## CARACTERISATION DE LA GENERATION DE PARTICULES LORS DU CHAUFFAGE DE SIMULANTS DE CORIUM : LE PROJET URASOL DANS LE CONTEXTE DU DEMANTELEMENT DE FUKUSHIMA DAIICHI

A. Bouland<sup>\*1</sup>, Y. Leblois<sup>1</sup>, E. Porcheron<sup>1</sup>, J. Delacroix<sup>2</sup>, H. Laffolley<sup>2</sup>, D. Molina<sup>2</sup>, C. Journeau<sup>2</sup>, C. Suteau<sup>2</sup>, C. Guevar<sup>3</sup>, V. Testud<sup>3</sup>, R. Berlemont<sup>4</sup>, Y. Lallot<sup>4</sup>, D. Roulet<sup>4</sup>, Y. Tsubota<sup>5</sup>, A. Ikeda-Ohno<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, 91192 Gif-sur-Yvette, France <sup>2</sup>CEA, DES, IRESNE, DTN, SMTA, LEAG, Cadarache, 13108 Saint-Paul-lez-Durance, France <sup>3</sup>CEA, DES, ISEC, DMRC, SASP, LMAT, Univ Montpellier, Marcoule, France <sup>4</sup>ONET Technologies, 26701 Pierrelatte, France <sup>5</sup> IRID / JAEA, 319-1195 Ibaraki-ken, Japon. \*Courriel de l'orateur : antonin.bouland-manpower@irsn.fr

## Characterization of particle generation by heating of corium surrogates: the URASOL project in the framework of Fukushima Daiichi dismantling

#### RESUME

Dans le cadre du traitement des débris de combustible de la centrale nucléaire accidentée de Fukushima Daiichi (1F), la caractérisation des particules radioactives pouvant être émises lors des opérations de découpe du corium par des outils thermiques ou mécaniques doit être réalisée afin de mettre en œuvre des mesures de sûreté adaptées et de limiter les expositions sur le lieu de travail ainsi que la contamination environnementale. Dans ce contexte, le projet URASOL porté par le consortium français composé de ONET Technologies, du CEA et de l'IRSN pour JAEA/CLADS a été proposé pour obtenir des données de base concernant les caractéristiques des aérosols générés lors de la découpe de simulant de débris de combustibles par des outils thermiques ou mécaniques. Nous présentons ici une partie des résultats de caractérisation des aérosols émis lors du chauffage de simulant de corium représentant certaines conditions de la découpe par technique laser.

### ABSTRACT

In the fuel debris retrieval work at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants (1F), characterization of radioactive particles associated with dismantling and processing through thermal or mechanical tools should be studied in order to thoroughly implement safety measures and manage the workplace exposures in a reasonable manner as well as environmental contamination. In this context, the URASOL project undertaken by the French consortium laboratories consisting of ONET Technologies, CEA and IRSN for JAEA/CLADS was proposed to obtain basic data on aerosols generation and characteristics from fuel debris cut by thermal or mechanical processing tools. We present here the aerosol characterization results on thermal trials.

**MOTS-CLÉS:** Fukushima Daiichi, démantèlement, aérosol, simulant de corium, uranium appauvri, procedé thermique **KEYWORDS:** Fukushima Daiichi, decommissioning, aerosol, corium simulant, depleted uranium, thermal process

## 1. INTRODUCTION ET OBJECTIFS

L'un des défis majeurs du démantèlement de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi est le retrait des débris de corium dans les réacteurs endommagés. L'évaluation du risque de contamination induite 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 (Chae et al., 2019), (Oki et al., 1994), (Shimada et al. 2015), (Pilot et al., 2008), (Porcheron et al., 2019), soulignant l'influence de chaque outil de découpe et ses conditions de fonctionnement. Dans ce contexte, un consortium français regroupant ONET Technologies, le CEA et l'IRSN pour le compte de JAEA/CLADS, s'est formé autour du projet URASOL (URAnium et aéroSOL). Ce projet vise à acquérir des données scientifiques sur la génération et la caractérisation des aérosols à partir des procédés de découpe mécanique et thermique sur des simulants de corium inactifs et actifs. Ces données se révèlent indispensables dans l'évaluation des mesures de sécurité/sûreté et radioprotection inhérentes aux opérations de démantèlement du réacteur. Cette communication résume l'étude de la caractérisation d'aérosols générés lors des essais de chauffage. Le procédé de chauffe réalisé au sein de l'installation VITAE (VITi-AErosol) du CEA Cadarache (Journeau et al., 2020) simule des conditions représentatives de la découpe thermique par laser (Georges et al., 2017) en termes de chauffe et permet donc d'évaluer les caractéristiques des aérosols que l'on peut attendre lors de la découpe de corium par technique laser. En particulier, la composition des aérosols prélevés lors d'essais de découpe laser sur des échantillons simulant le corium correspond à celle calculée pour une évaporation dans la plage 2800-3000 K (Dazon et al., 2020). Le programme d'essais en température du projet URASOL comprend au total 32 rampes de chauffe sur un total de huit échantillons de simulants de corium (4 inactifs avec de l'hafnium et 4 actifs avec de l'uranium appauvri). Nous présentons ici une unique rampe de température représentative de l'ensemble des essais en inactif réalisés lors du projet.

## 2. MATERIELS ET METHODES

L'ensemble des essais thermiques ont été réalisés sur l'installation VITAE qui combine à la fois l'installation VITI (initialement développée pour mesurer les propriétés thermo-physiques de matériaux fondus lors de scénario d'accidents graves de réacteur nucléaire) (Chikhi *et al.*, 2021) et une ligne de prélèvement d'aérosol dédiée, développée et installée par l'IRSN dans le cadre du projet URASOL. Les aérosols sont générés lors de l'évaporation/condensation de débris de simulant de corium suite à leur chauffe dans le four à induction sous atmosphère inerte d'azote.

## 2.1. Banc d'essais VITAE

La Figure 1 présente l'installation VITAE (partie chauffe). Les échantillons sont placés dans un creuset en tungstène pour les échantillons oxydés, ou en céramique (hafnie ou zircone) pour les échantillons métalliques. Pour réaliser la chauffe du creuset, une méthode par induction est utilisée. Un générateur avec une fréquence de 100 kHz vient alimenter un inducteur refroidi à l'eau et couplé électromagnétiquement à un suscepteur<sup>1</sup> en graphite pour les échantillons oxydés ou en tungstène pour les échantillons métalliques. Le suscepteur chauffe le creuset par transfert radiatif qui lui-même chauffe par conduction thermique l'échantillon à haute température (jusqu'à 3000°C au maximum). Le confinement thermique est réalisé grâce à un bouclier thermique en graphite positionné entre l'inducteur et le suscepteur. L'ensemble de ces éléments constitue la chambre haute température (HTC).



Figure 1. Dispositif expérimental VITAE (partie chauffe). a) Schéma de la chambre haute température (HTC). Les étapes de montage de l'ensemble (HTC), b) mise en place du creuset, c) du suscepteur, d) du bouclier thermique ainsi que du tube de collection des aérosols et e) vue générale de l'HTC assemblée.

Sur le haut de VITAE, un tube en tungstène connecte le suscepteur à la ligne d'échantillonnage, décrite ciaprès, en dehors de l'enceinte de confinement. L'enceinte est refroidie par un circuit d'eau et permet de contrôler l'atmosphère lors des essais. Dans notre cas, les essais sont conduits sous azote en légère surpression de l'ordre de 0,2 bar pour éviter toute entrée d'air ambiant dans l'enceinte. Un thermocouple est placé sous le creuset pour suivre la montée en température avant 850°C, puis deux vidéo-pyromètres bichromatiques permettent le suivi en direct de l'évolution de la température de l'échantillon (pyromètre K1 sur la Figure 1) et du creuset (pyromètre K2 sur la Figure 1) à partir de 850°C. La température mesurée par K2 est prise comme référence de suivi d'essai et nécessite d'être corrigée vis-à-vis de l'émissivité du tungstène.

## 2.2. Ligne d'échantillonnage d'aérosols et métrologie

Une ligne de prélèvement d'aérosols (Figure 2) a été spécifiquement conçue et qualifiée pour collecter les aérosols produits lors des essais de chauffe en portant un soin particulier à minimiser le dépôt des particules lors de leur transport par thermophorèse et diffusion Brownienne, qui sont les mécanismes de dépôt principaux compte tenu de l'ordre de grandeur des particules et des conditions de prélèvement. Le choix de la métrologie des aérosols adaptée à la caractérisation des particules submicroniques a été préalablement justifié et qualifié

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Un suscepteur est un matériau utilisé pour sa capacité à absorber l'énergie électromagnétique et à la convertir en chaleur.

(Porcheron *et al.*, 2021). Les aérosols sont transportés du four vers chaque instrument via une ligne principale d'échantillonnage qui se sépare, par la suite, en quatre lignes indépendantes.

Les quatre instruments de caractérisation des aérosols sont directement connectés, un à un, à chacune des lignes :

- un PEGASOR® pour la mesure en temps réel de la concentration particulaire en nombre au cours de l'essai,
- un Dekati DLPI+® pour la mesure de la distribution en taille des particules en masse ainsi que pour réaliser des post-analyses physico-chimiques pour différentes classes de tailles de particules,
- un filtre très haute efficacité (THE) pour mesurer la concentration massique en particules et réaliser des post-analyses physico-chimiques,
- un mini échantillonneur de particules (MPS) pour la collecte et l'analyse des particules par Microscopie Electronique à Transmission (MET) et par Spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie (EDS).



Figure 2. (à gauche) Schéma de la ligne de collecte d'aérosols, (à droite) la ligne d'échantillonnage d'aérosols connectée au four (Installation VITAE, CEA, Cadarache)

Dans le but d'évaluer l'efficacité de collecte de la ligne de prélèvement qui assure le transport des aérosols de l'enceinte aux quatre instruments de mesure, une simulation numérique de dynamique des fluides (CFD) a été réalisée (Gelain *et al.*, 2020) et montre que les dépôts de particules entre 50 et 200 nm sont négligeables.

# 3. RESULTATS DE CARACTERISATION DES AEROSOLS POUR UN SIMULANT INACTIF DE CORIUM « EN CUVE »

La génération de particules a été étudiée durant la chauffe, avec ici un focus sur la rampe de température comprise entre 1800°C et 2300°C pour le simulant inactif de corium « en cuve » (Dazon *et al.*, 2020) référencé #3IV. La Figure 3 présente l'évolution temporelle de la concentration en nombre des particules générées, en parallèle de l'évolution de la température, pour deux essais répétés dans les mêmes conditions. Les zones grisées correspondent aux durées de prélèvement d'aérosols par le DLPI+ et le filtre THE. L'évolution de la concentration est similaire pour les deux essais, mis à part pour la période correspondant à une température inférieure à 850°C. Cette différence n'a cependant pas d'impact sur la mesure qui a été faite sur la portion 1800 °C à 2300°C et nous supposons qu'elle peut être attribuée à l'émission d'aérosols lors de la vaporisation d'éléments organiques (poussières, eau, sébum déposé lors de la manipulation des échantillons...) durant la montée en chauffe de l'échantillon aux alentours de 400°C.



Figure 3. Evolution temporelle de la concentration en nombre des aérosols et de la température (K2 avant correction), essais de chauffe numéro HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_1 et HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_2.

La distribution massique en taille des particules échantillonnées lors de la rampe de température (1800°C-2300°C) est présentée sur la Figure 4. Les données sont représentées avec un intervalle de confiance de 95%. La procédure pour déterminer l'intervalle de confiance sur les mesures du DLPI+® est décrite dans la norme ISO 15767. La distribution massique en taille suit une loi log-normale avec un diamètre médian aérodynamique (équivalent à la moyenne géométrique dans le cas d'une loi log-normale) égal à 0,24  $\mu$ m et un écart-type géométrique égal à 1,7. La distribution se situe entre 0,01  $\mu$ m et 1  $\mu$ m. Aucune quantité significative de particules n'a été relevée sur les plateaux de l'impacteur correspondant aux diamètres aérodynamiques supérieurs à 1  $\mu$ m.



Figure 4. Distribution en taille des particules échantillonnées lors de l'essai pour un simulant « en cuve » HT\_#3\_Hf-IV\_T2\_2

La Figure 5 présente plusieurs images de particules obtenues lors de l'essai HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_1 durant la rampe de température 1800°C -2300°C. On note une morphologie fractale des aérosols qui sont composés d'agrégats de sphères primaires de tailles nanométriques d'environ 10 à 20 nm. Ces observations permettent d'obtenir une indication sur les mécanismes de formation des aérosols qui sont caractéristiques du processus de génération d'aérosols obtenus par fonte, vaporisation puis recondensation. Des morphologies similaires ont été observées lors de la découpe par laser de simulant de corium (Porcheron *et al.*, 2021).





Figure 5. Visualisation au microscope électronique à transmission (MET) réalisé sur un échantillon de l'essai « en cuve » HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_1.

Les aérosols collectés ont été analysés chimiquement après dissolution, par ICP-MS et ICP-AES selon les éléments. La figure 6 présente les compositions correspondant à la mise en solution des aérosols collectés pendant les essais des deux premières rampes de température (20-1800°C et 1800-2300°C) dont font partie les essais HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_1 et HT\_ #3\_Hf-IV\_T2\_2. Les éléments principaux de ces aérosols sont le fer (39% massique) et l'étain. On observe aussi des relâchements significatifs de manganèse (10 %), baryum (7%), tellure (4%) et césium (2%) et de zinc.

Parmi ces éléments, le baryum, le cérium et le tellure représentent des produits de fission radioactifs. De plus le cérium sert de simulant du plutonium. Il représente 0,01 % massique des éléments analysés dans ces aérosols.



## 4. CONCLUSION

Les particules générées lors des essais présentent des morphologies fractales avec des agglomérats de particules primaires sphériques de taille nanométrique. La taille des agglomérats générés reste en dessous de 1 µm en diamètre aérodynamique médian massique. Une analyse chimique a permis de montrer que si les éléments de structures (fer, étain) forment la grande majorité de ces aérosols, des éléments représentants des radio-isotopes sont aussi présents. Ces deux résultats rejoignent les observations faites sur les essais de découpe laser de corium et confortent le choix d'utiliser VITAE comme moyen de simulation de la découpe laser pour des essais en actif en termes de taille et de morphologie de particules.

#### 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, DOI:10.1080/00223131.2020.1806135.

Chae, N., Lee, M-H., Choi, S., Gi Park, B., Song, J-S. Aerodynamic diameter and radioactivity distributions of radioactive aerosols from activated metals cutting for nuclear power plant decommissioning, Journal of Hazardous Materials 369, 2019.

Oki, Y., Numajiri, M., Suzuki, T., Kanda, Y., Miura, T., Iijima, K., Kondo, K., Particle size and fuming rate of radioactive aerosols generated during the heat cutting of activated metals, Applied Radiation and Isotopes, 45, 1994.

Shimada, T., Tanaka, T., Characterization on the radioactive aerosols dispersed during plasma arc cutting of radioactive metal piping, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 303, 2015.

Pilot, G., Fauvel, S., Gosse, X., de Dinechin, G., Vernhet, D. (2008). Measurement of secondary emissions during laser cutting of steel equipments. Nucl. Eng. Des. 238: 2124–2134.

Porcheron, E., S. Bourrous, S. Peillon, C. Chagnot, C. Journeau, and D. Roulet, 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 FDR2019, 2019.

Journeau, C., V. Bouyer, F. Charollais, N. Chikhi, J. Delacroix, C. Mattassoglio, D. Molina, P. Piluso, P. Sauvecane, S. Thilliez, B. Turquais, C. Suteau, Upgrading The PLINIUS Platform Toward Smarter Prototypic-Corium Experimental R&D, Proc. International Topical Meeting on Advances in Thermalhydraulics (ATH'20), Saclay, p. 294-307, 2020. https://dx.doi.org/10.13182/ATH2020-32848

Georges, C., Roulet, D., Chagnot C., Journeau, C., Canneau G., Blanchard S., Porcheron E., Benefits from developments in the field of Decommissioning for Fukushima Daiichi fuel debris retrieval: Remote-Controlled Laser Cutting Process, Proc. WM2017 Conference, 2017 March 6- 9, Phoenix, AZ, United States.

Dazon C., Porcheron, E., Journeau, C., Suteau, C., Chagnot, C., Doyen, I., Excoffier, E., Roulet, D., Characterization of chemical composition and particle size distribution of aerosols released during laser cutting of fuel debris simulants, J. Envir. Chem. Eng. 8: 103872, 2020.

N. Chikhi, J. Delacroix, P. Fouquart, B. Turquais, Measurement of corium surface tension using the maximum bubble pressure, Nuclear Engineering and Design, Volume 379, 2021, 111266, ISSN 0029-5493, https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111266

Gelain, T., Porcheron, E., Chagnot, C., Doyen, I., Journeau, C., Roulet, D., Development and validation of an agglomeration model for CFD simulations of aerosol dispersion in the frame of Fukushima fuel debris re-trieval, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 58, issue 6, https://doi.org/10.1080/00223131.2020.1862717.