10 & 11 JUILLET 2025

RÉSO FEUX – Compréhension des mécanismes de mise en suspension de radionucléides dans le cadre du programme PIC FEUX

HELENA MASTORI

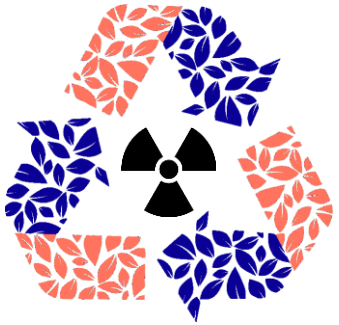
PIC FEUX

De quoi s'agit-il ?

Il s'agit d'un **Projet d'Intérêt Commun (ASNR – ORANO)** portant sur le risque **de mise en suspension** de radioéléments en cas d'incendie impliquant un **mélange de solvants organiques** chargés en **Plutonium**.

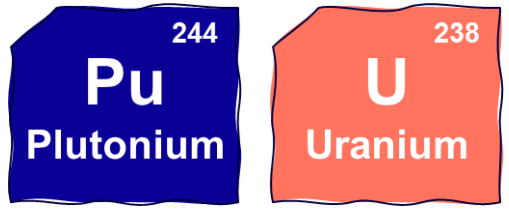
Quelles installations sont concernées ?

Ce risque est particulièrement préoccupant pour les **usines de retraitement du combustible** de la Hague, où le procédé **PUREX** est mis en œuvre.

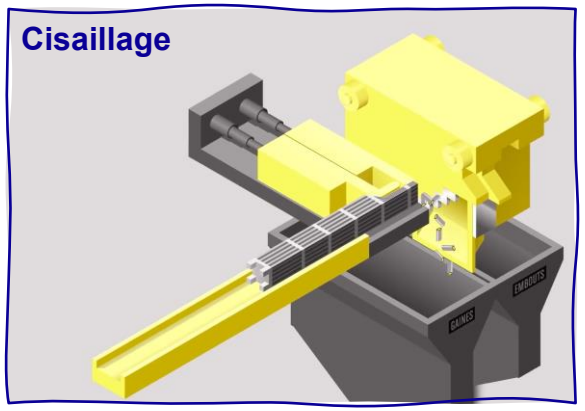


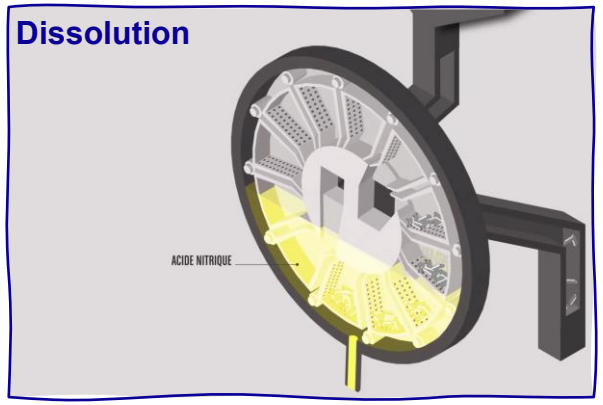
Quel est l'objectif du procédé PUREX ?

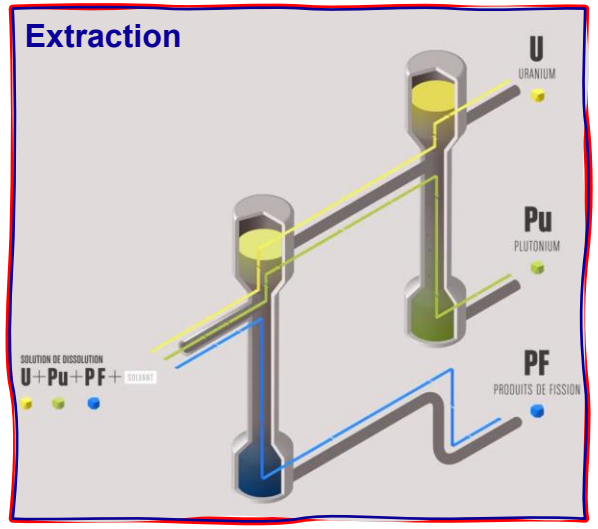
Le procédé PUREX vise à **séparer** les 2 principales composantes du combustible irradié, l'**uranium** et le **plutonium**, d'un résidu de produits de fission et d'actinides considérés comme des déchets.

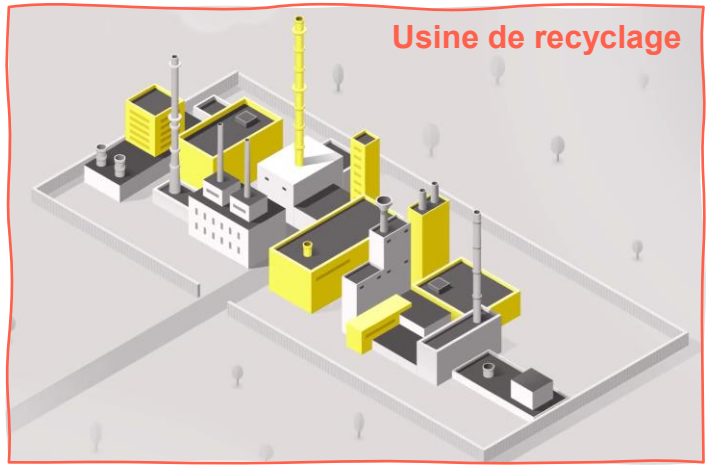


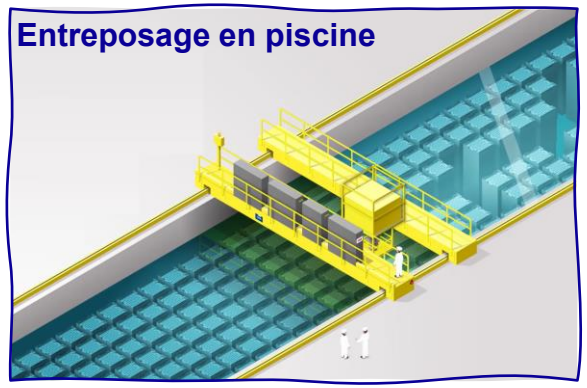
Procédé PUREX

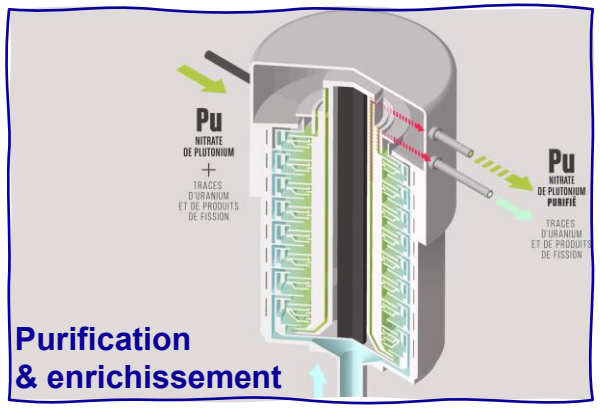


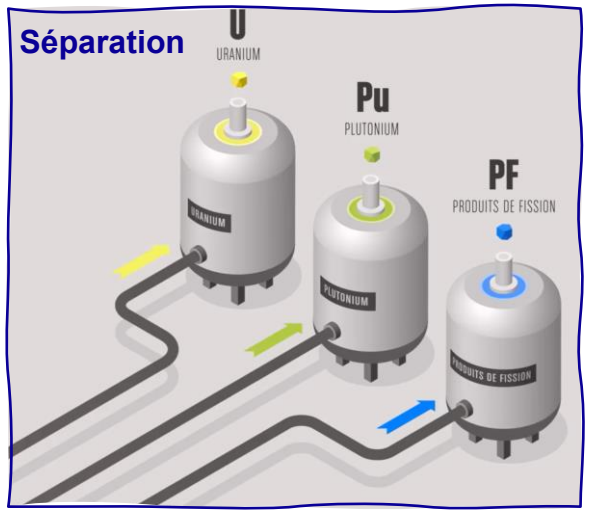










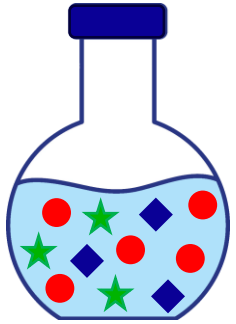


Source : La Hague : vidéo ORANO - laradioactivite.com

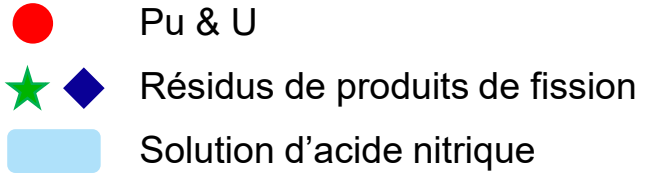
Procédé PUREX

Phases liquides mises en jeu

Les pastilles de combustible irradiées tombent dans un **bain d'acide nitrique bouillant**, où elles se dissolvent.



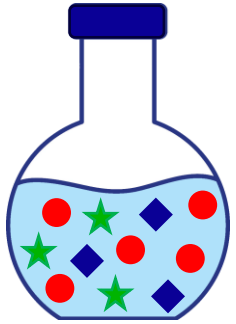
Phase aqueuse acide



Procédé PUREX

Phases liquides mises en jeu

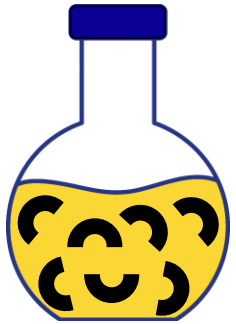
Les pastilles de combustible irradiées tombent dans un **bain d'acide nitrique bouillant**, où elles se dissolvent.



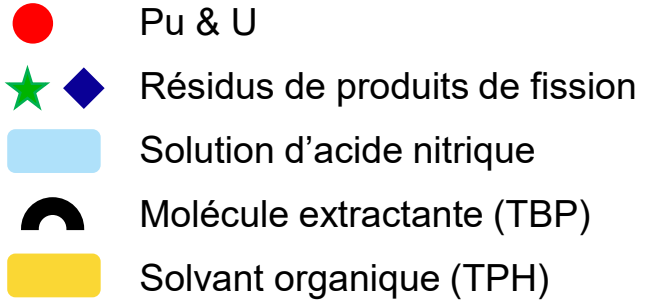
Phase aqueuse acide

Une **phase organique** composée de TBP/TPH est ajoutée.

- Le **TBP**, molécule spécifique (**extractant sélectif**), joue le rôle d'**enzyme** vis-à-vis du plutonium (**Pu**) et de l'uranium (**U**). Il va les "reconnaître" et les capter **spécifiquement** en formant des complexes avec ces éléments.
- Le **TPH** (dodécane) est un **solvant organique**. Il permet de véhiculer le TBP dans une phase organique séparée de l'eau.



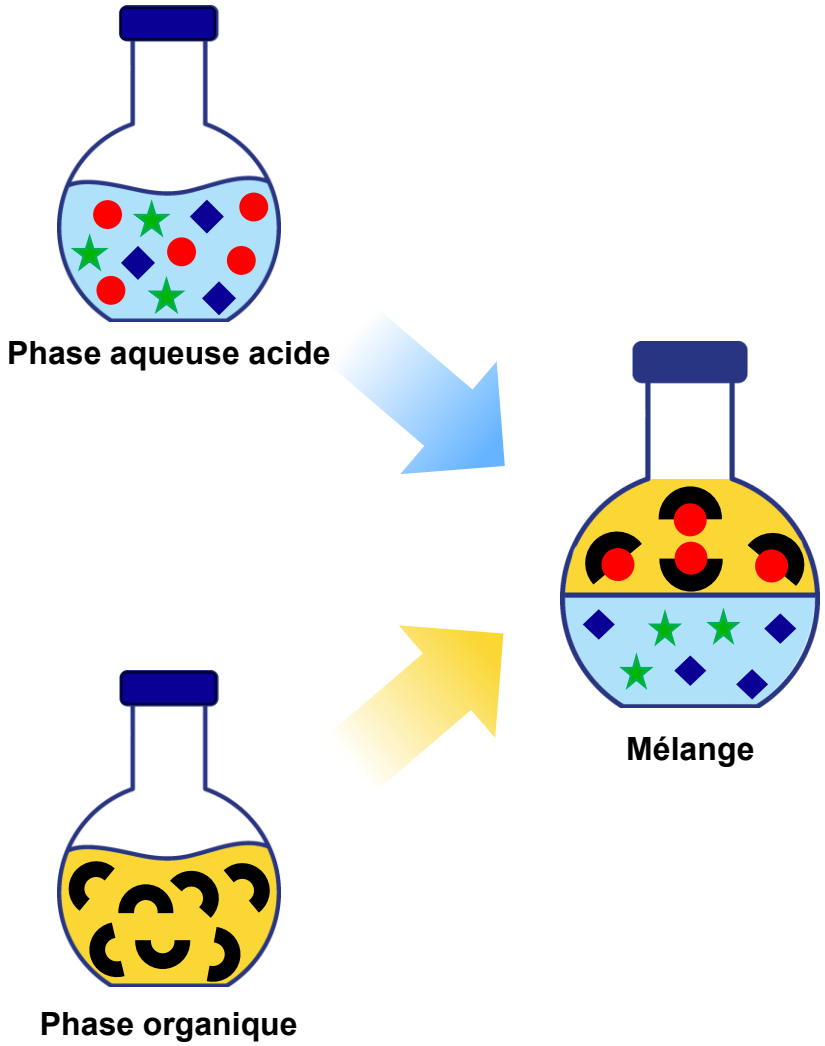
Phase organique



Procédé PUREX

Extraction liquide-liquide

Les pastilles de combustible irradiées tombent dans un **bain d'acide nitrique bouillant**, où elles se dissolvent.

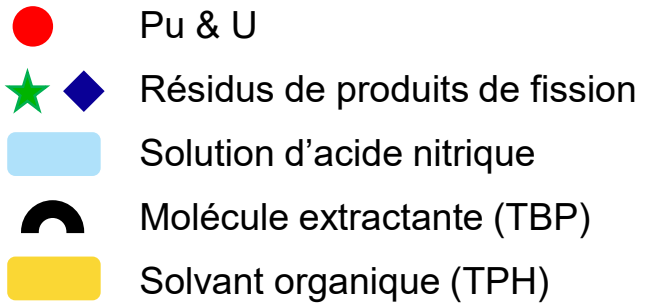


Une **phase organique** composée de TBP/TPH est ajoutée.

- Le **TBP**, molécule spécifique (**extractant sélectif**), joue le rôle d'**enzyme** vis-à-vis du plutonium (**Pu**) et de l'uranium (**U**). Il va les "reconnaître" et les capter **spécifiquement** en formant des complexes avec ces éléments.
- Le **TPH** (dodécane) est un **solvant organique**. Il permet de véhiculer le TBP dans une phase organique séparée de l'eau.

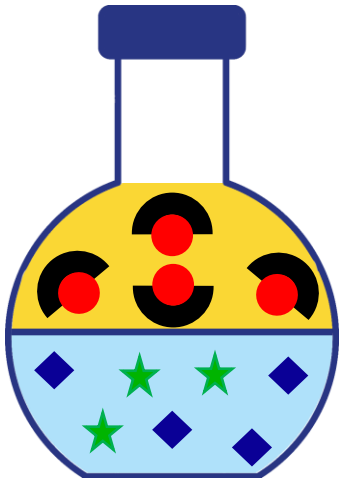
Ce système biphasique (**aqueux** : HNO_3 /**organique** : TBP+TPH) permet ainsi de **transférer sélectivement** l'U et le Pu de la **phase aqueuse** vers la **phase organique**, en les extrayant des produits de fission et autres déchets résiduels.

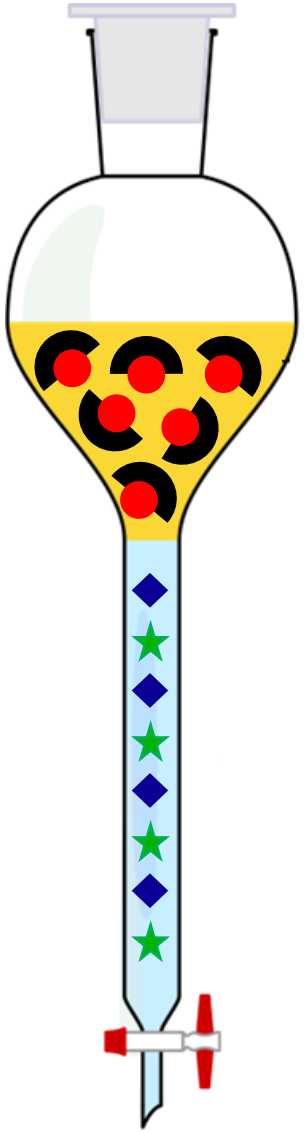
Cette **extraction liquide/liquide** n'est **efficace** que dans des conditions **très acides**.



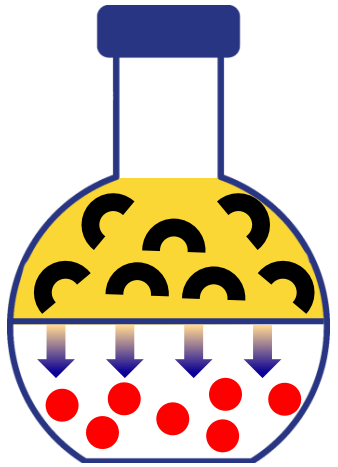
Procédé PUREX

Extraction liquide-liquide





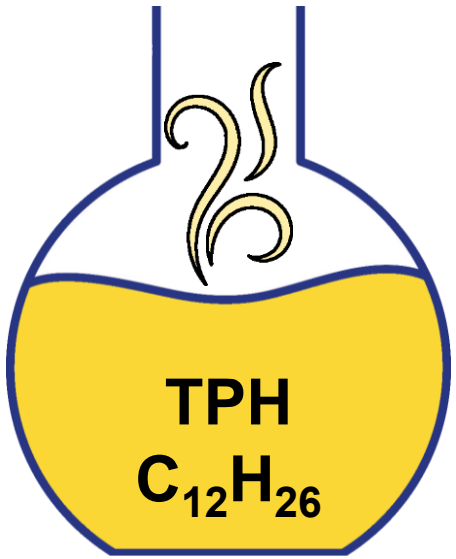
Décantation



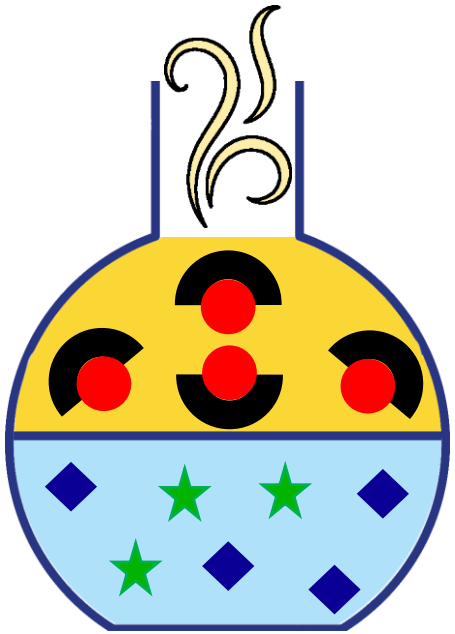
La **phase organique** est mise en contact avec de l'**eau pure**.
→ le **TBP/TPH** n'est plus **efficace** (très faible acidité).
→ **Pu et U relâchés**.

Procédé PUREX

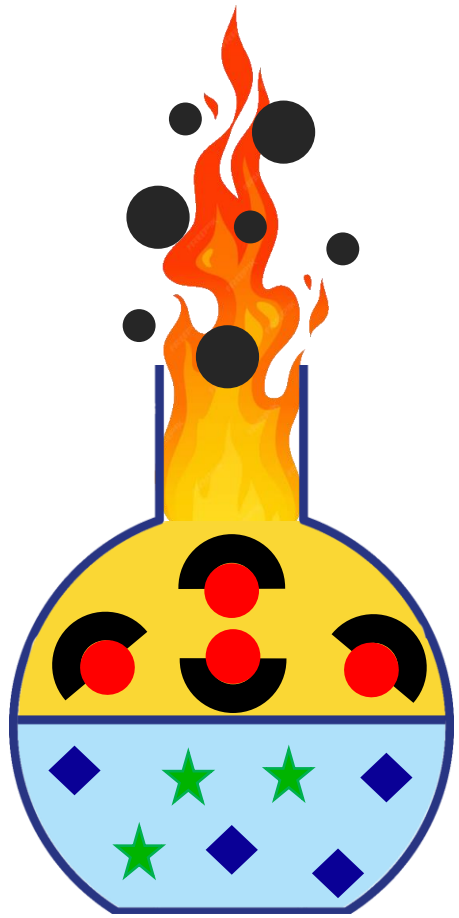
Problématique



Le TPH présente **un point éclair** (*flash point*) bas **≈ 50°C**



→ A partir de 50°C il émet suffisamment de **vapeurs** pour former un **mélange inflammable** avec l'air, **en présence d'une source d'allumage**.



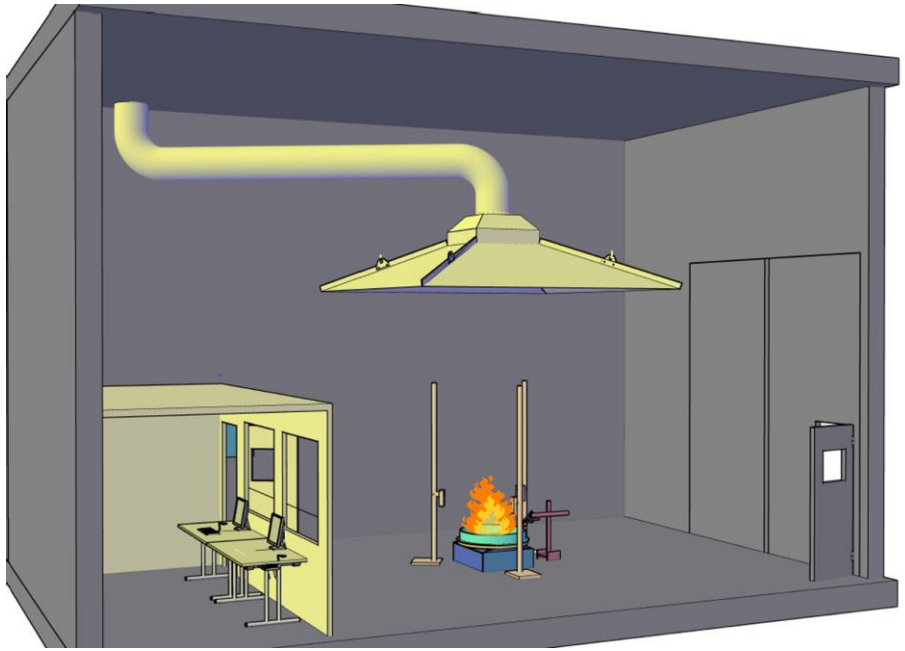
→ **Mélange** facilement **inflammable**
→ Risque de **mise en suspension** de **matière radioactive**.

Installations & Essais

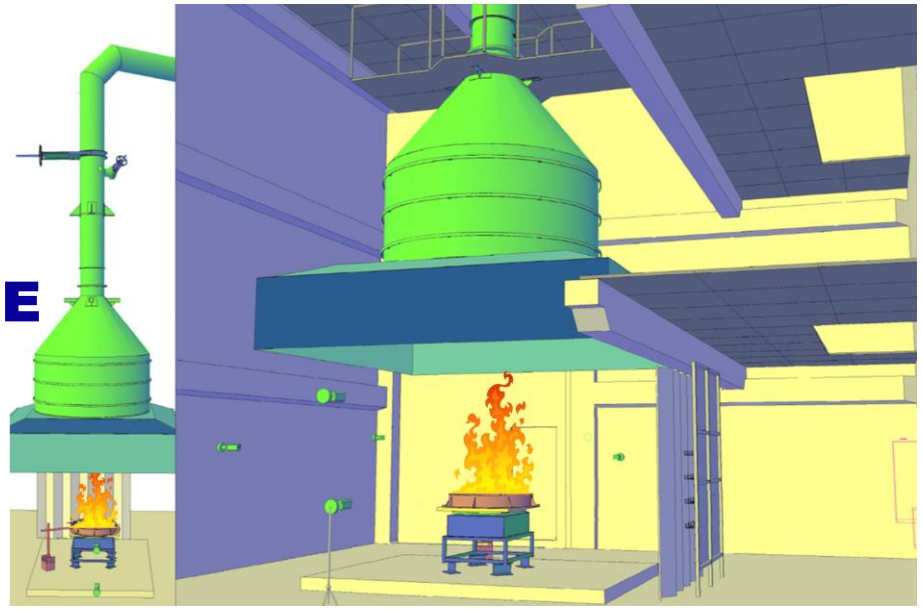
- La campagne d'essais a consisté à :
  - réaliser des **feux de nappes**,
  - à grande et moyenne échelle (Local MARS & Tour SATURNE),
  - en **milieu ouvert**:
    - ✓ Pas de limitation en Oxygène,
    - ✓ Pas d'effet de la pression.
  - avec un mélange de **phases organique** et **aqueuse acide** (HNO_3 (3M)),
  - sans contaminant.

- Le but de ces essais est de caractériser :
  - **La combustion** du mélange,
  - **Le(s) mécanisme(s)** responsable(s) de la **mise en suspension** de radioéléments.

MARS

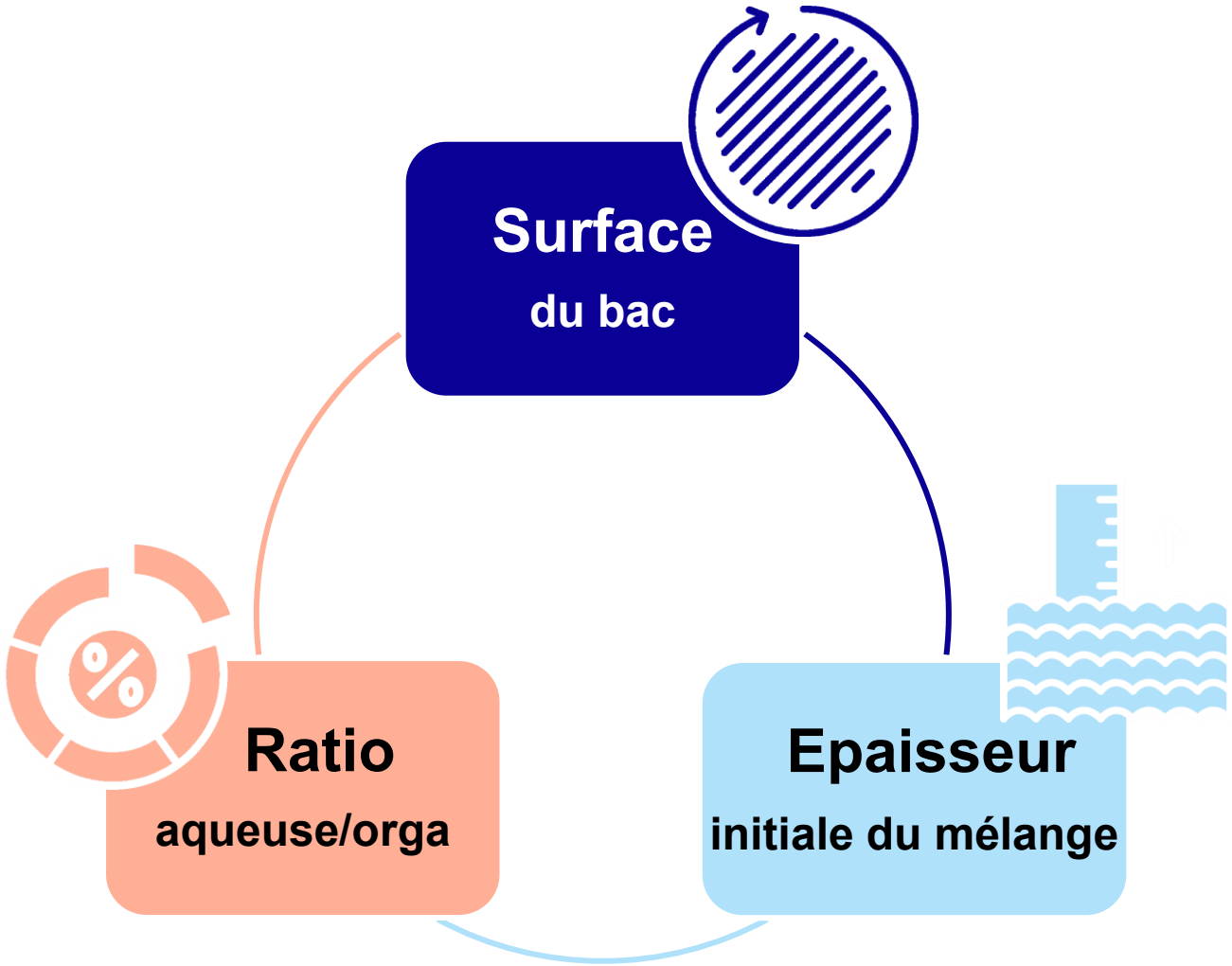


Tour SATURNE



Matrice expérimentale

Etude de trois paramètres



0,2 m²
0,4 m²

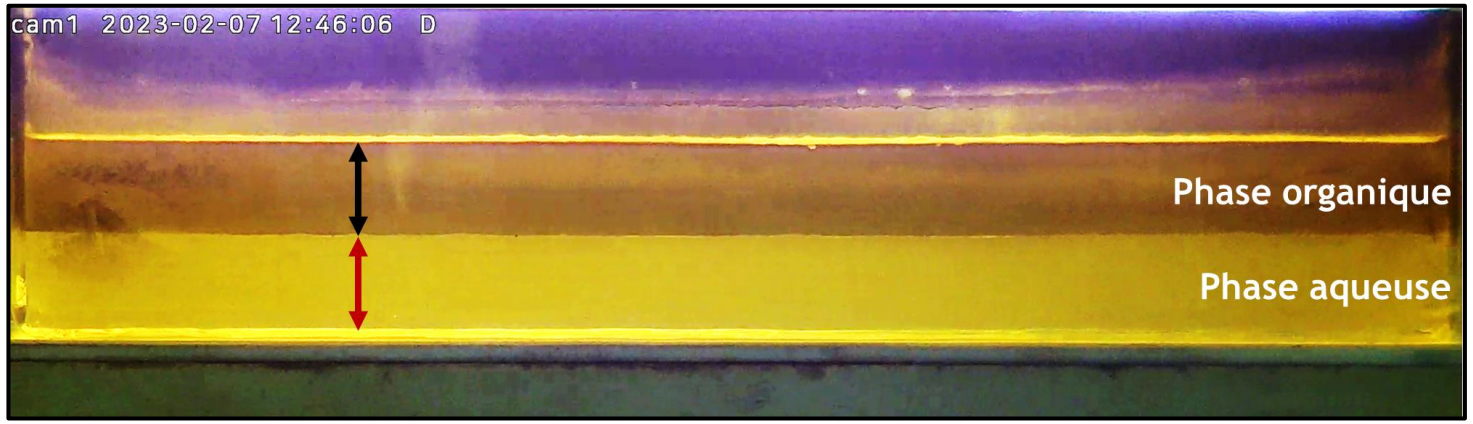
1:1
1:2
1:4

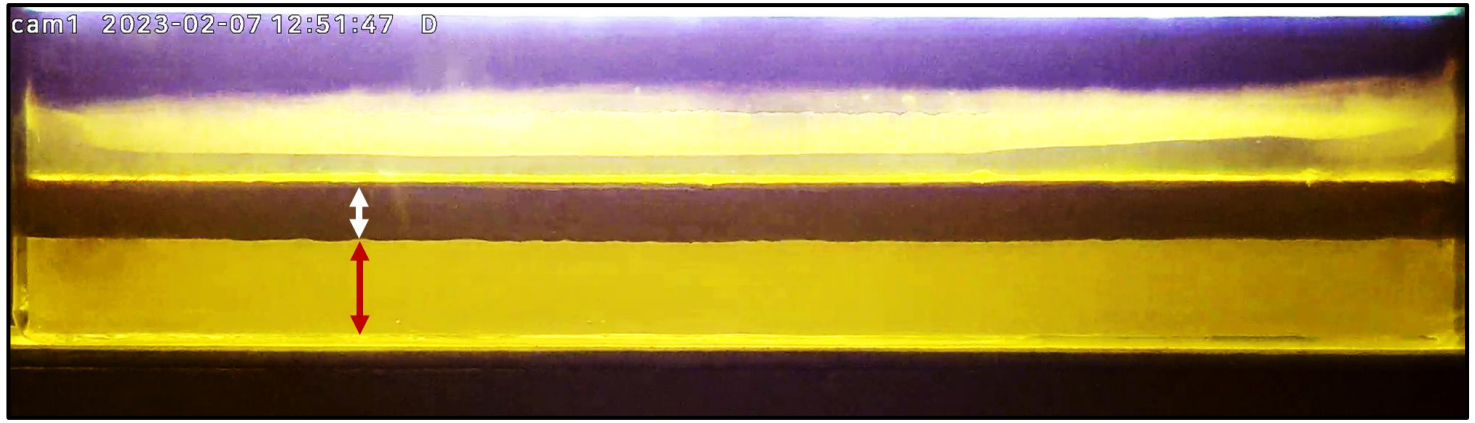
2 cm
6 cm
8 cm

Total de 13 essais

Description qualitative de la combustion

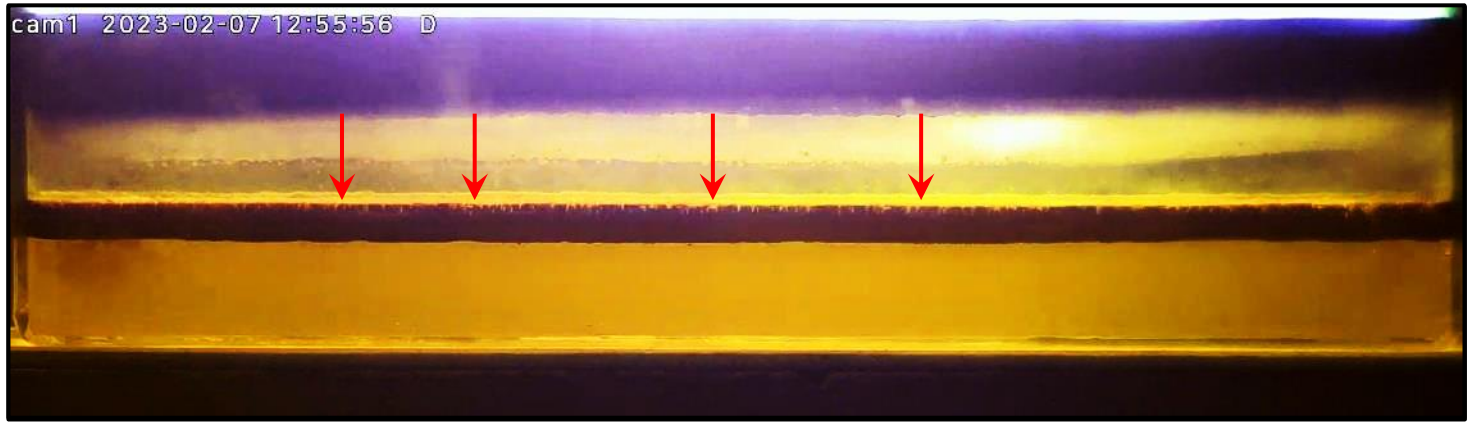
Le **déroulement du feu** est globalement **similaire** pour l'**ensemble des essais** réalisés avec l'**acide**.
A la suite de l'allumage, la combustion se caractérise par **un feu plutôt stable**, durant lequel la phase organique se consume de **manière régulière**.
A ce stade de l'essai, aucun **phénomène d'ébullition** n'est constaté.

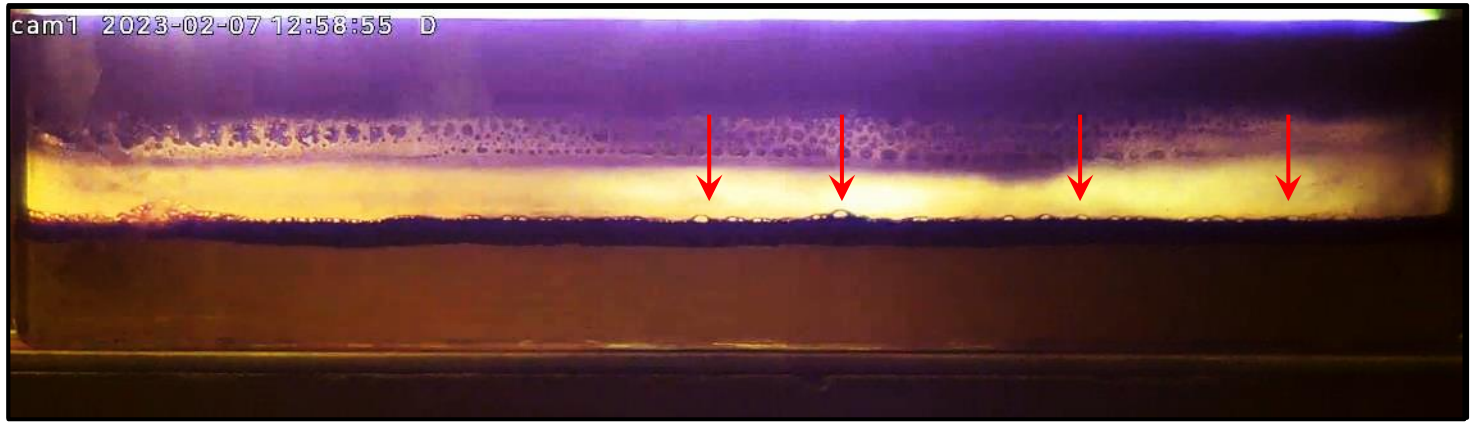




Description qualitative de la combustion

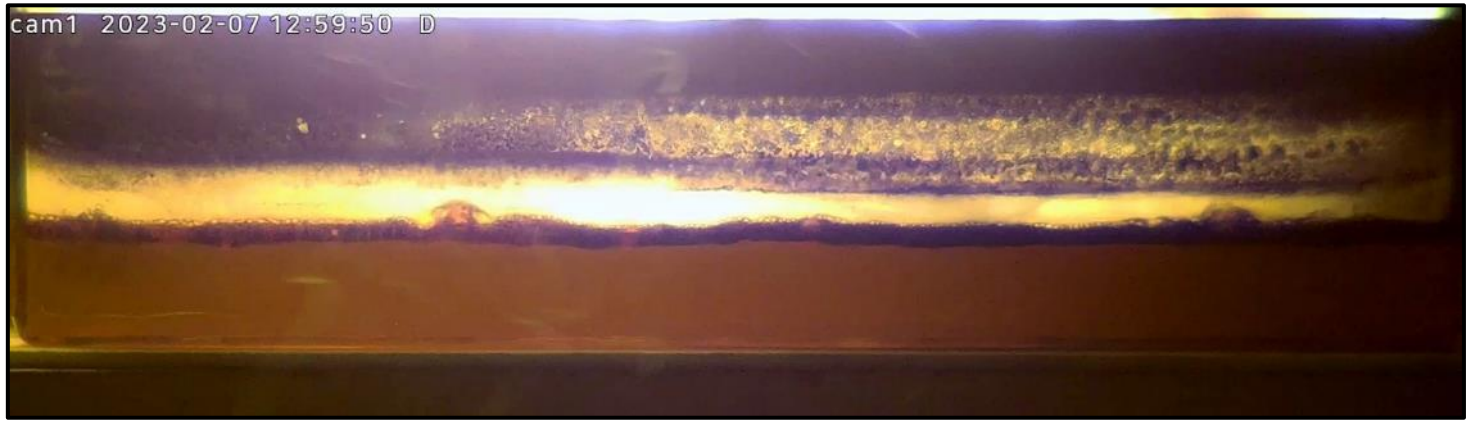
A mesure que la combustion se poursuit, **quelques sites de nucléation** se forment à la surface de la phase organique et donnent lieu à des **bulles** de très petite taille d'**environ 1 mm**.
Par la suite, ces sites de nucléation deviennent de **plus en plus nombreux**, **coalescent** et augmentent de taille formant de **bulles de plusieurs mm de diamètre**.
Ces bulles vont, à leur tour, devenir de **plus en plus nombreuses** et s'étalent sur la surface du liquide.

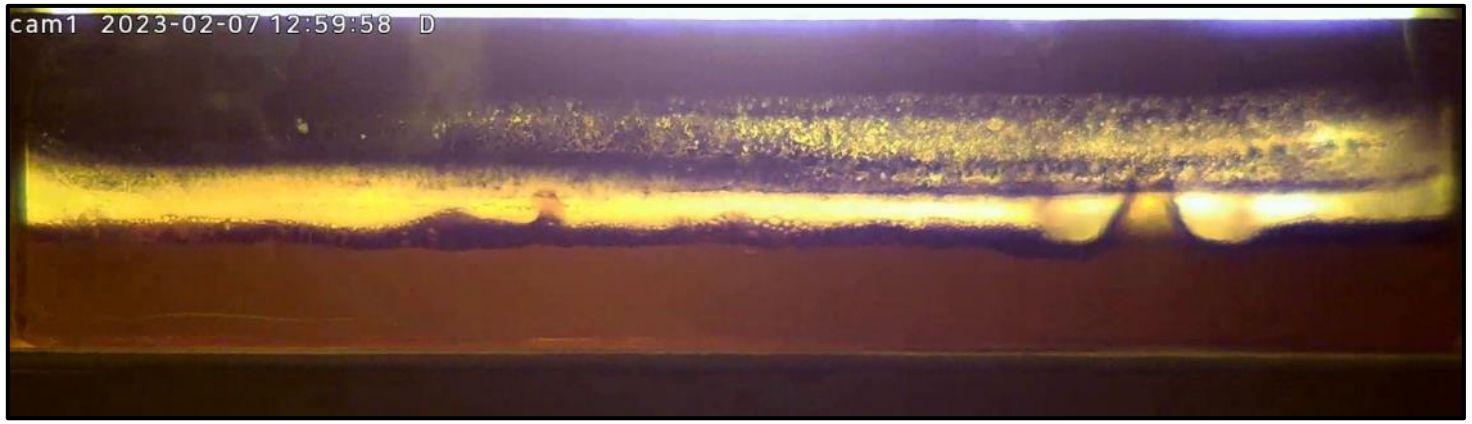




Description qualitative de la combustion

Lorsqu'une grande quantité de **phase organique** est consumée, **l'ébullition** de la quantité organique restante s'**intensifie** à la suite de la **vaporisation** de la **phase aqueuse**.
Une **combustion éruptive** est alors observée.
La vaporisation brutale conduit à la **mise en suspension** de **gouttelettes** de liquide. L'**emballement de la réaction** est observé à la fin des essais **avant l'extinction** du feu.





Description qualitative de la combustion

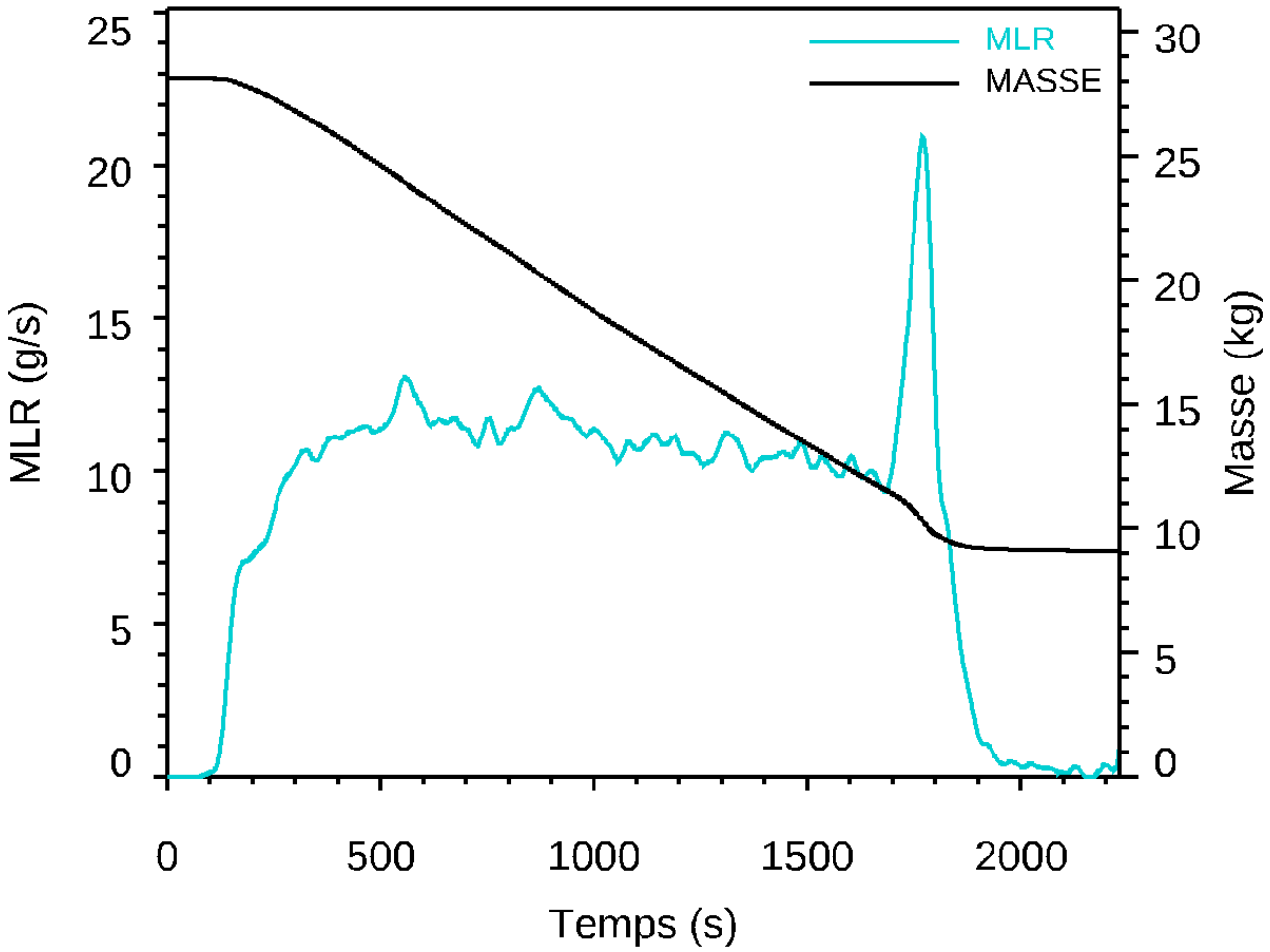
L'**ampleur** de la combustion « éruptive » peut être encore **plus importante**. En plus de l'augmentation de la taille de la flamme et de la mise en suspension de gouttelettes de liquide, une **réinflammation des gouttelettes projetées** à proximité du bac est observée pour certains essais.

Description qualitative de la combustion

La **nouvelle flamme** ainsi formée **se propage à proximité du bac** et **enflamme** à son tour **les gouttelettes qui viennent d'être projetées**. Ceci n'est observé que pour certaines configurations d'essais.

Grandeurs physiques

Taux de perte de masse MLR (*Mass Loss Rate*)



Surface d'échange :

L'**augmentation de la surface d'échange** entre la phase liquide et l'atmosphère lors de l'**éjection des gouttelettes** entraîne une augmentation du taux d'évaporation du combustible.

Les projections de gouttelettes :

L'**expulsion de combustible** à l'extérieur du bac augmente la perte de masse.

L'évaporation brutale de la phase aqueuse :

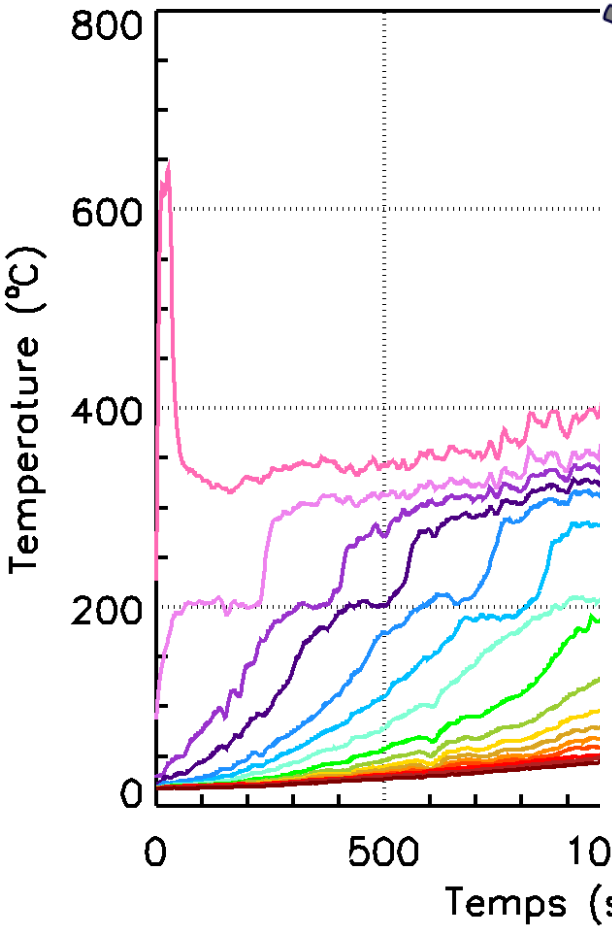
La **vaporisation** rapide de la **phase aqueuse**, sous l'effet de la chaleur accumulée, entraîne une perte de masse supplémentaire en fin de combustion

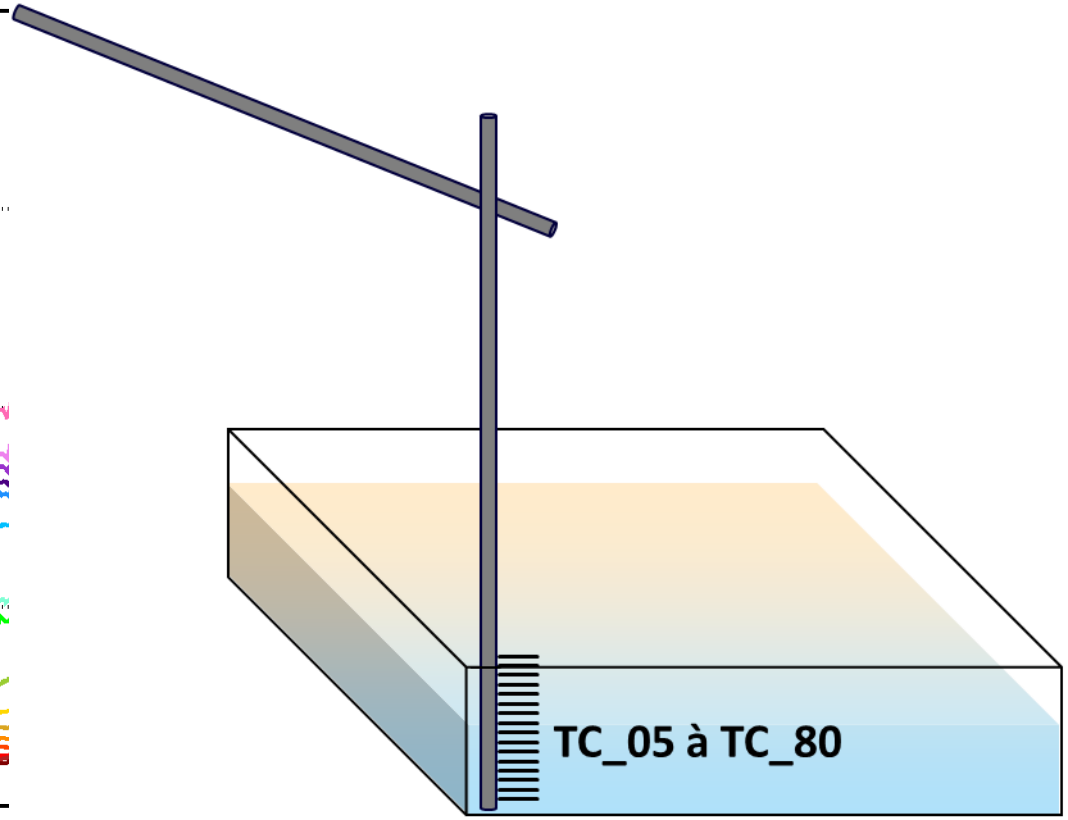
Grandeurs physiques

Gradient thermique dans le combustible

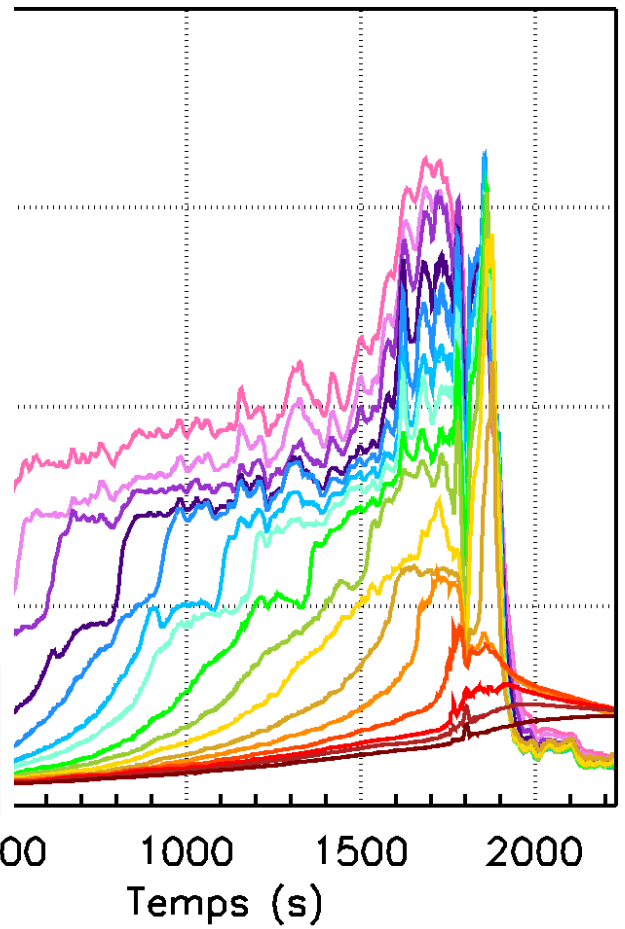
S = 0,4 m²
e = 8 cm
Ratio = 1/4

Phase aqueuse : Eau





Phase aqueuse : Acide

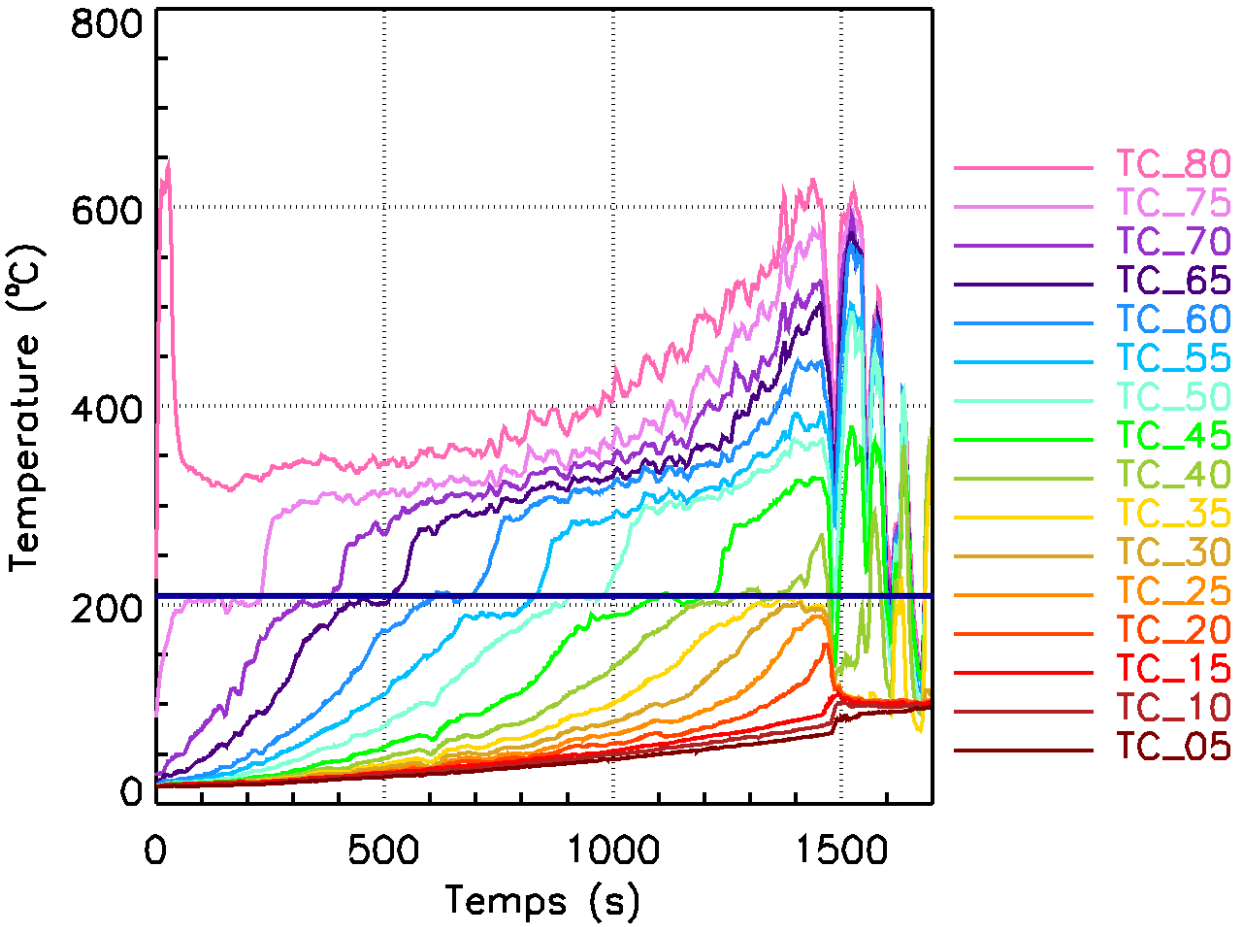


Grandeurs physiques

S = 0,4 m²
e = 8 cm
Ratio = 1/4

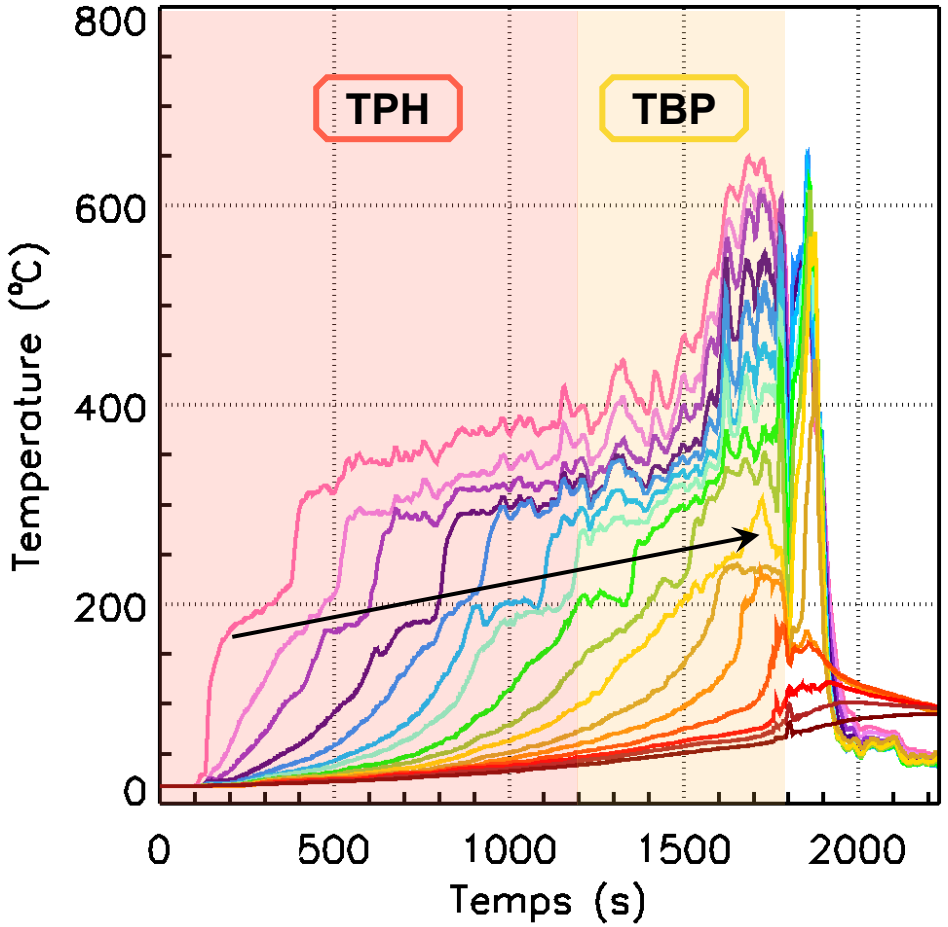
Gradient thermique dans le combustible

Phase aqueuse : Eau



$T_{ébullition\ phase\ organique} \approx 210$ °C

Phase aqueuse : Acide



$T_{ébullition\ TPH} \approx 190$ °C

$T_{ébullition\ TBP} \rightarrow 240$ °C

Mécanisme de combustion

Boilover en couche mince

- **Etape 1 : Evaporation du TPH**

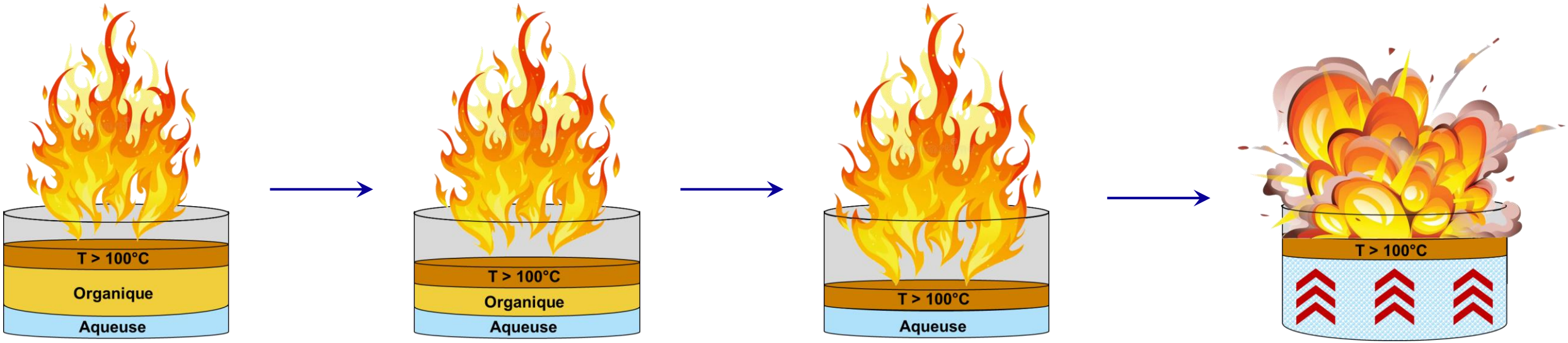
Le **TPH** présent à 70%v dans la phase organique, s'évapore seul à environ **190°C**.

- **Etape 2 : Evaporation/décomposition du TBP**

Lorsque la **phase organique** s'appauvrit en TPH et donc devient **riche en TBP**, ce dernier commence à se **décomposer** pour des températures de plus en plus élevées **tendant vers sa température maximale de décomposition**, à savoir **240°C**.

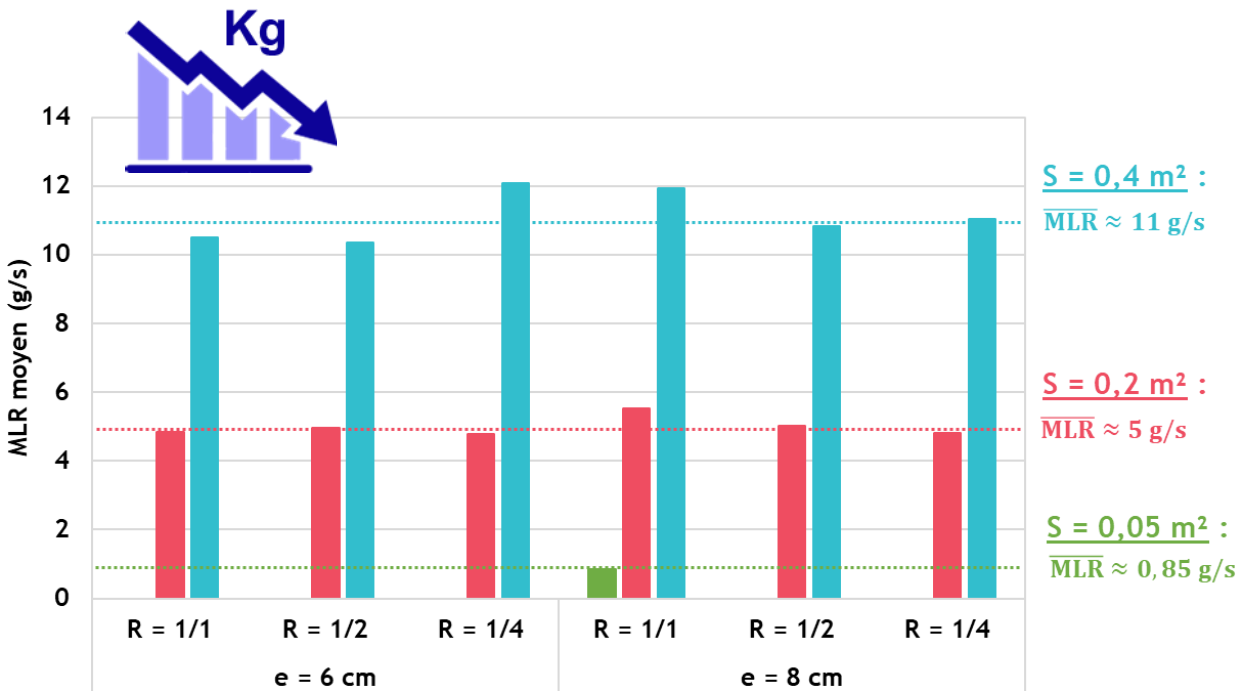
- **Etape 3 : Boilover en couche mince**

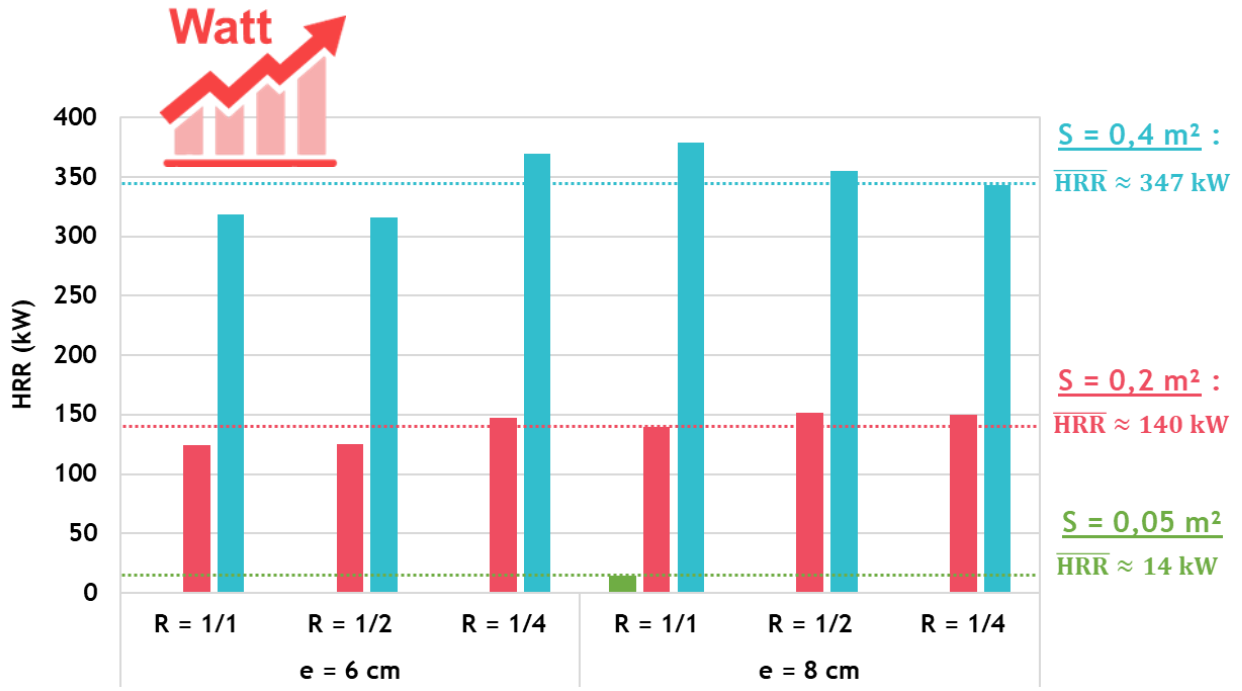
Lorsque **la surface de liquide** dont la température est de **240°C** arrive **au contact de la phase aqueuse** présente au fond du bac, la phase aqueuse **se vaporise brutalement** et agit comme **un piston** en mettant en suspension la couche de phase organique située au-dessus d'elle sous forme de gouttelettes. Il s'agit du phénomène de **boil-over de type couche mince**.



Effet des paramètres étudiés

Taux de perte de masse MLR (*Mass Loss Rate*) et Taux de chaleur dégagée HRR (*Heat Release Rate*)

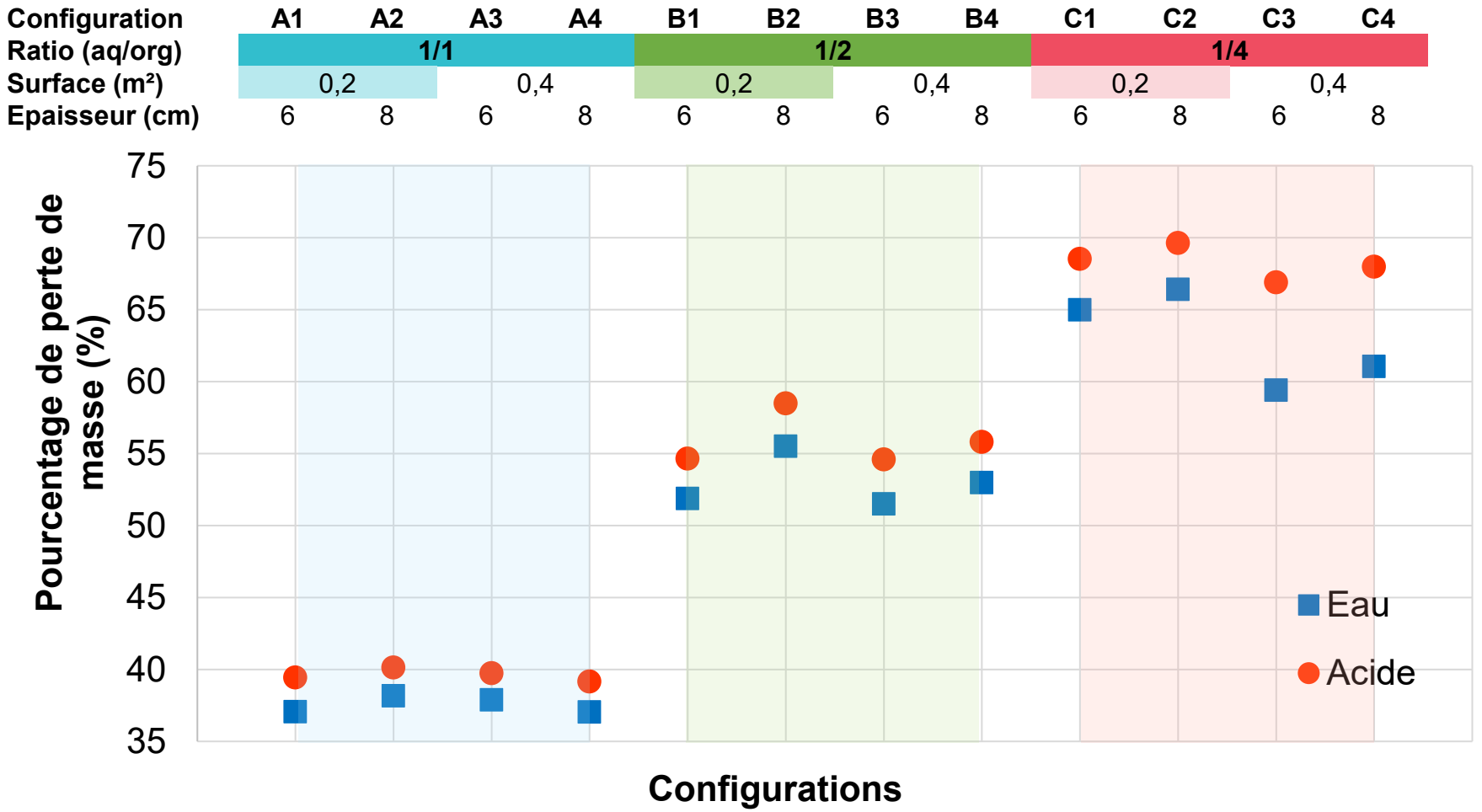




Dans le cadre de cette étude, la **surface du bac** semble avoir le plus d'impact sur les **grandeurs étudiées (MLR, HRR et FLR)** pendant la phase stationnaire,

Effet des paramètres étudiés

Quantité de matière projetée



Dans le cadre de cette étude, le **ratio** se démarque nettement des autres paramètres et semble exercer un **impact significatif** vis-à-vis de la **quantité de matière projetée** lors de la phase de pré-extinction.

Conclusions & Perspectives

Conclusions

- Le mécanisme de **combustion** observé lors d'un feu de **TBP + TPH + HNO_3 (3M)** : **combustion stable** suivie d'un **emballement** de la réaction vers la fin (**combustion éruptive**). Cette dernière est caractérisée par une **ébullition intense**, des **projections** de liquide et une **augmentation de la taille de flamme**.

- L'évaluation des **profils thermiques** au sein des solutions met en évidence :
  - L'évolution de **la température d'évaporation** de la phase organique **au cours de l'essai**,
  - Le phénomène de **Boilover en couche mince** survenant lors de la phase de **pré-extinction**.

- La présence d'**acide** semble **modifier la composition** de la phase organique.

- Le **boil-over** demeure le **mécanisme prédominant** vis-à-vis des **projections observées**, mais **son intensité** est **renforcée par la présence de l'acide** (la température de la phase organique lors de son contact avec la phase aqueuse & le rapport de perte de masse constaté).

- Dans le cadre de cette étude :
  - **La surface du bac** semble avoir le plus d'impact sur les **grandeurs étudiées (MLR, HRR et FLR)** pendant la phase stationnaire,
  - **Le ratio** se démarque nettement des autres paramètres et semble exercer un **impact significatif** vis-à-vis de la **quantité de matière projetée** lors de la phase de pré-extinction.

Conclusions & Perspectives

Perspectives

- Une **troisième campagne** expérimentale **à grande échelle**, en **milieu ouvert**, est en cours, avec une phase aqueuse **acide** et un **simulant du Pu**.

- Lors de cette campagne, une **étude plus fine** est réalisée sur les **phénomènes d'ébullition** observés en adaptant la **métrologie** mise en place.

  Une **métrologie optique** spécifique en cours de développement sera mise en place afin de **caractériser le(s) mécanisme(s)** responsable(s) de **la mise en suspension** de matières radioactives **en cas d'incendie**: caméra IR, système laser + ombroscopie et traitement d'image associé.

- Un **dispositif de prélèvement** couplé à des **précipitateurs électrostatiques** (dispositif SALSA_S) sont mis en place pour **la quantification de la matière mise en suspension** lors d'un feu de nappe mettant en jeu le simulant du Pu.

- Une **quatrième campagne** expérimentale **à grande échelle**, en **milieu confiné et mécaniquement ventilé**, est prévue en 2027, avec une phase aqueuse **acide** et un **simulant du Pu**

MERCI DE VOTRE ATTENTION !