

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA DEGRADATION DE MATERIAUX DE L'INDUSTRIE NUCLEAIRE SOUMIS A UN RAYONNEMENT THERMIQUE

M. Piller*, M. Coutin, H. Prétrel, J.M. Such
Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN)
Département de Prévention des accidents Majeurs (DPAM)
Service d'études et de recherches expérimentales sur les accidents (SEREA)
CE de Cadarache, 13108 St Paul-lez-Durance (France)

marc.piller@irsn.fr, mickael.coutin@irsn.fr, hugues.pretrel@irsn.fr; jean-marc.such@irsn.fr

RESUME

L'article présente une étude expérimentale sur le comportement de matériaux utilisés dans l'industrie nucléaire soumis à un rayonnement thermique. L'analyse se concentre sur la cinétique de dégradation des matériaux et les flux de chaleur critiques conduisant à l'apparition de certains processus chimiques. Plusieurs types d'évènements thermiques sont identifiés (déformation, coulées de matière, inflammation) suivant la nature des matériaux testés. Dans cette étude, l'éclairement critique de dégradation est défini comme étant l'éclairement minimal permettant d'obtenir l'apparition d'un événement donné au cours de la dégradation. Nous avons cherché à évaluer les éclairements critiques de deux façons différentes. D'abord à partir d'une méthode semi-empirique, utilisant une loi physique pour interpoler des nuages de points expérimentaux, puis une méthode purement expérimentale utilisant uniquement les résultats d'observation. Cette connaissance contribuera à l'évaluation des risques de dispersion des produits radioactifs en cas d'incendie dans une installation nucléaire.

NOMENCLATURE

t	temps	(s)	K	conductivité thermique	($W.m^{-1}.K^{-1}$)
T	température	(K)	τ	épaisseur du matériau	(m)
E	éclairement	($kW.m^{-2}$)	T	température ambiante	(K)
ρ	densité	($kg.m^{-3}$)	E_C^{SE}	éclairement critique semi-empirique	($kW.m^{-2}$)
C	chaleur spécifique	($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	E_C^{EXP}	éclairement critique expérimental	($kW.m^{-2}$)

1. INTRODUCTION

Le programme expérimental baptisé PICSEL_C, objet de l'étude présentée dans cet article, vise à caractériser du point de vue de leur résistance à un éclairement thermique, des éléments de boîte à gants (appelés cibles) utilisés dans l'industrie nucléaire. Après avoir décrit brièvement le dispositif expérimental, nous présenterons de façon synthétique les différents phénomènes de dégradation (évènements) observés au cours de la campagne d'essais, puis nous préciserons les objectifs recherchés dans le cadre de la caractérisation des échantillons, à savoir la détermination des instants d'apparition des évènements, et l'évaluation des flux critiques associés.

2. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les essais ont été réalisés dans la tour SATURNE du laboratoire d'expérimentation des feux de l'IRSN, à Cadarache. La tour est une enceinte d'un volume intérieur de 2000 m³. Le principe du dispositif, présenté sur le schéma de la Figure 1, est de chauffer des équipements à l'aide d'un

panneau radiant composé de résistances électriques (cf. Figure 2). Le flux de chaleur radiatif émis par le panneau est tel que l'éclairement au niveau de l'échantillon peut atteindre 70 kW/m^2 . Le panneau radiant est utilisé selon trois positions de fonctionnement. La position 1 correspond à la phase de montée en puissance du panneau jusqu'au niveau d'éclairement prédéterminé. L'évolution de la puissance est contrôlée par un opérateur, en observant la courbe de flux enregistrée par un fluxmètre radiatif à fenêtre. Lorsque la stabilisation du flux radiatif est atteinte, le panneau est déplacé en position 2, phase où la quantification et le contrôle du flux vont être réalisés. Ce contrôle en phase de pré-exposition de l'échantillon est réalisé à l'aide d'une boîte métallique équipée de sept fluxmètres radiatifs et permet de s'assurer que l'échantillon recevra bien sur sa surface l'éclairement souhaité.

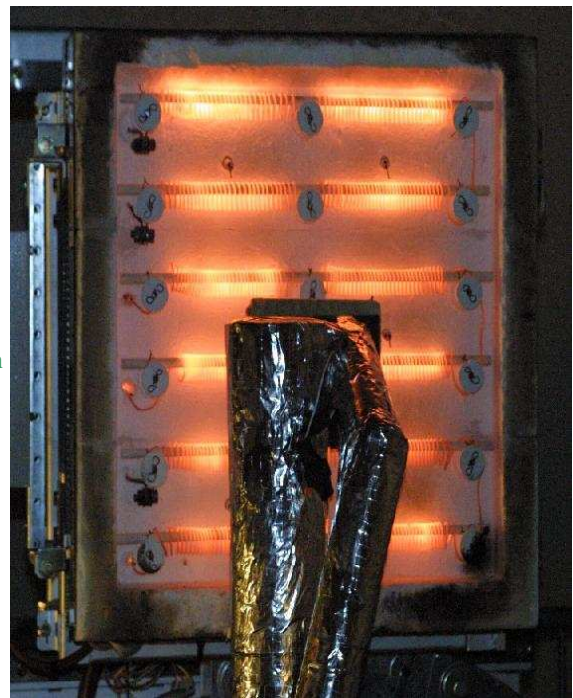
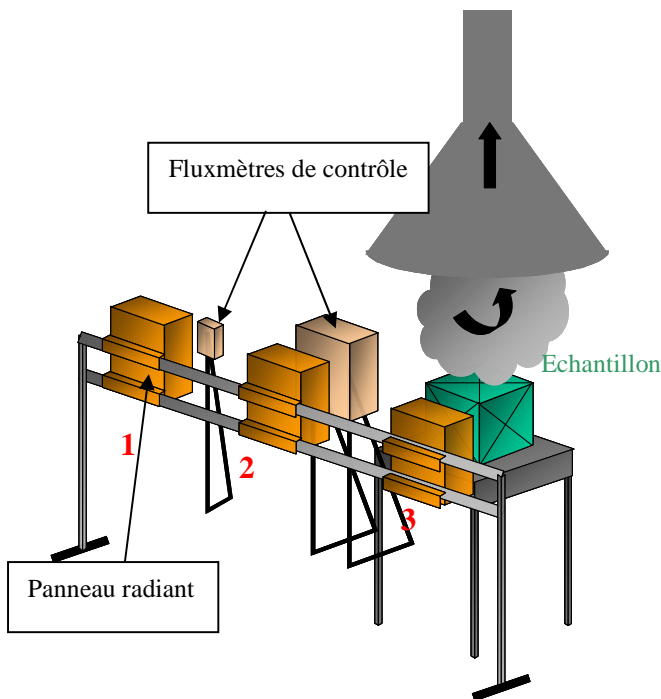


Figure 1 : schéma de principe du dispositif d'essai

Figure 2 : panneau radiant électrique

Pendant la phase de dégradation des échantillons, un observateur relève les phénomènes physico-chimiques qui apparaissent au cours du temps. Cette description des processus de dégradation, essentiellement visuelle, est étayée par des mesures physiques comme la perte de masse de l'échantillon, la concentration des gaz produits et la production de suies. A noter que les échantillons testés n'ont pas été soumis à une force de pression due à la dépression régnant dans une boîte à gant.

3. CARACTERISATION DES ECHANTILLONS

3.1 Description des phénomènes de dégradation (événements)

Les processus de dégradation de seize matériaux de boîte à gant ont été décrits et repérés dans le temps selon les niveaux d'éclairements reçus. Ces éléments sont les plus représentatifs de leurs catégories et ont la particularité de constituer un risque de rupture de confinement en cas de dégradation.

Le Tableau 1 ci-dessous synthétise l'ensemble des phénomènes observés (événements) ainsi que la liste des matériaux concernés, par type d'évènement. Par exemple, au vu de ce tableau, le LEXAN et le polypropylène ont fait l'objet d'une distension et d'un gonflement au cours de leurs dégradations.

Tableau 1 : Synthèse des événements observés au cours de la campagne d'essais

Evènements observés	Equipement concernés
Dégagement de fumées	TOUS
Formation de bulles	A, N, O
Distension et gonflement	A, J
Auto-Inflammation	A, B, C, D, I, J, P, Q
Coulée de matière	A, K, I, L, N, O
Laminage	F, G
Trou en surface	F, B, C, D, I, G, E
Décollement et chute	K, B, E
Changement de texture	C
Rugosités en surface	H
Rupture du joint	M
Chute des vis de fixation	N
Sortie du joint	O

A	LEXAN
B	NEOPRENE
C	HYPALON
D	NEOPRENE/ HYPALON
E	PUR*
F	PVC
G	PUR*
H	PVC
I	PE* + NEOPRENE
J	PP*+NEOPRENE
K	PVC+NEOPRENE
L	PP*
M	NEOPRENE
N	LEXAN+JOINT VITON
O	LEXAN+JOINT NITRILE
P	NITRILE + PP*
Q	NITRILE + PP* + PVC

3.2 Etude de l'influence du flux incident sur le temps d'apparition des événements

La première démarche en termes de caractérisation a été l'étude de l'influence du flux incident sur le temps d'apparition des événements. Pour ce faire, il a été élaboré, à partir des observations, des graphes donnant les temps d'apparition des événements en fonction du flux incident. A titre d'exemple, deux graphes associés à deux matériaux sont donnés en Figure 3. Chaque graphe comporte les courbes donnant le temps d'apparition t_a des événements observés lors de la dégradation, en fonction de l'éclairement E au niveau du matériau.

Ces graphes constituent des abaques uniques et spécifiques de caractérisation, associés à des composants réels de boîte à gant et de fûts de déchets et permettent de mettre en exergue deux constatations. La première est la vérification que plus le flux reçu est important, plus le temps d'apparition des événements est court. En second lieu, on constate que les meilleures courbes de régressions associées aux points expérimentaux sont des courbes en loi de puissances négatives, c'est à dire que E est fonction de $(1/t_a)^n$. Ce dernier point sera corroboré par la recherche des flux critiques dans le chapitre suivant.

* PUR : Polyuréthane, PE : Polyéthylène, PP : Polypropylène

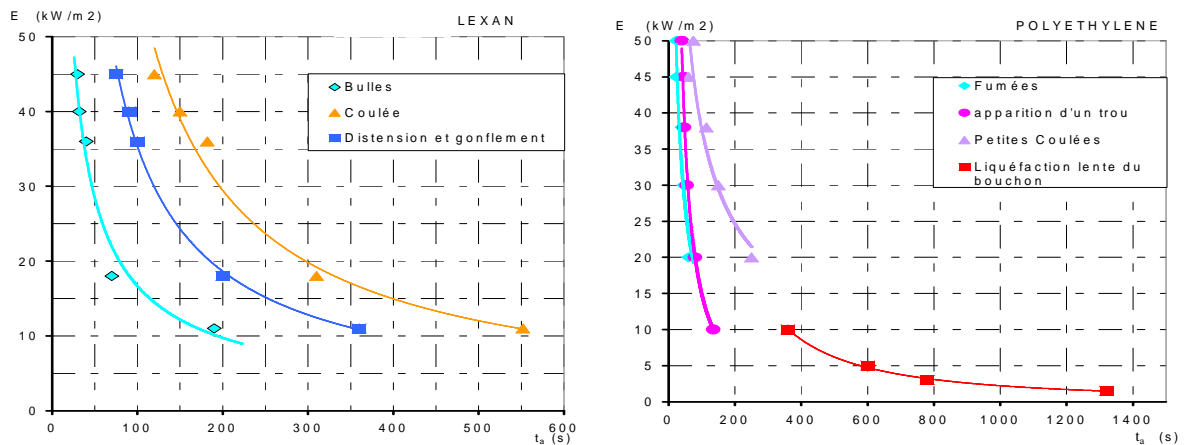


Figure 3 : Exemples de graphes donnant le temps d'apparition des évènements en fonction de E

3.3 Recherche des flux critiques de dégradation

Dans le but d'évaluer plus finement la résistance des échantillons vis à vis d'un rayonnement thermique, les éclaircissements critiques associés aux évènements observés sont recherchés pour chaque matériau. Dans cette étude, l'éclaircissement critique est défini comme étant l'éclaircissement minimal permettant d'obtenir l'apparition d'un évènement au cours de la dégradation. Nous avons cherché à évaluer les éclaircissements critiques de deux façons différentes. D'abord à partir d'une méthode semi-empirique, utilisant une loi physique pour interpoler des nuages de points expérimentaux, puis une méthode purement expérimentale utilisant uniquement les résultats d'observation.

3.3.1 Eclaircissements critiques semi-empiriques

Dans le cadre des transferts thermiques par convection, la littérature fournit des relations simples permettant de relier les variables temps, température de surface du matériau, et éclaircissement. Les hypothèses de base sont les suivantes : le flux thermique dans le solide est monodimensionnel et perpendiculaire à la surface exposée ; l'évènement de dégradation se produit lorsque la température de la surface exposée atteint une valeur qui dépend du matériau ; le matériau est opaque ; on suppose que le comportement de l'échantillon ressemble à celui d'une plaque semi-infinie soumise à un éclaircissement E constant sur l'une de ses faces ; on suppose que la réflectivité ainsi que les pertes d'énergie par rayonnement sont négligeables devant E ; enfin, les valeurs de la conductivité thermique k , de la masse volumique ρ , et de la capacité calorifique c sont supposées constantes.

Sur la base des hypothèses précitées, les équations sont alors les suivantes [1] :

$$t = \rho c \tau \frac{(T - T_\infty)}{E} \quad \text{pour les matériaux minces} \quad (1)$$

$$t = \frac{\pi}{4} k \rho c \frac{(T - T_\infty)^2}{E^2} \quad \text{pour les matériaux épais} \quad (2)$$

Remarque : on rappelle qu'un matériau est considéré thermiquement mince si son nombre de Biot, $Bi = h\tau/k$, est inférieur à 0,1 [2]. Si ce critère n'est pas vérifié, le matériau est considéré épais. A noter que le calcul du nombre de Biot a été réalisé pour tous les échantillons testés.

Les équations (1) et (2) ci-dessus décrivent l'évolution générale du temps en fonction des paramètres physiques du matériau exposé et de l'éclairement reçu.

Sur la base de ces équations, et si l'on s'intéresse à un évènement physico-chimique qui ne se produit qu'au franchissement d'un éclairement critique (noté $E_{c,ev}$), l'instant d'apparition de cet évènement, t_{ev} , peut alors s'exprimer, en fonction de $E_{c,ev}$:

pour les matériaux minces :
$$t_{ev} = \rho c \tau \frac{(T - T_{\infty})}{(E - E_{c,ev})}$$

soit
$$\boxed{\frac{1}{t_{ev}} = a \times (E - E_{c,ev})} \text{ avec } (E \geq E_{c,ev}) \quad (3)$$

pour les matériaux épais :
$$t_{ev} = \frac{\pi}{4} k \rho c \frac{(T - T_{\infty})^2}{(E - E_{c,ev})^2}$$

soit
$$\boxed{\left(\frac{1}{t_{ev}}\right)^{\frac{1}{2}} = b \times (E - E_{c,ev})} \text{ avec } (E \geq E_{c,ev}) \quad (4)$$

Selon les équations (3) et (4), il existe donc une relation linéaire entre l'éclairement reçu et l'inverse du temps, pour les matériaux minces, et l'inverse de la racine du temps pour les matériaux épais. En reportant sur le graphe de la figure 4 la droite d'extrapolation reliant les points obtenus expérimentalement, l'éclairement critique se détermine alors à l'intersection de cette droite avec l'axe des abscisses, c'est à dire lorsque le temps d'apparition de l'évènement t_{ev} devient infini.

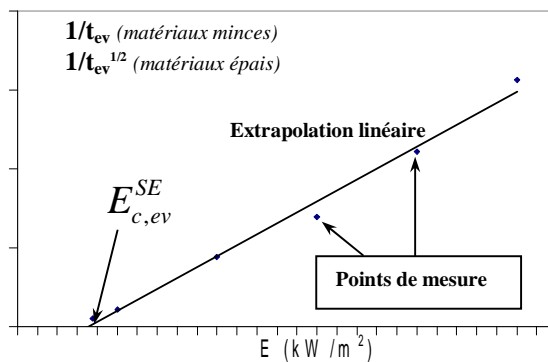


Figure 4 : Détermination des éclairements semi-empiriques par extrapolation linéaire

3.3.2 Eclairements critiques expérimentaux

Par comparaison avec les éclairements critiques semi-empiriques, il est pertinent de déterminer des éclairements critiques à partir des seules observations expérimentales. Lors des essais, il a été imposé à chaque échantillon une série d'éclairements de valeurs décroissantes d'un essai à l'autre. Parmi les éclairements appliqués, on peut distinguer le plus petit éclairement de la série conduisant à l'évènement observé, appelé ici E_I , ainsi que le premier éclairement inférieur à E_I , ne permettant plus d'obtenir cet évènement, que l'on appellera E_0 .

L'éclairement critique expérimental $E_{c,ev}^{EXP}$, qui est l'éclairement minimal permettant d'obtenir l'évènement se situe logiquement entre les deux bornes E_0 et E_I , soit :

$$E_C^{EXP} = \frac{E_0 + E_1}{2} \quad (4)$$

3.3.3 Analyse des résultats

L'analyse des résultats a permis de montrer que les deux méthodes de détermination des éclaircissements critiques, l'une semi-empirique et l'autre expérimentale, convergent pour les matériaux fins, mais pas pour les échantillons épais. En effet, pour cette catégorie de matériaux, les éclaircissements critiques semi-empiriques déterminés sont pratiquement tous négatifs, ce qui n'est pas cohérent. Cette incohérence peut provenir de l'inadaptation des hypothèses de base aux dimensions des échantillons épais.

La détermination de 18 flux critiques a permis en outre de faire ressortir quatre familles d'échantillons, selon leur niveau d'éclaircissement critique : très fragiles (de 1 à 3 kW/m²), peu résistants (de 4 à 8 kW/m²), assez résistants (de 12 à 25 kW/m²) et très résistants (de 35 à 40 kW/m²).

Tableau 2 : exemples de résultats obtenus sur les flux critiques de dégradation

Familles d'échantillon	Exemple	Evènement considéré	E_C^{SE} (kW/m ²)	E_C^{EXP} (kW/m ²)
Très fragile	Echantillon Polyéthylène	Apparition d'une brèche	1	2
Peu résistant	Echantillon PVC	Décollement	4	4
Assez résistant	Echantillon Néoprène	Rupture	12,5	17,5
Très résistant	Echantillon PP et nitrile	Auto-inflammation	37	37,5

4. CONCLUSION

L'étude expérimentale PICSEL_C a permis de caractériser, vis à vis d'une agression thermique, des équipements industriels intéressant la sûreté nucléaire car pouvant être à l'origine d'une rupture de confinement en cas de dégradation. La caractérisation de ces cibles a permis en outre de mettre en exergue les points qui peuvent être améliorés sur une boîte à gants et ses équipements -en termes d'éclaircissement critiques de dégradation. Enfin, les résultats de l'étude ont également permis de réaliser une application à une problématique de sûreté : l'impact d'un feu d'armoire électrique en milieu ouvert, sur une boîte à gant.

Références

- [1] : D. Drysdale, "An Introduction to Fire Dynamics", Second Edition, Wiley
- [2] : J.F Sacadura, "Initiation aux transferts thermiques (1978)", Technique et Documentation