de pénétration des particules dans les lignes de prélèvement ont été simulées avec AEROCALC (Willeke K., and Baron P.A, 1993) en fonction des diamètres des aérosols et indiquent que plus de 99% des particules de 1 μm traversent ces lignes sans y être déposées.

Tableau 1. Coefficient de pénétration des aérosols dans les lignes de collecte - FUJISAN

Lignes de collecte	Diamètre aérodynamique médian des particules (μm)							
	0,01	0,05	0,1	0,2	0,5	1	5	10
PEGASOR®	98,76%	99,85%	99,93%	99,96%	99,95%	99,88%	97,14%	84,68%
DLPI+®	99,22%	99,90%	99,96%	99,98%	99,97%	99,93%	98,44%	93,62%
Filtre THE	98,90%	99,86%	99,94%	99,97%	99,96%	99,89%	97,58%	89,34%
MPS	99,22%	99,90%	99,96%	99,98%	99,97%	99,89%	96,37%	81,88%

2.2. Essais de qualification et protocole de découpe

L'objectif du protocole des essais de découpe est de générer suffisamment de particules pour permettre leur analyse. Des essais de qualification sur le procédé et les lignes de prélèvement ont permis de vérifier les points suivants :

- le moteur de la caroteuse ne génère pas de particules dans la limite de détection des instruments ;
- les concentrations en nombre et en masse de particules considérées sont homogènes à tous les points de prélèvement relatifs à chacun des instruments ;
- la mesure de la taille des particules est reproductible pour des essais effectués dans les mêmes conditions expérimentales ;
- les productions d'aérosols en nombre et en masse par la découpe semblent dépendre principalement de la nature du bloc ;
- le bon compromis efficacité de découpe / durabilité de l'outil type DSD a été trouvé en choisissant une découpe séquentielle. Cette méthode consiste à découper l'échantillon pendant 60 s puis à refroidir l'outil pendant 30 s (refroidissement en conditions ambiantes). L'opération de découpe / refroidissement est ainsi répétée jusqu'à ce que la découpe sur l'échantillon soit satisfaisante ;
- le diamètre de l'outil de découpe, la vitesse de rotation et la force d'appui ont été choisis pour une découpe et pour assurer une génération d'aérosols suffisante (la vitesse tangentielle est constante pour tous les outils).

3. RESULTATS

Un exemple de résultats est présenté pour le cas d'un simulant inactif de corium dont la composition a été déterminée à partir de celle du corium de l'unité 2 de la centrale de Fukushima Daiichi (Pellegrini et al., 2015 ; Journeau et al., 2018) : l'échantillon numéro 3 en cuve réacteur *In-Vessel*. Pour cet échantillon, l'uranium et le plutonium sont simulés respectivement par l'hafnium et le cérium, en raison de leurs caractéristiques thermophysiques similaires (dureté, température de fusion, conductivité thermique).

3.1. Caractéristiques des aérosols découpés

La Figure 2 présente l'évolution temporelle de la concentration numérique de particules mises en suspension pendant la découpe mesurée par le Pegasor ainsi qu'une photographie du bloc utilisé pour l'essai. Chaque phase de découpe effectuée sur le bloc de simulant de débris de combustible est représentée entre des traits verticaux de même couleur (rouge ou noir).

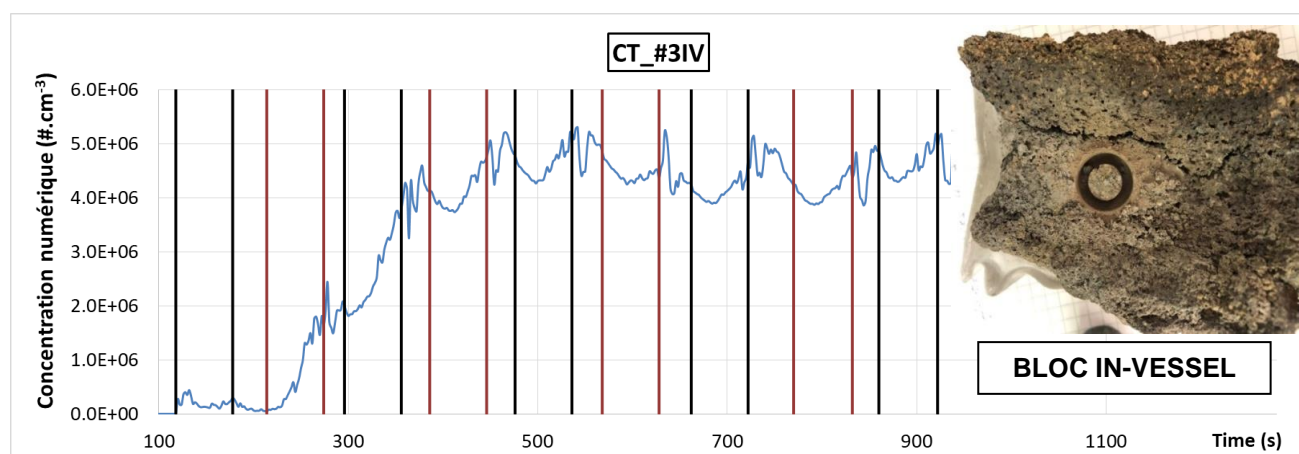


FIGURE 2. Evolution de la concentration numérique de particules mises en suspension en fonction du temps lors d'un essai de découpe mécanique sur un échantillon In-Vessel

En ce qui concerne la collecte des aérosols par le filtre THE, la concentration massique des particules a été déterminée à $35,0 \pm 0,7 \text{ mg.m}^{-3}$ pour une profondeur de coupe totale de 7 mm. La collecte des particules par le filtre commence dès la première séquence de coupe. La durée de collecte des aérosols dépend de la porosité du simulant et de la génération de particules lors de la découpe.

La Figure 3 représente la distribution en taille des particules obtenue lors de cet essai de découpe ainsi que la morphologie des aérosols d'après les analyses MET. Sa distribution est bi-modale : le diamètre aérodynamique médian massique mesuré à l'aide du DLPI+ est égal à $3,71 \mu\text{m}$ pour le mode principal avec un écart-type géométrique de 1,7, et $0,3 \mu\text{m}$ pour le mode fin.

De plus, la morphologie des particules découpées montre des coupes angulaires, conséquence d'un arrachement mécanique. Enfin, des analyses chimiques ont été réalisées afin d'identifier les éléments atomiques présents et leur proportions relatives pour des particules dont le diamètre aérodynamique médian massique est inférieur ou supérieur au micron.

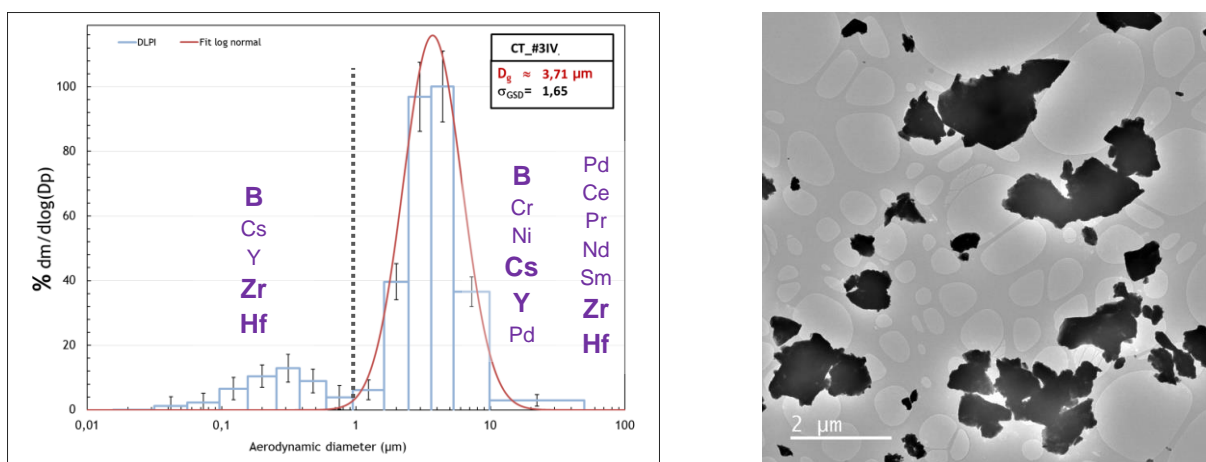


Figure 3. Distribution granulométrique des aérosols générés lors de la découpe d'un bloc In-Vessel, morphologie et composition atomique des aérosols découpés

3.2. Bilan matière de l'essai et coefficient de mise en suspension

Le bilan massique, caractérisé par l'efficacité $E\%$ et la fraction mise en suspension brute, a été effectué pour cet essai. L'efficacité $E\%$ est définie comme le rapport entre la masse totale des particules qui a été mesurée en considérant les fractions mises en suspension et déposées et la différence de masse du bloc avant et après découpe. La fraction mise en suspension brute K_A est exprimée comme le rapport de la masse totale des particules mise en suspension et prélevée par les instruments sur la masse totale de matière enlevée au bloc après découpe. La Figure 4 suivante détaille les pesées prises en compte pour ces calculs.

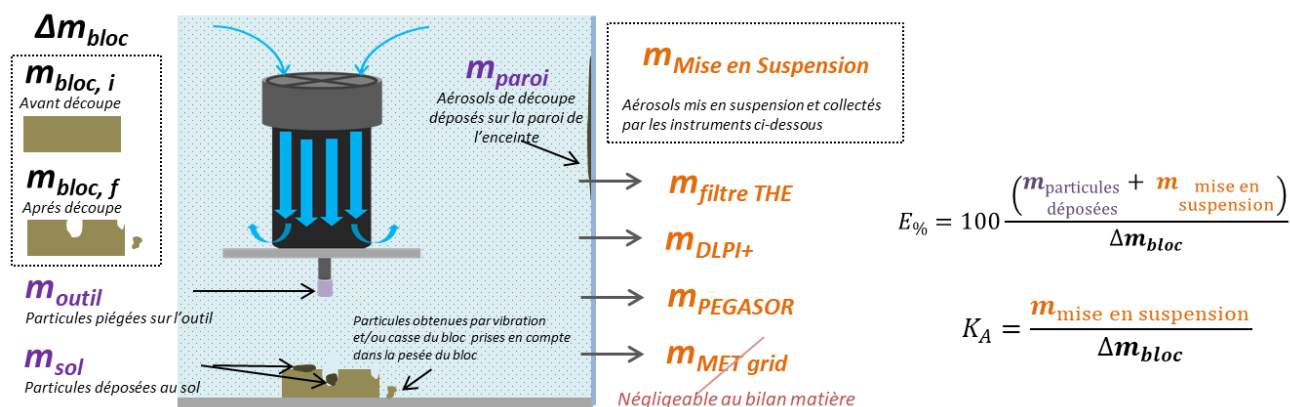


Figure 4. Schéma descriptif pour l'obtention du bilan matière ainsi que du coefficient de mise en suspension

L'efficacité du bilan massique obtenue est de 84% (comparaison entre la masse enlevée au bloc et la masse de particules mise en suspension et déposée) et la fraction mise en suspension brute est de $1,9 \times 10^{-3}$. Les différentes pesées ont été prises en compte et sont regroupées dans le Tableau 2 suivant :

Tableau 2. Bilan matière et coefficient de mise en suspension des aérosols découpés (*masse en mg*).

m _{Mise en Suspension}				m _{particules déposées}						
m _{PEGASOR}	m _{THE}	m _{DLPI}	m _{total}	m _{sol}	m _{paroi}	m _{outil}	m _{total}	Δm_{bloc}	E%	K _A
2,2	1,1	0,9	4,3	1840,0	27,2	53	1920,2	2300,0	84	1,9 10 ⁻³

4. CONCLUSION

Le programme d'essais de découpe mécanique du projet URASOL comprend au total 30 découpes avec huit échantillons actifs/inactifs de simulant de corium. Ces échantillons contiennent soit de l'hafnium, soit de l'uranium appauvri. L'analyse du comportement des aérosols en considérant la distribution en taille, la génération massique et la composition des particules est en cours. Une comparaison des générations de particules issues du procédé de chauffage et de la découpe par technique laser sera également effectuée.

5. REFERENCES

- Porcheron, E., Dazon, C., Gelain, T., Chagnot, C., Doyen, I., Journeau, C., Excoffier, E., Roulet, D. (2021) Fukushima Daiichi fuel debris retrieval: results of aerosol characterization during laser cutting of non-radioactive corium simulants, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 58, issue 1, pp. 87_99.
- Porcheron, E., Bourrous, S., S. Peillon, C. Chagnot, C. Journeau, and D. Roulet, (2019) Study of the influence of cutting tools on aerosol emission in the framework of Fukushima Daiichi fuel debris retrieval, *International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research FDR*.
- 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*.
- Pellegrini, M., Dolganov, K., Herranz Puebla, L., Bonneville, H., Sonnekalb, M., Luxat, D., Ishikawa, J., Song, J.-H., Gauntt, R.O., Fernandez Moguel, L., Payot, F., Nishi, Y. (2015). *Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi NPS Best Estimate Case Comparison*. NURETH-16. Chicago, IL.
- Willeke K., and Baron P.A., *Aerosol measurement: Principles, techniques, and applications*: edited by. Van Nostrand Reinhold, New York (1993). 876 pp., ISBN 0-442-00486-9.
- A. Bouland, Y. Leblois, E. Porcheron, J. Delacroix, H. Laffoley, D. Molina, C. Journeau, C. Suteau, C. Guevar, R. Berlemont, Y. Lallot, D. Roulet, Y. Tsubota, A. Ikeda-Ohno, *Caractérisation de la génération de particules lors de chauffage de simulants de corium : Le projet URASOL dans le contexte du démantèlement de Fukushima Daiichi*, Congrès Français des Aérosols, Janvier 2022, Paris.