

Fontenay-aux-Roses, le 17 novembre 2017

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

Avis IRSN n° 2017-00353

Objet : Transport - Étude générique - Résultats des essais de vieillissement des mousses et résine présentés par le CEA

Réf. 1. Lettre ASN CODEP-DTS-2016-026703 du 1^{er} juillet 2016.
2. Norme STANAG 4340, Spécification AEPP-3, *NATO Standard Packaging Test Procedures*, 2002

Par lettre citée en première référence, l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) demande l'avis et les observations de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) sur les résultats des essais de vieillissement des mousses et résines présentés par le Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA).

Pour rappel, les blocs de mousse sont utilisés pour, d'une part limiter les sollicitations subies par les éléments internes des modèles de colis en cas de chute (matériau amortisseur), d'autre part assurer une protection thermique de ces éléments en cas d'incendie.

Les résines, placées dans les structures internes de certains emballages et limitant le flux de neutrons autour de ces derniers, participent à la radioprotection et éventuellement à la prévention des risques de criticité. À cet égard, les capacités du matériau à absorber les neutrons dépendent notamment de ses concentrations en hydrogène et en bore. En complément, la résine, par son comportement endothermique, limite la transmission de la chaleur aux composants internes en cas d'incendie.

Les essais réalisés par le CEA visent à caractériser les variations éventuelles au cours du temps des caractéristiques d'une nuance de mousse, de densité donnée, et d'une résine, présentes dans la structure des emballages de transport de matières radioactives dont le CEA est requérant. Ces essais prennent en compte les températures de ces matériaux dans la structure des emballages de transport, qui peuvent fortement influencer sur leur vieillissement. Pour les emballages transportant des combustibles irradiés, elles peuvent être de l'ordre de 80°C pour les mousses et 150°C pour les résines.

Pour rappel, le programme de ces essais, transmis en 2013, ne couvre pas tous les matériaux polymères utilisés dans les emballages du CEA. Par exemple, la résine neutrophage de l'emballage TN-BGC 1 ainsi que les « compounds » ne sont pas couverts par cette étude.

Adresse Courrier
BP 17
92262 Fontenay-aux-Roses
Cedex France

Siège social
31, av. de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
Standard +33 (0)1 58 35 88 88
RCS Nanterre 8 440 546 018

En outre, la réalisation d'essais sur des échantillons représentatifs d'une seule densité de mousse permet d'évaluer, dans un premier temps, le comportement global et la sensibilité au vieillissement de cette famille de matériaux. Au regard des résultats obtenus, le CEA envisageait des essais complémentaires afin d'apprécier, en particulier, l'influence de la densité, du taux d'humidité et des durées de vieillissement sur les propriétés des matériaux.

En 2016, le CEA a transmis les résultats de la campagne d'essais réalisée. De l'expertise de ces résultats, l'IRSN retient les points suivants.

1 PROGRAMME D'ESSAIS DE VIEILLISSEMENT

Les essais de vieillissement ont consisté à exposer des échantillons de mousses et de résines, d'une part aux températures maximales atteintes en conditions normales de transport (85°C pour les mousses et 150°C pour la résine) en régime continu pendant plusieurs durées (entre 1000 h et 5000 h), d'autre part à 10 cycles de variation de température entre -40°C et 70°C ou 150°C, respectivement pour les mousses et la résine. A l'issue de ces essais, le CEA a évalué la variation des caractéristiques suivantes :

- contrainte d'écrasement par compression statique ;
- contrainte d'étirement par traction (résine uniquement) ;
- masse volumique ;
- capacité thermique ;
- conductivité thermique ;
- taux de bore et d'hydrogène (résine uniquement) ;
- reprise d'humidité sous chaleur humide (mousse uniquement).

Par ailleurs, deux essais simulant des sollicitations vibratoires ont été réalisés afin de vérifier qu'il n'existait pas de migration de l'eau au sein des échantillons de mousse (sédimentation).

2 ÉVOLUTIONS DU PROGRAMME D'ESSAIS

Les essais réalisés par le CEA diffèrent de ceux décrits dans le programme transmis en 2013 sur les points suivants :

- les mesure de conductivité thermique des échantillons ont été effectuée en utilisant la technique de la « plaque chaude gardée » au lieu de la méthode « hot disk ». Cette technique, normalisée, assure une meilleure traçabilité et reproductibilité des mesures ;
- le nombre de vis de fermeture des systèmes de confinement des échantillons a été augmenté (de 4 à 12) afin d'améliorer l'étanchéité de ces systèmes ;
- la mesure de la masse volumique des échantillons de résine a été réalisée par immersion (pesée hydrostatique) au lieu de la méthode par pycnométrie.

Ces évolutions n'appellent pas de commentaire de l'IRSN.

Par ailleurs, le CEA a diminué le nombre d'échantillons de résine testés ; une mesure de chaleur spécifique des échantillons, au lieu de trois prévues, a été réalisée pour chaque durée de vieillissement en régime continu. Par ailleurs, les mesures de la chaleur spécifique des échantillons de résine ont été uniquement réalisées après les 10 cyclages thermiques alors que des mesures après 3 cycles de variation de température étaient prévues. Néanmoins, le CEA a augmenté le nombre d'échantillons testés pour évaluer la densité de la mousse, les teneurs en bore et en hydrogène, la densité et la conductivité thermique de la résine. Compte tenu des résultats d'essais qui

ne montrent pas d'effet particulier sur la chaleur spécifique des résines, ces modifications n'appellent pas de remarque de l'IRSN.

Enfin, les essais prévus pour apprécier la reprise d'humidité de la mousse sous chaleur humide n'ont pas été réalisés. Ce point est abordé dans le paragraphe suivant.

3 CONDITIONS DE REALISATION DES ESSAIS

Les échantillons testés ont été confinés dans une enveloppe métallique afin d'assurer la représentativité des essais par rapport aux conditions de montage de la mousse et de la résine dans la structure des emballages. Il n'a pas été réalisé d'essai à l'air libre, contrairement à ce qui était prévu dans le programme d'essai initial.

L'IRSN estime que ces configurations d'essai sont acceptables et correspondent à la structure des emballages actuellement du CEA. De manière générale, il conviendra, lorsque les résultats des essais seront valorisés dans un dossier de sûreté, que l'étanchéité des enveloppes dans lesquelles sont confinés les blocs de mousse et la résine fasse l'objet d'un contrôle lors des opérations de maintenance périodique. **Ceci fait l'objet de la recommandation n° 3 de l'annexe à l'avis.**

Par ailleurs, pour ce qui concerne une éventuelle reprise d'humidité de la mousse avant son usinage et son montage dans les emballages, l'IRSN considère que la vérification de leurs caractéristiques doit être réalisée juste avant montage. **Ceci fait l'objet de la recommandation n° 4 de l'annexe à l'avis.**

4 SYNTHÈSE DES RESULTATS OBTENUS

4.1 Essais de vibration

Le CEA a réalisé deux essais, suivant les exigences de la norme citée en seconde référence, simulant les sollicitations vibratoires des conditions de transport de routine. À l'issue des essais, des mesures de densité ont été réalisées pour différentes hauteurs de mousse. De ces mesures, le CEA déduit que les sollicitations représentatives des conditions de transport de routine ne conduisent pas à une migration de l'eau au sein de la mousse. Ceci n'appelle globalement pas de remarque de l'IRSN, bien que le CEA n'ait pas formellement justifié la norme utilisée.

En outre, le CEA a analysé, sur les échantillons testés, la taille des cellules de la mousse dans deux plans de coupe perpendiculaire et parallèle au sens de moussage. Au regard des mesures réalisées, il conclut que la forme des cellules est relativement homogène avec un diamètre moyen légèrement inférieur dans le plan de coupe perpendiculaire à la direction de moussage. Aussi, il estime que la mousse peut être considérée homogène et que l'orientation retenue pour les essais de vibration n'a pas d'influence.

À cet égard, il peut être noté une hétérogénéité de la densité de la mousse dans le plan de coupe parallèle à la direction de moussage, qui reste cependant limitée (entre 4 et 6 %). Par ailleurs, la valeur moyenne de la densité des échantillons testés est inférieure, d'environ 20 %, à celle retenue initialement pour l'approvisionnement des échantillons. En tout état de cause, il conviendra, lorsque les résultats des essais seront valorisés dans un dossier de sûreté, que la représentativité des échantillons testés soit justifiée. De manière générale, l'IRSN considère en outre que le CEA devrait détailler le protocole de prélèvement des échantillons de mousse testés dans le matériau et justifier les zones de prélèvement.

Ces points font l'objet des recommandations n° 5 et 6 de l'annexe à l'avis.

4.2 Essais de vieillissement

Sur la base des mesures réalisées, le CEA conclut que les propriétés de la mousse et de la résine retenus dans les démonstrations de sûreté des modèles de colis ne sont pas mises en cause par le vieillissement de ces matériaux.

4.2.1 Comportement de la mousse

Le CEA conclut que le vieillissement des échantillons de mousse conduit à une augmentation de la conductivité thermique du matériau de l'ordre de 16 %. Les variations des autres paramètres étant négligeables, il considère que la contrainte d'écrasement, la masse volumique et la capacité thermique du matériau ne sont pas sensibles au phénomène de vieillissement.

Les essais de caractérisation de la mousse ont été effectués avec des échantillons dont la densité est inférieure de 27 % à celle des blocs de mousse présents dans la structure des emballages, spécifiée dans le programme d'essais ; cet écart est semblable à celui relevé pour les essais de vibration (alors que les blocs approvisionnés proviennent de coulées différentes). Ceci confirme la nécessité, dans les démonstrations de sûreté qui s'appuieront sur les essais, de justifier la représentativité des échantillons testés et les contrôles d'approvisionnement.

La présentation des résultats ne détaille pas les protocoles expérimentaux retenus et les échantillons à partir desquels les valeurs présentées sont déterminées. **Ceci fait l'objet de l'observation de l'annexe à l'avis.**

Par ailleurs, le CEA devrait justifier la représentativité des conductivités thermiques mesurées au regard, d'une part de l'incertitude des mesures comprise entre 7 et 8,5 %, d'autre part du fait qu'une seule mesure a été effectuée par palier de température. **Ceci fait l'objet de la recommandation n° 2 de l'annexe à l'avis.**

4.2.2 Comportement de la résine

Le CEA déduit des essais que les propriétés thermiques de la résine vieillie restent couvertes par celles retenues dans les démonstrations de sûreté des modèles de colis.

Toutefois, les écarts entre les conductivités thermiques des échantillons testés peuvent être supérieurs à 10 %. Aussi, bien que les valeurs relevées soient inférieures aux paramètres spécifiés dans les dossiers de sûreté, l'IRSN estime qu'une diminution potentielle de la conductivité thermique de la résine doit être considérée dans les spécifications des résines. **Ceci est pris en compte dans la recommandation n° 5 de l'annexe de l'avis.**

Par ailleurs, les résultats des essais de traction présentent de fortes disparités, dues selon le CEA à la taille non adaptée des éprouvettes utilisées (4 mm d'épaisseur). Il conclut pourtant que le comportement mécanique de la résine n'est pas sensible au phénomène de vieillissement. À cet égard, les valeurs de contrainte et de déformation à la rupture relevées sur les différents échantillons vieillis conduisent à des écarts-type respectivement égaux à 12 % et 20 % sur l'ensemble des mesures réalisées. Aussi, l'IRSN estime que l'absence d'évolution des caractéristiques mécaniques du matériau doit être confirmée par des essais complémentaires. **Ceci fait l'objet de la recommandation n° 1 de l'annexe de l'avis.**

4.3 Limites des essais

Les évolutions constatées des caractéristiques sont globalement en accord avec les résultats d'autres essais sur des matériaux de même type. En particulier, les caractéristiques de la mousse phénolique ne présentent pas de modification notable, ce qui tend à confirmer que les phénomènes d'oxydation, prépondérants dans le vieillissement des polymères, n'agissent pas de manière significative avant un certain seuil de température. À cet égard, dans les emballages actuels du CEA, les mousses sont confinées avec, par conséquent, un apport en oxygène *a priori* limité.

Pour la résine, un seuil de température semble être atteint vers 150°C, les caractéristiques moyennes présentant des évolutions notables (bien que les écarts-types des mesures soient parfois élevés). Toutefois, la résine ne se dégrade pas complètement (ce qui peut être dû à la limitation de la quantité d'oxygène présente dans l'éprouvette) ; à ce titre, le rapport mentionne qu'une dégradation continue est apparue lors d'essais de conductivité thermique à 200°C ; cette température pour une dégradation continue est en accord avec les essais de caractérisation de la résine réalisés en 2006.

Par ailleurs, il n'a pas été réalisée de mesure afin d'évaluer, à différentes températures (-40°C, 85°C, 150°C), les caractéristiques mécaniques des échantillons de mousse et de résine vieillis. L'IRSN estime que, dans le cas de la résine en particulier pour laquelle des variations des caractéristiques sont constatées, ce point pourrait faire l'objet d'une étude de sensibilité. **Ceci est intégré à la recommandation n° 2 de l'annexe à l'avis.**

5 CONCLUSION

Les essais réalisés par le CEA fournissent des données sur le comportement dans le temps des mousses et résines utilisées dans ses emballages, tenant compte de leur température lors des transports.

Les essais montrent que, dans une enceinte confinée, les caractéristiques de la mousse phénolique varient peu à 85°C, et en tout état de cause varie rapidement vers un état stabilisé. Les caractéristiques de la résine, dans une enceinte confinée, varient également peu à 85°C mais de manière plus significative à 150°C ; en l'état, compte tenu des incertitudes de mesure associées aux essais réalisés, il n'est pas possible de statuer complètement sur le fait que toutes les caractéristiques de la résine se stabilisent pour cette gamme de température.

Compte tenu des résultats des essais et de la durée d'exploitation (inférieur à 10 ans) des emballages du CEA soumis à des contraintes thermiques importantes et utilisant ces matériaux, l'IRSN estime que les démonstrations de sûreté ne sont pas mises en cause. Néanmoins, des compléments aux essais réalisés devraient être engagés par le CEA.

Par ailleurs, d'un point de vue plus général, compte tenu que les essais portent sur des nuances particulières de matériaux, l'IRSN estime que, dans les démonstrations de sûreté des emballages utilisant les résultats de ces essais, le CEA devrait justifier au cas par cas la représentativité des échantillons testés.

En outre, les densités des mousses approvisionnées dans le cadre de ces essais montrent des écarts importants avec celles spécifiées dans les dossiers de sûreté. Aussi, l'IRSN estime qu'une attention particulière doit être apportée par les requérants sur la maîtrise des caractéristiques des mousses et résines utilisées dans les emballages.

Ces points font l'objet des recommandations en annexe de l'avis. Par ailleurs, le CEA devrait consolider son analyse en tenant compte de l'observation présentée en annexe du présent avis.

Pour le directeur général, par délégation

Igor LE BARS

Adjoint au Directeur de l'expertise de sûreté

Annexe à l'Avis IRSN n° 2017-00353 du 17 novembre 2017

Recommandations

Compléments au programme d'essais

1. Réaliser des essais complémentaires afin de confirmer l'influence des conditions de vieillissement sur le comportement mécanique de la résine. Dans ce cadre, analyser l'influence de la température sur le comportement mécanique des échantillons vieillis sur la plage de températures réglementaire.
2. Justifier, dans la note de synthèse des essais, les incertitudes retenues pour les mesures en précisant la manière dont elles sont calculées. Sur cette base, définir les plages de variation des propriétés de la mousse et de la résine testés, à partir des mesures effectuées après vieillissement et d'un traitement statistique de ceci.

Éléments à préciser dans les démonstrations de sûreté utilisant les résultats des essais

3. Spécifier un contrôle de l'étanchéité des enveloppes des emballages qui délimitent les espaces dans lesquels les blocs de mousse sont confinés lors des opérations de maintenance des colis.
4. Limiter le délai entre la vérification des caractéristiques des mousses et leur montage dans les emballages.
5. Justifier la représentativité des échantillons testés au regard des spécifications des matériaux utilisés pour le modèle de colis concerné (densité des mousses approvisionnées dans toutes les directions, conductivité thermique de la résine...).
6. Préciser les zones de prélèvement des échantillons de mousse testés dans les plaques et justifier que ces zones couvrent une éventuelle hétérogénéité des plaques dans l'épaisseur et les coins.

Observation

Introduire dans la note de synthèse des essais, l'ensemble des résultats qui ont permis d'élaborer les tableaux et analyses présentés.