

MAITRISE DU RISQUE HYDROGENE EN CAS D'ACCIDENT GRAVE DANS UNE CENTRALE NUCLEAIRE

Combustion catalytique de l'hydrogène en conditions représentatives

Philippe March et Roland Zeyen (EC/JRC) *

Jean-Christophe Sabroux **

Franck Morfin et A. Renouprez ***

* Direction de la prévention des accidents majeurs, IRSN, BP3, 13115, St Paul-Lez-Durance

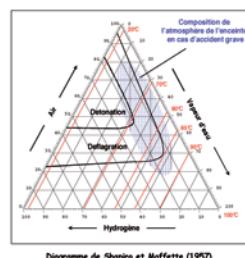
** Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets, IRSN, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex

*** Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de LYON, UMR 5256 CNRS-Université LYON 1, 69626 Villeurbanne Cedex

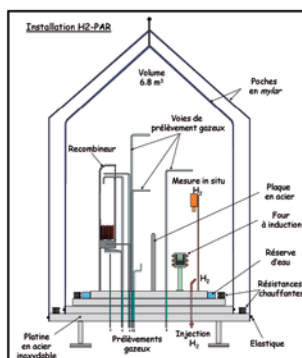
En cas d'accident grave dans un réacteur nucléaire à eau sous pression avec fusion du cœur, une quantité importante d'hydrogène peut être produite et mélangée avec l'air contenu dans l'enceinte de confinement du réacteur. Dans certaines conditions, ce mélange gazeux peut s'enflammer et entraîner une **déflagration rapide**, voire une **détonation**. Le chargement mécanique induit sur les murs de l'enceinte constitue une menace sérieuse pour la tenue du confinement. La réalité du risque hydrogène a pu être vérifiée lors de l'accident survenu en 1979 aux USA sur le réacteur de Three Mile Island (TMI-2) où, dix heures après le début de l'accident, un pic de pression attribué à une déflagration a été observé dans l'enceinte de confinement, heureusement sans conséquence pour l'environnement.

Parmi les **moys de mitigation** envisagés, les **recombineurs catalytiques** ont été retenus pour l'ensemble du parc français de centrales nucléaires. Ils ont pour fonction de réduire la teneur en hydrogène dans l'enceinte au cours de l'accident et présentent comme avantages d'être totalement autonomes et passifs et de ne pas entraîner de contraintes d'exploitation importantes.

Dans le cadre des études de R&D consacrées au risque hydrogène, l'IRSN et l'Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de LYON (CNRS - Université Lyon 1) ont collaboré afin d'évaluer l'efficacité des recombineurs catalytiques dans une atmosphère représentative d'un accident grave incluant des mélanges d'aérosols et de vapeurs contenant des éléments susceptibles d'empoisonner les catalyseurs.



Expériences globales

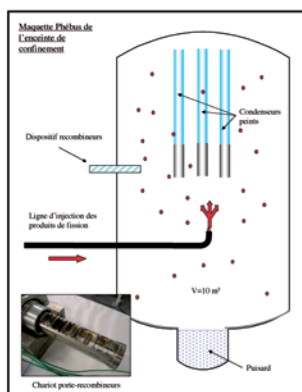


Le programme expérimental H2-PAR

L'installation H2-PAR (IRSN) visait à étudier les performances de recombineurs industriels (SIEMENS/AREVA, NIS, AECL) dans une atmosphère accidentelle représentative, et en particulier leur résistance à l'empoisonnement par les produits de fission relâchés d'un cœur de réacteur endommagé.

Il s'agit d'une maquette d'enceinte de confinement réalisée en matériaux souples et permettant de manipuler sans danger des mélanges air-hydrogène potentiellement explosifs. Plus d'une trentaine de tests ont été réalisés entre 1996 et 2000 dans des mélanges gazeux (H_2 -air- H_2) à pression atmosphérique souvent additionnés de poisons potentiels produits par la vaporisation dans un four à induction de charges chimiques comportant 25 éléments représentatifs d'une atmosphère accidentelle. Même dans les cas où un empoisonnement a pu être mis en évidence par des analyses de surface (XPS et LEIS) réalisées à l'IRCELYON, la baisse d'efficacité était proportionnellement plus faible que la perte de surface catalytique.

Dans la grande majorité des essais représentatifs d'H2-PAR il n'a pas été possible de mettre en évidence une baisse de performance due à un empoisonnement. Ce n'est qu'avec des poisons spécifiques (Ag) et à des teneurs très supérieures à celles attendues lors d'une fusion de cœur, qu'une dégradation des performances a pu être attribuée à un empoisonnement.



L'essai Phébus FPT3

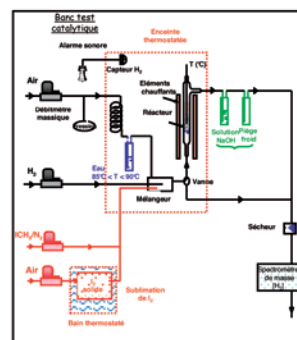
L'installation Phébus permet d'étudier, dans des conditions expérimentales représentatives de celles d'un réacteur nucléaire à eau sous pression en situation d'accident grave, la dégradation de combustible irradié, le relâchement et le transport des produits de fission dans le circuit primaire ainsi que leur comportement dans l'enceinte de confinement.

Lors de l'essai FPT3, des échantillons de recombineurs industriels ont été introduits pendant 30 minutes dans l'enceinte après la phase de dégradation à un moment où la concentration de produits de fission dans l'atmosphère (sous forme aérosol ou gazeuse) est encore importante.

Parmi les recombineurs testés figuraient deux échantillons prototypes préparés à l'IRCELYON, respectivement à base de Pt et de Pd. Deux essais préalables de qualification ont également été réalisés dans l'installation H2-PAR afin d'estimer le taux de recombinaison de ces échantillons et d'optimiser la durée d'exposition lors de l'essai FPT3.

L'installation Phébus a permis d'étudier le comportement d'échantillons de recombineurs industriels ou génériques (SIEMENS/AREVA, AECL, NIS, CCI/EWE et IRSN/IRCELYON) exposés dans une atmosphère représentative contenant des produits de fission issus de la dégradation de combustible irradié.

Expériences analytiques



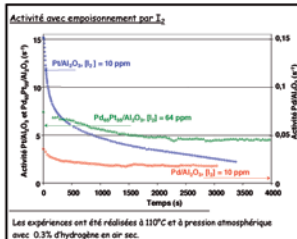
Le banc test catalytique

L'objectif de ces tests de catalyse était d'étudier l'efficacité et la résistance à l'empoisonnement de prototypes de catalyseurs préparés en laboratoire. Ces catalyseurs étaient réalisés par imprégnation de poudre d'alumine avec du Pt, Pd ou des alliages Pd-Pt, suivie par une calcination et une réduction.

Les expériences ont été réalisées à pression atmosphérique, avec une température du catalyseur comprise entre 30°C et 700°C, en présence ou non d'humidité (0-60 % de vapeur d'eau) et en conditions oxydantes (l'hydrogène étant le facteur limitant).

L'empoisonnement a été obtenu d'une part avec des vapeurs d' I_2 ou de ICH_3 introduites dans le mélange réactif et, d'autre part, par des iodures solides ajoutés dans le réacteur contenant les catalyseurs. Une fois chauffés par l'énergie dégagée par la réaction catalytique, les iodures solides produisaient des vapeurs qui pouvaient interagir avec le catalyseur.

Les expériences analytiques menées dans un petit réacteur de laboratoire avec présence d'iode et de composés iodés ont pu mettre en évidence des propriétés des catalyseurs qui n'avaient pas pu être étudiées dans l'installation H2-PAR, comme les activités catalytiques respectives des catalyseurs en Pt, Pd et alliage Pt-Pd, ainsi que leur résistance à l'empoisonnement par I_2 , ICH_3 et par AgI, CsI, InI ou CdI₂.

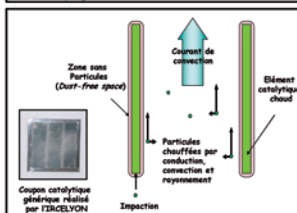


Les expériences ont été réalisées à 110°C et à pression atmosphérique avec 0,3% d'hydrogène en air sec.

Efficacités comparées de catalyseurs prototypes

L'activité nominale des catalyseurs au platine est 400 fois supérieure à celle des catalyseurs au palladium. Cependant, le palladium présente une meilleure résistance à l'empoisonnement par I_2 et ICH_3 .

Ces travaux indiquent que les alliages en Pd-Pt combinent les avantages des deux métaux : pour un mélange $Pd_{50}Pt_{50}$, l'occupation surfacique est plutôt $Pd_{50}Pt_{50}$, la résistance à l'empoisonnement est élevée et l'activité est 200 fois plus élevée qu'avec du Pd pur.



Les effets de la réaction exothermique

Le principal effet de l'élevation de température du recombineur est d'éloigner les aérosols de la surface catalytique chaude par thermophorèse. Ainsi, lorsque les poisons potentiels sont sous forme de particules solides, ils ne peuvent interagir directement avec le catalyseur chaud. Cependant, le réchauffement de ces particules par conduction, convection et rayonnement peut conduire à leur vaporisation ou à leur décomposition thermique. Les vapeurs produites peuvent alors interagir avec le catalyseur.

Du fait de leur efficacité et de leur résistance à l'empoisonnement, les recombineurs catalytiques apparaissent comme un moyen approprié pour réduire le risque hydrogène dans une centrale nucléaire lors d'un accident grave. Les expériences réalisées par l'IRSN en collaboration avec l'IRCELYON ont apporté des éléments d'expertise importants permettant à l'autorité de sûreté et à EDF de valider le choix de cette technique pour les centrales nucléaires actuellement en exploitation comme pour les réacteurs futurs. D'autres études sont cependant encore en cours concernant par exemple l'influence des recombineurs catalytiques sur la concentration d'iode gazeux dans l'enceinte.

Sous titre : Combustion catalytique de l'hydrogène en conditions représentatives

* Direction de la prévention des accidents majeurs, IRSN, BP3, 13115, St Paul-Lez-Durance

** Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets, IRSN, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex

*** Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de LYON, UMR 5256 CNRS-Université LYON 1, 69626 Villeurbanne Cedex

Parmi les moyens de mitigation envisagés, les recombineurs catalytiques ont été retenus pour l'ensemble du parc français de centrales nucléaires. Ils ont pour fonction de réduire la teneur en hydrogène dans l'enceinte au cours de l'accident et présentent comme avantages d'être totalement autonomes et passifs et de ne pas entraîner de contraintes d'exploitation importantes.

Les expériences ainsi réalisées ont mis en évidence l'efficacité et la résistance à l'empoisonnement des recombineurs catalytiques. Elles ont ainsi apporté des éléments d'expertise importants permettant à l'autorité de sûreté et à EDF de valider le choix de cette technique pour les centrales nucléaires actuellement en exploitation comme pour les réacteurs futurs. D'autres études sont cependant encore en cours concernant par exemple l'influence des recombineurs catalytiques sur la concentration d'iode gazeux dans l'enceinte.

● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ●