

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

Connaissances des déchets bitumés

18 novembre 2019

Paul JOURDA CEA/DDCC

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives - www.cea.fr

❑ La France a produit environ 75000 fûts de déchets bitumés

- ❑ 62 000 fûts sur le site CEA-Marcoule
- ❑ 13 000 sur le site ORANO de la Hague

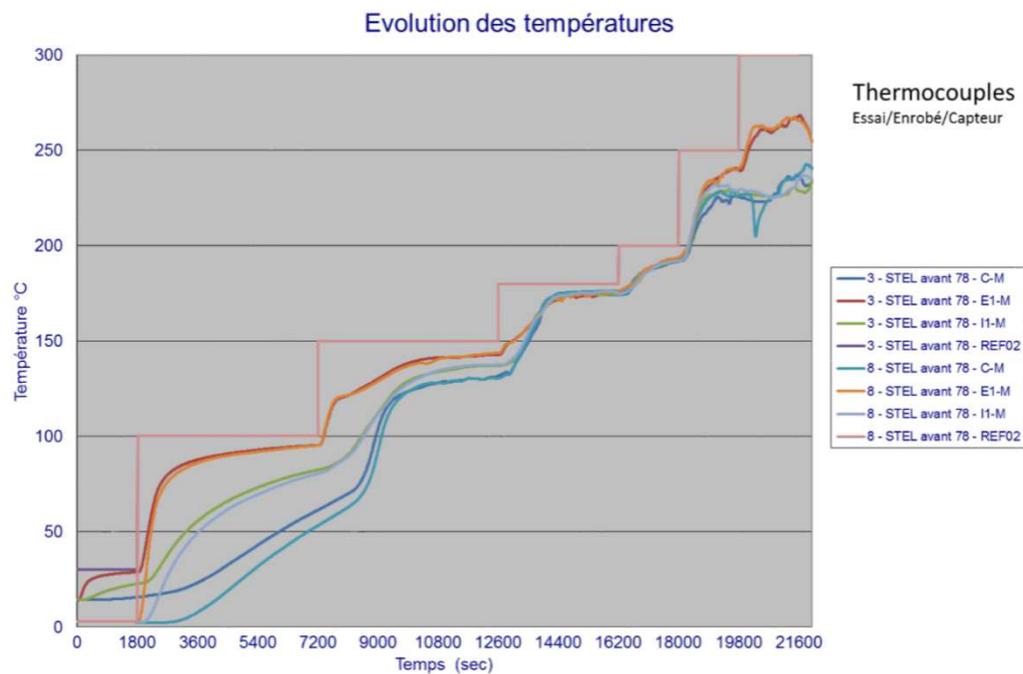
❑ La question du risque d'incendie en entreposage ou en stockage est régulièrement posée

- ❑ Plusieurs accidents sont survenus lors des opérations de bitumage en température
 - Lors de la coulée ou dans les premières heures de refroidissement
- ❑ A froid, en entreposage
 - Aucun incident n'est intervenu sur une période de plus 50 ans aussi bien en France qu'à l'international



❑ Observer les phénomènes liés à la montée en température

- ❑ Echantillon d'un kg parcouru par un réseau de 7 x 3 thermocouples
 - 5 familles d'enrobés testées représentatives des productions passées
- ❑ 6 paliers de température imposée en parois verticales
 - 100, 150, 180, 200, 250 et 300°C



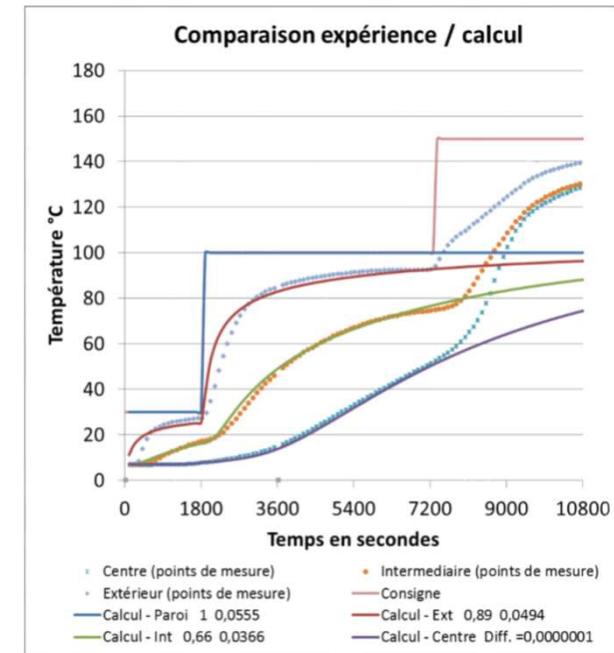
❑ Exemple d'évolution des températures pour 2 essais

❑ Pas d'inflammation jusqu'à une température imposée de 300°C en paroi

- ❑ L'enrobé est chauffée à 300°C pendant 1/2h lors du dernier palier
- ❑ Les sels de co-précipitation n'ont pas abaissé la température d'auto inflammation du bitume, qui reste au dessus de 300°C
- ❑ L'atteinte de l'auto-inflammation du bitume a nécessité une température supérieure à 400°C en paroi

❑ Début de pyrolyse du bitume détectée à partir de 200°C

- ❑ La perte de masse reste inférieure à 10% à 300°C



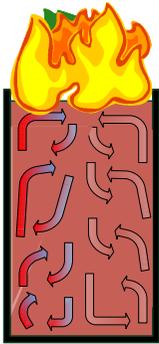
► Modélisation

- 1 paramètre clé : Diffusivité

$$\rho C p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(k r \frac{\partial T}{\partial r} \right)$$

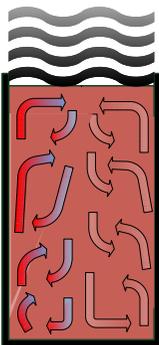
► Modèle et essais concordent

□ Le confinement des radionucléides est assuré par la matrice bitume



- **Perte totale du confinement** si inflammation du bitume, fixée à 300°C

- Il faut dépasser une température de 300°C pour que l'enrobé brûle. L'hypothèse d'une combustion auto-entrenue est considérée. Une fois enflammé, le bitume brûle complètement.
- Pour l'inflammation il faut une condition indispensable : réunir les trois composantes du triangle du feu : Combustible, Comburant (oxygène de l'air) et Source d'ignition.

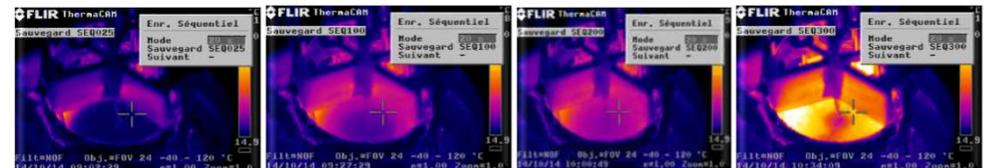
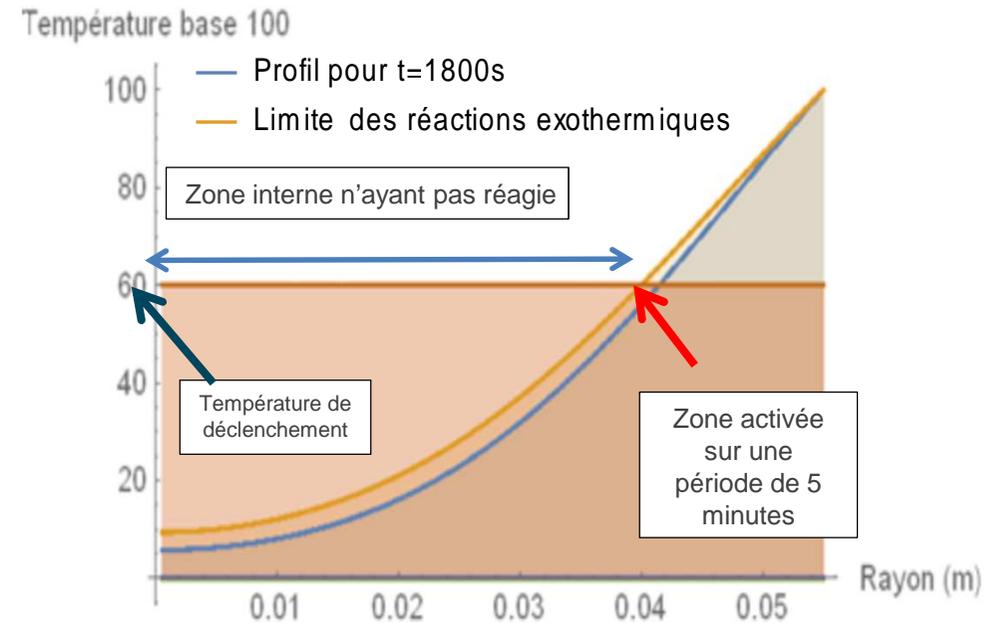


- **Début de la dégradation du confinement**, fixée à 200°C
- Le bitume se transforme en gaz sous l'effet de la chaleur à partir de 200°C (pyrolyse).
- C'est un phénomène partiel (< 10% en masse jusqu'à 300°C) et lent qui s'arrête si l'apport de chaleur externe diminue.

Déclenchement de réactions exothermiques liées à la présence des sels

□ Rappel :

- Le caractère isolant du bitume conduit à des gradients de température interne importants
- Le front de chaleur se propage lentement vers le centre car la diffusivité est faible
- Elévation de 50 °C au cœur après 80 minutes avec une sollicitation externe de 100°C
- Le déclenchement des réactions chimiques exothermiques se produit après l'atteinte d'un seuil de température



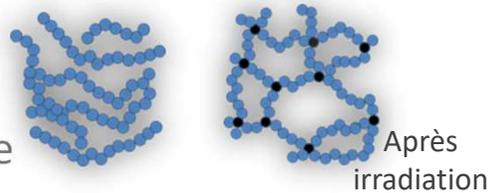
□ A un instant donné, seule une faible partie du volume de l'enrobé atteint les conditions de température permettant le déclenchement des réactions exothermiques

L'irradiation modifie-t-elle les transferts thermiques internes ?

Effets de l'irradiation sur les enrobés

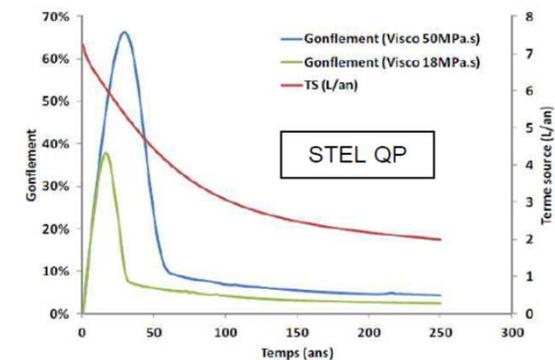
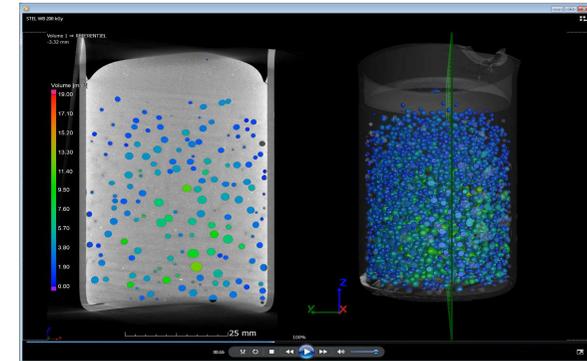
La viscosité est augmentée marginalement

- La matrice bitume se réticule par les atomes d'hydrogène



L'apparition de bulles de dihydrogène

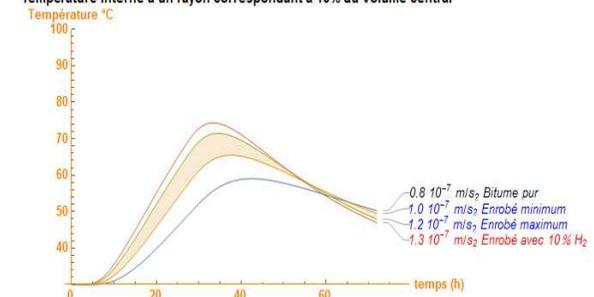
- La diffusivité thermique est augmentée de moins de 10% pour un enrobé contenant 10% en volume de bulles d'hydrogène
- Les bulles s'évacuent très rapidement si le bitume est chauffé au dessus de 80°C
- La production de bulles diminue au cours du temps avec la décroissance



Les caractéristiques thermiques dont la diffusivité évoluent peu avec l'irradiation

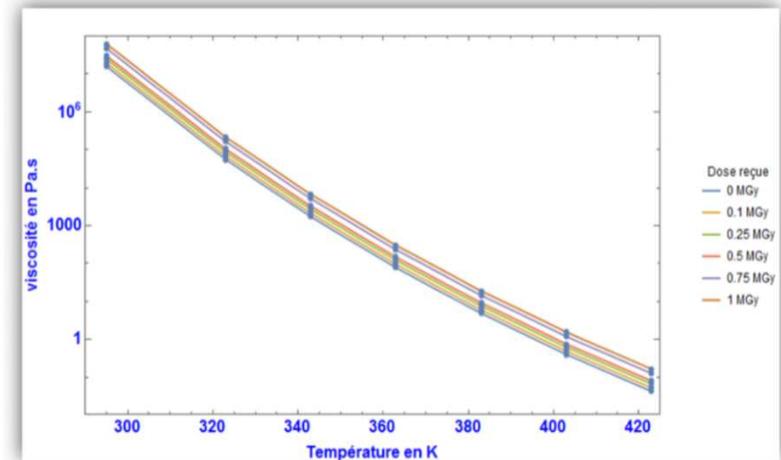
Les essais sur des enrobés neufs sont représentatifs

Température interne à un rayon correspondant à 10% du volume central



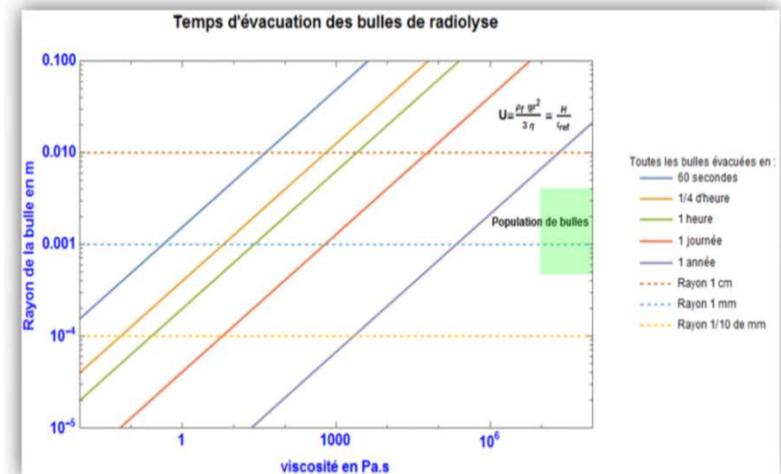
- ❑ L'effet de la hausse de température est plus important que l'effet de l'irradiation sur la viscosité

- ❑ L'augmentation de la valeur de la viscosité correspondant à une dose de 1 MGy est compensée par une hausse d'environ 10°C de température



$$\text{Temps de montée} = \frac{(\rho_{\text{bitume}} - \rho_{\text{gaz}})gR^2}{3\eta \text{ Hauteur}}$$

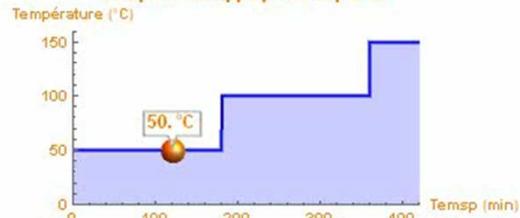
- ❑ Au-delà de 110°C, l'hydrogène initialement présent sous forme de bulles a disparu en moins d'1 heure
- ❑ La présence de bulles et le déclenchement de réactions exothermiques (au-delà de 150°C) sont découplés lors d'une montée en température



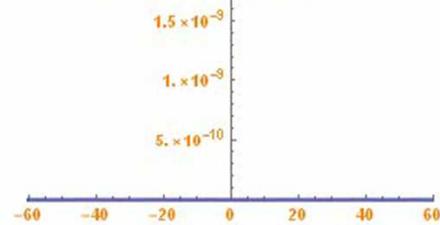
Température interne et remontée des bulles

Situation à 120 minutes

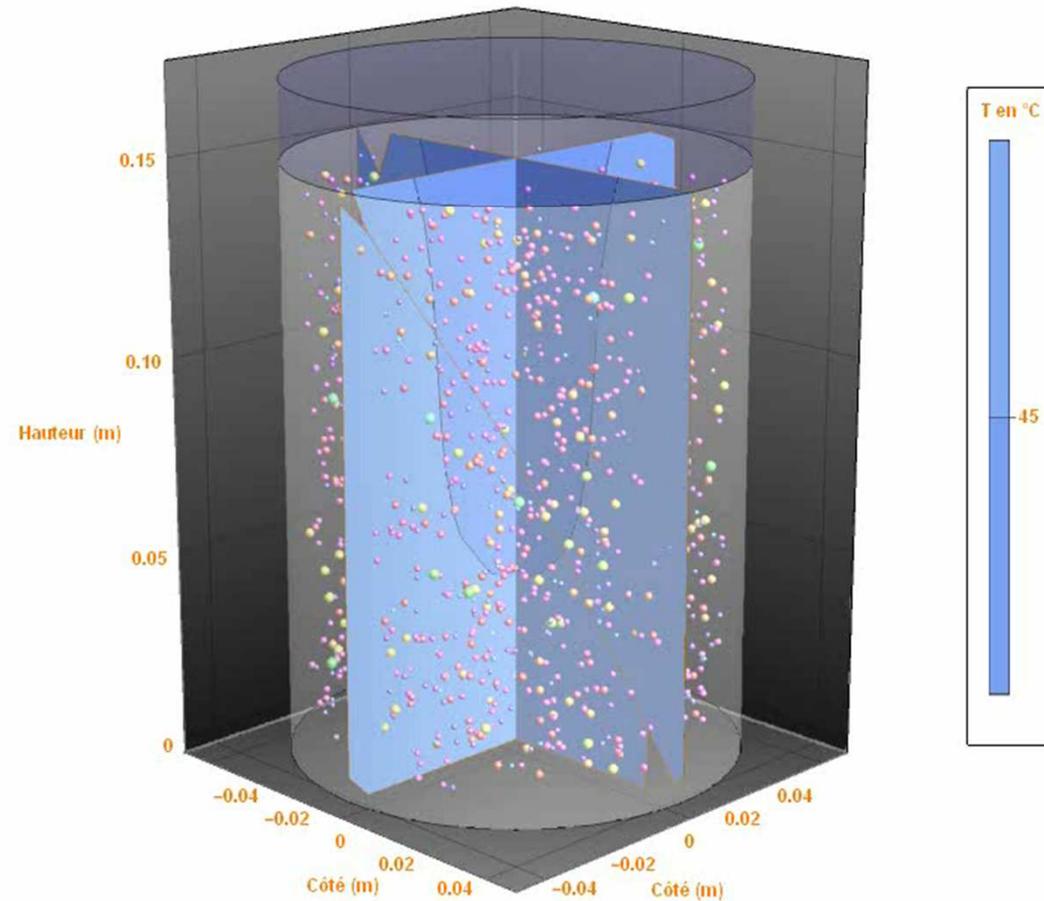
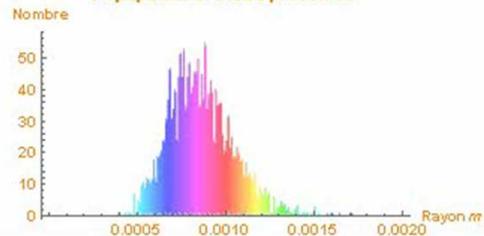
Température appliquée aux parois

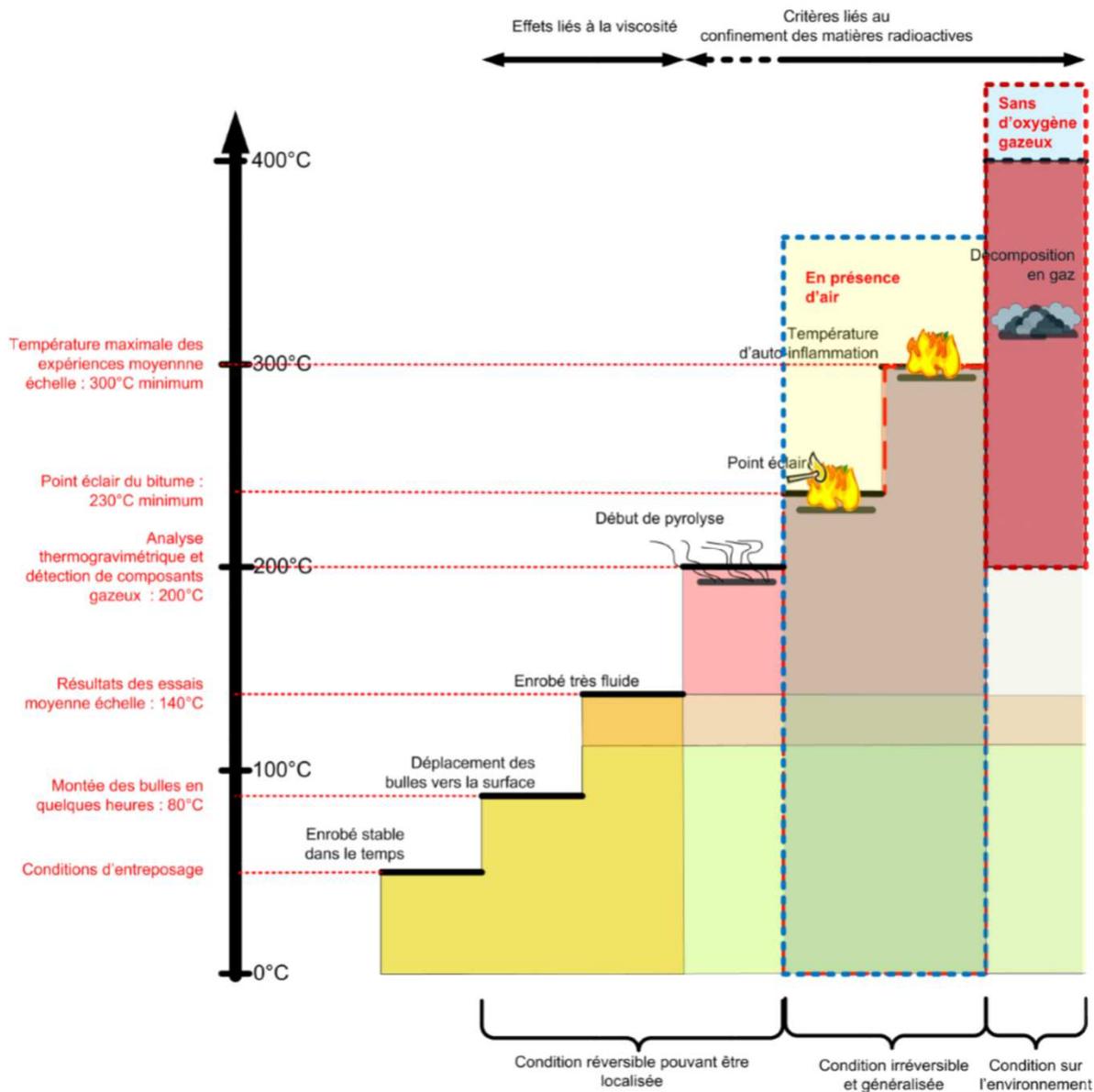


Production de gaz en (m³)



Population de bulles présentes





▣ Les apports externes

▣ Le feu dans l'environnement proche du colis de stockage

- Les essais avec des fûts et surfût EIP avec les nouveaux conteneurs de stockage en béton

▣ Un feu interne hypothétique à l'intérieur du colis de stockage adjacent

- Les conséquences simulées sur les fûts d'enrobés

➔ Les seuils de sollicitation sur le fût d'enrobé

▣ Les apports internes

▣ Les réactions exothermiques

- Les paramètres au regard de la gamme de température d'intérêt
 - Les valeurs d'énergie et de puissance sur la gamme 50-200°C
 - La température de début des réactions exothermiques

- Essais selon un profil de température ISO 834 1h (max > 900°C)
 - colis de stockage clavé en béton
 - La température de surface des fûts d'enrobé bitumé reste inférieure à 100°C
 - En moyenne, 75°C à 26 mm de la surface à l'exception de quelques capteurs à 95°C
 - colis de stockage non clavé
 - 88°C à la surface des fûts après 300 minutes
 - 69°C à 26 mm de la paroi après 1400 minutes soit plus de 23 heures.
- L'augmentation de l'épaisseur du conteneur de 12 à 20 cm diminue de 30 % de la hausse de température au niveau du fût
- L'épaisseur de béton est une variable d'ajustement qui permet de limiter la sollicitation sur le colis primaire

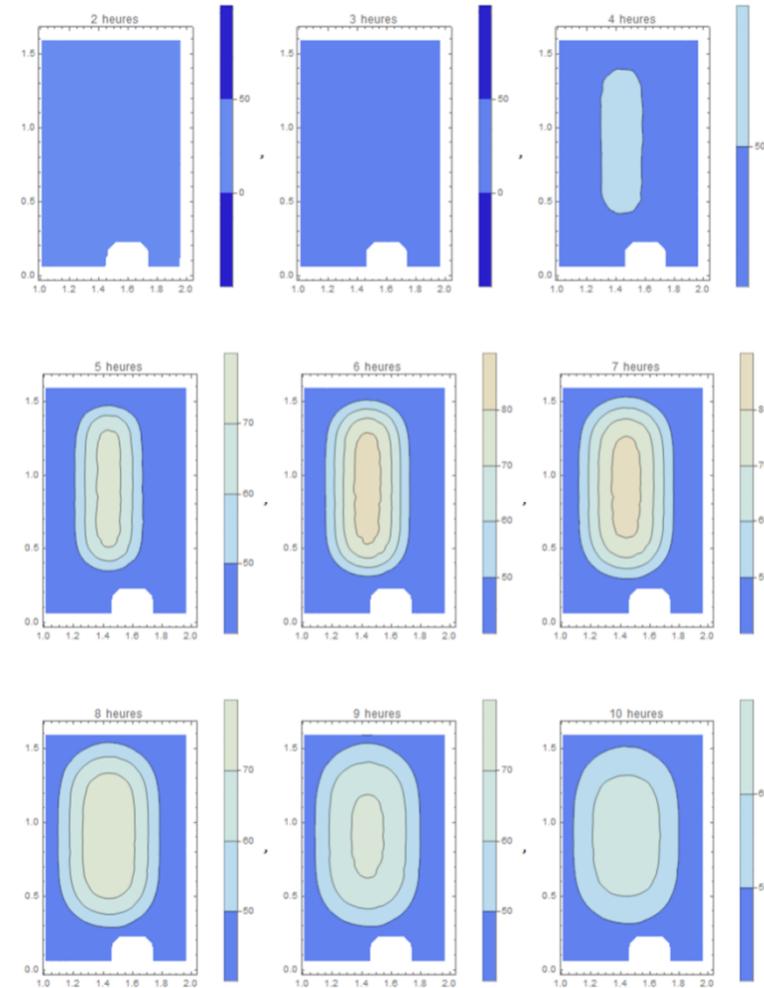
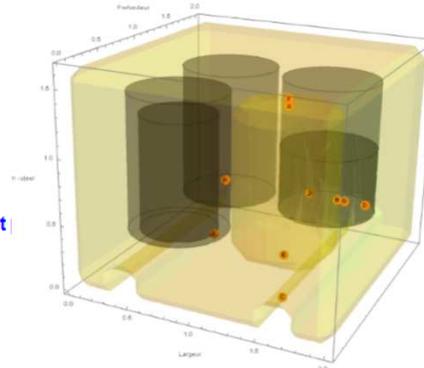
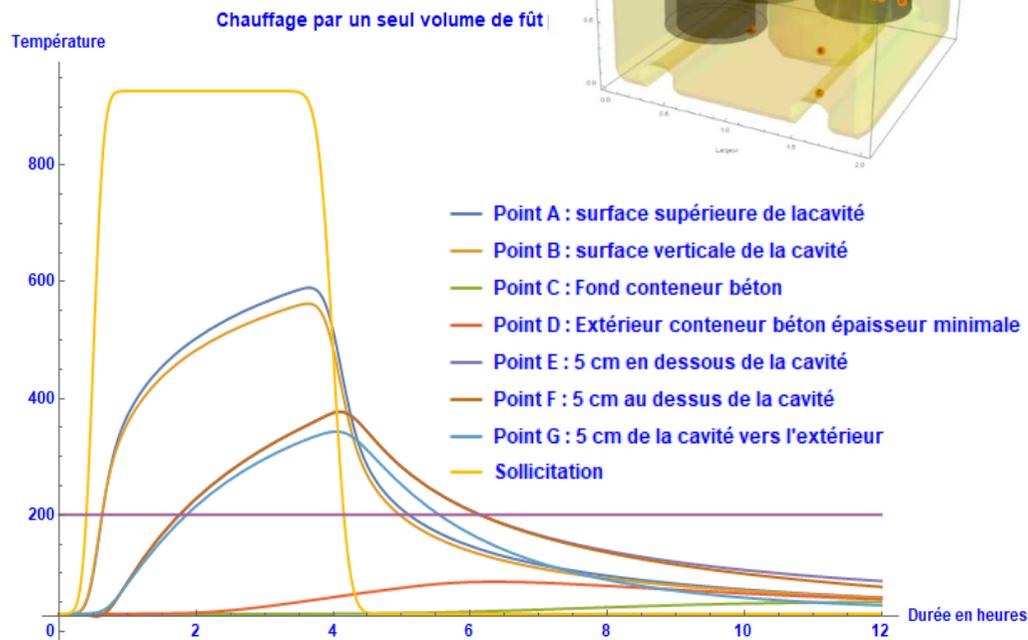


Après l'essai



□ Simuler l'emballement d'un fût par une combustion (927°C 3,5 h)

- Physiquement impossible en absence d'oxygène
- Surfaces extérieures < 85°C
- Faible surface des zones chaudes
- Transfert d'énergie limité

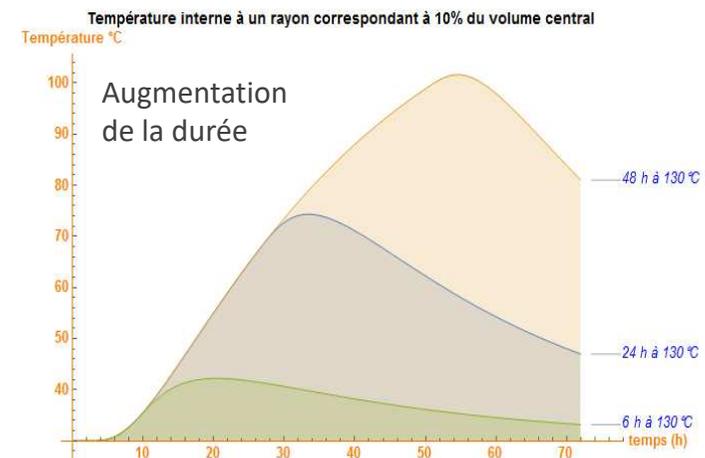
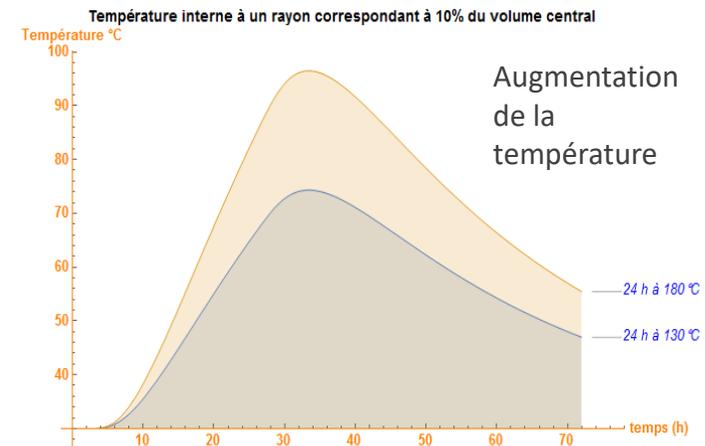
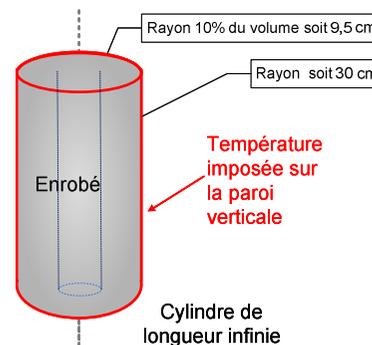


Comment l'échauffement extérieur se traduit-il en hausse de température au centre du fût ?

□ La température extérieure fixe la température maximale atteignable dans l'enrobé en l'absence de réactions exothermiques interne

- Si cette température reste inférieure à la température de déclenchement des réactions exothermiques, il n'est pas possible d'avoir un auto-échauffement car aucune énergie volumique n'est produite

□ Il faut des temps de sollicitation longs pour que l'onde de chaleur ait des effets perceptibles au centre du volume



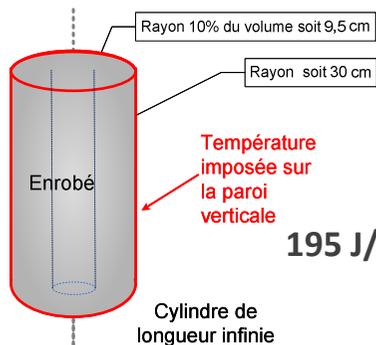
Quelle doit être la température de déclenchement des réactions exothermiques pour avoir un effet sur la température interne ?

❑ Les réactions exothermiques se produisant à plus de 130°C ne provoquent pas d'élévation de température significative au centre

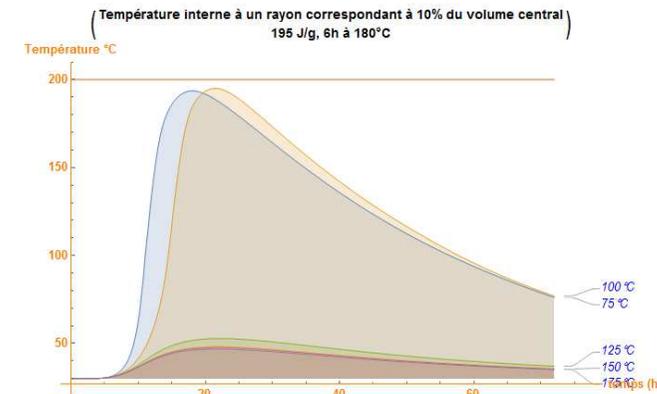
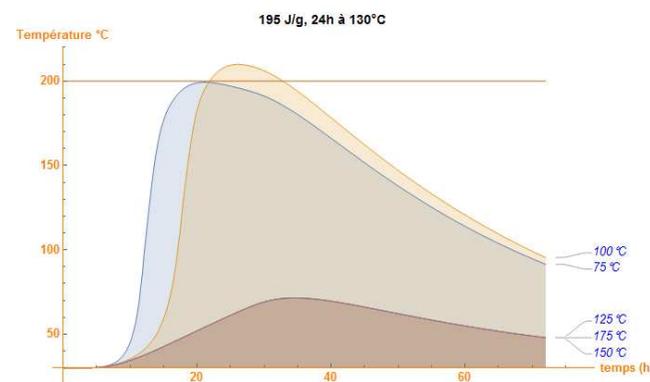
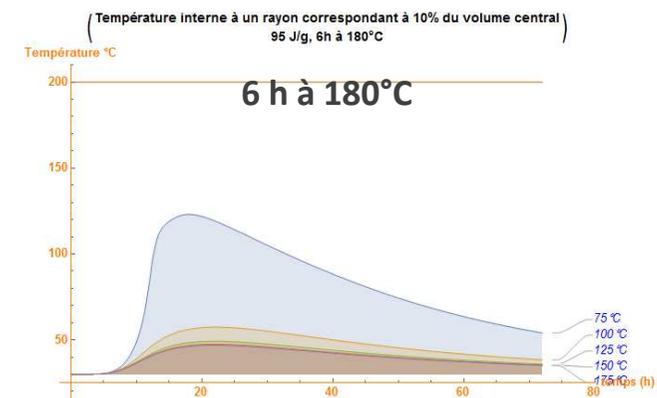
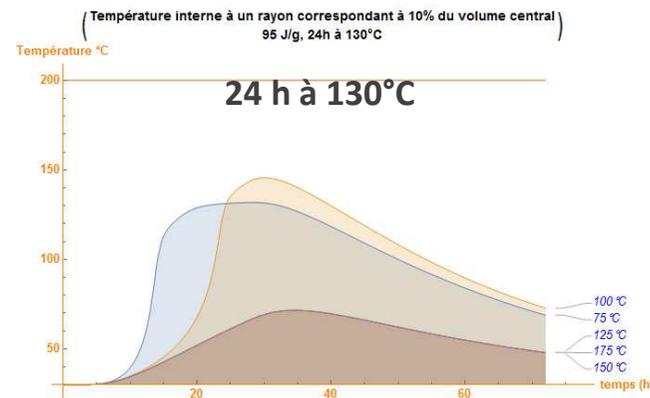
❑ L'élévation de la température au centre nécessite un échauffement trop long

Profil de température dans un fût à 9.5 cm du centre

95 J/g

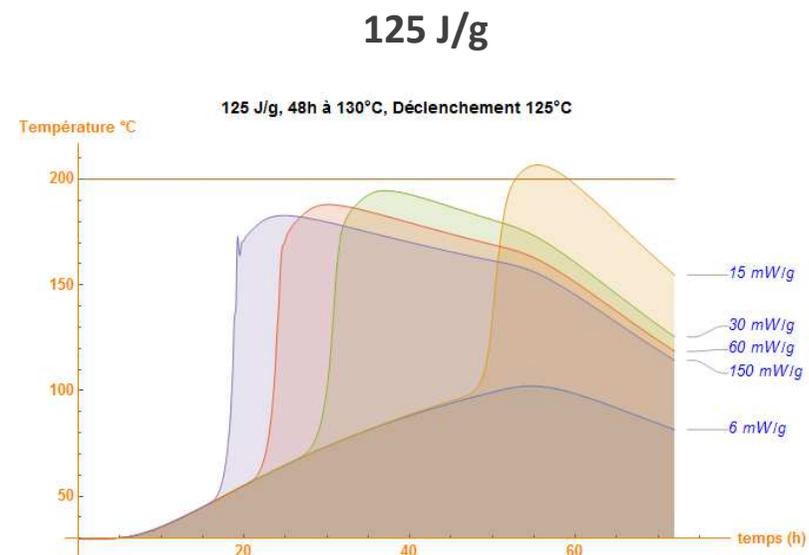
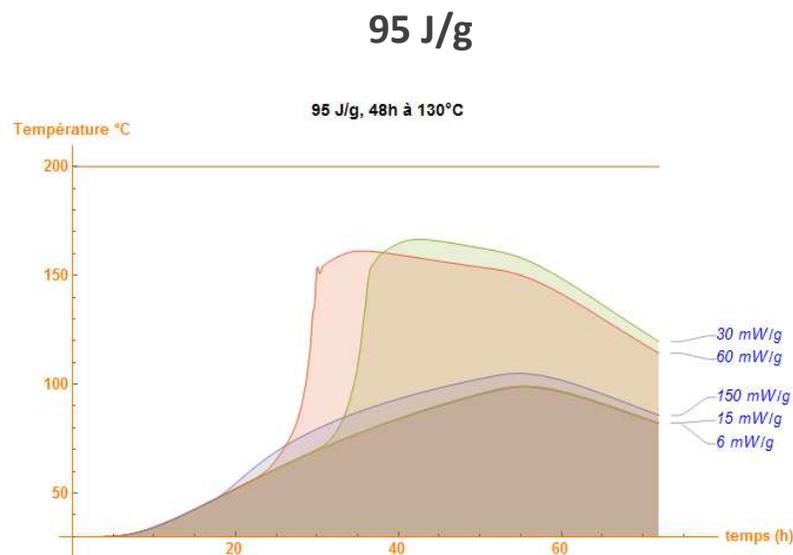


195 J/g



Quelle doit être la puissance minimale des réactions exothermiques pour avoir un effet sur la température du fût ?

- ❑ Les réactions exothermiques dégageant moins de 6 mW/g ne modifient pas la température interne de l'enrobé
 - ❑ Elles ne permettent pas de compenser les fuites vers l'intérieur ou l'extérieur
- ❑ Les réactions très exothermiques ne sont pas les plus pénalisantes



Profil de température dans un fût à 9.5 cm du centre
48 heures à 130°C

Etre inférieur à la limite de sûreté de 5 mW/g (Fût réel)

Valeur établie sans condition d'environnement forte et sans limite d'énergie interne mais tenant compte des transferts d'énergie internes

Limite de conception

Utilisée pour le DOS Cigéo

Seuil de sûreté liée à la dégradation du confinement

Début de la pyrolyse



Etre inférieur à la puissance fournie pendant les essais (1°C/10 minutes, Cp de 1,5 J/g)

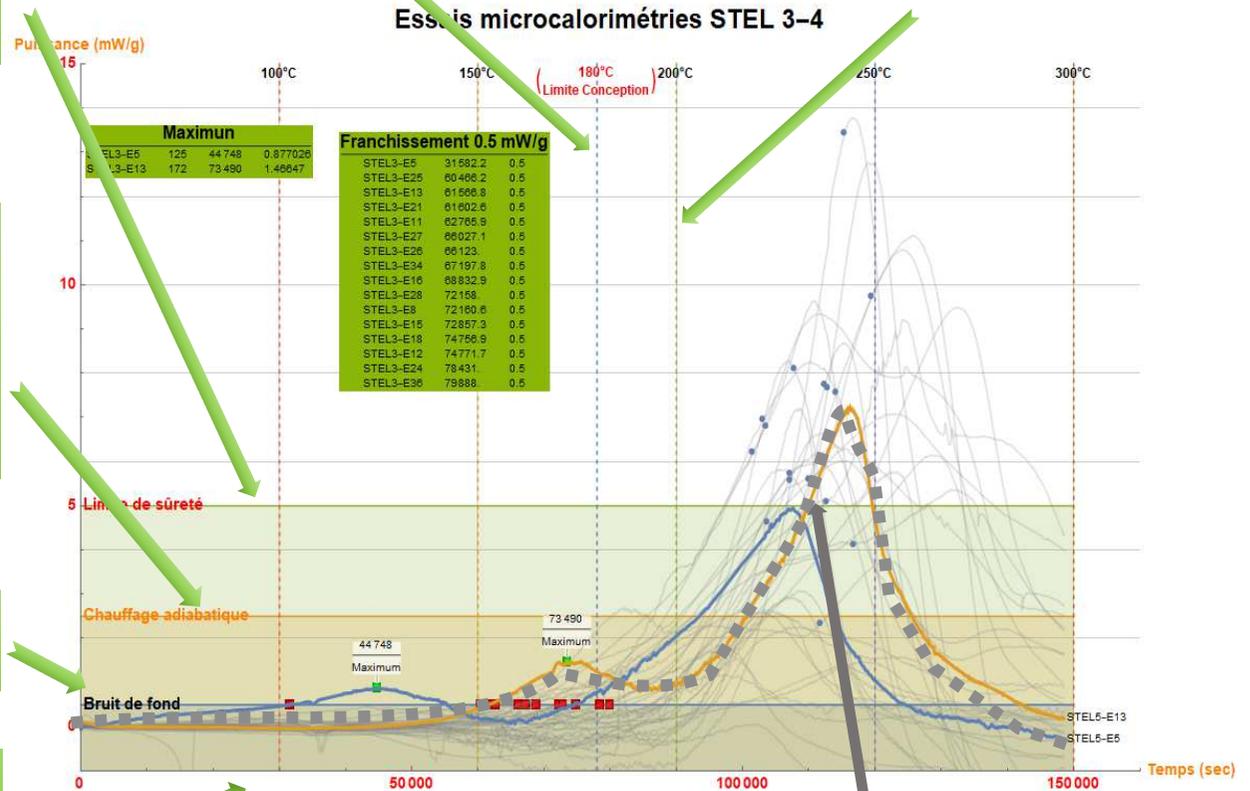
La restitution de l'énergie exothermique est plus lente que l'apport d'énergie lors des essais de microcalorimétrie

Bloc calorimétrique C80

Bruit de fond (0,5 mW/g)

Température maximale des essais CS4 andra

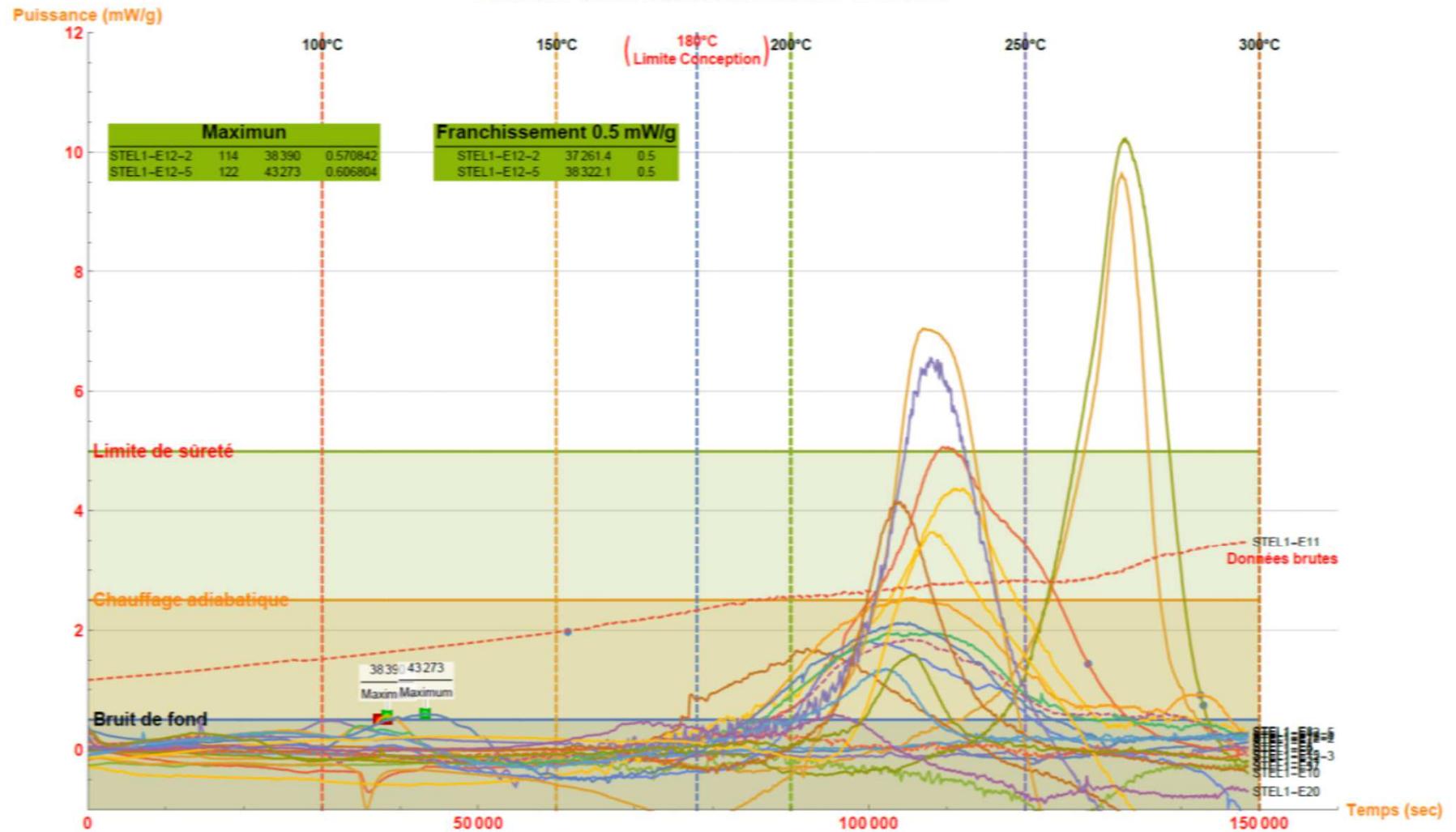
La limite de 100°C proposée par l'IRSN



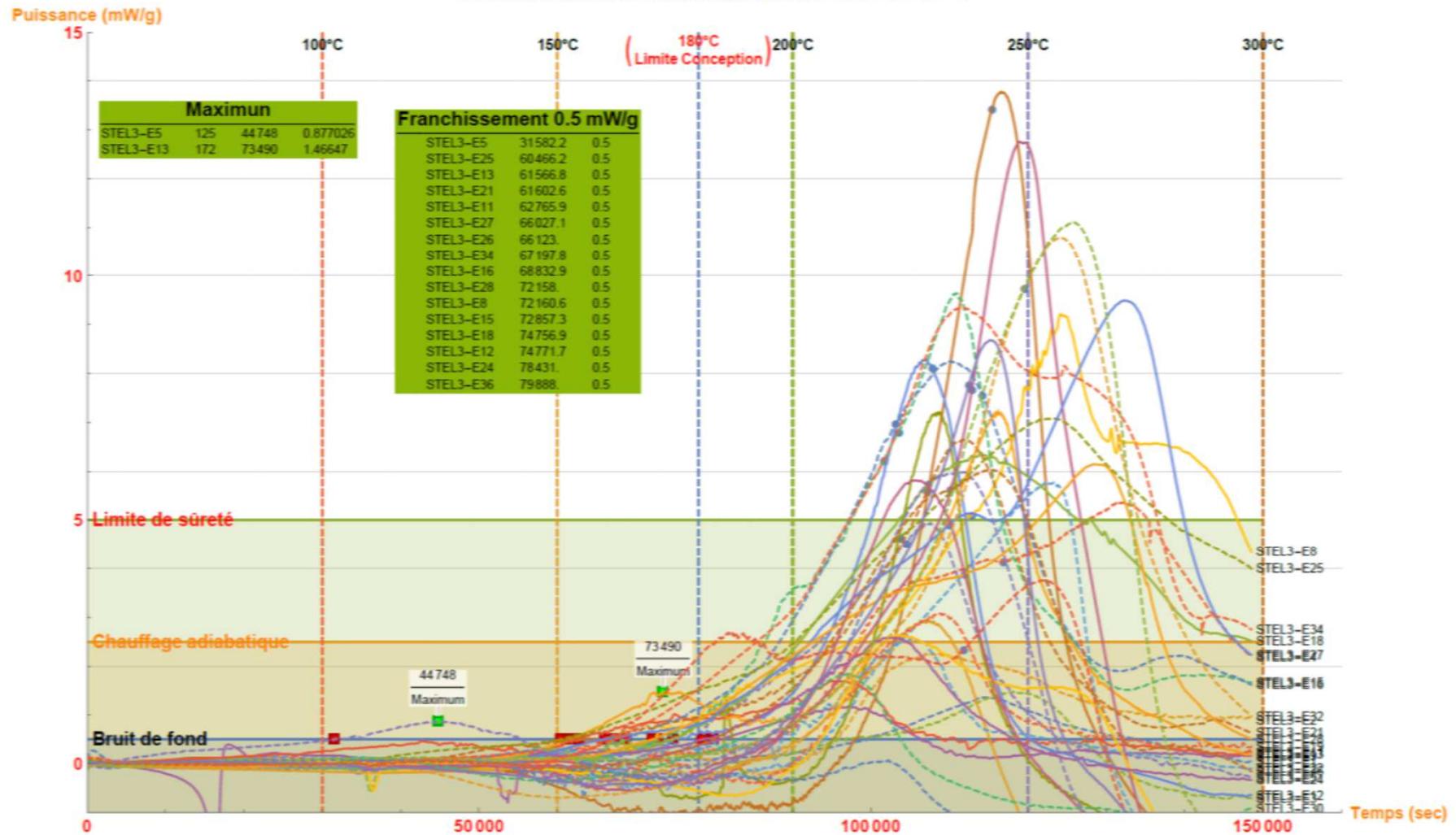
Zone d'intérêt de sûreté

Pic significatif en dehors de la zone d'intérêt

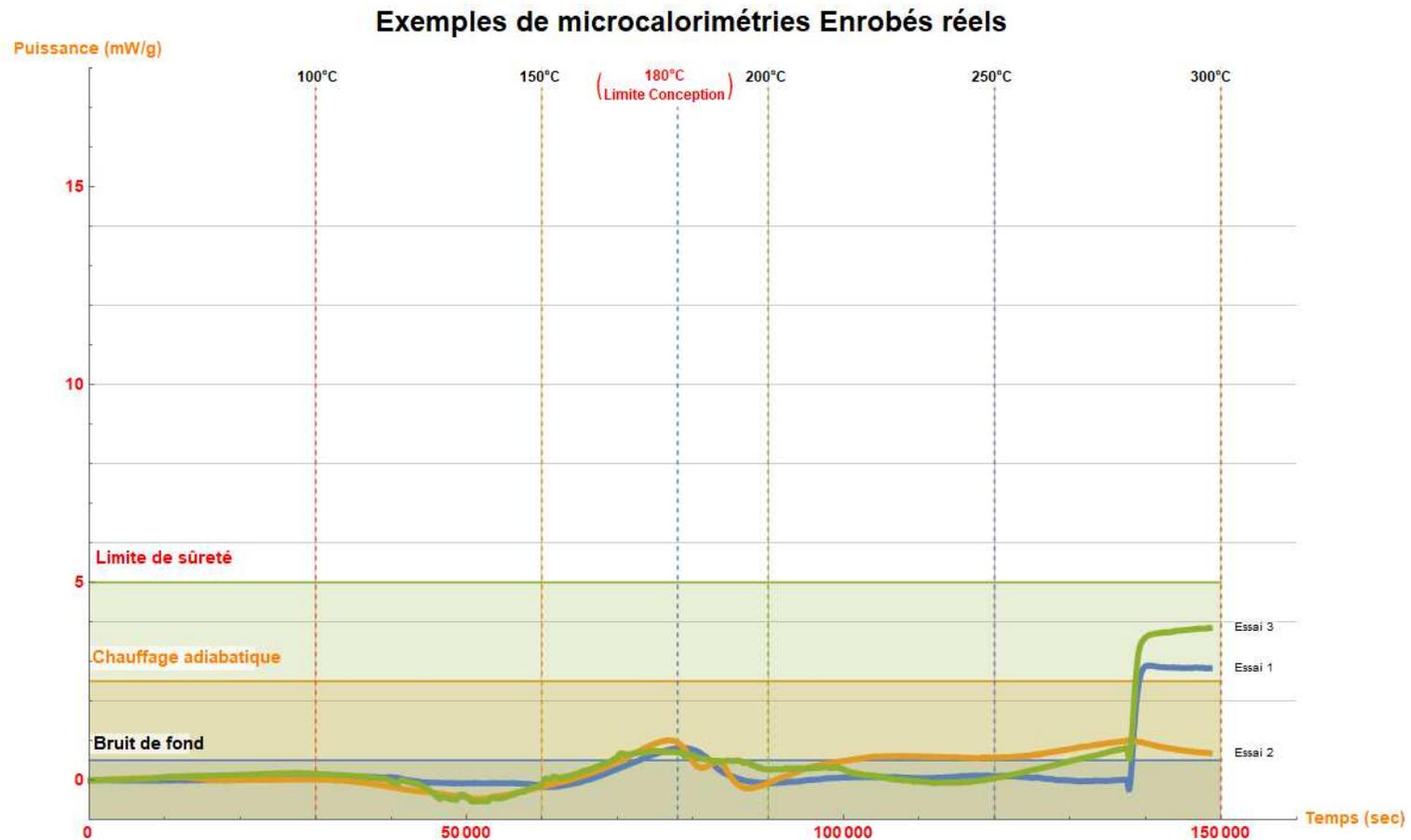
Essais microcalorimétries STEL 1



Essais microcalorimétries STEL 3-4

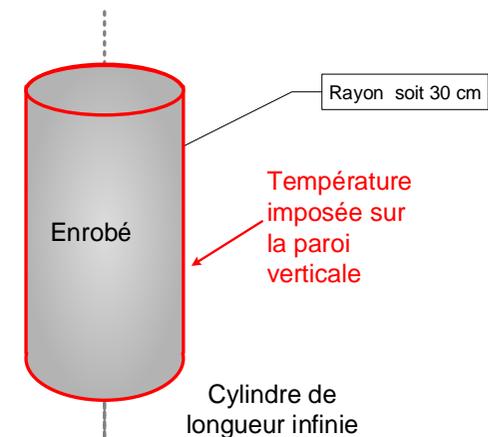
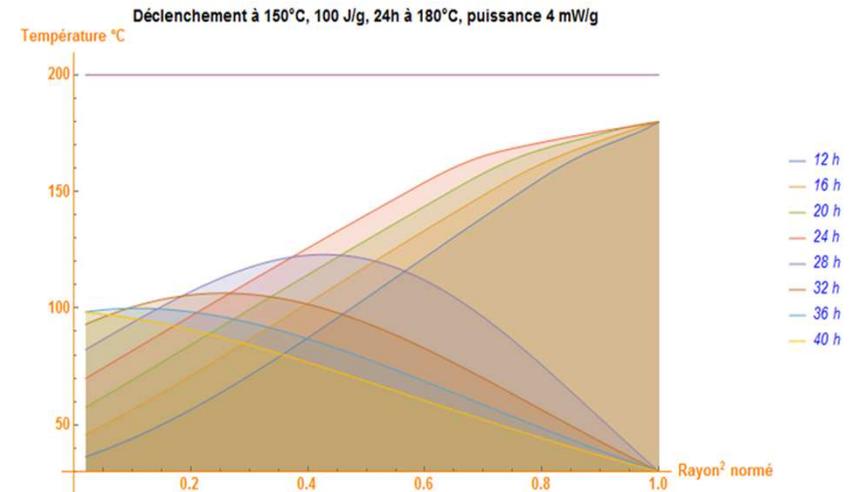


- ❑ Quelques échantillons issus des campagnes de reprise des fûts des casemates de Marcoule font l'objet d'un essai de microcalorimétrie



Quelles sont les caractéristiques des dégagements internes d'énergie des enrobés réels ?

- ❑ Pas de réaction exothermique significative jusqu'à 150°C
- ❑ De 150°C à 200°C, les réactions sont modérées sans impact sur la sûreté
 - ❑ La puissance est limitée à 4.5 mW/g
 - ❑ L'énergie dégagée maximale 91 J/g
- ❑ Il n'y a pas d'auto-échauffement au-delà des limites de sûreté avec les enrobés réels si la température de la surface extérieure est inférieure à 180°C





Merci de votre attention