

Rapport scientifique et technique

2008











Le rapport scientifique et technique



Recherche, expertise, transmission des savoirs 01



Radioactivité et environnement 16



Les accidents dans les installations nucléaires 76



L'homme et les rayonnements ionisants



La simulation, les outils de calcul et la métrologie 186



Les études de sûreté et de sécurité des installations 248



Recherche, expertise, transmission des savoirs

AVANT-PROPOS	2
DIRECTION SCIENTIFIQUE Une recherche en prise avec les exigences de l'expertise	4
CONSEIL SCIENTIFIQUE Une année 2008 particulièrement riche en réflexions stratégiques nationales et internationales sur l'environnement et l'énergie	6
COLLÈGE DES EXPERTS Une implication importante dans le Gast et dans la recherche exploratoire	8
FORMATION À ET PAR LA RECHERCHE Les doctorants ont une réelle place dans les connaissances de l'Institut	10
LABORATOIRE COMMUN CNRS-IRSN Recherche théorique et appliquée en sûreté nucléaire	12

AVANT-PROPOSLa recherche à l'IRSN est féconde et utile

L'édition 2008 du rapport scientifique et technique de l'IRSN clôt un cycle de quatre ans, au cours duquel l'IRSN s'est attaché à présenter l'activité R&D menée par l'Institut en appui de son expertise en sûreté nucléaire et en radioprotection. Ce rapport, conçu comme le complément, dédié à la recherche, du rapport annuel, s'adresse plutôt — mais pas exclusivement — à la communauté scientifique avec laquelle l'Institut a naturellement vocation à nouer des partenariats ou développer des collaborations.

Dès l'origine, le parti pris éditorial fut de mettre l'accent sur les résultats les plus marquants ou « les plus prometteurs » de l'année écoulée, sans pour autant viser l'exhaustivité, ni en faire une description analytique trop spécialisée. C'est la raison pour laquelle, tant par sa présentation que par l'effort rédactionnel consenti, le RST a su solliciter l'intérêt et la réflexion en conciliant rigueur scientifique, clarté du raisonnement et pédagogie.

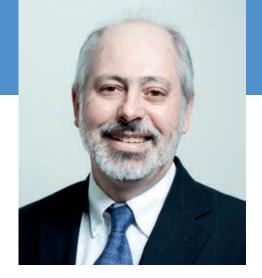
Ainsi, à la différence de publications destinées à des revues scientifiques, les auteurs des articles se sont efforcés d'inscrire et de commenter leurs résultats en les situant dans le contexte plus général des missions de l'IRSN et en mettant en évidence les besoins immédiats ou différés de l'expertise, auxquels leurs travaux sont censés répondre.

À l'issue de ce cycle quadriennal, l'ensemble des thèmes de recherche de l'Institut a été abordé et on peut affirmer, au vu des appréciations plutôt positives qui nous ont été adressées, que les objectifs que j'avais assignés au RST ont été atteints : il a largement contribué à mettre en évidence l'activité de recherche de l'Institut et l'exigence

de qualité revendiquée collectivement par l'Institut et par ses salariés. Surtout, il a montré en quoi les connaissances nouvellement acquises par la recherche permettent de faire avancer la sûreté et la radioprotection, en renforçant notre compréhension des phénomènes en cause dans l'expression des risques et en affinant nos méthodes et nos outils d'analyse de situations nécessairement complexes, auxquelles l'expertise de l'Institut est quotidiennement confrontée.

Les recherches décrites dans le RST sont le fruit du travail d'un peu plus de 270 chercheurs salariés de l'IRSN qui, outre leur travaux heuristiques, consacrent en moyenne 35 % de leur temps de travail à des activités d'expertise: j'y vois là l'illustration de l'originalité de la démarche scientifique et technique à l'IRSN, consubstantielle à son identité et qui se manifeste jusque dans la répartition du travail des ingénieurs et des chercheurs: la recherche et l'expertise sont deux volets indissociables du projet scientifique et technique de l'entreprise. Et c'est parce que l'IRSN se revendique de cette double appartenance au monde de l'ingénierie et à celui de la recherche qu'il est en capacité de s'acquitter des missions de protection et de prévention que lui a confiées l'État. La recherche a vocation à féconder l'expertise et c'est souvent de l'expertise, conjuguée à l'exigence légitime de la société à vouloir plus de sécurité, que naissent les sujets de recherche.

Outre les effectifs permanents, contribuent également à cette recherche une centaine de jeunes doctorants ou post-doctorants, accueillis dans le cadre de la politique de formation par la recherche, poursuivie dès la création de l'IRSN et destinée à renforcer ses liens avec l'université.



Une démarche scientifique et technique originale : 270 chercheurs consacrent en moyenne 35 % de leur temps de travail à des activités d'expertise.

Le RST n'est pas, bien entendu, le seul vecteur des travaux scientifiques de l'Institut qui, comme tout organisme de recherche, se conforme aussi au jugement de ses pairs, au travers notamment des publications. Ainsi, pour 2008, les résultats présentés dans le RST auront donné lieu à environ 200 publications dans des revues scientifiques à comité de lecture et à plusieurs centaines de présentations dans des congrès. Ce score 2008 est d'ailleurs en croissance par rapport aux années précédentes.

La recherche à (de) l'IRSN est donc vivante et productive, et elle répond à ce qu'on attend d'elle. Ce constat encourageant est, en premier lieu, le fruit de la motivation et de la qualité des chercheurs. Il résulte également de l'effort consacré, ces dernières années, à la mise en place d'une nouvelle dynamique de programmation et d'une stratégie d'alliances avec d'autres entités de recherche, au sein du CNRS et des universités (partenariat et laboratoires mixtes), du CEA, et aux niveaux européen et international. Il faut aussi noter la montée en puissance du dispositif d'évaluation scientifique conduit par le conseil scientifique et la direction scientifique de l'Institut.

Ce bilan positif du RST ne doit cependant pas faire oublier que l'avenir n'est jamais tout à fait le prolongement d'hier. S'il est probable que, demain comme aujourd'hui, le RST demeurera un ouvrage de référence sur l'état de la recherche à l'IRSN et qu'il constituera sans doute un des éléments sur lesquels s'appuiera l'Aeres pour évaluer la pertinence et la qualité de notre production scientifique, il n'en est pas moins vrai qu'il devra évoluer.

Sans en remettre en cause les objectifs, les RST futurs devront en particulier montrer comment l'IRSN s'approprie la modernisation du cadre national de la recherche et les initiatives prises au niveau international, notamment européen, pour créer des réseaux d'excellence ou des partenariats stratégiques de recherche. Ils devront également se faire, encore plus qu'aujourd'hui, l'écho des nouveaux outils développés par l'Institut dans la période récente, comme le Plan à moyen et long termes, qui identifie et hiérarchise les besoins futurs pour faire avancer la sûreté.

De même, on ne saurait passer sous silence les évolutions institutionnelles, comme la création en 2009 d'un comité d'orientation de la recherche placé auprès du conseil d'administration de l'IRSN, dont la vocation sera de renforcer la gouvernance de la recherche en sûreté nucléaire et en radioprotection, en l'ouvrant aux « parties prenantes », sur le modèle du Grenelle de l'environnement.

C'est dans cette nouvelle histoire qu'il faudra désormais s'investir. Le RST 2008 assure la transition. Et, de mon point de vue, avec excellence. Je vous en souhaite bonne lecture.

Jacques REPUSSARD
Directeur général

DIRECTION SCIENTIFIQUE Une recherche en prise avec les exigences de l'expertise

omme chaque année, le Directeur scientifique a le plaisir de présenter le rapport scientifique et technique de l'IRSN. Coup de projecteur sur les résultats scientifiques de l'Institut, ce rapport est l'occasion de livrer un instantané de l'activité de recherche, de mesurer les avancées, de faire le point sur les nouveaux sujets et de questionner les priorités de recherche.

En ouverture de ce rapport scientifique et technique, la direction scientifique voudrait rendre hommage aux chercheurs de l'Institut dont les résultats sont présentés dans les pages qui suivent. La recherche à l'IRSN possède en effet ses spécificités et s'inscrit dans une dynamique particulière.

Recherche finalisée, sa fonction est de produire des outils de diagnostic, de modélisation, voire de prévision au service de l'expertise, en développant les connaissances de base là où celles-ci font encore défaut. Pour cette mission de recherche, l'Institut s'appuie sur des équipes des organismes de recherche, des écoles et des universités, dans le cadre de travaux académiques dans des partenariats où il apporte ses problématiques de recherche et bénéficie des outils ou méthodes développés dans ces laboratoires.

Cette recherche intégrée se caractérise par ailleurs par l'extrême variété des domaines de connaissance concernés et par un aspect fortement pluridisciplinaire qui rend essentiel ce réseau de collaborations.

Acteur parmi d'autres de la recherche dans le domaine du nucléaire – exploitants, industriels... –, l'IRSN doit mener une recherche collaborative avec ses partenaires, tout en conservant son indépendance.

Recherche au service de l'expertise, car l'Institut intervient comme support technique à l'Autorité de sûreté nucléaire, qui s'appuie sur l'avis de ses experts pour prendre ses décisions.

Soulignons par ailleurs le contexte bien particulier où se développe cette activité de recherche. Les experts et chercheurs de l'Institut sont amenés à intervenir sur deux échelles de temps. D'une part, il leur est demandé de réagir dans l'urgence — incidents, situations accidentelles ou de crise — et de pouvoir donner des réponses techniques fiables aux inquiétudes des populations. D'autre part, le travail scientifique se construit sur le terme plus long de programmes de recherche de plusieurs années. Cette double constante



L'IRSN doit mener une recherche collaborative avec ses partenaires, tout en conservant son indépendance.

de temps, celle du traitement de l'urgence, souvent médiatisé, et celle de la publication scientifique, moins visible, rend complexe la combinaison des deux pratiques. La formulation idéale du chercheur-expert reste difficile à vivre et, en tout cas, donne au chercheur IRSN une identité très différente de celles de ses collègues des organismes de recherche et développement, car rares sont les lieux où des chercheurs sont autant mis en demeure par leurs tutelles, et plus généralement par la société, de répondre à des sollicitations d'urgence – les incidents de l'été au Tricastin ou les conséquences des accidents de radiothérapie qui ont défrayé la chronique durant l'année écoulée sont là pour le montrer.

La diversité des sujets et la disparité de leur état d'avancement ne permettent pas en un seul rapport de donner un aperçu de l'ensemble des activités de recherche de l'Institut. Le présent rapport scientifique et technique est le quatrième volet d'une série commencée en 2005 et boucle ainsi un cycle de quatre ans à l'issue duquel un panorama à peu près complet des grands axes de recherche de l'IRSN a pu être dressé. Le corpus de connaissances et de résultats accumulés sur ces quatre années et consigné dans ces

volumes fournira les éléments de base qui permettront aux experts de l'Agence d'évaluation de la recherche et de l'enseignement supérieur (Aeres) d'évaluer et d'apprécier sa stratégie scientifique et la qualité de ses équipes. Cette évaluation, prenant en compte les spécificités de l'Institut et l'ensemble de ses missions de service public, sera pour l'IRSN l'occasion d'affirmer sa position originale dans le système de recherche national.

> Dominique GOBIN Directeur scientifique (Fonction exercée jusqu'au 31.12.2008*)

^{*} Michel SCHWARZ a été nommé Directeur scientifique de l'IRSN à compter du 01.01.2009.

CONSEIL SCIENTIFIQUE

Une année 2008 particulièrement riche en réflexions stratégiques nationales et internationales sur l'environnement et l'énergie

près une année 2007 de transition, marquée par le remaniement de sa composition et le lancement de nouvelles actions, le conseil scientifique de l'IRSN a en 2008, en sus de ses activités récurrentes, concrétisé les rapports de deux évaluations ciblées et poursuivi un certain nombre de réflexions stratégiques.

Le conseil a tenu deux sessions plénières (mai et novembre) et a été appelé, conformément à son mandat, à donner son avis sur le rapport annuel et sur le rapport scientifique et technique de l'IRSN. Les membres du conseil scientifique se sont également impliqués au cours de cette année dans les activités de l'Institut, notamment par leur participation aux commissions d'audition des candidats aux thèses (juin et septembre), aux Journées des thèses (en septembre à Vogüé) et à la Journée scientifique de l'Institut (novembre).

Parmi les évaluations ciblées arrivées à terme et publiées, la première, intitulée « Recherches en radiopathologie et thérapie des personnes irradiées »,

avait pour objet d'évaluer les activités de recherche du Laboratoire de radiopathologie (LRPAT) et du Laboratoire de thérapie cellulaire et de radioprotection accidentelle (LTCRA). Il s'agissait essentiellement de faire le point sur les acquis scientifiques, les résultats les plus marquants obtenus, les compétences particulières et originales, les programmes de recherche, les activités internationales, les collaborations, l'organisation, les ressources humaines, en relation avec la mission, les capacités de communication et la visibilité, les problèmes éventuels, ainsi que l'évolution et les perspectives des laboratoires.

La commission d'évaluation était composée de la manière suivante :

trois membres du conseil scientifique : Dietrich Averbeck (pilote de l'évaluation), Pierre Laroche, Ethel-Esther Moustacchi ;

- six membres extérieurs: Pr Wolfgang Sauerwein, Universität Essen, Allemagne; Pr Jacques Balosso, CHU Grenoble; Pr Luc Rochette, LPPC, Dijon; Pr Jacqueline Godet, Ligue contre le cancer; Pr Norbert-Claude Gorin, Saint-Antoine, Paris; Pr Jean-Philippe Peyrat, Centre Oscar Lambret Lille.
- Alain Biau, Directeur d'évaluation et d'animation scientifique à l'IRSN, agissait comme coordinateur IRSN de l'évaluation. Le « correspondant représentant l'entité évaluée » était Marc Benderitter (DRPH/SRBE/LRPAT).

Une version définitive du rapport a été adoptée lors de la session plénière du 13 novembre 2008.

La deuxième de ces évaluations, « Place des essais globaux dans la simulation des accidents de réacteur », avait pour mission :

- de prendre connaissance des travaux menés par le groupe international d'experts PHÉBUS (GEP). Ce groupe a examiné les besoins de réalisation d'essais en pile, en particulier dans le réacteur expérimental PHÉBUS, autour des problématiques Accidents graves (par rapport au thème Terme source) et Accident de perte de réfrigérant primaire APRP; le GEP a également examiné les besoins futurs pour les réacteurs de 4e génération (GEN IV) et a émis un rapport final comprenant ses recommandations, basées sur trois rapports de synthèse correspondant aux thèmes cités;
- d'évaluer la nécessité de disposer du réacteur d'essais CABRI pour qualifier les modèles de comportement d'un cœur de REP lors d'un accident de réactivité (RIA);
- d'évaluer la pertinence des axes de R&D mis en œuvre à l'IRSN et combinant simulation numérique détaillée, expérimentation à effets séparés, analyses « phénoménologiques » et expérimentation dite globale. Cette évaluation a été limitée aux thèmes Accidents graves et Comportement du combustible en APRP et en RIA.



Renforcer l'indépendance et la rigueur aussi bien que la qualité de ces évaluations.

La question sous-jacente était de savoir dans quelle mesure le développement et la qualification des outils de simulation nécessitent encore le recours à des installations et à des compétences expérimentales devenues très coûteuses. L'évaluation devait en particulier analyser le positionnement de l'IRSN et de ses outils dans le cadre européen et international.

La commission d'évaluation était composée de la manière suivante :

- cinq membres du conseil scientifique : George Yadigaroglu (pilote de l'évaluation), André Pineau, Michel Quintard, Bernard Sevestre, Victor Teschendorff :
- deux membres extérieurs : Ray Ashley, AVN, Belgique ; Arthur Motta, Pennsylvania State University, États-Unis.

Dominique Gobin, Directeur scientifique, a assumé le rôle de coordinateur IRSN de l'évaluation.

Le « correspondant représentant l'entité évaluée » était Jean-Claude Micaelli (DPAM).

Le rapport de la commission a été examiné et validé lors de la séance du conseil scientifique de mai 2008.

Enfin, et toujours concernant le programme des évaluations ciblées, une évaluation concernant le « Vieillissement des matériaux des réacteurs », décidée lors de la séance du 14 novembre 2007, a débuté au cours du deuxième semestre 2008. Une première réunion tenue en octobre a permis d'affiner le cadrage et le processus de l'évaluation ; il a été décidé de répartir les travaux en trois sousgroupes (les matériaux métalliques, les bétons et les polymères). Une évaluation sur le thème générique de « Méthode d'évaluation du risque aux écosystèmes » a également été programmée, pour un démarrage dans le courant de l'année 2009.

Au cours de cette année 2008, l'activité du conseil a été particulièrement riche, dans un contexte marqué par d'importantes réflexions stratégiques nationales et internationales sur l'environnement et l'énergie, et donc la place du nucléaire (Grenelle de l'environnement, projets de réacteurs de nouvelle génération, ITER, actualité sur

l'environnement et le nucléaire...). Dans ce contexte, l'IRSN élabore sa stratégie, avec notamment la mise en place du Plan à moyen et long termes (PMLT). Le conseil scientifique s'est inséré dans cette démarche. Cette question de l'élaboration du PMLT, et plus généralement des programmes de l'Institut, a fait apparaître la nécessité d'une discussion sur la façon dont l'IRSN réfléchit à ses évolutions stratégiques et oriente ses recherches. La question relative à l'élaboration du PMLT a été mise à l'ordre du jour du conseil scientifique du 13 novembre 2008 et fera l'objet d'une réévaluation en 2009.

Les mandats des conseillers scientifiques ayant une durée de cinq ans, sept d'entre eux arriveront à échéance en juin 2009. Un premier bilan montre que cette structure a prouvé sa capacité à apporter un regard critique et constructif, via les séances plénières et par un dialogue avec les intervenants IRSN, sur l'activité de l'Institut. Les dispositifs d'évaluation mis en place ont montré également leur efficacité dans une activité d'évaluation ciblée sur des questions scientifiques bien délimitées. La présence d'évaluateurs extérieurs dans ces commissions pilotées par le conseil scientifique a renforcé l'indépendance et la rigueur aussi bien que la qualité de ces évaluations. Ces deux volets de l'activité du conseil scientifique répondent à l'évidence aux missions du conseil scientifique. L'année 2009 devrait être l'occasion d'une réflexion sur ce bilan et sur les moyens susceptibles d'améliorer encore l'action du conseil scientifique par rapport aux missions qui lui sont confiées dans le décret du 22 février 2002 relatif à l'IRSN.

Michel QUINTARD

Président du conseil scientifique,
Institut de mécanique des fluides de Toulouse

COLLÈGE DES EXPERTS Une implication importante dans le Gast et dans la recherche exploratoire



a filière « expert » vient d'achever sa troisième année d'existence. L'année 2008 a porté à 48 personnes l'effectif du collège des experts et a été l'occasion de la tenue fin septembre du troisième séminaire de la filière expert. Ce séminaire a favorisé l'intégration des nouveaux nommés et a permis d'établir le bilan de l'année 2008.

Les points saillants à retenir sont les avancées dans les groupes d'animation scientifique transversale (Gast) et l'implication du collège dans le dispositif de la recherche exploratoire.

L'objectif des Gast est de rassembler autour de thèmes scientifiques les membres de l'Institut concernés afin de diffuser la connaissance en facilitant les échanges. Il existe aujourd'hui quatre Gast au sein de l'Institut. Le GATMC (groupe d'animation transversale pour les codes Monte Carlo) s'est réuni en juin sur le thème des réacteurs de génération IV et a organisé en octobre un séminaire « Initiation au Monte Carlo avec les mains à l'aide de dés », animé par John Hendricks, développeur/leader du code MCNPX du Los Alamos National Laboratory (LANL/USA). Le groupe statistique réuni en juin, et dont l'objectif est d'apporter un soutien technique en statistique sur des sujets traités au sein de l'Institut, est organisé

autour de mini-projets, comme par exemple : optimisation du suivi dosimétrique intégrant les incertitudes, évaluation des incertitudes tout au long de la chaîne métrologique, analyse de sensibilité et d'incertitude des modèles numériques...

Le club aérosols a tenu en juin une première réunion, dont l'objectif était d'établir une cartographie des activités aérosols dans l'Institut. En octobre, le club aérosols a organisé un séminaire, animé par des personnalités de renommée internationale, sur la métrologie des aérosols. Le groupe sur les écoulements à gouttes a été créé en fin d'année. Il s'intéresse aux évolutions des gouttes et à leur impact sur les écoulements gazeux. Les domaines concernés sont les accidents graves, les moyens de mitigation des accidents et des incendies, le rabattement d'une contamination particulaire par des brouillards d'eau...

Dans le cadre de la recherche exploratoire, 16 membres du collège des experts ont été impliqués dans le groupe d'évaluation des projets proposés pour l'année 2008. Ces projets de recherche émanent des différentes directions opérationnelles et sont évalués sur des critères d'enjeu, de créativité et de risque. Cinq sujets ont été examinés et quatre projets ont été sélectionnés à la majorité

des évaluateurs. Un premier sujet, proposé par la direction de la sûreté des réacteurs, porte sur l'étude de la fragilisation de la cuve des réacteurs par les métaux liquides, phénomène « exotique » de la mécanique des matériaux métalliques en interaction avec un environnement chimique. Les deuxième et troisième sujets, portés par la direction de la prévention des accidents majeurs, concernent respectivement le développement d'une mesure de flux de chaleur à travers des parois en béton exposées à un incendie, projet créatif proposant de coupler les mesures de flux de chaleur aux propriétés thermophysiques des matériaux, et la caractérisation par un rayonnement synchrotron de la cinétique de précipitation des hydrures dans le zircaloy des gaines de combustible.

Le dernier sujet, émanant de la direction de la radioprotection de l'homme, s'intéresse à l'étude des pathologies induites par des expositions chroniques, et plus particulièrement les cataractes radio-induites chez les cardiologues interventionnels. Ce sujet répond notamment à une demande en radioprotection d'une profession de plus en plus sensibilisée aux impacts des rayonnements ionisants et permettra un renforcement du positionnement de l'IRSN dans les études épidémiologiques pour la protection des professionnels médicaux.

Le collège des experts a été sollicité pour l'animation d'un groupe de travail constitué de membres du collège et des représentants des DO et DF, dont l'objectif était de proposer des améliorations au dispositif mis en place pour le développement de la recherche exploratoire. Les conclusions de ce travail sont consignées dans le rapport émis par la DS (DS/COLLEXP/2008-01).

Jacques VENDEL Expert senior, Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement

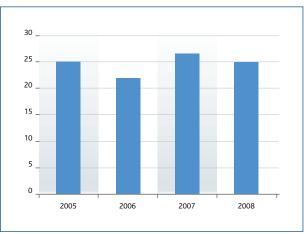
FORMATION À ET PAR LA RECHERCHE

Les doctorants ont une réelle place dans les connaissances de l'Institut

Au cours de ces quatre dernières années et lors de chacune des rentrées universitaires, près de 25 thèses ont démarré à l'Institut. Dans un établissement où se côtoient, voire parfois se confondent expertise et recherche et où autant de disciplines scientifiques sont représentées, comparer ce chiffre à celui d'autres organismes serait peu parlant.

Cependant, dans un contexte de désaffection des étudiants pour les matières scientifiques et donc de difficultés à recruter des doctorants de bon niveau, il est important et satisfaisant de rappeler que, pour chaque thèse démarrée, l'Institut s'est assuré de la meilleure façon possible du succès de celle-ci. Ainsi, toute proposition de sujet formulée par un des laboratoires de l'IRSN fait l'objet d'une évaluation et tout candidat à la thèse associée est amené à présenter son projet devant une commission d'audition des futurs doctorants, composée de scientifiques travaillant à l'IRSN ou dans d'autres organismes. Ces différentes étapes permettent de s'assurer que les conditions sont réunies pour lancer des thèses qui, non seulement, entrent dans les missions de l'IRSN mais aussi correspondent à des travaux de recherche valorisables au bout de trois ans, tant pour le laboratoire que pour le doctorant.

Ces travaux, motivés par le besoin de répondre aux interrogations de la communauté scientifique, des pouvoirs publics et de la

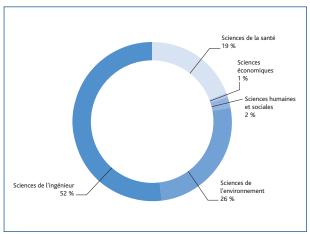


Nombre de thèses débutées par année.

société en sûreté nucléaire et radioprotection, peuvent se ranger dans plusieurs thématiques principales, dans lesquelles on retrouve bien sûr les sciences de l'ingénieur (génie civil, thermodynamique, matériaux, neutronique), de la santé (biologie, toxicologie, dosimétrie) et de l'environnement (écologie, géologie, sismologie), mais aussi, et dans des proportions encore faibles mais sans doute amenées à croître les prochaines années, les sciences humaines (facteurs humains) ou économiques (économie de la sûreté).



Des travaux pour répondre aux interrogations de la communauté scientifique, des pouvoirs publics et de la société.



Répartition par discipline des doctorants présents au 31.12.2008.

Naturellement, suivant la discipline scientifique, les moyens techniques et les compétences d'encadrement disponibles à l'Institut peuvent nécessiter que le doctorant soit rattaché physiquement et contractuellement à une université ou un organisme partenaire. Ainsi, près de 60 % des thèses engagées au 31 décembre 2008 faisaient l'objet d'une collaboration contractuelle avec un organisme cofinanceur et près de 15 % des doctorants avaient un autre employeur que l'IRSN.

Chaque thèse ayant un environnement spécifique, il appartient bien sûr avant tout à son tuteur et à son laboratoire d'assurer le suivi du doctorant et de permettre que les travaux soient valorisés. Néanmoins, au niveau de l'Institut, les doctorants et post-doctorants sont amenés à présenter chaque année au cours d'un séminaire résidentiel les avancées de leurs travaux. Lors du dernier séminaire les Journées des thèses 2008 de Vogüé (Ardèche) – plus de 170 personnes, scientifiques de l'IRSN ou d'organismes partenaires ont pu assister aux présentations des travaux de recherche et débattre sur la place de la formation par la recherche dans l'Institut. La richesse de ces exposés et discussions a ainsi pu montrer que l'engagement des laboratoires et de la direction scientifique pour la politique de formation par la recherche portait ses fruits et que chacun de nos jeunes chercheurs, doctorants ou post-doctorants, porteur d'un projet de recherche unique, avait une réelle place dans le processus d'accroissement collectif des connaissances de l'Institut.

> Gauzelin BARBIER Chargé de mission Formation par la recherche (DICST), Direction scientifique

LABORATOIRE COMMUN CNRS-IRSN Recherche théorique et appliquée en sûreté nucléaire



Le laboratoire MIST

Depuis le 1er juillet 2007, l'IRSN, le CNRS et l'université Montpellier II se sont dotés d'un laboratoire commun dans le domaine de la sûreté nucléaire : le Laboratoire de micromécanique et d'intégrité des structures (MIST). La création de ce laboratoire relève d'une politique conjointe et volontariste visant à renforcer les synergies entre recherche fondamentale et appliquée.

Ce laboratoire « sans mur », constitué de membres de la direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) de l'IRSN et du Laboratoire de mécanique et de génie civil (LMGC), unité mixte CNRS/ université de Montpellier II, a une double vocation : d'une part, proposer des outils de compréhension et de prédiction des phénomènes relevant explicitement de la sûreté nucléaire, d'autre part, aborder des thématiques scientifiques plus vastes dont les retombées bénéficient à chaque partenaire et à leur communauté de recherche

Ce jeune laboratoire a montré dès 2008 la pertinence et l'efficacité de cette association de moyens de recherche en s'attaquant avec succès à des problèmes réputés scientifiquement ardus.

Des compétences pointues

La thématique globale du laboratoire MIST concerne l'intégrité des structures hétérogènes et évolutives. Cette dénomination recouvre le comportement des matériaux et des structures soumis à des ambiances nocives – telles que les sollicitations thermomécaniques intenses ou le vieillissement naturel, imposé et induit –, fréquemment rencontrées dans le domaine nucléaire (cœur de centrale, stockage de déchets, etc.).

En 2008, le laboratoire MIST a abordé ce thème ambitieux selon deux axes principaux : la micromécanique et la mécanique rapide. La micromécanique vise ici à quantifier l'impact des évolutions microstructurales induites par ces ambiances nocives sur l'intégrité des matériaux. Dans le contexte nucléaire, les évolutions envisagées sont nombreuses : modification de la concentration des phases en présence et de leurs propriétés, apparition de précipités, dispersion des tailles et formes dans une collection de grains, etc. L'enjeu est d'aboutir à des modélisations et des simulations numériques prédictives, du fait de l'impossibilité quasi absolue de mesures expérimentales « en ligne ».



MIST : des publications de premier plan et des développements concrets.

La mécanique rapide concerne l'analyse des matériaux et structures nucléaires en situation accidentelle. Il peut s'agir de dynamique globale (chargements thermomécaniques d'une grande rapidité) ou locale (rupture des matériaux, stabilité des empilements granulaires). La compréhension de ces phénomènes rapides nécessite de franchir une étape expérimentale, alors que les codes de calcul sont souvent déjà à même de traiter ce genre de problème.

Ces deux axes principaux ont donné lieu au développement de thématiques très variées, couvrant un large panel de motivations appliquées allant des gainages de combustible à la dispersion de polluants en milieu fluvial. Concrètement, les travaux du laboratoire MIST durant ses dix-huit premiers mois d'existence ont porté sur la transition des milieux continus aux milieux discrets, l'hydro-poromécanique, les milieux granulaires saturés, la thermomécanique fortement couplée, la fissuration des matériaux hétérogènes, les stratégies numériques multi-échelles et l'identification expérimentale par mesure de champ.

Des résultats scientifiques concrets

Parmi les résultats prometteurs déjà obtenus, trois exemples concrets peuvent être cités :

- sur le plan expérimental, des modèles locaux d'endommagement ont été identifiés dans les métaux avec une résolution spatiale de l'ordre de quelques dizaines de microns ;
- sur le plan de la modélisation, une méthode de détermination de volumes élémentaires représentatifs optimaux pour la rupture quasi fragile des composites à matrice métallique a été proposée ;
- sur le plan de la simulation numérique, un outil d'analyse de la stabilité d'une mésostructure a été développé.

Ces travaux récents ont simultanément donné lieu à des publications scientifiques de premier plan et à des développements concrets dans les outils d'analyse de sûreté nucléaire.

> Yann MONERIE (IRSN) Robert PEYROUX (CNRS) Directeurs du MIST

Radioactivité et environnement





1	RADIOACTIVITÉ et environnement	16
1.1	ENVIRHOM VOLET « ENVIRONNEMENT » : mieux comprendre les conséquences écologiques des expositions chroniques aux radionucléides à faible niveau	19
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
1.2	COMMENT PRENDRE EN COMPTE LES INTERACTIONS entre les substances radioactives et les substances chimiques pour une meilleure évaluation des risques pour les écosystèmes dans un contexte de multipollution ?	27
1.3	ÉTUDE DU DÉPÔT SEC DES AÉROSOLS EN MILIEU URBAIN :	
	le projet SaliFa PRIMEQUAL	29
1.4	LES APPORTS DE LA SURVEILLANCE DES RADIONUCLÉIDES ARTIFICIELS dans l'air pour l'étude des processus de transfert et la caractérisation	
	des situations postaccidentelles	37
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
1.5	CAMPAGNE « LESSIVAGE ET LAVAGE DES AÉROSOLS DANS L'AIR » (LARA) au Puy-de-Dôme : caractérisation de la radioactivité dans l'air sur trois sites d'altitudes différentes	45
1.6	MISE EN PLACE DE LA PLATE-FORME ARGOS pour l'évaluation et la caractérisation des instruments de télémesure de la radioactivité	
	de l'environnement de l'IRSN	4/
1.7	MÉTHODOLOGIE DE CARTOGRAPHIE DES ZONES PRIORITAIRES	
	pour la gestion du risque lié au radon	49
	flash in fof lash in fof las	
1.8	CARTOGRAPHIE D'OCCUPATION DU TERRITOIRE AUTOUR DES SITES NUCLÉAIRES pour l'évaluation des risques sanitaires et radiologiques	60
1.9	SYMBIOSE : une plate-forme de modélisation et de simulation du risque radiologique sanitaire et environnemental	62
1.10	LA CRÉATION DU GROUPEMENT NATIONAL DE RECHERCHE TRASSE au sein du programme PACEN (CNRS)	
1.11	ÉTUDE DES TRANSFERTS FOLIAIRES DES RADIONUCLÉIDES DANS LA BIOSPHÈRE : une étude dans le « potager » de Tchernobyl, soutenue par l'Andra	66
1.12	PROJET MÉDIUM : étude du mélange et de la dispersion des sédiments par l'utilisation	
1 10	de marqueurs particulaires dans l'estuaire de la Seine	
1.13	RADIOACTIVITÉ CHEZ LES ORGANISMES de sites hydrothermaux sous-marins	/0
1.14	LES FAITS MARQUANTS en quelques dates	72

RADIOACTIVITÉ et environnement

Didier CHAMPION

Direction de l'environnement et de l'intervention

es sujets développés dans cette édition témoignent des avancées scientifiques de l'IRSN dans trois domaines au cœur de la démarche d'évaluation des risques environnementaux :

- mieux connaître les effets sur les écosystèmes des expositions chroniques aux radionucléides ;
- mieux comprendre le comportement des aérosols dispersés dans l'atmosphère et leur interaction avec les surfaces au sol;
- mieux prévoir les risques de concentration du radon dans l'habitat.

■ Conséquences écologiques des expositions chroniques aux radionucléides

Depuis plusieurs années, l'IRSN développe des recherches expérimentales visant à améliorer les bases scientifiques du système international de radioprotection, en s'intéressant tout particulièrement aux conséquences écologiques et sanitaires des expositions chroniques environnementales aux radionucléides, dans le cadre du programme de recherche ENVIRHOM. Une première phase exploratoire de ce programme, achevée en 2007, a permis de mettre en évidence, à l'aide d'un modèle « référent » d'exposition chronique à l'uranium de l'homme et de l'environnement, de multiples effets sur différents modèles expérimentaux, parfois inattendus, et ce pour un large spectre de fonctions biologiques et physiologiques (reproduction, croissance, comportement, etc.).

L'article présenté par Adam *et al.* (ENVIRHOM volet « environnement » : mieux comprendre les conséquences écologiques des expositions chroniques aux radionucléides à faible niveau) dresse

un bilan d'ensemble des résultats obtenus depuis 2001 dans le cadre du volet « environnement » de ce programme, en se focalisant sur les effets biologiques observés sur divers modèles biologiques représentatifs du milieu aquatique (crustacés, mollusques, insectes, poissons), placés dans des conditions contrôlées de contamination chronique par de l'uranium.

Bien sûr, cette approche expérimentale est très simplificatrice au regard de la diversité et de la complexité des écosystèmes et de la multitude de facteurs de stress pouvant les affecter. Elle permet cependant de bien appréhender les effets élémentaires significatifs associés à la présence de radionucléides dans le milieu de vie. Les effets observés au niveau individuel, pour des processus biologiques fondamentaux, conduisent à mieux comprendre les perturbations sur les « traits d'histoire de vie » des espèces, en particulier la capacité reproductive et la croissance somatique qui sont essentielles à la dynamique des populations. Finalement, ces connaissances servent à déterminer des valeurs de concentration « sans effet » sur tout ou partie des écosystèmes étudiés, bases de la caractérisation du risque environnemental.

Ces recherches ont également permis d'identifier, au niveau subcellulaire, des « biomarqueurs d'effet », sensibles à la présence d'uranium dans le milieu de vie ; les réponses biologiques observées ici ne sont pas nécessairement significatives d'un dommage pour les espèces ou les écosystèmes, mais donnent les clés des principaux mécanismes en jeu lors d'une exposition à l'uranium,



étudiés en commun avec le volet « homme » du programme ENVIRHOM.

Ces résultats montrent globalement comment il est possible de préciser la caractérisation de l'état écologique d'un écosystème contaminé. Cette démarche est particulièrement utile pour proposer une méthode d'évaluation du risque écologique plus pertinente, en particulier en proposant des outils d'extrapolation scientifiquement fondés. Constatant de tels résultats, l'IRSN poursuit d'autres études similaires, dans l'objectif d'étendre les connaissances à d'autres types d'organismes et à d'autres radionucléides d'intérêt (ex. $^{241}\mathrm{Am}, ^{75}\mathrm{Se}$ ou encore l'irradiation externe γ par le $^{137}\mathrm{Cs}$).

■ Comportement des aérosols atmosphériques

Connaître et prévoir le comportement des fines particules radioactives (aérosols) en suspension dans l'atmosphère et leur interaction avec les surfaces au sol constituent de longue date un des champs fondamentaux de l'évaluation de l'impact environnemental des activités nucléaires, dans le cadre de leur exercice normal et, a fortiori, en situation d'accident.

Deux articles se rapportent à cette thématique : l'un, [Masson et al., Les apports de la surveillance des radionucléides artificiels dans l'air pour l'étude des processus de transfert et la caractérisation des situations postaccidentelles] dresse le bilan de 50 ans d'observation de la radioactivité de l'air sur le territoire métropolitain, montrant le rôle de traceur privilégié que constitue le césium 137, radionucléide artificiel rejeté à plusieurs reprises au cours de l'histoire du nucléaire dans le monde ; l'autre, [Maro et al., Étude du dépôt sec des aérosols en milieu urbain : le projet SaliFa PRIMEQUAL] s'intéresse plus particulièrement au dépôt sec d'aérosols en milieu urbain.

L'observation du césium 137 dans l'air apporte de nombreuses connaissances sur l'origine des masses d'air circulant en France, les phénomènes de remise en suspension ou sur le rôle sensible de l'altitude sur l'activité massique de l'air et sur l'importance des dépôts humides. Ces connaissances sont tout à fait représentatives du comportement général des radionucléides dispersés dans l'air sous forme particulaire et sont, à ce titre, pertinentes dans le cadre du développement par l'IRSN des nouveaux réseaux de surveillance de la radioactivité de l'air, ainsi que pour l'évaluation des conséquences de rejets accidentels sur de longues distances

S'agissant des dépôts en milieu urbain, un des intérêts des travaux menés par l'IRSN, en partenariat avec de multiples équipes de recherche, est d'améliorer la capacité de prévision des conséquences d'un rejet accidentel sur les milieux bâtis, avec un enjeu important en termes de radioprotection. Les résultats obtenus lors des différentes campagnes de traçage et d'observation montrent la complexité des phénomènes en cause dans le dépôt sec, notamment l'état des surfaces de dépôt (différent pour le verre et les enduits de mur) ; ils permettent de quantifier globalement les vitesses de dépôt pour ces différentes surfaces et de souligner l'intérêt qu'il y aurait à étudier l'influence de la température et de la micrométéorologie près des surfaces de dépôt.

■ Revoir les bases de la cartographie du « risque radon »

Depuis plusieurs années, s'est développée en France une politique de gestion des expositions au radon, prévoyant notamment un dépistage systématique dans les lieux ouverts au public pour les départements dits « prioritaires ». L'identification de ces 31 départements prioritaires a reposé sur les campagnes historiques menées

par l'IPSN, en association avec le ministère de la Santé, qui visaient alors à disposer d'une base statistique suffisamment solide (plus de 12 000 mesures de radon dans l'habitat) pour estimer le niveau d'exposition de la population dans son ensemble et ses disparités régionales. Toutefois, l'utilisation de ces résultats pour développer des politiques de prévention du risque radon a progressivement montré ses limites, notamment dans le cas de départements qui présentent un contexte géologique contrasté ou dont la distribution des campagnes de mesures historiques n'est pas homogène.

Au cours des dernières années, l'IRSN a mis à profit ses travaux d'étude et de recherche sur les phénomènes d'exhalation du radon pour proposer, à la demande de l'Autorité de sûreté nucléaire, une nouvelle approche pour cartographier les territoires prioritaires pour la gestion du risque lié au radon. L'article de lelsch *et al.*, présenté ici (Méthodologie de cartographie des zones prioritaires pour la

gestion du risque lié au radon), restitue l'ensemble de ces travaux et la nouvelle méthode proposée, qui est en cours de mise en œuvre à l'IRSN en vue d'obtenir, fin 2009, une nouvelle carte de France du « risque radon » présentant un zonage plus précis que l'échelle du département et respectant de manière plus objective la variabilité du potentiel des terrains à émettre du radon. Cette nouvelle carte répondra mieux aux besoins des pouvoirs publics dans la poursuite de leur politique de gestion de ce risque.

Ce travail illustre parfaitement comment des travaux d'étude et de recherche menés à l'IRSN peuvent avoir des retombées opération-nelles sur les politiques publiques et, au-delà, sur l'action des acteurs de la société concernés par la gestion du radon dans les lieux ouverts au public, sur les lieux de travail et, vraisemblablement à terme, dans l'habitat particulier.

ENVIRHOM VOLET « **ENVIRONNEMENT** » :

mieux comprendre les conséquences écologiques des expositions chroniques aux radionucléides à faible niveau

Christelle ADAM-GUILLERMIN, Jean-Marc BONZOM, Stéphanie BOURRACHOT, Victor DIAS, Rodolphe GILBIN, Adélaïde LEREBOURS, Olivier SIMON Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie

Jacqueline GARNIER-LAPLACE

Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes

Frédéric ALONZO

Laboratoire de modélisation environnementale

La contamination chronique de l'environnement par de faibles activités de radionucléides pose la question de l'évaluation de conséquences possibles sur l'homme et sur les écosystèmes. Cette évaluation se heurte à l'insuffisance de données scientifiques disponibles et à l'absence de méthodes éprouvées permettant de prendre en compte la complexité des processus mis en jeu. Néanmoins, la future mise en place d'un système de radioprotection de l'environnement, cohérent avec le dispositif en place pour les substances chimiques (European Commission, 2003), nécessite de déterminer les niveaux à partir desquels l'exposition à des radionucléides pourrait induire des dommages aux organismes et aux populations composant les écosystèmes, avec les conséquences écologiques qui en découleraient. Le programme de recherche ENVIRHOM vise à répondre à ces questions en recueillant, à l'aide d'expérimentations sur des organismes vivants (vertébrés supérieurs, poissons, invertébrés, végétaux, etc.), de nouvelles données scientifiques concernant les effets des expositions chroniques aux radionucléides, tout en identifiant les marqueurs les plus pertinents.

Cet article présente la démarche et les développements actuels du volet « environnement » du projet ENVIRHOM. L'uranium est l'élément privilégié depuis le lancement du projet en 2001. Le choix de ce dernier a permis de développer les outils nécessaires à la mise en évidence des effets biologiques dans des conditions d'exposition représentatives (réelles ou plausibles) de situations de contamination possibles rencontrées dans les activités du cycle du combustible nucléaire en fonctionnement normal, voire accidentel (de la mine jusqu'au retraitement et au stockage de déchets). L'uranium a été utilisé pour contaminer en milieu contrôlé les différents compartiments d'écosystèmes (eau, sédiments, sols), dans lesquels les effets biologiques ont été déterminés pour un nombre limité

de modèles biologiques représentatifs de la diversité de ces écosystèmes (végétaux, crustacés, mollusques, insectes, poissons).

Ainsi, les résultats les plus récents portant sur les organismes aquatiques, présentés ci-après, bénéficient pour leur interprétation du socle de connaissances déjà acquis depuis le début du programme ENVIRHOM. D'autres études sont par ailleurs en cours, dans l'objectif d'étendre les recherches à d'autres types d'organismes (ex. plantes supérieures terrestres) et à d'autres radionucléides d'intérêt, choisis notamment afin de balayer divers types d'émissions radioactives (ex. $^{241}\text{Am}, \,^{75}\text{Se}, \,^{3}\text{H}$ ou encore l'irradiation externe γ par le ^{137}Cs).

Du tube à essai aux écosystèmes

L'écotoxicologie utilise diverses approches complémentaires : depuis les bioessais monospécifiques réalisés en laboratoire jusqu'aux études de terrain, en passant par les expériences de laboratoire à l'aide de systèmes expérimentaux plus ou moins complexes. Alors que les études in situ apportent réalisme et intégration des processus biologiques, leur puissance explicative et prédictive pour d'autres situations reste limitée compte tenu de la complexité du milieu (variables spatio-temporelles des facteurs écologiques, effets d'adaptation, etc.). Les études en milieu contrôlé permettent d'étudier les réponses d'organismes aux différentes conditions d'exposition représentatives des situations rencontrées (niveaux et voies d'exposition, durée, nature et formes chimiques de l'élément toxique étudié, etc.). Dans une approche simplificatrice, les études écotoxicologiques portent généralement sur des organismes modèles des différents niveaux trophiques ; par exemple, pour les écosystèmes aquatiques continentaux, on distinguera les espèces planctoniques telles que les algues à la base des réseaux trophiques et les microcrustacés consommateurs de premier ordre, les invertébrés benthiques associés aux sédiments et les poissons.

Les effets des contaminants de l'environnement sont en premier lieu étudiés au laboratoire par la mesure de réponses à l'échelle de l'individu pour des processus biologiques fondamentaux. Ainsi, en écotoxicologie, on parle de traits d'histoire de vie des espèces pour l'ensemble des stades d'une espèce donnée: œufs, larves, juvéniles, adultes matures... Ces traits d'histoire de vie comprennent notamment la capacité à se reproduire (fécondité, succès reproducteur, etc.) et la croissance somatique. Les données acquises sur les traits d'histoire de vie sont utilisées après leur intégration dans des modèles de dynamique de population, pour l'établissement de valeurs seuils, c'est-à-dire de doses ou de concentrations prévues sans effet pour tout ou partie d'un écosystème. Ces valeurs seuils sont nécessaires à la caractérisation et à la gestion du risque environnemental [Garnier-Laplace et al., 2006 et 2008].

Par ailleurs, les réponses biologiques peuvent être reliées à des altérations cellulaires ou subcellulaires de certains tissus ou organes spécifiques. La mesure de ces altérations constitue un indicateur (i.e. biomarqueur) de l'exposition ou des effets des contaminants. L'usage des biomarqueurs est très répandu en écotoxicologie en raison de la précocité de leur réponse et de leur sensibilité ; ils permettent également de mieux comprendre et identifier les modes d'action toxique et les cibles cellulaires (figure 1). Pour être utiles dans un contexte de caractérisation du risque environnemental, les biomarqueurs considérés doivent être sensibles à une exposition à des doses pertinentes du point de vue environnemental, présenter

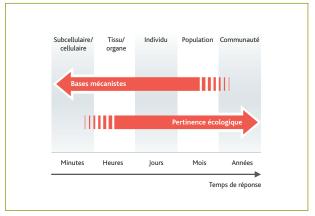


Figure 1 Principales caractéristiques des indicateurs d'effet en fonction du niveau d'organisation biologique étudié.

des relations dose-réponse quantifiables et, dans la mesure du possible, refléter le statut physiologique des organismes, voire des populations.

Une sensibilité accrue des stades de vie précoces (illustration sur le poisson Danio rerio)

Les effets de radioéléments comme l'uranium ont été étudiés sur les traits d'histoire de vie de plusieurs organismes modèles des écosystèmes aquatiques, tels les algues unicellulaires, les microcrustacés (daphnies), les insectes (chironomes) et les poissons. Le poisson zèbre Danio rerio, sorte de souris de laboratoire version aquatique, est un modèle biologique adapté aux études toxicologiques sur le poisson en laboratoire (maintien dans des conditions contrôlées, cycle de vie court, nombreuses connaissances sur sa physiologie, génome séquencé, etc.). Les résultats acquis sur l'uranium montrent une sensibilité particulière des premiers stades de développement du poisson, de l'œuf jusqu'aux larves [Bourrachot et al., 2008a]. Les différents stades de développement embryonnaire ne sont pas affectés de manière égale par l'uranium, les embryons étant par exemple protégés jusqu'à l'éclosion par l'enveloppe de l'œuf (chorion), qui retient la majorité du métal du milieu hors de l'organisme. En revanche, la période d'éclosion des larves est affectée de façon significative pour des concentrations en uranium dans l'eau représentatives de sites contaminés comme l'aval immédiat de certains sites miniers (dès 20 µg/l d'uranium), les organismes présentant un retard d'éclosion allant jusqu'à ca. 40 % (figure 2a).

Ce retard d'éclosion s'accompagne d'une diminution de la taille et d'une réduction de la croissance des larves ainsi que d'une augmentation de leur mortalité à plus forte concentration.

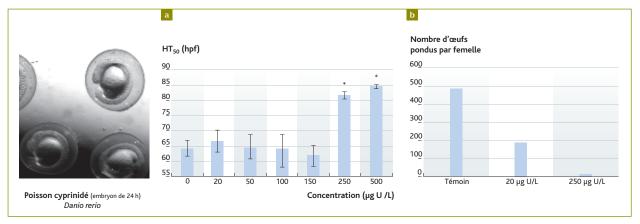


Figure 2 Effet de l'uranium sur le poisson Danio rerio. a) Temps d'éclosion médian (HT₅₀) exprimé en heures post-fertilisation (hpf; moyenne ± intervalle de confiance à 95 %; *: statistiquement différent du groupe témoin, p < 0,05). b) Nombre d'œufs pondus par femelle après 20 jours d'exposition à l'uranium. D'après [Bourrachot et al., 2008a et 2008b].

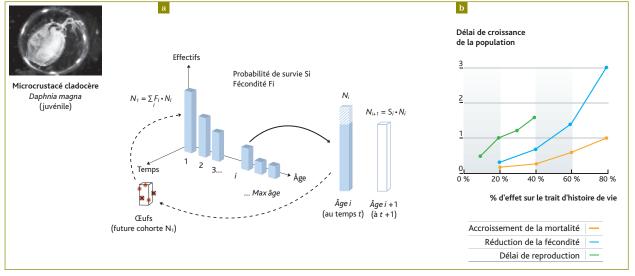


Figure 3 a) Schéma du modèle mathématique de population structurée par âge utilisé (matrice de Leslie). b) Conséquences des réponses de traits d'histoire de vie sur le délai de croissance de populations de Daphnia magna. D'après [Alonzo et al., 2008].

Chez les adultes exposés à l'uranium, une diminution du succès reproducteur est observée également à partir d'une concentration de 20 µg/l. Les conséquences en termes de fécondité (nombre total d'œufs pondus – *figure 2b*) sont drastiques, avec une réduction de facteurs 2 et 60, pour les organismes exposés respectivement à 20 et 250 µg/l d'uranium. En outre, la viabilité des œufs et des larves décroît avec l'augmentation de la concentration d'uranium, les embryons étant comparativement plus exposés à l'uranium par transfert maternel que par une exposition directe dans le milieu. Ainsi, l'ensemble de ces critères d'effet soulignent la grande sensibilité des premiers stades de vie exposés, soit directement, soit par voie parentale, à l'uranium, puisque des effets sublétaux sont observés dès 20 µg/l. De tels critères d'effet donnent également des éléments de réponses biologiques en termes d'incidence sur

les populations. En effet, on imagine aisément qu'en milieu naturel, la diminution du succès reproducteur, couplée à l'augmentation de la mortalité larvaire, pourrait avoir des conséquences importantes sur le maintien de certaines populations.

La dynamique de population sensible aux retards de croissance et au bilan énergétique (illustration sur la daphnie Daphnia magna)

À partir des données mesurées sur un individu, il est possible d'extrapoler, à l'aide de modèles mathématiques, les conséquences des effets d'un contaminant sur la dynamique de population.

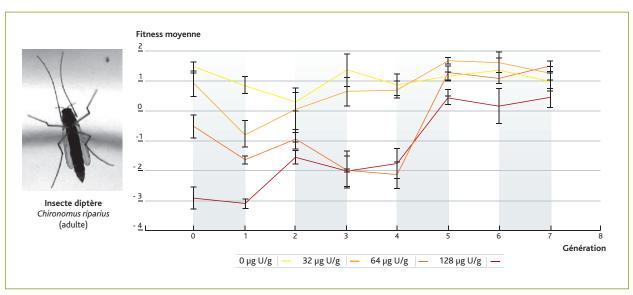


Figure 4 Évolution de la fitness chez l'insecte Chironomus riparius, au cours de huit générations et en fonction de la contamination (µq U/q de sédiment sec). D'après [Dias et al., 2008].

Pour formaliser cette extrapolation, on utilise des modèles de dynamique de population, comme la matrice de Leslie (*figure 3a*). Dans ce type de modèle, la structure de la population est décrite par classe d'âge et le nombre d'individus d'une classe d'âge est fonction de la survie des individus de la classe d'âge précédente. De même, la fécondité de tous les individus en âge de se reproduire conditionne le nombre d'individus de la première classe d'âge. On peut donc ainsi estimer la croissance de la population (*figure 3b*).

Le microcrustacé zooplanctonique *Daphnia magna* est particulièrement adapté à l'acquisition des données nécessaires à ce type de modèle, en raison de son cycle de vie parthénogénétique court. Cette approche de modélisation permet de mettre en évidence un retard de croissance de la population — c'est-à-dire une augmentation du temps nécessaire pour atteindre un nombre d'individus donné. Elle permet également de comparer l'importance relative, sur le plan de la population, de différents critères d'effet mesurés à l'échelle individuelle (survie, fécondité, âge lors de la première ponte). En supposant que la population n'est limitée ni par sa nourriture ni par l'espace et que les effets sont les mêmes d'une génération à une autre, on montre que l'âge, lors de la première ponte, joue un rôle prédominant dans la dynamique de population chez un organisme tel que la daphnie (*figure 3b*).

Cependant, cette approche se limite à compter le nombre d'individus composant la population et ne permet pas d'appréhender les conséquences sur la biomasse ou la structure des populations, qui constituent des descripteurs plus pertinents sur un plan écologique. La signification écologique de ces modèles de dynamique de population peut être améliorée en intégrant les réponses physiologiques (assimilation de nourriture, dépense énergétique, réserves énergétiques et biomasse produite) dans un modèle dynamique de bilan énergétique [Kooijman, 2000]. Ce type de modèle se fonde sur l'hypothèse que les animaux ne peuvent pas indéfiniment accroître leur acquisition d'énergie, en raison de la limitation de la nourriture dans le milieu et des contraintes propres aux organismes. Toute augmentation des coûts métaboliques intervient donc aux dépens des processus importants pour la dynamique de population. Par cette approche, on montre l'importance cruciale des perturbations induites par l'uranium sur la nutrition des daphnies dès 25 µg/l [Zeman et al., 2008]. De même, le faible impact d'une augmentation de dépense énergétique (respiration) n'est qu'apparent : bien qu'elle n'affecte la croissance de population ni en nombre, ni en biomasse, ni même au travers de la structure en classes d'âge, des répercussions potentiellement importantes peuvent être observées sur la masse des individus et la survie des juvéniles [Alonzo et al., 2006 et 2008].

Une acquisition de tolérance des populations, signe d'une microévolution (illustration sur le chironome *Chironomus riparius*)

Sur le modèle d'invertébré benthique *Chironomus riparius*, la toxicité de l'uranium à l'échelle des individus a été déterminée pour une première génération [Dias *et al.*, 2008]. Par la suite, la comparaison des traits d'histoire de vie de populations identiques au départ mais soumises pendant huit générations à des concentrations différentes

d'uranium (0, 32, 64, 128 µg U/g de sédiment sec), a permis de mettre en évidence des phénomènes de microévolution. Des changements de caractères phénotypiques pour des populations contaminées sur plus de deux générations, par rapport aux populations témoins, peuvent être le signe d'une telle microévolution [Bell et Collins, 2008]. Par exemple, dès la première génération, les individus exposés à l'uranium ont présenté une fitness (nombre de descendants viables et fertiles ou produit de la survie et de la fécondité) plus faible que les individus non exposés (figure 4). Cependant, au fil des générations, cette diminution de fitness des organismes disparaît pour toutes les concentrations en uranium; à la huitième génération, les individus exposés présentent la même taille que les individus non exposés. S'agit-il d'une sélection génétique des organismes suite à une exposition à l'uranium ? Pour y répondre, des expériences de type « jardin commun » [Falconer et Mackay, 1996], consistant à transférer toutes les populations dans un même type d'environnement non contaminé et à comparer leurs performances, ont été réalisées. Les résultats ont démontré une divergence phénotypique, reflet d'une divergence génétique entre les populations témoins et les populations ayant été exposées à l'uranium. Cependant, d'autres mesures effectuées lors de cette expérience semblent montrer que, si ces populations se sont adaptées à l'uranium, le coût métabolique engendré par cette acquisition de tolérance les rend plus vulnérables à un nouvel environnement, même identique à leur environnement d'origine.

En effet, les populations ayant été exposées à la plus forte contamination en uranium (128 µg U/g de sédiment sec) ont, lorsqu'elles sont placées de nouveau dans un environnement non contaminé, un succès reproducteur inférieur à celui des populations témoins. Ce dernier résultat suggère que des changements environnementaux rapides et fréquents par rapport au temps caractéristique d'une génération (ou d'un cycle de vie) peuvent avoir des conséquences

environnementales pour les populations spécialisées à un environnement spécifique et que celles-ci pourraient tendre à disparaître. Ainsi, les connaissances acquises quant aux changements sur plusieurs générations des caractéristiques physiologiques (les traits d'histoire de vie) et génétiques d'une population exposée à l'uranium nous permettent de mieux évaluer le risque d'extinction de populations. Si ces populations sont visiblement capables de s'adapter à un environnement contaminé par l'uranium, le coût métabolique engendré par cette acquisition de tolérance peut les rendre plus vulnérables à un nouvel environnement, à travers par exemple un succès reproducteur inférieur à celui des populations témoins. Cet exemple illustre la complexité des processus écologiques mis en œuvre et la multitude des effets indirects à considérer.

À la recherche de biomarqueurs subcellulaires pour mieux comprendre les mécanismes d'action mis en jeu

Les profils d'expression génique

Les réponses biologiques observées, depuis le niveau des individus jusqu'à celui des populations, sont très souvent la résultante de divers mécanismes de toxicité de cinétiques distinctes se déroulant à l'échelle subcellulaire et spécifiques à chaque organe cible. L'étude des profils d'expression génique dans différents organes peut constituer une approche puissante pour mieux comprendre la diversité des mécanismes de toxicité qui sous-tendent les effets observés à d'autres échelles d'organisation biologique. Une telle approche a été utilisée chez le poisson zèbre afin d'identifier les modes d'action toxique de l'uranium dans quatre organes cibles du poisson : les branchies, le muscle, le foie et le cerveau.

Processus cellulaires	Cerveau	Muscle	Foie	Branchies
Détoxification	cytp450	tap, cytp450	tap, cytp450	-
Stress oxydant	gpx, gst, cat Stress oxydant cat		gpx, gst, cat, sod(Cu/Zn), sod(Mn)	gpx, sod(Mn)
Apoptose	-	bax	bax	-
Réparation de l'ADN	gadd	-	gadd	rad51 ⁽¹⁾
Métabolisme mitochondrial	-	coxl	coxl	coxl ⁽¹⁾
Inflammation	il1	il1	il1	-
Réponse neuronale	vchat, cd11b, gls1	Non déterminée	Non déterminée	Non déterminée

⁽¹⁾ Altération observée seulement à 100 µg/l d'uranium.

Tableau 1 Comparaison des altérations d'expression de gènes dans les quatre organes cibles de l'uranium chez le poisson zèbre exposé à 20 ou 100 µg/l [Lerebours et al., 2008].

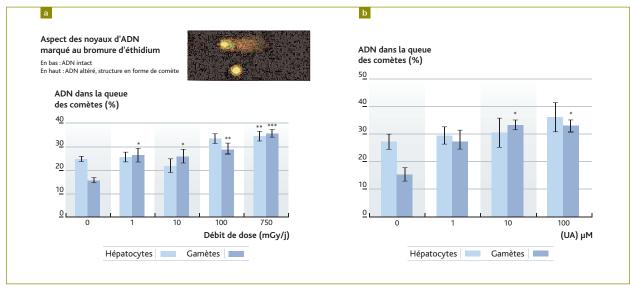


Figure 5 Niveau de dommages à l'ADN (% ADN dans la queue des comètes) de gamètes mâles et d'hépatocytes exposés 24 h à une gamme de (a) débits de dose (gamma externe, ¹³⁷Cs) et de (b) concentrations d'uranium appauvri. Moyenne ± erreur standard (n = 5; *: p < 0.05, **: p < 0.01, ***: p < 0.001). [Giraudo, 2006].

L'expression d'un ensemble de 20 gènes impliqués dans des mécanismes de toxicité cellulaire (*tableau 1*) a été mesurée par RT-PCR (*Reverse Transcription-Polymerase Chain Reaction*) chez des poissons zèbres mâles exposés à environ 20 et 100 µg/l d'uranium appauvri. Les profils d'expression génique montrent qu'à partir d'une concentration de 20 µg/l, l'exposition à l'uranium induit un changement d'expression de certains gènes impliqués dans la réponse inflammatoire et oxydative. Des gènes impliqués dans l'apoptose (particulièrement pour le muscle), le métabolisme mitochondrial et la réparation de l'ADN sont également impactés. Dans le cerveau, les gènes vchat et gls1 sont induits, ce qui dénote une réponse neuronale touchant la synthèse du glutamate et le système cholinergique, en adéquation avec les effets de l'uranium déjà rapportés sur les variations de l'activité de l'acétylcholinestérase [Barillet *et al.*, 2007).

Les réponses génétiques diffèrent en fonction de l'organe considéré. Dans les branchies, bien que celles-ci accumulent de fortes concentrations d'uranium, un nombre très restreint de gènes est induit pour la concentration la plus élevée, et de façon très modérée (facteur d'induction maximal de 7), ce qui suggère une faible sensibilité de cet organe à une exposition à l'uranium. Dans le foie, où s'accumulent également de fortes teneurs en U, des réponses génétiques (induction ou répression) sont observées pour de nombreux gènes (facteur de répression maximal de 100), essentiellement pour la concentration d'exposition la plus faible (20 µg/l). L'absence ou la diminution du nombre de gènes réprimés ou surexprimés lors de l'exposition à une forte concentration d'uranium pourrait

indiquer que les capacités de défense de l'organe sont dépassées, ce qui peut être mis en relation avec les histopathologies du foie observées par d'autres chercheurs [Cooley et al., 2000]. Enfin, pour le cerveau et le muscle, où s'accumule environ dix fois moins d'uranium, de nombreux gènes répondent de façon précoce et avec une intensité plus marquée pour la plus faible concentration d'uranium, soulignant la sensibilité de ces organes à une exposition à l'uranium, en relation avec les effets neurologiques possibles de cet élément.

Altérations de l'ADN et effets au niveau de l'individu

Une exposition à des radionucléides est susceptible de modifier de façon directe la structure et la fonction des principales macromolécules biologiques que sont les lipides, les sucres, les protéines et les acides nucléiques. Il est largement reconnu que l'ADN est la molécule cible des dommages radio-induits et de leurs effets biologiques. Les conséquences des diverses modifications structurales de l'ADN induites par les rayonnements ionisants peuvent être plus ou moins graves en fonction de leur traitement par les mécanismes de défense cellulaire.

Ainsi, certains dommages peuvent être réparés correctement avec une poursuite normale du cycle cellulaire; d'autres dommages peuvent être non réparables et mener à l'élimination des cellules touchées par apoptose, d'autres enfin peuvent être mal réparés. Dans ce dernier cas, des effets irréversibles sont susceptibles d'apparaître comme des mutations, de la carcinogénèse et de la teratogénèse.

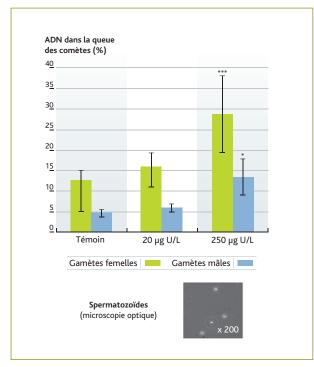


Figure 6 Dommages à l'ADN mesurés par l'essai des comètes dans les cellules gonadiques de femelles et mâles. Moyenne \pm écart type $(n=3\;;*:p<0.05\;et\;***:p<0.001)$. D'après [Bourrachot et al., 2008].

Étude in vitro

Des modèles d'étude *in vitro* ont été développés (cultures primaires de cellules de poissons) dans l'objectif de disposer de tests rapides et sensibles pour cribler le potentiel génotoxique de l'uranium, qui doit permettre de déterminer les scénarios d'exposition *in vivo* les plus pertinents. L'essai des comètes (version alcaline) a été privilégié pour la détection d'événements génotoxiques. Ce test permet la détection des cassures de l'ADN simple et double brin, ainsi que des sites alcali-labiles. Il nécessite de dissocier des tissus pour en isoler les cellules sans pour autant altérer leur ADN.

Parmi les différents types cellulaires possibles, les cellules germinales et hépatiques ont été sélectionnées car elles présentent un intérêt particulier pour l'évaluation de la génotoxicité. En effet, une altération du matériel génétique des gamètes peut compromettre la capacité des organismes concernés à engendrer une descendance viable, modifier la constitution génétique des générations suivantes par introduction de mutations plus ou moins délétères et ainsi avoir de graves répercussions sur la dynamique des populations. Quant au foie, il possède un rôle central dans le métabolisme général des organismes ainsi que dans la détoxification et la transformation des molécules toxiques qui pénètrent dans l'organisme.

La sensibilité de ces deux types cellulaires (hépatocytes et gamètes mâles) a été comparée, pour une exposition à un rayonnement gamma externe ou à de l'uranium appauvri (figure 5). Dans le cas d'une irradiation gamma externe, une augmentation significative du nombre de cassures de l'ADN a été observée dès 1 mGy/j pour les gamètes, alors que l'altération de l'ADN hépatique n'apparaît qu'à partir de 750 mGy/j. De même, pour l'exposition à l'uranium appauvri, une augmentation significative des dommages à l'ADN est observée dès la seconde concentration d'uranium pour les gamètes mâles (2,4 mg/l), alors qu'aucune tendance significative n'apparaît pour les hépatocytes. Ces résultats montrent que l'étendue des dommages ADN est fonction du type cellulaire considéré, caractérisé par des capacités de réparation de l'ADN et un taux de renouvellement cellulaire spécifiques. Ainsi, les gamètes étant dépourvus de systèmes efficaces de réparation de l'ADN, ils maintiennent difficilement l'intégrité de leur ADN et sont, par conséquent, plus sensibles que les hépatocytes à la présence d'agents génotoxiques dans le milieu.

Étude in vivo

La sensibilité accrue des cellules germinales observée in vitro conduit à souligner la possibilité d'effets sur les paramètres reproducteurs. Une étude in vivo a donc été réalisée en vue de relier les altérations de l'ADN dans les cellules germinales à des effets en termes de fécondité. Des adultes de Danio rerio ont été exposés pendant vingt jours par la voie directe à de l'uranium appauvri à des concentrations de 20 et 250 µg/l [Bourrachot et al., 2008b]. Il apparaît que, chez les poissons exposés à une concentration de 250 µg/l d'uranium, les performances reproductives sont diminuées (figure 2b) et sont associées à une augmentation significative du nombre de dommages à l'ADN dans les cellules germinales (mâles et femelles) (figure 6). Les concentrations tissulaires d'uranium mises en jeu (de 5 à 15 mg U/kg de gonade ; calcul réalisé sur la base d'un rapport poids frais sur poids sec de 5) sont du même ordre de grandeur que les concentrations utilisées in vitro (2,4 à 24 mg/l d'uranium dans le milieu de culture), ce qui permet de conforter l'utilisation des cultures cellulaires comme outil de screening.

Cette cohérence des informations obtenues par des études *in vitro* et *in vivo* permet, *via* l'identification des organes cibles de l'accumulation de l'uranium et pour lesquels la sensibilité des cellules est élevée, de relier les effets observés à l'échelle moléculaire aux effets à l'échelle de l'individu.

Toutefois, de telles corrélations n'impliquent pas nécessairement un lien direct de cause à effet, mais peuvent simplement souligner des mécanismes d'action toxique communs.

■ Conclusion

La démarche entreprise avec l'uranium pour identifier les réponses des individus et les conséquences de ces réponses pour les populations, en relation avec les modes d'action identifiés au niveau subcellulaire, montre comment les connaissances sur les conséquences écologiques des expositions chroniques aux radionucléides à faible concentration peuvent être progressivement améliorées et quels outils pourraient à l'avenir être proposés pour identifier l'état écologique d'un écosystème contaminé. Cette démarche est particulièrement utile pour proposer une méthode d'évaluation du risque écologique pertinente, utilisant en particulier des outils d'extrapolation scientifiquement

fondés (ex. extrapolation des effets de l'individu à la population par modélisation mathématique). Ces développements nécessitent la poursuite d'études expérimentales qui permettront de sélectionner des critères écologiquement pertinents et de substituer peu à peu des connaissances adéquates aux règles d'extrapolation.

D'un autre côté, l'utilisation de biomarqueurs d'effet permet d'approfondir les connaissances sur les cibles d'accumulation et d'effet privilégiées dans les organismes (en relation avec le volet « homme » du programme ENVIRHOM), tout en disposant d'outils basés sur l'observation de réponses précoces, pouvant être utilisés dans le cadre de la surveillance de la contamination des écosystèmes.

Références

- F. Alonzo, R. Gilbin, S. Bourrachot, M. Floriani, M. Morello, J. Garnier-Laplace (2006). Effects of chronic internal alpha irradiation on physiology, growth and reproductive success of Daphnia magna. Aquat Toxicol 80(3), 228-236.
- F. Alonzo, T. Hertel-Aas, M. Gilek, R. Gilbin, D.H. Oughton, J. Garnier-Laplace (2008). Modelling the propagation of effects of chronic exposure to ionising radiation from individuals to populations. J Environ Radioactiv, 99, 1464-1473.
- S. Barillet, C. Adam, O. Palluel, A. Devaux (2007). Bioaccumulation, oxidative stress and neurotoxicity in Danio rerio exposed to different isotopic compositions of uranium. Environ Toxicol Chem 26(3), 497-505.
- G. Bell, S. Collins (2008). Adaptation, extinction and global change. Evol Appl 1, 3-16.
- S. Bourrachot, O. Simon, R. Gilbin (2008a). The effects of waterborne uranium on the hatching success, development and survival of early life stages of zebrafish (Danio rerio). Aquat Toxicol, sous presse.
- S. Bourrachot, L. Aubergat, O. Simon, R. Gilbin (2008b). Effects of uranium on reproduction of zebrafish: relationships between biomarkers of exposure and toxicity. Congrès SETAC Europe, Varsovie, 25-29 mai.
- H.M. Cooley, R.E Evans, J.F. Klaverkamp (2000). Toxicology of dietary uranium in lake whitefish (Coregonus clupeaformis). Aquat Tox 48, 495-515.
- V. Dias, C. Vasseur, J.M. Bonzom (2008). Exposure of Chironomus riparius larvae to uranium: effects on survival, development time, growth, and mouthpart deformities. Chemosphere 71(3), 574-581.
- European Commission (2003). Technical Guidance Document. Dir. 93/67/EEC and Reg. EC 1488/94, Dir. 98/8/EC.
- D.S. Falconer. T.F.C. Mackay (1996). Introduction to Quantitative Genetics, Ed 4. Longmans Green, Harlow, Essex, UK.
- J. Garnier-Laplace, C. Della-Vedova, R. Gilbin, D. Copplestone, J. Hingston, P. Ciffroy (2006). First derivation of predicted-no-effect values for freshwater and terrestrial ecosystems exposed to radioactive substances. Environ Sci Technol 40, 6498-6505.
- J. Garnier-Laplace, D. Copplestone, R. Gilbin, F. Alonzo, P. Ciffroy, M. Gilek, A. Agüero, M. Björk, D.H. Oughton, A. Jaworska, C.M. Larsson, J.L. Hingston (2008). Issues and practices in the use of effects data from FREDERICA in the ERICA Integrated Approach. J Environ Radioactiv, 99, 1474-1483.
- M. Giraudo (2006). Développement et optimisation du test des comètes sur cellules primaires isolées de poisson zèbre (Danio rerio): application à l'étude des effets de l'uranium. Stage de Master II, Master Recherche bioinformatique, biochimie structurale et génomique, université de Provence Aix-Marseille I.
- S.A.L.M. Kooijman (2000). Dynamic energy and mass budgets in biological systems. University Press, Cambridge, 424 p.
- A. Lerebours, P. Gonzales, C. Adam, V. Camilleri, J.-P. Bourdineaud, C. Garnier-Laplace (2008). Comparative analysis of gene expression in brain, liver, skeletal muscles and gills of the zebrafish (Danio rerio) exposed to environmentally relevant waterborne uranium concentrations. Soumise à Environ Toxicol Chem.
- F.A. Zeman, R. Gilbin, F. Alonzo, C. Lecomte-Pradines, J. Garnier-Laplace, C. Aliaume (2008). Effects of waterborne uranium on survival, growth, reproduction and physiological processes of the freshwater cladoceran Daphnia magna. Aquat Toxicol 86(3), 370-378.

1.2

COMMENT PRENDRE EN COMPTE LES INTERACTIONS

entre les substances radioactives et les substances chimiques pour une meilleure évaluation des risques pour les écosystèmes dans un contexte de multipollution ?

Rodolphe GILBIN, Catherine PRADINES, Céline RÉTY, Florence ZEMAN

Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie

■ En cas d'exposition chronique d'un écosystème aquatique continental à de faibles concentrations de contaminants, les évaluations du risque telles qu'elles sont pratiquées aujourd'hui aboutissent souvent à l'identification non pas d'un seul, mais de plusieurs contaminants (substances chimiques ou radioactives) à risque. Ces contaminants sont susceptibles d'agir de manière synergique ou antagoniste, et leurs effets s'ajoutent à ceux des variables naturelles (température, luminosité, eutrophisation, etc.). L'évaluation du risque écologique nécessite de prendre en compte ces interactions, tant pour l'étude de l'exposition des organismes vivants que pour l'étude des effets susceptibles de se produire. Cependant, les méthodes opérationnelles actuelles d'évaluation recommandées par le Bureau européen des substances chimiques, décrites dans le Technical Guidance Document on Risk Assessment(1), ainsi que les outils récemment proposés pour l'évaluation du risque écologique des radionucléides⁽²⁾ ne permettent pas de modéliser de manière pertinente les contextes « multistress » puisque le cas de mélanges n'est pas abordé.

■ Ce projet, mené au Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie en relation avec les développements expérimentaux du volet « environnement » du projet ENVIRHOM, a été initié en 2005 par une première étude sur la daphnie, un microcrustacé aquatique (thèse de F. Zeman, soutenue en octobre 2008). Cette étude a permis de poser un cadre méthodologique pour mettre en évidence les interactions dans un mélange binaire d'uranium et de sélénium.

La démarche globale est illustrée par la *figure 1* :

- pour l'analyse des expositions, l'étude des interactions physico-chimiques possibles entre contaminants et de leurs conséquences en termes d'exposition des composantes biologiques des écosystèmes (exposition des habitats, biodisponibilité);
- pour l'analyse des effets, l'établissement de relations dose-effet pour déterminer des concentrations prédites sans effet pour chacune des substances prises individuellement lors d'expositions chroniques à faible dose (absence de relation linéaire, absence de seuil de toxicité, relation de type hormétique, etc.) et la conception puis l'application de méthodes d'analyse et de modélisation des effets des mélanges (toxicocinétique/toxicodynamique);
- pour la caractérisation du risque, l'intégration des interactions au niveau des expositions et des effets.

Les résultats obtenus ont montré qu'un plan d'expériences complet (c'est-à-dire le test

⁽¹⁾ Technical Guidance Document on Risk

Assessment – http://ecb.jrc.it/TechnicalGuidance-Document/

⁽²⁾ Outil d'évaluation intégré du programme ERICA – http://www.erica-project.org/

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

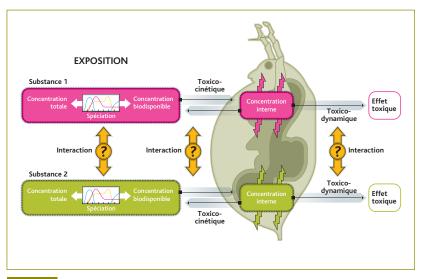


Figure 1 Représentation schématique des différents niveaux d'interaction possibles entre deux substances (thèse F. Zeman, 2008).

de la toxicité du mélange binaire en proportions variables) est indispensable pour mettre en évidence une réelle interaction entre les différentes substances. En l'occurrence, un effet antagoniste du sélénium pour la toxicité de l'uranium a pu être identifié. Les développements se poursuivent dans le cadre d'un projet en collaboration entre l'IRSN et EDF (projet GGP-Environnement), dédié à l'amélioration de l'évaluation prospective ou rétrospective du risque, pour les écosystèmes aquatiques continentaux (grands cours d'eau), associé aux rejets chroniques, ponctuels ou diffus, issus du fonctionnement normal ou incidentel des centrales électronucléaires (type REP), en prenant en compte les spécificités de leurs bassins versants. Le domaine d'application concerne un ensemble de substances chimiques (métaux, micropolluants organiques) et de substances radioactives (émetteurs bêta et gamma), étudiées notamment en fonction du stress naturel (eutrophisation, température). Les travaux expérimentaux (thèse de C. Réty, 2007-2009) ont été orientés sur un nombre limité de substances, à la fois représentatives des rejets de routine des REP et caractéristiques d'un type d'exposition (ex.: cuivre, hydrazine, tritium), et sur un organisme phytoplanctonique

(inhibition de la croissance d'une algue verte unicellulaire, photosynthèse et stress oxydatif). De plus, l'effet de l'irradiation gamma a été étudié sur cet organisme.

- En complément, des travaux sont menés dans le cadre du projet ECOSENSOR, piloté par l'Institut national des sciences de l'univers du CNRS et en collaboration avec le Laboratoire hydrosciences de l'université de Montpellier et le Centre de recherche en biochimie macromoléculaire (UMR 5237 du CNRS à Montpellier) ; l'objectif du projet est d'étudier les effets de mélanges de contaminants de modes d'action contrastés (cadmium, nonylphénol, irradiation gamma) à l'aide de différentes souches (sauvage, mutants) du nématode *C elegans*.
- L'objectif final est de proposer, sur la base des résultats obtenus, un indicateur de risque écologique comparé à des informations provenant de surveillance environnementale, afin de valider les modèles d'interactions proposés et de délimiter leurs domaines d'application.

ÉTUDE DU DÉPÔT SEC DES AÉROSOLS EN MILIEU URBAIN : le projet SaliFa PRIMEQUAL

Denis MARO, Olivier CONNAN, Didier HÉBERT, Marianne ROZET

Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville

L'espace urbain regroupe plus de 70 % de la population dans la plupart des pays développés ; l'étude des conséquences radiologiques possibles d'une contamination de ce milieu constitue aujourd'hui un sujet d'intérêt pour la gestion d'une situation postaccidentelle. Pour le cas hypothétique d'un accident ou d'un acte de terrorisme impliquant des radionucléides sous forme de gaz ou d'aérosols en milieu urbain, il est important d'avoir une bonne connaissance des transferts de radionucléides dans l'ensemble de l'écosystème urbain, afin d'en prévoir l'impact sur les populations. L'Institut travaille donc depuis quelques années sur le dépôt sec des aérosols sur les surfaces bâties. À ce jour, l'étude du dépôt sec des aérosols reste un domaine de recherche qui a été peu exploré au niveau international. Il implique une approche expérimentale in situ pour prendre en compte les particularités locales (turbulence, substrat, etc.) [Maro et al., 2004].

L'IRSN a participé, entre 2005 et 2007, au projet SaliFa-PRIMEQUAL⁽¹⁾ [Sacré *et al.*, 2006], dont l'objectif général était de mieux comprendre les mécanismes physiques à l'origine de l'encrassement des façades de bâtiments. Diverses équipes ont collaboré à ce projet. Le Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB), le Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie (Coria) et l'École centrale de Nantes (ECN) sont intervenus pour les aspects « bâtiment » (supports étudiés), « micrométéorologie » et « simulation numérique ».

L'étude effectuée sur le dépôt sec s'articule autour de deux types d'expériences de courte et de longue durées qui ont été mises en œuvre dans la ville de Nantes par l'IRSN.

(1) Programme de recherche interorganisme pour une meilleure qualité de l'air à l'échelle locale, piloté par le ministère de l'Écologie, du Développement et de l'Aménagement durables et l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie. Les expérimentations de courte durée ont servi à étudier les différents processus de dépôt sec, en fonction de divers paramètres comme la température du substrat ou la turbulence atmosphérique. Pour ces expérimentations, des aérosols calibrés de fluorescéine ont été générés artificiellement pour pouvoir quantifier le dépôt sec.

Les expérimentations de longue durée servent à étudier les phénomènes de dépôt dans leur globalité à l'aide de béryllium 7 (⁷Be), radionucléide naturellement présent sous forme d'aérosols dans l'air, comme traceur du dépôt sec.

Des éprouvettes correspondant à deux types de verre (verre non traité et verre avec un dépôt d'oxyde de titane nécessitant une maintenance réduite et donc des nettoyages moins fréquents) et trois types d'enduit de façade de rugosités respectives 2 mm, 3 mm et 5 mm, sélectionnés par le CSTB, ont été testées.

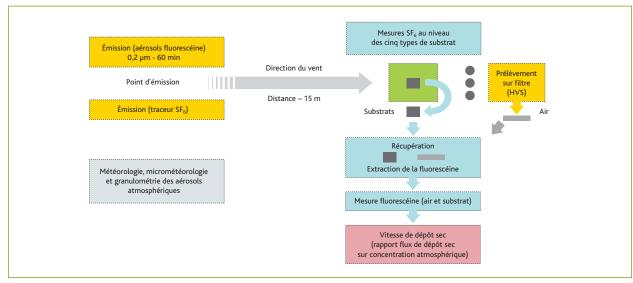


Figure 1 Schéma du dispositif expérimental.

Durant le projet, les équipes sont intervenues à différents stades : le CSTB a procédé au choix et à la réalisation des éprouvettes de verre et d'enduit testées durant l'étude et a assuré la gestion du site pour la campagne de longue durée (amphithéâtre de médecine de Nantes) ; l'ECN a effectué des mesures météorologiques et les simulations numériques ; le Coria a effectué des mesures de flux turbulent au voisinage des parois ; l'IRSN a réalisé des mesures de vitesse de dépôt sec des aérosols pendant les campagnes de courte et de longue durées.

Matériels et méthodes

Campagnes de courte durée : méthode de mesure des vitesses de dépôt sec des aérosols par un traceur du dépôt sec

Principe

La technique mise au point au LRC permet de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols, à partir de fluorescéine (uranine) émise sous forme d'aérosols secs vers un dispositif expérimental comprenant les différents substrats étudiés et des systèmes de prélèvement d'aérosols atmosphériques (*figure 1*). Après l'émission, les échantillons sont collectés pour mesurage par spectrofluorimétrie.

La vitesse de dépôt, dont la dimension est celle d'une vitesse (m.s-1), est calculée en faisant le rapport entre le flux de dépôt sec sur le substrat (kg.m-2.s-1) et la concentration atmosphérique au niveau du substrat (kg.m-3).

Simultanément à la fluorescéine, un gaz traceur (hexafluorure de soufre, SF₆) est émis afin de déterminer le coefficient de transfert

atmosphérique (ou CTA, concentration intégrée dans le temps en un point donné, normalisée par la quantité totale rejetée), donc la concentration atmosphérique des aérosols au niveau de chaque substrat. Le CTA est alors calculé en faisant le rapport de la concentration de SF₆ intégrée sur la totalité du temps de passage du panache au point d'observation, sur la quantité totale SF₆ émise. Le SF₆ permet des mesures plus ponctuelles que la fluorescéine, de façon à pallier le manque de mesures systématiques de la fluorescéine dans l'air (deux mesures seulement par expérience) et à vérifier l'homogénéité des concentrations au niveau des substrats (figure 2).

Des mesures micrométéorologiques sont également effectuées sur le site d'expérimentation, près du dispositif de génération des aérosols et près des substrats.

Cette méthode (*figure 1*) a été appliquée lors de deux campagnes expérimentales de terrain. Les campagnes SaliFa 1 et 2 ont été réalisées du 28 au 30 juin 2005 au centre ville de Nantes (amphithéâtre de médecine) et du 6 au 8 juin 2006 à l'École centrale de Nantes (*figures 3* et 4).

Émission des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF₆

Les aérosols sont émis dans l'air en utilisant un générateur pneumatique de fluorescéine. Les différents modules de pulvérisation d'air, de dilution et de séchage sont réglés afin d'obtenir un diamètre médian en masse des particules générées proche de 0,2 µm (aérosol sec). Le diamètre de 0,2 µm a été choisi car il correspond au diamètre médian en masse du mode accumulation des particules en milieu urbain [Boulaud et Renoux, 1998].

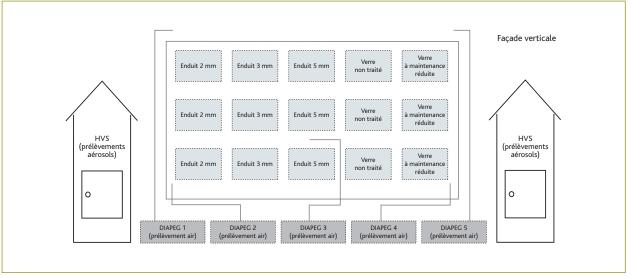


Figure 2 Schéma de principe de positionnement des substrats et des systèmes de prélèvement d'aérosols (HVS) et d'air (DIAPEG).

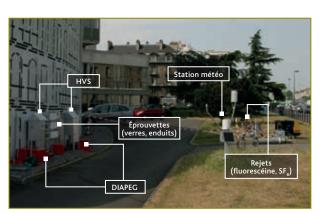
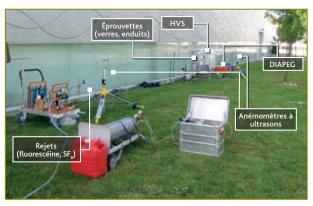


Figure 3 Campagne de courte durée : positionnement des substrats et des systèmes de prélèvement près de l'amphithéâtre de médecine de Nantes.



Campagne de courte durée : positionnement des substrats et des systèmes de prélèvement dans l'École centrale de Nantes.

L'appareil a été étalonné [AFNOR NFX 44-011, 1972] : et le diamètre médian en masse des particules obtenu est de 0,24 µm (écarttype géométrique 1,7). Les aérosols de fluorescéine sont générés sur une période de 60 minutes et la distance entre le point d'émission de la fluorescéine et les différents substrats placés sous le vent du rejet est de 15 m.

Simultanément à l'émission d'aérosols de fluorescéine, du SF est émis comme gaz traceur (30 mg.h-1). Ce gaz n'est pas naturellement présent dans l'atmosphère. Le système utilisé est composé d'une bouteille de SF₆ (société Messer, France) connectée à un débitmètre massique (Sierra 820). L'émission est effectuée dans la canne d'émission des aérosols de fluorescéine. Le débit d'émission du SF₆ est fixé à 0,4 g.s⁻¹.

Prélèvement des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF₆

Des aérosols de fluorescéine sont prélevés sous le vent de l'émission afin d'effectuer des mesures dans l'air et sur les supports de verre et d'enduit de façade. Les aérosols présents dans l'air sont collectés à l'aide de deux HVS (High Volume Sampler) d'un débit de 30 m³.h⁻¹ sur des filtres de type Whatman 40 (Ashless 40-1440917).

Pendant l'émission de la fluorescéine, trois éprouvettes de chaque type, fixées sur un support, sont présentes dans le panache de fluorescéine à proximité des HVS utilisés pour les prélèvements des aérosols présents dans l'air. À la fin de chaque émission, les différents échantillons (filtres pour l'air et éprouvettes) sont protégés de toute contamination par du papier d'aluminium et stockés jusqu'à l'analyse.

Les prélèvements d'air pour l'analyse du gaz SF, sont effectués pendant la durée totale de l'émission de la fluorescéine dans des sacs à gaz de 1 l (Tedlar^R) à l'aide d'un système spécifique développé à l'IRSN (DIAPEG). Les prélèvements sont effectués aux quatre coins et au centre du bâti supportant les éprouvettes (*figure 2*).

Mesure de la concentration des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF_c

Pour la mesure de la concentration des aérosols de fluorescéine dans l'air, les filtres sont coupés et immergés dans une solution aqueuse d'ammoniac à un pH de 9 avec agitation mécanique durant vingt minutes. Pour la mesure de la concentration des aérosols déposés sur les substrats, les éprouvettes de verre et d'enduit de façade sont lavées avec une solution d'ammoniaque à pH 9. Les solutions de lavage sont ensuite filtrées à 0,2 μ m avant mesure par spectrofluorimétrie.

Les mesures de concentration de la fluorescéine sont effectuées à l'aide d'un spectrofluorimètre UV (Horiba Fluoromax-3). La longueur d'onde d'excitation est fixée à 490 nm et la mesure de l'émission est effectuée à 512 nm.

Par ailleurs, les analyses des teneurs en SF₆ dans les échantillons d'air prélevés sont effectuées par chromatographie en phase gazeuse (AUTOTRAC, *Lagus Applied technology inc*).

Acquisition de données micrométéorologiques

Les données micrométéorologiques (vitesses de frottement de l'air sur le mur et sur le sol notamment) sont obtenues à l'aide d'anémomètres à ultrasons (Young 81000, 20 Hz), placés à différents endroits du site d'expérimentation. Afin de compléter le dispositif, une station météorologique (PULSONIC), permettant de mesurer la vitesse et la direction du vent, l'hygrométrie, la température et la pression atmosphérique, est également placée entre le générateur de fluorescéine et le bâti sur lequel reposent les éprouvettes. De plus, des mesures de la température de la paroi des substrats ont été faites lors de la campagne SaliFa 2, à l'aide d'un thermomètre infrarouge FX 410 (Jules Richard Instruments).

Campagne de longue durée : utilisation du ⁷Be présent naturellement dans l'atmosphère comme traceur du dépôt sec

En complément des expérimentations de courte durée, une campagne expérimentale de longue durée a été menée afin de déterminer l'impact du dépôt des aérosols en termes de « salissures » et de quantifier le dépôt sec. Les mêmes types de substrat urbain que ceux utilisés lors des campagnes de courte durée ont été installés sur un mur au centre ville de Nantes entre avril 2005 et août 2006 (figure 5). Ces substrats ont été placés sur la façade nord-est de l'amphithéâtre de la faculté de Médecine, donc protégés des



Figure 5 Campagne de longue durée : positionnement des substrats sur la façade nord-est de l'amphithéâtre de médecine (centre ville de Nantes).

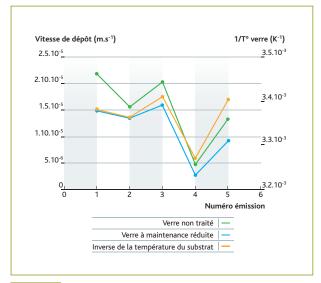
pluies battantes. Périodiquement, des échantillons ont été prélevés après différentes durées d'exposition à la pollution urbaine et à différentes périodes de l'année.

La méthode mise au point consiste à mesurer le ⁷Be déposé sur les éprouvettes de verre et d'enduit de façade. Le ⁷Be est un radionucléide de période 53,2 jours, naturellement présent dans l'atmosphère, qui se fixe sur les aérosols atmosphériques dont la granulométrie est de l'ordre de 0,4 µm. Les activités en ⁷Be dans l'air dépendent des échanges de masses d'air entre la troposphère et la stratosphère, et des dépôts secs et humides des aérosols. Ce radionucléide peut être alors utilisé comme traceur du dépôt. Après avoir été retirés du mur, les échantillons sont traités le plus rapidement possible car la période radioactive du ⁷Be est assez courte. Les échantillons retirés subissent un rinçage à l'eau acidifiée. La radioactivité de l'eau de lavage est ensuite mesurée par spectrométrie gamma dans un laboratoire à bas bruit de fond (Laboratoire souterrain de la Marine nationale, EAMEA/GEA). L'activité du ⁷Be déposé sur chaque éprouvette est mesurée et rapportée à l'activité moyenne atmosphérique du ⁷Be au moment de l'exposition, afin de déterminer la vitesse de dépôt. Le ⁷Be n'a pas été mesuré dans l'air à Nantes. En revanche, des valeurs mesurées par le Laboratoire de métrologie de l'IRSN d'Orsay, sur des sites distincts tels qu'Alençon et Bordeaux, ont été utilisées.

Résultats et discussion

Campagnes de courte durée

Les mesures ont été réalisées dans des conditions de vent faible, de 1 à 2,2 m.s⁻¹. Les vitesses de frottement au sol, U*, ont varié de 0,1 à 0,6 m.s⁻¹. Les vitesses de dépôt obtenues lors des deux campagnes expérimentales de juin 2005 (SaliFa 1) et juin 2006 (SaliFa 2) sont synthétisées sur le *tableau 1*. Les vitesses de dépôt sec ont varié de 1,1.10⁻⁵ à 3,0.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres et de 4,2.10⁻⁵ à 1,2.10⁻⁴ m.s⁻¹ pour les enduits de façade.



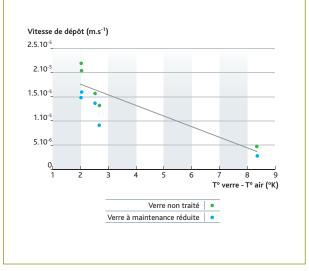


Figure 6 Variations de la vitesse de dépôt et de l'inverse de la température du verre (1/T en °K-1) pour les différentes émissions lors de la campagne SaliFa 2.

Figure 7 Variations de la vitesse de dépôt en fonction de l'écart de température entre le verre et l'air (°K).

Campagne	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
SaliFa 1	3,0.10-5	2,8.10-5	1,2.10 ⁻⁴	9,6.10 ⁻⁵	1,2.10⁴
SaliFa 2	1,5.10 ⁻⁵	1,1.10 ⁻⁵	5,1.10 ⁻⁵	4,2.10 ⁻⁵	4,5.10 ⁻⁵
Moyenne	2,2.10 ⁻⁵	1,9.10 ⁻⁵	8,5.10 ⁻⁵	6,9.10 ⁻⁵	8,2.10-5

Tableau 1 Vitesses moyennes de dépôt sec des aérosols (m.s⁻¹) mesurées sur différents substrats lors des campagnes SaliFa 1 et 2 (juin 2005 et juin 2006), campagnes de courte durée (incertitude maximale 58 %).

Pour les campagnes de mesures SaliFa 1 et 2, les vitesses moyennes de dépôt sec sont respectivement de 3,0.10⁻⁵ m.s⁻¹ et 1,5.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres non traités et de 2,8.10⁻⁵ et 1,1.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres à maintenance réduite. Compte tenu des incertitudes (< 58 %), il n'est donc pas observé de différence significative entre les deux types de verre. Pour les deux types de verre, les valeurs des vitesses de dépôt sont toutefois systématiquement plus élevées lors de la campagne SaliFa 1. Les températures de l'air plus élevées et l'ensoleillement plus fort lors de la campagne SaliFa 2 pourraient avoir joué un rôle, via le phénomène de thermophorèse, et diminué les vitesses de dépôt obtenues lors de la campagne SaliFa 2.

En effet, lors de cette dernière, les températures de surface des différentes éprouvettes et de l'air ont été mesurées afin de rendre compte de cette influence. Ainsi, pour le verre, les vitesses de dépôt sont en relation avec l'inverse de la température de surface des éprouvettes (*figure 6*) et les vitesses de dépôt diminuent lorsque l'écart de température entre la paroi et l'air augmente (*figure 7*).

Les vitesses moyennes de dépôt sec obtenues pour les différents enduits de façade sont présentées dans le *tableau 1*. Les vitesses de dépôt sec sont comprises entre 4,2.10⁻⁵ et 1,2.10⁻⁴ m.s⁻¹, sans différence significative entre enduits de différentes rugosités. Les écarts de température entre l'air et les enduits étant beaucoup plus faibles que pour les verres (3 °K par rapport à 8 °K), il n'a pas été observé de corrélation avec la vitesse de dépôt. Comme pour les verres, les vitesses de dépôt sont légèrement plus élevées (facteur 2 environ) lors de la campagne SaliFa 1.

Il faut également noter que la différence des vitesses de dépôt pour les verres et pour les enduits est similaire pour chaque campagne. Les vitesses de dépôt pour les enduits par rapport au verre sont supérieures d'un facteur 3,8 lors de la campagne SaliFa 1 et d'un facteur 3,5 lors de la campagne SaliFa 2. Sur les deux campagnes, la cohérence des résultats est donc à souligner, avec des écarts de vitesse de dépôt enduits/verres similaires.

Il est difficile à ce stade d'expliquer ces différences, mais il est probable que les températures de l'air et des surfaces des supports jouent un rôle. Malheureusement, la température des parois n'a pas

Période d'exposition	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
Avril 05 – décembre 05	3,9.10⁻⁵	3,4.10-5	2,3.10⁴	1,5.10⁴	1,1.10⁴
Avril 05 – avril 06	_ *	_*	2,8.10-4	2,6.10 ⁻⁴	3,4.10-4
Décembre 05 – août 06	3,2.10 ⁻⁵	1,4.10 ⁻⁵	2,1.10-4	1,7.10-4	1,7.10⁴
Moyenne	3,5.10-5	2,4.10-5	2,4.10-4	1,9.10-4	2,1.10-4

Tableau 2 Vitesses moyennes de dépôt sec des aérosols (m.s⁻¹) mesurées sur différents substrats lors de la campagne d'exposition de longue durée (* : mesure non significative, incertitude maximale 54 %).

Campagne	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
Courte durée	2,2.10-5	1,9.10-5	8,5.10 ⁻⁵	6,9.10 ⁻⁵	8,2.10 ⁻⁵
Longue durée	3,5.10 ⁻⁵	2,4.10-5	2,4.10-5	1,9.10-4	2,1.10-4
Rapport longue durée/ courte durée	1,6	1,3	2,8	2,7	2,6

Tableau 3 Comparaison entre les vitesses de dépôt sec des aérosols (m.s⁻¹) obtenues sur les campagnes expérimentales de courte et de longue durées.

été mesurée lors de la campagne SaliFa 1. Les résultats obtenus lors de la campagne SaliFa 2 indiquent que ce paramètre est important. Pour ce qui concerne les paramètres micrométéorologiques comme les vitesses de frottement au sol et au mur et la longueur de rugosité, les différences entre les deux campagnes semblent minimes et, d'un point de vue micrométéorologique, on peut estimer que, lors des deux campagnes, les conditions étaient similaires. Il n'a pas été possible de relier les variations des vitesses de dépôt à ces paramètres micrométéorologiques.

Campagne de longue durée

Trois séries de mesures ont été réalisées. Elles correspondent à des éprouvettes retirées du mur d'exposition en décembre 2005 (durée d'exposition huit mois), en avril 2006 (durée d'exposition douze mois) et en août 2006 (durée d'exposition huit mois). La durée d'exposition est donc variable mais, compte tenu de la période de 53,2 jours du ⁷Be, il faut considérer que l'exposition moyenne des éprouvettes est de deux mois.

Les résultats obtenus sont présentés dans le *tableau 2*. Les vitesses moyennes de dépôt sec varient de 3,2.10⁻⁵ m.s⁻¹ à 3,9.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres non traités et de 1,4.10⁻⁵ à 3,4.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres à maintenance réduite. Pour les enduits de façade, les vitesses de dépôt sec varient entre 1,1.10⁻⁴ et 3,4.10⁻⁴ m.s⁻¹. Pour l'ensemble des mesures, l'incertitude sur la vitesse de dépôt ainsi déterminée est inférieure à 54 %.

Les vitesses de dépôt sont systématiquement plus faibles pour les verres que pour les enduits, ce qui est cohérent avec les résultats obtenus sur les campagnes expérimentales de courte durée. Comme pour les expérimentations de courte durée, il n'est pas observé de variations significatives entre les différents verres, ni entre les différents enduits.

De plus, les vitesses de dépôt sec mesurées lors des campagnes de courte durée et de longue durée sont du même ordre de grandeur (tableau 3). L'écart entre les campagnes de longue durée et de courte durée est inférieur à un facteur 3.

Comparaison avec les résultats de la « littérature »

Pour ce qui concerne l'évaluation des vitesses de dépôt sur des substrats urbains, peu de données expérimentales sont disponibles dans la « littérature » internationale. Les travaux de Roed (1983, 1985, 1986, 1987) permettent cependant de comparer certaines données. Roed a notamment déterminé les vitesses de dépôt sec des aérosols sur différents substrats urbains en utilisant le césium 137 (137Cs), rejeté dans l'atmosphère lors des essais nucléaires atmosphériques avant l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl, puis divers radionucléides émis dans l'atmosphère à la suite de l'accident de cette centrale. Il a aussi utilisé le béryllium 7 (7Be) produit naturellement dans l'atmosphère comme traceur des dépôts secs.

Référence	Type aérosols	Diamètre des aérosols (µm) Vd vitres (m.s ⁻¹		Vd murs (m.s ⁻¹)	
Campagne de courte durée : SaliFa 1	fluorescéine	0,2	2,9.10-5	1,1.10⁴	
Campagne de courte durée : SaliFa 2	fluorescéine	0,2	1,3.10⁻⁵	4,6.10 ⁻⁵	
Campagne de longue durée	⁷ Be	0,4	3,0.10-5	2,1.10⁴	
Roed 1986,1987	131	0,4	2,3.10-4	3,0.10-4	
Roed 1986,1987	¹³⁷ Cs	0,4	5,0.10 ⁻⁶	1,0.10 ⁻⁵	
Roed 1986,1987	¹⁰³ Ru	0,4	1,0.10 ⁻⁵	4,0.10-5	
Roed 1986,1987	¹⁴⁰ Ba	1 à 4	2,0.10-5	4,0.10-5	
Roed 1986,1987	¹⁴⁴ Ce	1 à 4	-	9,0.10-5	
Roed 1986,1987	⁹⁵ Zr	1 à 4	1,0.10 ⁻⁵	1,3.10-4	

Tableau 4 Comparaison entre les vitesses de dépôt sec obtenues par Roed (1986, 1987) et celles obtenues lors des campagnes SaliFa de courte et de longue durées.

Dans les études réalisées avant l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl, [Roed, 1983, 1985] indique que la distribution granulométrique du ¹³⁷Cs provenant des essais atmosphériques n'est pas connue avec précision mais elle se rapproche très certainement de la distribution granulométrique du ⁷Be, qui a un diamètre aérodynamique médian en activité de 0,4 µm. Les valeurs des vitesses de dépôt obtenues sont très faibles. Pour les surfaces verticales, les vitesses de dépôt déterminées à partir des mesures de ¹³⁷Cs sont inférieures à 1.10-4 m.s-1. Pour le ⁷Be, les valeurs obtenues sont de l'ordre de 1,6.10-4 m.s-1, donc très proches des valeurs obtenues pour le ¹³⁷Cs.

Pour les études réalisées après l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl (tableau 4), [Roed, 1986, 1987] a déterminé des vitesses de dépôt sec pour l'iode 131 (131 I), le césium 137 (137 Cs), le ruthénium 103 (103 Ru), le baryum 140 (140 Ba), le cérium 144 (144 Ce) et le zirconium 95 (95 Zr). Roed précise que les diamètres aérodynamiques médians en activité seraient de 0,4 µm pour l' 131 I, le 137 Cs et le 103 Ru et de 1 µm à 4 µm pour le 140 Ba, le 144 Ce et le 95 Zr. Pour les aérosols ayant un diamètre aérodynamique médian en activité de 0,4 µm, les vitesses de dépôt moyennes sur les surfaces vitrées et les murs seraient respectivement de 8,2.10-5 m.s-1 et de 1,2.10-4 m.s-1 avec de fortes variations selon le radionucléide (plus d'un ordre de grandeur). Pour les aérosols ayant un diamètre aérodynamique médian en activité compris entre 1 µm et 4 µm, les vitesses

de dépôt moyennes sur les surfaces vitrées et les murs seraient respectivement de 1,5.10⁻⁵ m.s⁻¹. et de 8,7.10⁻⁵ m.s⁻¹ (*tableau 4*). Il observe aussi de fortes variations de la vitesse de dépôt en fonction du radionucléide, qui sont difficilement explicables car les radionucléides sont véhiculés par les aérosols naturels, surtout à longue distance.

Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne SaliFa 1 (verres : 2,9.10⁻⁵ m.s⁻¹; enduits : 1,1.10⁻⁴ m.s⁻¹) sont proches des valeurs résultant des travaux de Roed (vitres : 8,2.10⁻⁵ m.s⁻¹; murs : 1,2.10⁻⁴ m.s⁻¹), notamment pour les vitesses de dépôt sur les murs. Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne SaliFa 2 sont plus faibles que lors de la campagne SaliFa 1 (verres : 1,3.10⁻⁵ m.s⁻¹; enduits : 4,6.10⁻⁵ m.s⁻¹) mais sont encore en bon accord avec les résultats de Roed.

Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne de longue durée (verres : 3,0.10⁻⁵ m.s⁻¹ ; enduits : 2,1.10⁻⁴ m.s⁻¹) sont aussi proches des valeurs résultant des travaux de Roed.

Compte tenu des incertitudes des mesures lors des différentes études, on peut estimer que tous ces résultats sont cohérents entre eux.

■ Conclusion

Dans le cadre du projet SaliFa-PRIMEQUAL, des vitesses de dépôt sec d'aérosols en milieu urbain ont été mesurées sur des éprouvettes de verre et d'enduit de façade lors de plusieurs campagnes expérimentales de terrain.

Ces vitesses ont été obtenues par deux méthodes complémentaires. La première méthode a utilisé comme traceur du dépôt des aérosols de fluorescéine produits artificiellement lors de deux campagnes de courte durée (SaliFa 1 et 2). La seconde méthode a utilisé le ⁷Be, un radionucléide naturellement présent sous forme d'aérosols dans l'atmosphère, comme traceur du dépôt pendant une campagne de longue durée.

Lors des campagnes de courte durée, les vitesses de dépôt sur les verres ont varié de 1,1.10-5 à 3,0.10-5 m.s-1 pour les verres et de 4,2.10-5 à 1,2.10-4 m.s-1 pour les enduits de façade. Sur les éprouvettes exposées de huit à douze mois à une atmosphère urbaine (campagne de longue durée), les vitesses de dépôt

mesurées par la méthode du ⁷Be varient de 1,4.10⁻⁵ à 3,9.10⁻⁵ m.s⁻¹ pour les verres et de 1,1.10⁻⁴ à 3,4.10⁻⁴ m.s⁻¹ pour les enduits. Les résultats obtenus à partir des aérosols de fluorescéine pour des expositions de courte durée (1 heure) et à partir d'aérosols de ⁷Be sur des échantillons exposés plusieurs mois sont très proches.

Les travaux futurs viseront à quantifier le dépôt sec en fonction des conditions micrométéorologiques (paramètres turbulents), d'une part, et à étudier précisément l'impact de la thermophorèse sur les dépôts, d'autre part.

Remerciements

Cette étude a été financée par le ministère de l'Écologie et du Développement durable (Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie) et réalisée en collaboration avec le Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB de Nantes, Marne-la-Vallée et Grenoble), le Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie (Coria, Rouen) et l'École centrale de Nantes (ECN).

Références

- AFNOR NFX 44-011 (1972). Séparateurs aérauliques Méthode de mesure de l'efficacité des filtres au moyen d'un aérosol d'uranine (fluorescéine), 12 p.
- D. Boulaud et A. Renoux (1998). Les aérosols, Physique et Métrologie, Lavoisier TEC DOC, 291 p.
- D. Maro, D. Boulaud, A. Copalle, P. Germain, D. Hébert, L. Tenailleau (2004). Validation of dry deposition models for submicronic and micronic aerosols. Proceedings of 9th Int. Conf. on harmonization within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, Garmisch-Partenkirchen, p. 89-94, 1-4 June 2004.
- J. Roed (1983). Deposition velocity of caesium-137 on vertical building surfaces, Atmospheric Environment., 17, 3.
- J. Roed (1985). Run-off from roofs, Risö-M-2471.
- J. Roed (1986). Dry deposition in urban areas and reduction in inhalation dose by staying indoors during the Chernobyl accident, paper presented at a meeting 12 june 1986 of the group of experts on accident consequences (GRECA), NEA/OECD, Paris.
- J. Roed (1987). Dry deposition on smooth and rough urban surfaces, The post-Chernobyl workshop, Brussels, 3-5 February 1987, NKA/AKTU-245 (87)1.
- C. Sacré, J.-P. Flori, D. Giraud, F. Olive, B. Ruot, J.-F. Sini, J.-M. Rosant, P. Mestayer, A. Coppalle, M. Talbaut, D. Maro, O. Connan, D. Hébert, P. Germain, M. Rozet (2006). Salissures de façade, Programme PRIMEQUAL, Rapport CSTB EN-CAPE 06.009, 54 p.

LES APPORTS DE LA SURVEILLANCE DES RADIONUCLÉIDES ARTIFICIELS

dans l'air pour l'étude des processus de transfert et la caractérisation des situations postaccidentelles

Olivier MASSON, Damien PIGA, Philippe RENAUD, Lionel SAEY, Pascal PAULAT

Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin

Anne DE VISME-OTT

Laboratoire de mesure de la radioactivité de l'environnement

L'année 2008 marque le cinquantenaire de la mise en place en France d'un suivi régulier des radionucléides naturels et artificiels présents dans l'air. Cette surveillance de la radioactivité de l'air repose sur des prélèvements réguliers de poussières atmosphériques en suspension (aérosols) et des mesures, dans le but de déterminer quels radionucléides sont présents et quelles sont leurs activités courantes dans l'air, à la hauteur du nez d'un adulte. Ce suivi radioécologique se superpose à une mission de radioprotection correspondant :

- à la capacité de détection précoce de l'arrivée d'un panache radioactif (dispositif d'alerte);
- au maintien d'une capacité de mesure d'un référentiel à bas niveau, nécessaire à l'estimation des conséquences d'une contamination récente, quelle qu'en soit l'ampleur.

Les apports de la surveillance actuelle se nourrissent en particulier de l'observation des radionucléides naturels et artificiels présents dans l'air pour mieux évaluer les conséquences d'un rejet accidentel sur le long terme. Cette évaluation s'appuie notamment sur les études de compréhension des mécanismes de transfert au sein du compartiment atmosphérique, à destination ou en provenance du compartiment terrestre. Les recherches s'orientent vers l'identification des mécanismes qui pourraient retarder le retour à la situation précédant un rejet accidentel.

Contexte de la surveillance de la radioactivité de l'atmosphère

Au fil du temps, les radionucléides artificiels ont été considérés tour à tour comme des indices de l'activité internationale liée aux essais atmosphériques d'armes nucléaires puis comme des indicateurs de contamination [Bouisset et al., 2004]. Parmi les radionucléides produits lors des essais nucléaires⁽¹⁾, la plupart ont disparu par décroissance radioactive du fait de leur période. Le césium 137 (137Cs) reste l'un des indicateurs, si ce n'est le seul, utilisé par les réseaux de surveillance radiologique de l'atmosphère à l'échelle de

l'Europe et au-delà, en raison notamment de sa période radioactive (30,2 ans) et de la relative facilité de sa mesure (par spectrométrie gamma directe). La *figure 1* montre que, durant la période des essais nucléaires atmosphériques (1945-1980), chaque essai conduisait à une augmentation rapide de l'activité du ¹³⁷Cs, suivie d'une diminution de l'ordre d'un facteur 2 dans les six mois suivants l'essai, montrant ainsi l'importance des mécanismes de dépôt.

⁽¹⁾ Iode 131, baryum 140, ruthénium 103, ruthénium 106, cérium 141, cérium 144, strontium 89, strontium 90, yttrium 91, zirconium 95, manganèse 54, fer 55 et isotopes du plutonium notamment.

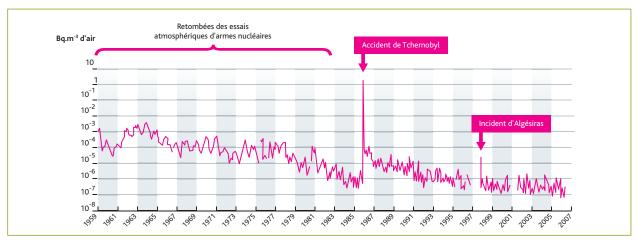


Figure 1 Évolution de l'activité du césium 137 dans l'air en France de 1959 à 2007 - Prélèvements d'aérosols réalisés par les stations OPERA (Observatoire permanent de la radioactivité de l'environnement).

Entre deux essais, la diminution de l'activité permettait d'estimer un appauvrissement de 99 % du stock de radionucléides dans l'atmosphère en seulement cinq à six ans. Bien qu'encore perceptible d'une année sur l'autre jusqu'à la fin des années 1990, cette épuration s'est avérée de plus en plus lente car freinée par un apport résiduel via la remise en suspension de radionucléides antérieurement déposés sur les sols.

La *figure 2* présente les radionucléides régulièrement mesurés en France à partir des collectes réalisées par les stations du réseau OPERA⁽²⁾ de l'IRSN au cours des six dernières années.

Le ¹³⁷Cs est le seul radionucléide artificiel encore fréquemment mesuré dans l'air en France⁽³⁾. Les possibilités offertes par son mesurage à l'état de traces (jusqu'à 10⁻⁸ Bq.m⁻³ d'air) en font un outil de caractérisation privilégié des événements passés, ainsi que des situations qui surviendraient dans l'hypothèse d'un rejet accidentel.

Son activité volumique moyenne annuelle est actuellement de 0,25 Bq par million de mètres cubes d'air (0,25 10-6 Bq.m-3), la plus basse jamais observé depuis le début du suivi. Cette activité moyenne est déduite des mesures réalisées tous les dix jours en neuf points du territoire national ; ces points étant équipés d'une station OPERA de collecte d'aérosols.

Sa mise en évidence n'est possible que grâce à la mise en œuvre de moyens de concentration des composés présents à l'état de traces et à l'amélioration de la sensibilité des équipements de mesure. Ainsi, de 1960 à 1980, les quantités d'air filtrées pour une mesure ont été multipliées par 50, atteignant aujourd'hui jusqu'à

70 000 m³ sur cinq jours. De 1970 à 1986, les durées de mesures ont été multipliées par cinq. De 1980 à 1986, l'efficacité des détecteurs a été augmentée d'un facteur 4, puis a encore été multipliée par deux entre 1986 et 2002. Enfin, les bruits de fond des détecteurs ont été diminués d'un facteur 10 entre 1993 et 2004. Toutes ces améliorations se sont avérées indispensables pour pouvoir répondre aux objectifs de la surveillance « bas niveau », puisque dans le même laps de temps (de 1958 à 2008), la radioactivité artificielle portée par les aérosols décroissait d'un facteur 10 000.

En situation d'accident grave affectant un réacteur, du ¹³⁷Cs serait vraisemblablement relâché dans l'environnement, entraînant temporairement des activités volumiques dans l'air supérieures d'un à plusieurs ordres de grandeur au niveau actuel. Durant les phases accidentelle et postaccidentelle, la connaissance de la contamination existante avant l'événement permettrait de quantifier l'impact des rejets dans l'air.

L'accident de Tchernobyl a brutalement rechargé le compartiment atmosphérique (augmentation d'un facteur 106 des activités moyennées sur dix jours [Renaud *et al.*, 2007]). En 1997, l'activité du césium 137 de l'air était revenue au même niveau qu'avant l'accident, soit de l'ordre de 10-6 Bq/m³. Fin mai 1998, l'incinération accidentelle d'une source de ¹³⁷Cs à Algésiras (Espagne) a tout au plus multiplié l'activité volumique par 2 500 durant quelques jours, sans toutefois perturber durablement la tendance générale à la décroissance.

- (2) Observatoire permanent de la radioactivité de l'environnement
- (3) À l'occasion d'études ponctuelles récentes, d'autres radionucléides artificiels ont également pu être mesurés (239 pu, 240 pu) à des niveaux d'environ 10-9 Bq.m-3 d'air.

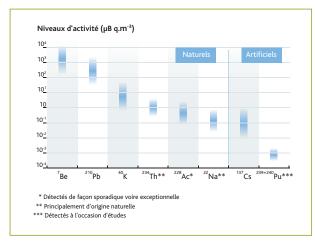


Figure 2 Plage de variation des principaux radionucléides naturels et artificiels sous forme d'aérosols dans l'air en France, de 2000 à 2007.

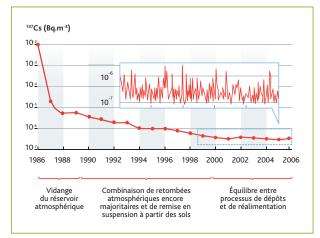


Figure 3 Phases d'évolution du niveau moyen annuel de l'activité volumique de ¹³⁷Cs dans l'air en France depuis l'accident de Tchernobyl et détail des résultats obtenus sur des périodes de dix jours.

Amélioration des connaissances sur les mécanismes de transfert atmosphérique pour une meilleure appréciation de l'évolution des activités dans l'air en situation (post) accidentelle

Le ¹³⁷Cs sert également de traceur pour déterminer les mécanismes de transfert naturels qui participent à son maintien à l'état de traces dans l'air. Comme bon nombre de radionucléides, il est présent dans l'atmosphère sous forme particulaire et subit de ce fait les lois qui gouvernent l'évolution des concentrations d'aérosols. Le dépôt des aérosols, par voies sèche et humide, est le puits final des aérosols transportés dans l'atmosphère. La quantification des dépôts est donc essentielle, aussi bien pour l'évaluation des impacts (ce sont par ces retombées atmosphériques que les aérosols sont susceptibles d'affecter le fonctionnement des écosystèmes) que sur un plan méthodologique (quantifiés correctement, les dépôts représentent, en conjonction avec les concentrations, des éléments de validation des simulations numériques à fort niveau de contrainte).

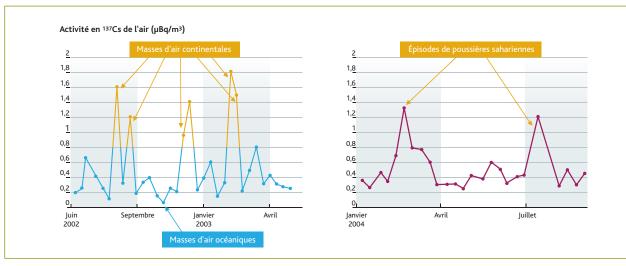
À partir du milieu des années 1990, la diminution de l'activité du césium 137 dans l'air en France s'est fortement ralentie, à tel point que l'activité volumique moyenne s'est stabilisée depuis 2000. Ce constat signifie :

- que la source originelle, constituée par les retombées des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère et celles de l'accident de Tchernobyl, a pratiquement disparu;
- qu'il existe un équilibre entre les mécanismes de dépôt (par temps sec ou à l'occasion des pluies) et ceux de l'alimentation du compartiment atmosphérique, comme par exemple la remise en suspension de particules provenant de la couche superficielle du sol par érosion éolienne ou de la dispersion des panaches de feux de forêt.

Jusque dans les années 1990, la prise en compte explicite de mécanismes de réalimentation du compartiment atmosphérique à partir d'anciens dépôts était pratiquement impossible car leur rôle était masqué par celui, prépondérant, des retombées des essais nucléaires atmosphériques. La disparition progressive de cette contamination a permis de mettre en évidence ces mécanismes permanents, dont on sait aujourd'hui qu'ils entretiennent la rémanence sur le long terme des activités dans les basses couches de l'atmosphère et en contrôlent la variabilité.

En l'absence de nouveau rejet de ¹³⁷Cs dans l'atmosphère, la seule source résiduelle provient du « stock » accumulé au fil des années dans les sols. Compte tenu de son affinité pour les argiles et les matières organiques, le ¹³⁷Cs reste majoritairement dans les 10 à 15 premiers centimètres du sol. Ce ¹³⁷Cs présent en surface est susceptible de réalimenter les basses couches de l'atmosphère sous l'action répétée de l'érosion éolienne.

En raison des très faibles activités volumiques observées aujourd'hui dans l'air, la moindre remise en suspension de particules provenant de sols contenant du ¹³⁷Cs dans une fourchette allant, en France, de quelques centaines à quelques milliers de Bq/m², suffit pour faire varier momentanément son activité volumique dans l'air. Ces caractéristiques confèrent au ¹³⁷Cs un rôle de traceur pertinent pour l'étude des échanges sol-atmosphère, au même titre que le ⁷Be est utilisé pour tracer les descentes d'air stratosphérique dans les couches inférieures ou que le ²¹⁰Pb est utilisé comme traceur des masses d'air continentales [Papastefanou, 2008]. Pour une périodicité normale d'échantillonnage de dix jours⁽⁴⁾, on constate une variabilité qui se traduit régulièrement par l'apparition de pics d'activité (*figure 3*).



Pics de ¹³⁷Cs dans l'air résultant du transport d'aérosols à longue distance (exemples : à Dijon par vent d'est (à gauche) et à La Seyne-sur-Mer en présence d'une masse d'air d'origine saharienne (à droite) [Masson et al., 2007]. Les autres points correspondent à des masses d'air ayant survolé partiellement ou exclusivement des surfaces océaniques durant les cinq jours précédant leur arrivée à la station de prélèvement.

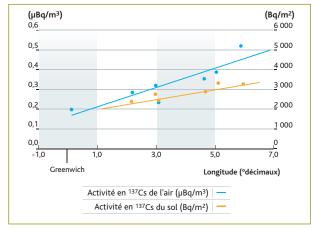


Figure 5 Comparaison entre l'activité volumique moyenne du ¹³⁷Cs dans l'air et l'activité surfacique des sols environnant les stations de collecte OPERA, en fonction de la longitude [Masson et al., 2007].

Paramètres et processus impliqués dans l'évolution de l'activité en ¹³⁷Cs

Importance de l'origine des masses d'air

Une analyse détaillée des conditions d'advection des masses d'air de six stations OPERA entre 2000 et 2006 a permis d'identifier l'origine de la masse d'air comme l'un des paramètres associés à ces fluctuations (figure 4). L'étude de plus de 14 000 « rétrotrajectoires » journalières a mis en évidence un lien quasi systématique entre l'apparition de pics d'activité et la présence de masses d'air continentales (vent de secteur est) ; dans quelques cas plus rares, une relation peut être faite avec une origine saharienne. Les masses d'air continentales sont

accompagnées d'une augmentation moyenne d'un facteur 3 de l'activité de ¹³⁷Cs tandis que les masses d'air océanique présentent en moyenne une activité trois fois plus faible [Masson *et al.*, 2007]. Ces bas niveaux trouvent leur explication dans le fait que l'empoussièrement est plus faible par vent d'ouest et que les perturbations fréquemment associées lessivent l'atmosphère (*figure 5*).

De cette analyse, il ressort que le bruit de fond associé aux masses d'air océanique est d'environ 0,1 µBq.m⁻³ (de 0,03 à 0,2 µBq.m⁻³) et constitue, de ce fait, le référentiel absolu actuel pour la France métropolitaine. La connaissance de la relation entre l'origine des masses d'air et les activités volumiques du césium permet de pondérer l'importance d'un rejet et d'orienter les explications sur les raisons d'une hausse d'activité volumique.

Remise en suspension

La remise en suspension de particules à partir des sols constitue une source diluée et retardée de radionucléides pour le compartiment atmosphérique [Holländer et Garger, 1996 ; Johansen *et al.*, 2003]. Les mesures d'empoussièrement faites par les associations agréées de surveillance de la qualité de l'air dans des stations dites « de fond » rurales⁽⁵⁾ indiquent que les niveaux en PM₁₀⁽⁶⁾ sont à peu près constants (~15 µg.m⁻³) de l'ouest à l'est de la France par vent d'ouest (*figure 6*). À partir d'une analyse statistique d'un grand

⁽⁴⁾ Cette variabilité est encore plus accentuée lorsque la mesure est réalisée exceptionnellement sur un échantillon de cinq jours.

⁽⁵⁾ Stations réalisant un suivi de l'exposition moyenne des personnes et de l'environnement dans les zones rurales vis-à-vis d'une pollution atmosphérique dite de « fond ». Cette pollution de fond est généralement issue des transports de masses d'air à longue distance, notamment transfrontaliers http://www.buldair.org/Definition/Typologie.htm.

⁽⁶⁾ Particule de diamètre aérodynamique moyen inférieur ou égal à 10 microns.

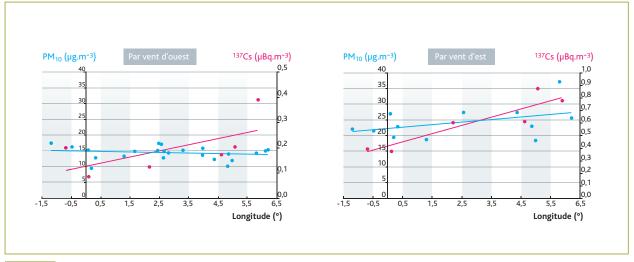


Figure 6 Variations longitudinales des niveaux d'empoussièrement et de ¹³⁷Cs dans l'air en France.

nombre de situations entre 2000 et 2006, on a constaté un gradient longitudinal moyen croissant d'ouest en est de l'activité volumique du ¹³⁷Cs dans l'air. Par conséquent, le gradient d'activité volumique d'une station à l'autre peut être mis sur le compte des différences d'activité de ¹³⁷Cs dans les poussières remises en suspension et donc dans les sols. L'existence d'une relation de proportionnalité entre l'activité volumique de ¹³⁷Cs dans l'air et dans les sols à chaque station OPERA témoigne d'une composante locale de la remise en suspension (*figure 7*). Une confirmation supplémentaire de la contribution locale de la remise en suspension est apportée par la corrélation forte entre l'activité volumique du ¹³⁷Cs et la concentration des grosses particules en suspension dans l'air qui ne se déplacent que sur des distances très courtes avant de se redéposer (de l'ordre de quelques centaines de mètres).

À cette composante locale s'ajoute de temps à autre une composante lointaine dans le cas de masses d'air continentales. Dans ce cas, l'empoussièrement moyen décroît d'est en ouest. Les variations d'activité volumique sont, quant à elles, identiques à celles par vent d'ouest mais avec des activités volumiques plus élevées. Ceci authentifie une composante et un transport à longue distance de particules remises en suspension à partir de sols présentant une contamination en ¹³⁷Cs, globalement supérieure à celle des sols français et imputable à la distribution des retombées de l'accident de Tchernobyl (distribution pilotée en grande partie par le cumul des pluies observées dans la semaine suivant le rejet).

En première approximation, on peut supposer que la composante (à échelle) locale de la remise en suspension agit de la même façon par vent d'est que par vent d'ouest. Cette composante locale peut

par conséquent être déduite des situations par vent d'ouest pour déterminer uniquement la contribution lointaine par vent d'est. Les situations avec vent d'ouest sont relativement standardisées et ne présentent pas d'importantes variations d'activité volumique du ¹³⁷Cs dans l'air, en fonction de la longitude d'un cas sur l'autre. À l'inverse, les situations avec vent d'est présentent une variabilité quatre fois plus élevée. Cette variabilité s'accompagne également d'une activité volumique moyenne plus élevée, qui résulte d'une concentration en particules et d'une activité volumique des poussières plus élevées (*figure 6*), en particulier à l'occasion d'incendies de forêt (« feux de biomasse »). Moyennant quoi, on peut estimer que la composante lointaine de la remise en suspension représente, par vent d'est, trois à quatre fois la composante locale (*figure 7*).

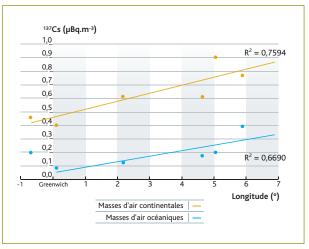


Figure 7 Variations de l'activité volumique du ¹³⁷Cs dans l'air observées en France en fonction de l'origine des masses d'air et de la longitude.

Cas des épisodes de retombées de poussières sahariennes

Ces phénomènes sont l'expression exacerbée de processus de remise en suspension. L'arrivée de masses d'air d'origine saharienne véhiculant des poussières en grande quantité constitue un événement radiologique facilement décelable, étant donné l'activité volumique ambiante du 137Cs extrêmement basse [Pham et al., 2005]. La France, et plus particulièrement sa partie méridionale, est régulièrement touchée par des dépôts de poussières d'origine saharienne (~ 20 événements/an), d'amplitudes variables et généralement associés à des précipitations même très faibles [Pham et al., 2005]. On observe des dépôts compris entre quelques dizaines et quelques centaines de mg par mètre carré, exceptionnellement plus d'une dizaine de grammes par mètre carré. Lors de ces événements, dont la durée moyenne est de deux à trois jours, les quantités de poussières soulevées et transportées sur des distances pouvant atteindre plusieurs milliers de kilomètres s'expriment en milliers, voire millions de tonnes. La conjonction d'un flux intense de particules, soulevées puis transportées, présentant des activités volumiques de ¹³⁷Cs à l'état de traces, conduit en quelques épisodes, voire en un seul, à un dépôt de ¹³⁷Cs équivalent à celui observé en moyenne au cours d'une année complète, avec momentanément des activités volumiques significatives (10 voire 30 fois le niveau ambiant) [Masson et al., 2005].

La contribution actuelle de ces épisodes en termes d'activité supplémentaire apportée aux sols reste toutefois négligeable et inférieure à 0,1 % de l'activité déjà présente, tout comme les doses dues à l'inhalation de poussières (environ 10⁻¹⁰ Sv), en comparaison des doses dues à l'exposition moyenne annuelle en France d'origine naturelle (2,3 mSv/an).

Ces épisodes témoignent d'une redistribution possible de radioactivité artificielle (en l'occurrence provenant des retombées à l'échelle planétaire de l'ensemble des essais nucléaires atmosphériques)⁽⁷⁾.

Le suivi de ces épisodes extrêmes fait l'objet d'une action pilotée par l'IRSN et bénéficiant du soutien financier de l'Agence nationale de la recherche (projet EXTREMA du programme « Vulnérabilité : milieux et climat »). Le contexte du changement climatique lié directement ou indirectement à la pression anthropique requiert un suivi précis de ces épisodes [Moulin, 2005]. L'étude des mécanismes intimes impliqués à l'occasion de ces épisodes, comme la ségrégation des particules au cours de leur transport en fonction de leur taille ou les interactions entre les particules en suspension,

(7) Les rapports entre isotopes du plutonium présents à l'état de traces dans les poussières récemment tombées sur la France sont caractéristiques de ces retombées globales et ne permettent pas d'incriminer spécifiquement les essais français réalisés au Sahara dans les années 1960 [Masson et al., 2007].

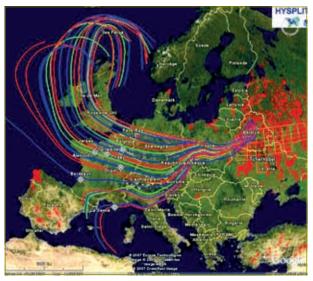


Figure 8 Trajectoires des masses d'air du 5 septembre 2002 à partir des zones d'incendie situées sur des territoires contaminés (les points rouges signalent les feux les plus importants).

Trajectoires réalisées à l'aide du modèle Hysplit.

permet de mieux comprendre les transferts occasionnés à l'occasion de phénomènes de remise en suspension plus anodins.

Feux de biomasse

Les incendies de forêt, de façon sporadique ou les brûlis saisonniers de végétaux (notamment au printemps) participent également à l'alimentation en poussières des basses couches de l'atmosphère. Tout comme les épisodes de poussières sahariennes, les feux génèrent des flux intenses de particules. Le transport de radionucléides par les feux de biomasse a été vérifié à plusieurs reprises et peut poser un problème d'ordre sanitaire pour les intervenants et les populations lorsque ces feux se produisent sur des territoires contaminés [Yoschenko et al., 2006].

Des feux de forêt de grande ampleur se sont produits à plusieurs reprises en 1992 mais aussi plus récemment en 2002, 2003 et 2006 sur des territoires situés en Biélorussie, en Ukraine ou dans les régions de la Fédération de Russie, contaminés par les retombées de l'accident de Tchernobyl et présentant des contaminations élevées en césium 137 dans les sols et la végétation. D'après les données recueillies dans le cadre de l'Observatoire OPERA, en 2002 et 2006, des vents d'est ont apporté des panaches de cendres et de fumées en Europe de l'Ouest, entraînant une augmentation des activités volumiques dans l'air du césium 137 en France d'un facteur 2 à 10 selon la station. La *figure* 8 illustre les trajectoires des masses d'air du 5 septembre 2002, à partir des zones contaminées de la région de Tchernobyl sur lesquelles des incendies ont eu lieu.

On estime qu'à l'échelle de la France pour les huit dernières années, environ deux tiers des augmentations substantielles de l'activité volumique du césium 137 dans l'air trouvent leur origine dans une remise en suspension locale ou lointaine ou une « réémission » par des feux de biomasse. Le tiers restant s'observe principalement l'hiver et est en grande partie imputable aux conditions météorologiques, défavorables à la dispersion, en particulier aux inversions du gradient vertical de température. Dans ces conditions, tous les polluants atmosphériques restent concentrés entre le sol et une altitude variable au cours de la journée. Le ¹³⁷Cs n'échappe pas à cette règle, sans toutefois que les valeurs atteintes présentent un risque pour la santé.

Sensibilité radioécologique des sites d'altitude

L'altitude constitue également un paramètre important de l'amplitude des niveaux d'activité dans l'air. La composante longue distance de la remise en suspension est ainsi plus manifeste sur les reliefs montagneux, qui interceptent les nuages de particules sahariennes ou de particules élevées à ces altitudes par l'énergie thermique dégagée par les incendies de forêt. Dans les deux cas, l'énergie mécanique ou thermique mise en jeu est extrêmement importante et permet à ces particules d'atteindre des altitudes élevées (entre 1 000 et 6 000 m) et de voyager sur des distances de plusieurs centaines voire milliers de kilomètres [Goudie et Middleton, 2001].

À l'occasion d'un épisode de retombées de poussières sahariennes survenu en mai 2006, il a ainsi été noté une activité volumique dix fois plus importante au sommet du Puy-de-Dôme (1 465 m) qu'à sa base (645 m) et jusqu'à cent fois plus importante à la station scientifique du Jungfraujoch en Suisse (3 454 m) [Flury et Volkle, 2008]. En moyenne annuelle, les niveaux de ¹³⁷Cs dans l'air au sommet du Puy-de-Dôme sont deux fois plus élevés que la valeur moyenne obtenue 800 mètres plus bas et ce malgré des empoussièrements cinq à dix fois plus faibles en altitude. Ces travaux mettent en évidence la plus grande sensibilité radioécologique des sites d'altitude et l'intérêt d'un positionnement en altitude de stations « sentinelles », destinées à détecter très tôt un transport intercontinental de panaches atmosphériques polluants.

L'altitude joue également un rôle indirect en termes de dépôt, en particulier en raison des précipitations qui y sont plus abondantes [Nguyen-Ba-Cuong, 1967]. Il convient de souligner que les dépôts, notamment de ¹³⁷Cs, sont globalement fonction des précipitations moyennes annuelles [Renaud et Roussel-Debet, 2007]. Au sommet du Puy-de-Dôme, l'inventaire du ¹³⁷Cs dans les sols présente toutefois un excès par rapport aux valeurs obtenues par la relation pluie-dépôt établie pour des sites de plaine [Le Roux *et al.*, 2008].

Cette accentuation est vraisemblablement liée aux dépôts par temps de brouillard, qui ne sont généralement pas comptabilisés comme des dépôts humides puisque les quantités d'eau associées restent très faibles et insuffisantes pour être enregistrées par des pluviomètres classiques. Pour cette raison, ces dépôts sont dits « occultes ». Par conséquent, même en l'absence de pluie, la simple présence d'un nuage au sommet d'un relief est susceptible de déposer des radionucléides par contact avec le sol ou le couvert végétal. Des travaux récents, menés à l'aide d'équipements spécifiques en collaboration avec le Lamp⁽⁸⁾, ont permis de confirmer le potentiel de lavage interne au nuage des aérosols et des radionucléides associés (voir également le flash d'information dans ce chapitre par [O. Connan et al.]). Des activités volumiques de ¹³⁷Cs comparables (0,5 mBq.l⁻¹) ont ainsi été trouvées dans des eaux de nuage et des eaux de pluie.

Ces résultats semblent pouvoir être extrapolés à d'autres sites d'altitude pour peu qu'ils présentent une proportion de temps de brouillard élevée comme dans le cas du Puy-de-Dôme (45 % du temps).

Par extension, d'autres formations nuageuses apparentées, comme les brouillards en plaine ou sur les sites côtiers, pourraient conduire à des dépôts « occultes » qu'il conviendrait de prendre en considération, pour peu qu'ils coïncident avec un rejet accidentel atmosphérique. Actuellement, ce type de dépôt n'est généralement pas considéré explicitement dans les modèles.

Conclusion

La surveillance de la radioactivité artificielle présente dans le compartiment atmosphérique repose sur le suivi historique du ¹³⁷Cs. Ce ¹³⁷Cs est un bon indicateur du comportement d'un grand nombre de radionucléides qui seraient relâchés sous forme particulaire dans l'environnement en situation accidentelle.

Les niveaux actuels apparaissent de plus en plus fréquemment proches des limites de détection, à l'heure où bon nombre de réponses restent encore partielles. Le maintien d'un suivi significatif nécessite des durées d'échantillonnage plus longues (dix jours en routine) permettant l'accumulation de quantités suffisantes de particules (et donc de becquerels) sur les filtres. Ces durées de base représentent une limitation à une interprétation fine des transferts lors d'épisodes de plus courte durée, comme une pluie (\leq environ un jour), une « inversion de température »

⁽⁸⁾ Observatoire de physique du globe de Clermont-Ferrand (OPGC), Laboratoire de météorologie physique (Lamp), UMR 6016 CNRS/université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand.

(une demi-journée), un épisode saharien (deux/trois jours) ou encore la durée d'advection de masses d'air d'origine continentale (trois/quatre jours). Afin de surmonter cette difficulté, les opérations de jouvence qui sont en cours sur les stations atmosphériques de l'Observatoire OPERA de l'IRSN visent à augmenter le débit de prélèvement, de façon à pouvoir réduire les durées d'échantillonnage, ce qui devrait permettre de

discrétiser plus finement dans le temps les changements d'activité des masses d'air. L'interprétation de ces situations doit permettre de faire apparaître les situations les plus sensibles d'un point de vue radioécologique et de caractériser les épisodes climatiques les plus extrêmes. Plus généralement, il convient de souligner que cette jouvence s'inscrit dans la refonte du dispositif français de surveillance de la radioactivité de l'atmosphère.

Références

- P. Bouisset, E. Barker, O. Masson, R. Gurriaran, X. Cagnat, D. Mekhlouche, S. Aubry, M. Hadjaj, L. Saey (2004). Concentration de 137Cs et de 7Be dans les aérosols en France de 1959 à 2002. Radioprotection vol 39 n° 3, 2004.
- T. Flury, H. Völkle (2008). Monitoring of air radioactivity at the Jungfraujoch research station: Test of a new high volume aerosol sampler. Science of the Total Environment, 391(2008), 284-287.
- A.-S. Goudie, N.-J. Middleton (2001). Saharan dust storms: Nature and consequences. Earth Science Reviews 56-179-204.
- W. Holländer, E. Garger (1996). Contamination of surfaces by resuspended material. Experimental collaboration project n° 1. Final report. European Commission. EUR 16527 EN. ISBN 92-827-5192-9.
- M.-P. Johansen, T.-E. Hakonson, F.-W. Whicker, D.-D. Breshears (2003). Pulsed redistribution of a contaminant following forest fire: Cesium-137 in runoff. Journal of Environmental Quality 32(6): 2150-2157.
- G. Le Roux, L. Pourcelot, O. Masson, C. Duffa, F. Vray, P. Renaud (2008). Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of ²¹⁰Pb and artificial radionuclides. Atmospheric Environment 42 (2008), 1517-1524.
- O. Masson, L. Saey, P. Paulat, D. Piga, G. Le Roux, L. Bourcier, X. Cagnat (2007). Relation entre l'origine des masses d'air et l'activité en ¹³⁷Cs dans les aérosols en France, de 2000 à 2006. Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2007-01.
- O. Masson, L. Pourcelot, R. Gurriaran, P. Paulat (2005). Impact radioécologique des retombées de poussières sahariennes. Épisode majeur du 21/02/2004 dans le sud de la France. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2005-04.
- C. Moulin (2005). Intensification du transport des poussières d'Afrique depuis 35 ans : relations avec les changements climatiques et avec l'augmentation de la population au Sahel. CEA/LSCE (séminaire LSCE janvier 2005 Saclay).
- Nguyen-Ba-Cuong, G. Lambert (1967). Rôle du relief dans le taux de retombées radioactives.
- C. Papastefanou (2008). Radioactive nuclides as tracers of environmental processes. Radioactivity in the Environment 12, p. 59-70.
- M.-K. Pham, J.-J. La Rosa, S.-H. Lee, B. Oregioni, P.-P. Povinec (2005). Deposition of Saharan dust in Monaco rain 2001-2002: Radionuclides and elemental composition. Physica Scripta. Vol. 7118. 14-17. 2005.
- Ph. Renaud, D. Champion, J. Brenot (2007). Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français. Éditions Tec & Doc. Collection Sciences et techniques. Lavoisier. ISBN : 978-2-7430-1027-0.
- Ph. Renaud, S. Roussel-Debet (2007). 137Cs in French soils: Deposition patterns and 15-years evolution. Science of the Total Environment, Vol. 374, Issue 2-3, 388-398.
- V.-I. Yoschenko, V.-A. Kashparov, V.-Protsak, S.-M. Lundin, S.-E. Levchuk, A.-M. Kadygrib, S.-P. I. Zvarich, Yu.-V. Khomutinin, I.-M. Maloshtan, V.-P. Lanshin, M.-V. Kovtun, J. Tschiersch (2006). Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chemobyl exclusion zone: part I. Fire experiments. Journal of Environmental Radioactivity 86 (2006), p. 143-163; part II. Modelling the transport process. Journal of Environmental Radioactivity 87 (2006), p. 260-278.

1.5

CAMPAGNE « LESSIVAGE ET LAVAGE DES AÉROSOLS DANS L'AIR »

(LARA) au Puy-de-Dôme : caractérisation de la radioactivité dans l'air sur trois sites d'altitudes différentes

Olivier CONNAN, Denis MARO, Didier HÉBERT, Luc SOLIER Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville Olivier MASSON, Gaël LE ROUX, Laureline BOURCIER

Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin

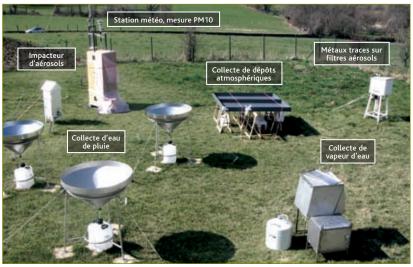


Figure 1 Dispositifs de collecte déployés durant la campagne de mesures.

L'IRSN mène des études sur la radioactivité naturelle et artificielle dans l'air, en étudiant le transport des aérosols dans l'atmosphère et les conditions de dépôt sec et de dépôt humide. Du 13 au 21 mars 2007, deux de ses laboratoires (LRC et LERCM) ont réalisé, en collaboration avec le Lamp⁽¹⁾, une campagne de terrain sur les pentes du Puy-de-Dôme. Des échantillons d'aérosols, de vapeur d'eau, d'eau de nuage, d'eau de pluie, de neige ont été collectés. Des mesures de ⁷Be, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po, ²¹²Po, ²¹⁴Po, ⁴⁰K, ¹³⁷Cs et ³H dans les aérosols atmosphériques, la vapeur d'eau des nuages et la pluie ont été effectuées sur trois sites à des altitudes différentes près de Clermont-Ferrand (Cézeaux 405 m, Opme 660 m, Puy-de-Dôme 1 465 m).

Pour cette étude, des moyens analytiques expérimentaux importants ont été mis en œuvre (figure 1). En particulier, des mesures de radionucléides gamma et alpha à vie courte ont été effectuées dans un camion laboratoire, immédiatement après la fin des prélèvements. Des dispositifs de prélèvement originaux ont été mis en place (figure 2): le système PREVAIR (prélèvement de la vapeur d'eau de l'air), qui permet de collecter de la vapeur d'eau pour la mesure de ³H, des collecteurs d'eau de nuage qui permettent de collecter les gouttelettes en suspension dans les nuages (système implanté au Puy-de-Dôme), des préleveurs d'aérosols par filtration à haut débit.

⁽¹⁾ Observatoire de physique du globe de Clermont-Ferrand (OPGC), Laboratoire de météorologie physique (Lamp), UMR 6016 CNRS/université Blaice Pascal



Figure 2 Collecteurs de vapeur d'eau de l'air et d'eau de nuage.

Les mesures ont permis d'estimer l'efficacité de lavage des aérosols dans et sous les nuages, de caractériser la radioactivité des masses d'air, d'acquérir des données sur la radioactivité des aérosols par classe de taille. Durant la campagne, deux situations météorologiques distinctes ont été étudiées : masses d'air d'origine continentale en provenance du nord-est de l'Europe les premiers jours, puis des masses d'air d'origine océanique en provenance de l'océan Atlantique en fin de période. La première période a été marquée par un épisode de pollution intense. Les mesures de radioactivité naturelle dans l'air ont montré que ces conditions météorologiques induisaient d'importantes variations des activités des radionucléides dans les aérosols (210Po, 212Po, 214Po, 210Pb, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb, ⁷Be), sans que des différences soient observées entre les différents sites. La radioactivité en fonction de la granulométrie des aérosols indique que les activités les plus élevées sont mesurées pour un diamètre médian moyen des particules inférieur à 0,4 µm, soit de fines particules. Des activités relativement élevées de ³H (entre 2 et 8 Bq.L-1) ont été mesurées dans la vapeur d'eau de l'air au Puy-de-Dôme. L'analyse des « rétrotrajectoires » montre que les masses d'air provenaient du nord-est du point de mesure.

La technique mise en œuvre a ainsi démontré qu'il était possible d'utiliser le ³H comme traceur atmosphérique sur de longues distances.

■ Des activités similaires de ¹³⁷Cs (0,5 mBq.l·¹) ont été mesurées dans les eaux de pluie et les eaux de nuage collectées au Puy-de-Dôme. Déjà, au sein des nuages, les aérosols sont collectés par les gouttelettes d'eau. Sans qu'il y ait formation de pluie, l'humidification des sols et des végétaux touchés par les gouttelettes en suspension dans les nuages conduit à des dépôts dits « occultes », liés à des quantités d'eau très faibles non mesurables par des pluviomètres.

Cette forme de dépôt n'est généralement pas considérée explicitement dans les modèles. Sur les reliefs régulièrement touchés par des nuages, la prise en compte de ces dépôts de radionucléides permet, notamment, d'expliquer les excès d'activité dans les sols par rapport aux dépôts induits par les pluies.

MISE EN PLACE DE LA PLATE-FORME ARGOS

pour l'évaluation et la caractérisation des instruments de télémesure de la radioactivité de l'environnement de l'IRSN

Christophe DEBAYLE, Laure TARDIEU

Laboratoire de veille radiologique de l'environnement

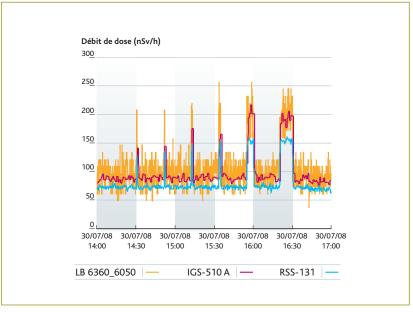


Figure 1 Enregistrements du débit de dose mesuré par trois sondes, soumises à plusieurs expositions successives à une source de baryum 133, lors d'une expérience réalisée à l'aide du dispositif d'entrée/sortie de source

■ Une plate-forme d'expérimentation, dénommée ARGOS, a été installée au Vésinet, d'une part, pour évaluer l'opportunité du choix du progiciel de supervision standard PANORAMA, comme outil de centralisation des données provenant des capteurs automatisés de mesure de la radioactivité de l'environnement répartis sur le territoire, d'autre part, pour mener une série de tests métrologiques sur des capteurs du commerce, pour guider le choix de l'IRSN concernant les capteurs futurs du réseau de surveillance de la radioactivité gamma ambiante Téléray. Le premier objectif a été atteint en 2007. Initialement conçu pour la supervision et la régulation d'automates industriels, le progiciel PANORAMA a permis « l'interfaçage » d'un ensemble de sondes de mesure du débit de dose gamma ambiant et de capteurs météorologiques, par la définition d'un « standard de communication » entre les appareils distants et le serveur de centralisation.

- Les essais métrologiques relevant du second objectif ont débuté en juillet 2008. Les tests visent à comparer les réponses de différents capteurs lors d'expositions contrôlées à différentes sources radioactives : baryum 133, césium 137, cobalt 60, europium 152, europium 154. Ces radionucléides permettent en effet de couvrir la gamme complète des énergies du spectre gamma. Pour ces tests, deux dispositifs distincts ont été installés :
- l'un, au centre d'un cercle de deux mètres de rayon sur lequel sont disposées les sondes de mesure de débit de dose, permet de faire apparaître et disparaître les sources derrière une enceinte plombée pour simuler des fluctuations du débit de dose gamma ambiant. Ce type d'expérience va fournir de façon synchrone les indications de l'ensemble des sondes en réponse à de faibles variations du débit de dose, à l'instar de ce qui pourrait se produire lors du passage d'un nuage radioactif;
- l'autre, constitué d'un rail linéaire automatisé de 25 mètres, permet de réaliser des déplacements parfaitement reproductibles des sources radioactives. Outre la simulation

du passage plus ou moins furtif d'une source radioactive, ce type d'expérience permet de déterminer la réponse angulaire des capteurs. De plus, compte tenu de la parfaite maîtrise de la vitesse du rail et, par conséquent, des durées d'exposition, les limites métrologiques des appareils pourront être évaluées.

■ Les essais doivent se poursuivre jusqu'à fin 2008. Les résultats permettront de compléter les éléments techniques pour le choix des sondes qui remplaceront les sondes actuelles de mesure du débit de dose du réseau Téléray.

La plate-forme permettra par la suite d'approfondir la maîtrise du paramétrage des sondes (temps d'intégration, algorithmes de lissage des données, etc.) et de tester de futurs détecteurs au fur et à mesure de leur mise sur le marché.

Enfin, ce type d'installation pourrait tout à fait accueillir des partenaires internes ou externes pour la réalisation de campagnes de mesures spécifiques (appareils mobiles, interventions, etc.).



Figure 2 La plate-forme ARGOS.

MÉTHODOLOGIE DE CARTOGRAPHIE DES ZONES PRIORITAIRES pour la gestion du risque lié au radon

Géraldine IELSCH, Edward Marc CUSHING

Bureau d'évaluation des risques liés à la radioactivité naturelle

Philippe COMBES

Geoter

Le radon est un gaz radioactif naturel omniprésent à la surface de la Terre. L'isotope 222, produit par la désintégration du radium 226, lui-même descendant de l'uranium 238 présent naturellement dans les roches et les sols, est le plus couramment rencontré dans l'environnement, du fait de sa période radioactive relativement longue (3,8 jours). Le flux de radon émis à la surface des sols est variable et fonction de différents paramètres, liés notamment aux propriétés des roches et des sols qui ont donné naissance à ce gaz, et au travers desquels il peut migrer plus ou moins facilement par différents processus physiques, jusqu'à l'atmosphère. Le radon peut s'accumuler dans l'air plus confiné des bâtiments où l'homme passe la majeure partie de son temps. La présence de ce gaz, reconnu cancérigène pulmonaire avéré depuis 1988, peut alors induire une exposition par inhalation et constituer un risque sanitaire. Parmi les axes de la politique de gestion de ce risque, une étape particulière consiste à délimiter les zones où, compte tenu de leurs caractéristiques naturelles (géologiques en particulier), les cas de présence de radon en concentration importante dans les bâtiments sont les plus susceptibles de se produire. Cette étape consiste à établir ce qu'on a coutume d'appeler une « cartographie du radon ».

Introduction

La cartographie radon à l'international

Depuis la fin des années 1970, de nombreuses mesures de la concentration du radon dans l'habitat ont été réalisées en Europe, aux États-Unis et au Canada. Un lien entre la géologie et les activités du radon dans les bâtiments a été constaté depuis le début des années 1980. Les études menées depuis vingt ans ont visé à mettre en place des méthodes permettant de gérer au mieux le risque lié au radon dans l'habitat.

Un des axes utiles à cette gestion consiste à cartographier les zones du territoire sur lesquelles les cas de concentration élevée du radon

dans les bâtiments sont les plus susceptibles d'être rencontrés. La cartographie (dite « cartographie du radon ») obtenue a un double objectif : d'une part, orienter les campagnes de mesures dans les bâtiments existants qui peuvent présenter des concentrations de radon supérieures aux seuils d'intervention fixés (valeurs considérées par les autorités publiques comme nécessitant la mise en œuvre d'actions correctives), d'autre part, identifier les zones pour lesquelles des mesures préventives pourraient être prises dans les constructions futures.

Les informations à partir desquelles ce travail peut être mené sont notamment : les résultats de mesure de l'activité volumique du radon dans l'habitat, dans les sols ou dans l'atmosphère, du flux de radon à la surface des sols, les caractéristiques géologiques et pédologiques locales et éventuellement l'architecture des bâtiments. Les paramètres utilisés sont soit directement déterminés *in situ* ou en laboratoire, soit estimés indirectement grâce à d'autres outils comme les cartes géologiques, pédologiques, radiométriques, etc. Au cours des dernières années, des travaux importants ont été réalisés dans plusieurs pays dans l'objectif d'aboutir à une cartographie du radon et d'améliorer la connaissance de l'exposition domestique à ce gaz. Les méthodes développées pour cela apparaissent diversifiées [Dubois, 2005 ; Ielsch, 2005 ; Miles et Appleton, 2005 ; Bossew et Dubois, 2006 ; Dubois et Bossew, 2006 ; Barnet et Fojtíková, 2006 ; Appleton, 2007 ; Kemski *et al.*, 2008 ; Ielsch, 2008].

Afin de mutualiser les efforts européens dans ce domaine, un groupe de travail a été constitué en août 2008, piloté par la Commission européenne, dans l'objectif de réaliser à terme une cartographie européenne du radon, à l'aide d'une méthode commune fondée sur des critères géologiques. Les pays suivants y sont représentés: Royaume-Uni, Allemagne, Belgique, France, République tchèque, Espagne, Suède, Norvège, Autriche.

Les recherches antérieures menées par l'IRSN dans ce domaine

La principale difficulté rencontrée dans la gestion du risque lié au radon dans les bâtiments en France est due à la grande variabilité de l'exposition au radon sur le territoire national, compte tenu notamment de sa diversité géologique (i.e. chaînes de montagnes anciennes riches en granites et formations métamorphiques, chaînes de montagnes plus jeunes formées en majorité de séries sédimentaires, bassins sédimentaires). Cette variabilité est importante à prendre en compte pour adapter la politique de gestion du risque lié à l'exposition au radon. Cela implique le développement et la mise en œuvre d'outils et de moyens adaptés.

C'est pourquoi l'IRSN s'est engagé depuis plusieurs années dans des recherches visant à développer et valider une méthode permettant de cartographier le potentiel d'exhalation⁽¹⁾ du radon sur le territoire. Il ne s'agit pas d'estimer directement le risque sanitaire lié au radon mais de fournir des indications qualitatives sur la potentialité des terrains à émettre du radon à la surface des sols. Des travaux ont été menés à l'IRSN depuis 1994 [Demongeot, 1997], notamment dans le cadre du programme Environnement et Santé 1997, mis en place par les ministères de l'Environnement et de la Santé [lelsch et Haristoy, 2001; lelsch et al., 2001, 2002]. Ces travaux, poursuivis en 2002, ont conduit au développement d'une méthode de cartographie prédictive du potentiel d'exhalation du radon à la surface des sols à partir des paramètres géologiques et pédologiques locaux, à l'échelle régionale. La comparaison des

résultats prédictifs obtenus par cette méthode aux résultats de mesures *in situ* de flux de radon à la surface des sols, sur plusieurs zones sélectionnées pour leurs contextes géologiques différents et représentatifs de la variabilité du sous-sol français (Bourgogne, Bretagne, Massif central, Pyrénées, Languedoc), a permis de valider la démarche [lelsch *et al.*, 2002; lelsch, 2003; lelsch et Cuney, 2004].

La demande actuelle de l'Autorité de sûreté nucléaire : mise à jour des zones prioritaires

Dans la réglementation actuelle relative à la gestion du risque lié au radon dans les lieux ouverts au public, une obligation de mesurage est faite à certains établissements dans 31 départements, classés prioritaires sur la base des résultats de la campagne nationale de mesures du radon dans l'habitat (effectuée entre 1982 et 2000 par l'IPSN et la DGS⁽²⁾).

L'expérience acquise au travers de l'application de cette réglementation a mis en évidence les limites d'une définition des zones prioritaires fondée sur les limites administratives (en l'occurrence celles des 31 départements). Compte tenu des hétérogénéités géologiques importantes pouvant exister au sein d'un même département, des zones présentant des caractéristiques peu propices à l'existence de concentrations élevées en radon dans les bâtiments se trouvent soumises à une exigence de dépistage, alors même que d'autres zones présentant un niveau de risque beaucoup plus élevé y échappent, car non situées dans l'un des 31 départements jugés prioritaires. Devant ce constat, l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) a demandé à l'IRSN d'effectuer une synthèse de différentes approches utilisées localement en France pour la « cartographie du radon » et de proposer des éléments généraux de méthode permettant de découper le territoire en zones classées selon leur « potentiel radon » [Ielsch, 2005]. L'approche proposée à cette fin par l'IRSN consiste à déterminer la capacité des formations géologiques à produire du radon et à faciliter son transfert jusqu'à atteindre la surface avant sa désintégration.

L'application de cette méthode de cartographie sur une zone test située en Bourgogne, équivalente à trois départements, a montré que les résultats obtenus étaient en grande majorité cohérents avec les résultats de mesure de l'activité volumique du radon dans l'habitat disponibles sur cette zone [lelsch, 2007]. Le zonage obtenu par la méthode apporte une précision supérieure aux limites départementales et est adapté pour déterminer les communes qui pourraient être le plus

⁽¹⁾ L'exhalation du radon à la surface des sols (ou émission) est le résultat de la production du radon dans les roches puis de son transport dans les roches et les sols jusqu'à la surface.

⁽²⁾ IPSN : Institut de protection et de sûreté nucléaire ; DGS : Direction générale de la santé.

concernées par la problématique liée au radon. Ces résultats encourageants ont conduit l'ASN à demander à l'IRSN d'appliquer la méthode à l'ensemble du territoire français, afin de redessiner les contours des zones prioritaires et de les préciser par rapport à l'échelle imposée actuellement par les limites départementales. La cartographie du potentiel d'exhalation du radon du territoire a commencé en mars 2008 et devrait s'achever à la fin de l'année 2009. Cette étude a pour objectif de fournir des cartes départementales (96 départements) et régionales du « potentiel radon », avec une précision équivalente à celle de la carte géologique de la France au 1/1 000 000°, pour la totalité du territoire métropolitain.

Méthode

Il est à rappeler que la méthode retenue n'a pas pour objectif de déterminer un « potentiel radon » à partir des résultats de mesure de l'activité volumique de ce gaz dans les bâtiments, mais vise à estimer « le potentiel radon » des terrains, qui constitue la source principale du radon dans les bâtiments.

Cette méthode consiste à prendre en compte les principaux paramètres influençant, d'une part, la production du radon dans le sous-sol et, d'autre part, le transport du radon depuis sa source jusqu'à la surface des sols. Les paramètres retenus ne sont pas exhaustifs, mais permettent d'appliquer de manière homogène la méthode à l'ensemble du territoire, à partir d'informations existantes. Cette méthode est en effet fondée sur la compilation et l'exploitation de données géologiques disponibles pour chaque département concerné, issues de cartes, de banques d'informations, de résultats de travaux de recherches, etc. Elle n'implique ni investigation ni acquisition de données supplémentaires sur le terrain. L'ensemble des données utilisées est incorporé dans un Système d'information géographique (SIG), afin de réaliser des croisements de paramètres géoréférencés et ainsi définir un découpage du territoire en zones présentant un même niveau de potentiel vis-à-vis du radon.

La méthode mise en œuvre comprend trois étapes. La première consiste à classer les formations géologiques en fonction de leur teneur mesurée ou supposée en uranium, permettant ainsi de définir la capacité potentielle des terrains à produire du radon, l'uranium étant à l'origine de ce gaz. Dans un deuxième temps, la cartographie obtenue peut être affinée en prenant en compte, dans la mesure du possible, les facteurs qui facilitent le transport du radon dans les roches et peuvent favoriser son exhalation à la surface du sol. La troisième étape a pour objet d'établir une classification finale des zones, obtenue par l'analyse des différents paramètres, de manière à aboutir à une carte du potentiel radon des terrains.

Première étape : évaluation du potentiel source en radon des terrains

Critères retenus et données utilisées

Les critères retenus pour déterminer la capacité potentielle des terrains à produire du radon sont les suivants : la lithologie (type de roche), les résultats d'analyses directes de l'uranium dans des échantillons de roches, les résultats d'analyses d'uranium pour des lithologies similaires dans d'autres sites que celui considéré, les résultats de mesures radiométriques (mesure de la radioactivité ambiante par des moyens mobiles autoportés ou aéroportés de détection du rayonnement gamma), la localisation d'indices miniers uranifères, la proximité d'anciennes mines d'uranium, l'existence de particularités locales ayant pu conduire à des teneurs en uranium plus élevées, telles que la présence de formations riches en matières organiques (schistes noirs, charbons, lignite, etc.).

Les données utilisées sont la carte géologique de la France à 1/1 000 000° [Chantraine et al., 2003], les informations fournies par d'autres cartes géologiques plus précises au 1/50 000° et au 1/250 000°, les résultats d'analyses chimiques de roches compilées dans des banques de données (projets de recherche IRSN, BRGM et base Artemise du CREGU-G2R⁽³⁾) comprenant environ 5 000 résultats d'analyses ponctuelles, les données géochimiques disponibles concernant des lithologies similaires en France ou à l'étranger (résultats de recherches bibliographiques), l'inventaire des sites miniers d'uranium français (MIMAUSA, IRSN) et la base de données Mines de Geoderis⁽⁴⁾.

Les étapes d'estimation sont les suivantes :

- compilation des données pour définir une teneur en uranium par formation ;
- regroupement et classification des formations en fonction de leurs lithologies puis classification des lithologies par gamme de teneurs vraies ou estimées en uranium (cette première carte est appelée carte de « potentiel source 1 »);
- identification de particularités locales susceptibles d'augmenter le « potentiel source 1 » d'une formation donnée et conduisant à l'établissement d'une carte dite « potentiel source 2 ».

Classification et cartographie de la capacité potentielle des formations géologiques à produire du radon

■ Regroupement et classification des formations en fonction de leur lithologie et de leur teneur possible en uranium (« potentiel source 1 »).

⁽³⁾ Unité mixte de recherche CNRS et université Henri Poincaré Nancy.

⁽⁴⁾ Groupement d'intérêt public habilité à intervenir, à la demande de l'administration, sur tout type d'exploitation minière arrêtée et dans différents domaines (le BRGM et l'Ineris y participent).

Lithologie	Teneurs moyennes en U (ppm)	« Potentiel source 1 » correspondant
Roches plutoniques et volcaniques basiques et ultrabasiques Amphibolites Formations carbonatées	≤ 2	Faible
Formations sédimentaires détritiques et paragneiss (schistes, sauf schistes bitumineux)	≤ 4 - 5	Faible à moyen (hétérogène)
Granitoïdes et métagranitoïdes peu uranifères (granodiorites, granites, leucogranites peralumineux, granitoïdes calcoalcalins, orthogneiss), roches volcaniques de même affinité chimique et autres lithologies particulières	≤ 8	Moyen
Granites-leucogranites peralumineux, granitoïdes subalcalins, granites peralcalins de Corse, roches volcaniques de même affinité chimique et autres lithologies particulières	≥8	Élevé à très élevé

 Tableau 1
 Teneurs moyennes en uranium des formations géologiques et « potentiel source 1 » correspondant.

L'objectif est d'affecter une classe de teneurs moyennes en uranium aux formations géologiques de la France à l'échelle du 1/1 000 000°. Il s'agit de faire une estimation de leurs teneurs en uranium, à partir des données lithologiques et géochimiques fournies par la carte géologique de la France et les résultats des analyses géochimiques disponibles directement sur les différentes formations géologiques ou par comparaison avec des lithologies similaires connues dans d'autres régions. En premier lieu, les résultats des analyses géochimiques sont traités afin d'obtenir les teneurs directes moyennes en uranium des formations géologiques. En se fondant sur les caractéristiques lithologiques et géochimiques, et la définition de classes de valeurs (tableau 1), on attribue ensuite une teneur probable en uranium aux formations pour lesquelles il n'existe aucune donnée mesurée. La classification obtenue, sur la base des concentrations estimées en ppm d'uranium et regroupées en quatre classes, permet de déterminer et cartographier la capacité potentielle des formations géologiques à produire du radon : carte du « potentiel source 1 ». Cette carte peut être affinée par la prise en compte d'éventuelles particularités locales susceptibles d'augmenter cette capacité.

■ Identification et prise en compte de particularités locales susceptibles d'augmenter le « potentiel source 1 » d'une formation donnée : obtention du « potentiel source 2 ».

L'estimation de la teneur en uranium des formations géologiques, réalisée à l'issue de la première étape, peut être réajustée par l'identification de particularités locales.

Tout d'abord, certaines formations spécifiques régionales, en particulier certains dépôts sédimentaires, peuvent présenter une teneur en uranium plus élevée que la moyenne généralement observée pour une lithologie donnée. La recherche, à l'échelle de la carte géologique du millionième, de ces formations en termes de lithologie (charbon, grès arkosique, etc.) et/ou d'âge stratigraphique (permien, carbonifère, etc.) permet d'identifier les formations géologiques concernées. Certaines de ces formations ne sont toutefois pas cartographiées à l'échelle du millionième. Leur délimitation nécessite alors la consultation de cartes à des échelles plus précises.

En outre, la présence de travaux d'exploration à la recherche d'uranium, de mines d'uranium, de mines de charbon au sens large (houille, charbon, lignite) et de gîtes permet également de localiser les formations géologiques particulières mentionnées précédemment. Le « potentiel source 1 » des formations concernées est alors augmenté d'une unité.

La carte résultant de la prise en compte du « potentiel source 1 » et des particularités locales est appelée carte du « potentiel source 2 ». Ce dernier est classé en cinq catégories : faible, faible à moyen, moyen, élevé et très élevé (*tableau 2*).

Seconde étape : détermination et prise en compte de facteurs aggravants pouvant favoriser l'exhalation du radon à la surface du sol

Les critères retenus

On peut définir un certain nombre de facteurs « aggravants », c'est-à-dire susceptibles de faciliter le transfert du radon des formations géologiques vers la surface. Ces facteurs aggravants vont avoir pour effet d'augmenter plus ou moins localement les possibilités de relâchement du radon de la zone concernée. Ces facteurs peuvent être naturels ou anthropiques :

- l'existence de failles majeures ou actives, avec leurs zones d'influence :
- les sites miniers où l'exploitation des mines s'est accompagnée de la réalisation d'ouvrages souterrains (puits, galeries...) pouvant conduire à une déstabilisation des terrains ;
- les principaux sites hydrothermaux ;
- éventuellement, d'autres cavités souterraines naturelles, dans des formations karstiques.

« Potentiel source 2 »			
Faible			
Faible à moyen (hétérogène)			
Moyen			
Élevé			
Très élevé			

Tableau 2	Classification du « potentiel source 2 » d'une formation
	géologique.

« Potentiel source 2 »	Facteur aggravant	Potentiel radon de la zone d'intersection avec la forma- tion géologique affectée	
Faible		Faible à moyen	
Faible à moyen		Moyen	
Moyen	+ 1	Élevé	
Élevé		Très élevé	
Très élevé		rres eleve	

Tableau 3 Impact d'un facteur aggravant sur le potentiel radon d'une formation géologique.

Les données utilisées pour identifier ces facteurs sont la carte géologique de la France à 1/1 000 000° (BRGM, version 6 révisée 2003), les informations d'autres cartes géologiques régionales plus précises (BRGM), l'inventaire des sites miniers d'uranium français (MIMAUSA⁽⁵⁾, IRSN pour le compte du ministère chargé de l'Écologie), la base de données Mines de Geoderis, la carte au 1/1 000 000° des eaux minérales et thermales de la France (BRGM, 2004), la carte de la sismicité et des failles au 1/1 000 000° (IRSN, Geoter).

La classification et la cartographie du « potentiel radon »

Les failles

La sélection des « failles majeures » représentées sur la carte géologique de la France au millionième est complétée par l'ajout des structures tectoniques n'apparaissant pas comme des failles majeures, mais qui ont une activité « récente » avérée (quaternaire, voire plioquaternaire). En effet, l'activité des failles est un indice supplémentaire des facilités de circulation du radon, du fait de la présence de fractures ouvertes et de faciès bréchiques plus perméables. Par ailleurs, il peut s'avérer opportun de tenir compte des grands accidents reconnus par la géophysique ; ces accidents de grande ampleur peuvent en effet avoir des connexions avec les failles de surface et ainsi favoriser le transfert du radon vers la surface.

Les failles sont donc considérées *a priori* comme des facteurs aggravants, avec une zone d'influence estimée de manière forfaitaire à 500 m de part et d'autre de la faille (cette dimension forfaitaire tient compte des incertitudes, à l'échelle du millionième, sur la position des failles, mais aussi du fait que certains grands accidents sont en fait des « zones » de failles multiples ayant une certaine largeur).

Ainsi, la présence d'une faille dans une formation donnée conduit au classement de la zone d'intersection entre la zone d'influence de la faille et la formation dans la catégorie supérieure de potentiel radon (tableau 3 et figure 1).

■ Les puits et galeries de sites miniers débouchant au jour L'exploitation de la base de données Mines de Geoderis permet de prendre en compte les désordres liés aux activités minières et aux ouvrages souterrains créés par les exploitations. D'une part, ces ouvrages anthropiques souterrains agissent à la manière de collecteurs qui vont drainer le radon et accélérer son passage du milieu souterrain vers la surface; d'autre part, les travaux souterrains ont induit des fissures ou fractures dans les formations géologiques.

L'effet aggravant de la présence des ouvrages souterrains est considéré se concentrer à l'aplomb de ceux-ci (par projection de leur emprise à la surface). Une zone d'incertitude (ou « tampon ») forfaitaire de 500 m est appliquée autour des sites concernés. L'intersection du facteur aggravant et des formations géologiques concernées se voit alors attribuer un potentiel radon majoré (tableau 3 et figure 1).

■ Les sources thermominérales

Les sources, résurgences et autres exsurgences peuvent constituer des sources d'émission de radon dans la mesure où elles constituent des drains préférentiels pouvant collecter le radon (sous forme de gaz dissous dans l'eau) et faciliter son transfert du sous-sol vers la surface.

Lorsque les eaux profondes chargées de radon viennent au contact de l'atmosphère libre, elles libèrent le radon qu'elles contiennent dans l'atmosphère. La localisation des résurgences et autres exsurgences est connue par la compilation de la base de données des cavités souterraines naturelles, alors que les sources thermales sont connues de la carte au 1/1 000 000° des eaux minérales et thermales de France (BRGM, Risler et al., 2004).

⁽⁵⁾ MIMAUSA: Mémoire et impact des mines d'uranium, synthèse et archives.

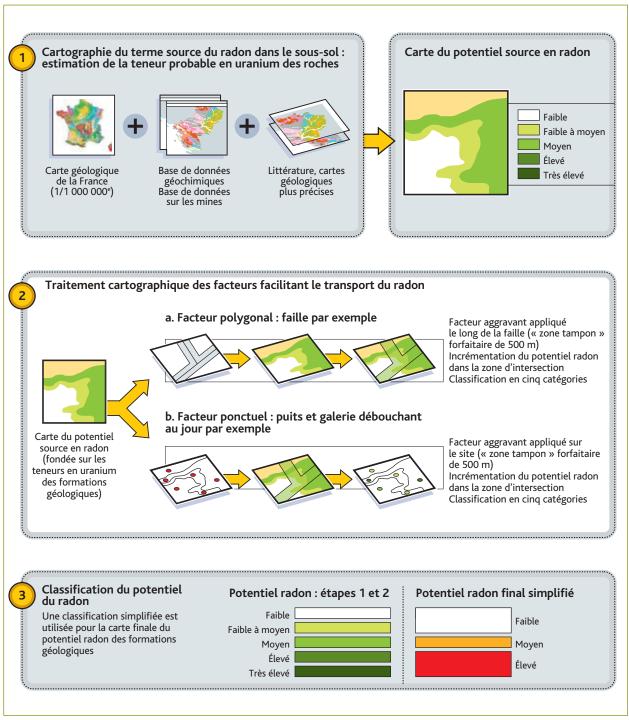


Figure 1 Étapes de la méthode conduisant à la carte de potentiel radon des formations géologiques.

Seuls les principaux sites concernés par des sources thermominérales sont retenus. Le facteur aggravant est appliqué à l'aplomb de ces sites, avec une zone d'incertitude (« zone tampon ») forfaitaire de 500 m autour du site. Le potentiel radon local est majoré dans la zone correspondante (tableau 3 et fiqure 1).

■ Les formations géologiques à tendance karstique

Un karst constitue un espace plus ou moins ouvert dans lequel le radon peut se concentrer et circuler. Les cavités naturelles de type karstique forment des réseaux, parfois extrêmement étendus, dans bon nombre de formations carbonatées sur le territoire national; leur extension est souvent difficile à estimer. Toutefois, les lithologies et les conditions dans lesquelles ils se développent sont bien connues. La base de données nationale des cavités (BRGM) fournit une information ponctuelle sur la présence d'une cavité en surface, alors que le réseau peut s'étendre sur de grandes distances à partir de ce point. Les points renseignés dans la base représentent des orifices ainsi que des centres de cavités ou de réseaux de cavités. Les cavités ou les réseaux de cavités de grande extension ne sont que très partiellement représentés par ces points. Les contraintes, liées au renseignement hétérogène à l'échelle nationale de la base de données cavités du BRGM (inventaire en cours) et à la difficulté, à partir de la carte géologique de la France au millionième, de ne sélectionner que

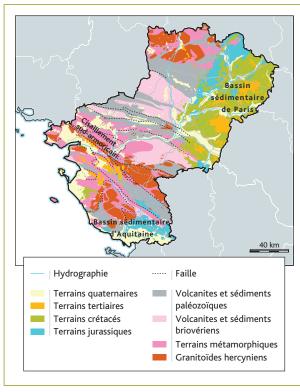


Figure 2 Carte géologique simplifiée de la région Pays de la Loire.

les formations géologiques présumées karstiques rendent délicate la prise en compte de ce facteur aggravant de manière harmonisée à l'échelle nationale. Dans ce cadre, la présence d'un karst n'a pu être prise en compte dans la méthode de cartographie.

Troisième étape : classification finale des terrains en fonction de leur potentiel radon et restitution cartographique

Cette ultime phase résulte du croisement des différentes informations recueillies au cours des étapes précédentes :

- la carte de « potentiel source 2 » liée aux teneurs en uranium des formations géologiques;
- la carte des facteurs aggravants pouvant faciliter le transfert du radon.

Le traitement cartographique aboutit à une carte de potentiel radon final des terrains, en considérant trois classes qui résultent de la simplification de la classification préalablement adoptée à l'issue de l'étape 2. La démarche globale est résumée dans la *figure 1*.

Premiers résultats : exemple de la région des Pays de la Loire

Classification des formations géologiques selon leurs « potentiels sources »

Cadre géologique des Pays de la Loire

La région des Pays de la Loire est constituée, en grande partie, par les terrains du massif armoricain (formations cristallophylliennes), composés de granites cadomiens et hercyniens et de métasédiments protérozoïques et paléozoïques (volcanites et sédiments), recouverts à l'est par les sédiments mésozoïques et localement cénozoïques transgressifs du bassin de Paris. Une faible frange au sud est recouverte par les sédiments du bassin d'Aquitaine.

Cette région est traversée par un accident structural majeur ONO-ESE, le cisaillement sud-armoricain, qui scinde les formations du massif armoricain en deux blocs, eux-mêmes organisés en unités distinctes ayant leurs propres caractéristiques géodynamiques et structurales.

La *figure 2* présente une carte géologique simplifiée de la région.

Regroupement et classification des formations en fonction de leur lithologie et de leur teneur présumée en uranium (« potentiel source »)

La compilation des résultats d'analyses géochimiques disponibles et la connaissance des teneurs en uranium des différentes formations géologiques de la région ont permis d'attribuer à celles-ci une

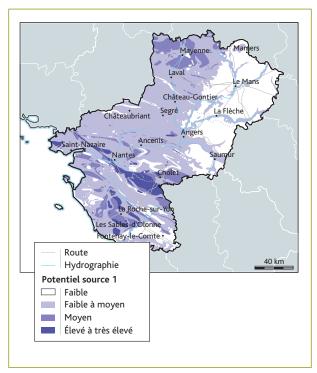


Figure 3 Carte du « potentiel source 1 » de la région des Pays de la Loire.

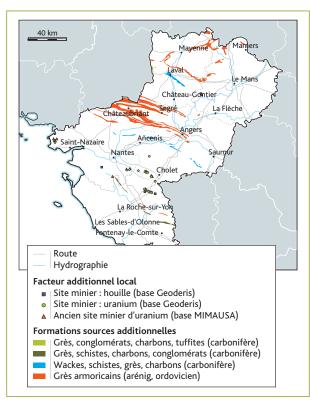


Figure 4 Carte des particularités locales permettant de cibler les formations géologiques pouvant présenter une teneur en uranium plus élevée que la valeur moyenne observée sur des lithologies comparables, dans la région des Pays de la Loire.

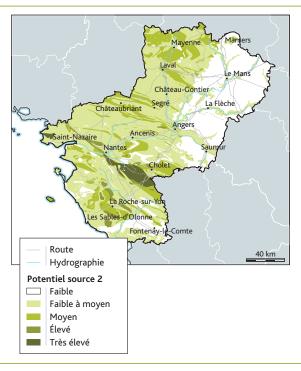


Figure 5 Carte du « potentiel source 2 » de la région des Pays de la Loire.

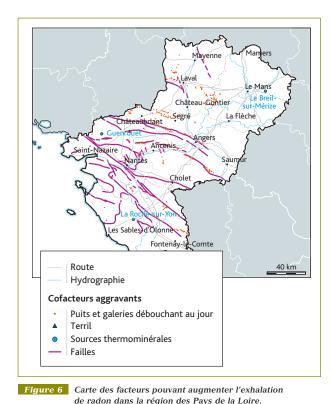
gamme de teneurs probables en uranium et de les classer en fonction de cette teneur. Cette étape a conduit à la carte du « potentiel source 1 » présentée dans la *figure 3*.

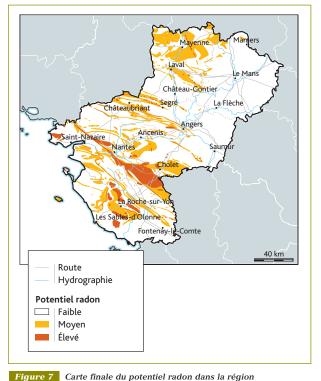
De plus, sur la base des données de la « littérature » et des caractéristiques chimiques des formations géologiques des Pays de la Loire, les séries particulières qui pourraient présenter une teneur en uranium plus élevée que la valeur généralement observée sur ces lithologies ont pu être distinguées. Il s'agit de séries sédimentaires et volcanosédimentaires riches en charbons d'âge carbonifère et des grès armoricains d'âge ordovicien.

Par ailleurs, la localisation d'exploitations minières d'uranium ou de charbon a également permis de localiser certaines formations géologiques uranifères (*figure 4*). Le réajustement de la teneur en uranium de ces formations particulières a conduit à la réalisation de la carte du « potentiel source 2 » (*figure 5*).

Détermination et prise en compte de facteurs aggravants pouvant favoriser l'exhalation du radon à la surface

L'ensemble des facteurs susceptibles d'augmenter l'exhalation du radon, recensés à partir des données disponibles, sont reportés sur la carte de la *figure 6* : failles majeures et failles actives, zones





concernées par des travaux miniers souterrains, terrils, sources thermominérales.

Les failles majeures affectent essentiellement les formations du socle dans la moitié sud de la région et sont principalement liées au cisaillement sud-armoricain. Les sites miniers comprenant des travaux souterrains et des ouvrages débouchant au jour ont pu être recensés. Il s'agit d'exploitations d'uranium, de charbon au sens large, de fer et d'autres minerais polymétalliques.

Dans la région des Pays de la Loire, trois sources thermales ont été répertoriées à partir de la carte au 1/1 000 000° des eaux minérales et thermales de France.

Carte du « potentiel radon » des Pays de la Loire

La carte obtenue pour la région des Pays de la Loire est reportée dans la *figure* 7. Dans cette région, il est à noter que le potentiel radon des formations géologiques est fortement variable et très hétérogène d'un département à l'autre. Dans la réglementation en vigueur, les départements de cette région ne sont pas définis comme prioritaires. Les informations reportées sur la carte montrent que le potentiel radon est pourtant élevé sur une partie du territoire de ces départements, notamment ceux de la Loire-Atlantique, de la Vendée et du Maine-et-Loire.

Dans le département de la Mayenne, le potentiel radon est majoritairement faible à moyen. Le département de la Sarthe aurait un potentiel majoritairement faible.

des Pays de la Loire.

Il est à noter que le travail de comparaison préalablement effectué [lelsch, 2007] de la carte du potentiel radon obtenue par la même méthode avec les résultats disponibles de la mesure de l'activité volumique du radon dans l'habitat, sur une zone test située en Bourgogne, a été en grande majorité concluant. Il est envisagé de réaliser un travail semblable à l'échelle nationale, une fois la cartographie du potentiel radon terminée sur l'ensemble du territoire métropolitain.

■ Conclusion

La cartographie de la capacité potentielle des formations géologiques à produire du radon, actuellement menée par l'IRSN à la demande de l'ASN, a pour objectif de fournir des cartes départementales et régionales couvrant la totalité du territoire métropolitain (96 départements), à la précision de la carte géologique de la France au 1/1 000 000°. L'ensemble des régions sera couvert à la fin de l'année 2009. La démarche appliquée vise à estimer le potentiel des terrains à produire du radon dans le sol, celui-ci constituant la source principale du radon dans les bâtiments. Celle-ci est fondée sur la compilation et l'exploitation des données géologiques disponibles, provenant de cartes, de banques d'informations, de résultats de travaux de recherches, etc., et ne nécessite pas d'investigation complémentaire sur le terrain. La méthode mise en œuvre se veut globale et homogène à l'échelle du territoire métropolitain.

La mise en œuvre de cette méthode permet d'envisager un zonage plus précis que l'échelle du département, adapté pour déterminer les communes qui pourraient être le plus concernées par la problématique liée au radon et respectant de manière plus objective la variabilité de l'émission de radon par les terrains. La carte obtenue pourra conduire à un découpage des départements pour une meilleure définition des zones prioritaires.

La représentativité de la cartographie établie suivant cette méthode a évidemment ses limites. Certaines sont inhérentes à la précision de la source d'information utilisée (définition de la carte géologique utilisée). L'échelle du 1/1 000 000° ne permet ni de discriminer les variations de faciès au sein d'une unité géologique, ni de tenir compte d'unités géologiques d'extension

restreinte (inférieure au kilomètre), telles que des filons, des enclaves, des formations superficielles, etc. Les cartes prédictives obtenues ne permettent donc que de disposer d'une tendance générale du « potentiel radon », sans qu'il puisse être exclu d'observer, par la mesure directe du radon dans l'environnement ou dans les bâtiments, des anomalies telles que des activités volumiques de radon élevées dans un environnement à faible potentiel et inversement.

De plus, les cartes obtenues ne fournissent des informations que sur la source principale du radon dans les bâtiments que constituent les terrains et ne doivent en aucun cas être utilisées pour estimer les concentrations de radon dans un bâtiment. Pour cela, il est nécessaire de tenir compte des caractéristiques propres du bâtiment, du mode de vie des occupants, des phénomènes de transfert du radon à l'interface sol/bâtiment et dans le bâtiment lui-même, etc. Seule une mesure directe de la concentration en radon dans l'atmosphère intérieure d'un bâtiment peut garantir un résultat fiable à cette échelle.

Il est à rappeler que la demande de l'ASN s'inscrit dans le cadre du plan d'actions interministériel pour la gestion du risque lié au radon et vise à répondre aux objectifs fixés par le Plan national santé environnement, ainsi qu'aux besoins exprimés par de nombreux acteurs locaux.

- J.-D. Appleton (2007). Radon: Sources, health risks, and hazard mapping. Ambio 36(1): 85-89.
- I. Barnet et I. Fojtíková (2006). Radon index of bedrock and its influence on strategy of detection of radon risk dwellings in the Czech Republic. Zprávy o geologických výzkumech v roce 2005, 128-132,CGS, Praha. ISBN 80-7075-667-5.
- P. Bossew, G. Dubois (2006). From Babel to the Round Table of Camelot: on setting up a common language and objective for European radon risk mapping. Part II. Harmonization and standardization of radon data and maps. In: Proceedings of the 8th International Workshop on the geological aspect of radon risk mapping, p. 88-97, I. Barnet, M. Neznal, P. Pacherova (Eds). 26-30 September 2006, Prague, Czech Republic.
- Chantraine et al., (2003). Carte géologique de la France au 1/1 000 000°, 6° édition révisée, BRGM Orléans.
- S. Demongeot (1997). Recherche des différents paramètres caractérisant le potentiel d'exhalation en radon des sols. Thèse de doctorat, université de Franche-Comté,
- G. Dubois (2005). An overview of radon surveys in Europe. EUR 21892 EN, EC. 168 p.
- G. Dubois, P. Bossew (2006). A European Atlas of Natural Radiations including harmonized radon maps of the European Union. What do we have, what do we know, quo vadimus? In: Proceedings of the Terzo Convegnio Nazionale. Controllo ambientale degli agenti fisici: dal monitoraggio alle azioni di risanamento e bonifica, 7-9 June 2006, Biella, Italy. ARPA Piemonte, ISBN-10: 88-7479-099-3.
- G. Dubois, P. Bossew (2006). From Babel to the Round Table of Camelot: on setting up a common language and objective for European radon risk mapping. Part I. Radon risk maps, different maps for different purposes. In: Proceedings of the 8th International Workshop on the geological aspect of radon risk mapping, p. 39-48, I. Barnet, M. Neznal, P. Pacherova (Eds). 26-30 September 2006, Prague, Czech Republic.
- G. lelsch (2003). Méthodologie de cartographie prédictive du potentiel d'exhalation du radon à la surface des sols : bilan des projets de recherche et validation complémentaire. Rapport IRSN DEI/SARG n° 03-02, octobre 2003.
- G. lelsch (2005). La cartographie radon des territoires Synthèse des approches utilisées en France et proposition d'éléments méthodologiques généraux. Rapport IRSN DEI/SARG/2005-06, mars 2005.
- G. lelsch (2007). Définition des zones prioritaires pour la gestion du risque lié au radon dans les bâtiments Application de la méthode dite indirecte aux trois départements de Bourgogne. Rapport IRSN DEI/SARG/2007-026, mai 2007.
- G. lelsch (2008). Mapping of the geogenic radon potential in France to improve radon risk management: methodology and first application to region Bourgogne. The 9th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping (12-13tt August 2008), into the 33td International Geological Congress; Oslo, Norway (6-14th August 2008).
- G. lelsch, M. Cuney (2004). Cartographie prédictive du potentiel d'exhalation du radon 222 à la surface des sols : exemple d'application dans le massif armoricain. Environnement, Risque et Santé, Vol 3, nº 1, janvier-février 2004, p. 35-43.
- G. lelsch, C. Ferry, G. Tymen, M.-C. Robé (2002). Study of a predictive methodology for quantification and mapping of the radon 222 exhalation rate. Journal of Environmental Radioactivity, 63(1): 15-33.
- G. lelsch, D. Haristoy (2001). Mise au point d'une méthodologie permettant l'élaboration d'un outil cartographique prédictif en vue d'identifier les zones potentiellement exposées à de fortes concentrations de radon (2 volumes). Rapport IPSN-BRGM Réf. IPSN/DPRE/SERGD RT 01-05.
- G. lelsch, D. Thiéblemont, V. Labed, P. Richon, G. Tymen, C. Ferry, M.-C. Robé, J.-C. Baubron, F. Béchennec (2001). Radon (222Rn) level variations on a regional scale: influence of the basement trace elements (U, Th) geochemistry on radon exhalation rates. Journal of Environmental Radioactivity, 53(1): 75-90.
- J. Kemski, R. Klingel, A. Siehl, M. Valdivia-Manchego (2008). From radon hazard to risk prediction-based on geological maps, soil gas and indoor measurements in Germany. Environ Geol. DOI 10.1007/s00254-008-1226-z.
- J.-C.-H. Miles, J.-D. Appleton (2005). Mapping variation in radon potential both between and within geological units. Radiol. Prot. 25 257-276.
- I.-I. Risler et al., (2004), Carte des eaux minérales et thermales de France au 1/1 000 000° (BRGM),

1.8

CARTOGRAPHIE D'OCCUPATION DU TERRITOIRE AUTOUR DES SITES NUCLÉAIRES

pour l'évaluation des risques sanitaires et radiologiques

Vanessa PARACHE

Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin

- Les projets SENSIB (Sensibilité radioécologique) de l'IRSN, CONCERT (Comment lever les conservatismes en évaluation des risques environnementaux et sanitaires) d'EDF et MRISQ (Maîtrise des risques, études d'impact dans l'environnement) du CEA partagent l'objectif d'améliorer les évaluations des conséquences sur l'homme et l'environnement des rejets de polluants, radioactifs ou non, chroniques ou accidentels, par une meilleure prise en compte des spécificités des territoires. Cet objectif passe par l'acquisition de connaissances actualisées et précises sur les caractéristiques des territoires et notamment sur celles qui influent de façon prépondérante sur les évaluations de risque.
- La collaboration scientifique montée en 2007 entre les trois partenaires avait pour objectif d'acquérir les connaissances en termes d'occupation du territoire autour des sites nucléaires français, au travers de l'utilisation d'un système d'information géographique. Par occupation du territoire, d'un point de vue environnemental, on entend principalement l'occupation agricole des sols et l'utilisation des ressources en eau. Après analyse des bases de données spatiales existantes, il est apparu que les informations contenues étaient limitées, en raison notamment de l'imprécision liée à l'agrégation des données, de l'impossibilité de lever le secret statistique, du problème du statut des données et des difficultés à les spatialiser. L'approche a alors consisté à effectuer des enquêtes de terrain permettant de vérifier, compléter

- et préciser les fonds cartographiques et les bases de données existants. Les informations ont été complétées par des données ayant trait aux pratiques locales d'alimentation et d'autoconsommation, par l'établissement d'une méthodologie issue des résultats obtenus autour du site du Tricastin en 2005 et également suite à l'enquête alimentaire menée autour du site de Chinon en 2008⁽¹⁾. La méthodologie et les objectifs de l'étude sont présentés sur la *fiqure 1*.
- Les données rassemblées, qui concernent à l'heure actuelle les sites de Chooz, Tricastin et Chinon, ont un intérêt aussi bien dans un contexte d'accident nucléaire (justification et mise en place de contre-mesures, etc.) que dans un contexte d'évaluation plus réaliste des risques associés aux rejets chroniques (caractérisation des groupes de référence et de leurs pratiques). Un exemple de résultats (Tricastin, 2008) est présenté dans la *figure 2*.
- Ces données mutualisées permettront, d'une part, de constituer une base de données actualisées, réalistes et régionales pour la définition des scénarios d'exposition des populations et, d'autre part, d'évaluer la part de la sensibilité radioécologique des territoires qui provient de la variabilité de l'occupation agricole des sols.

⁽¹⁾ L'étude bénéficie du soutien financier de l'Ademe.

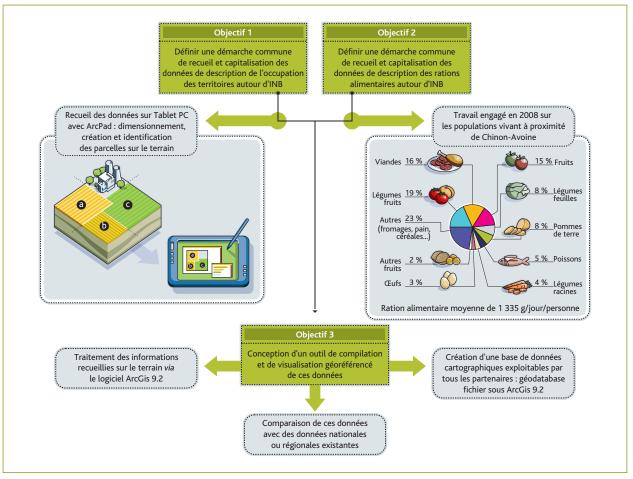


Figure 1 Caractérisation cartographique de l'occupation du territoire : méthodologie et objectifs.

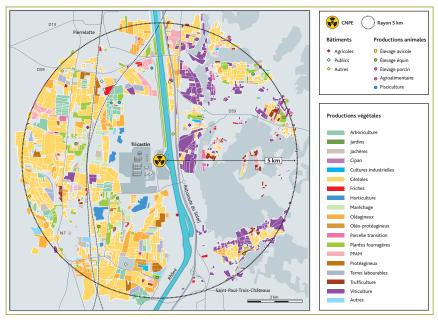


Figure 2 Mise à jour des données d'occupation du territoire agricole dans un rayon de 5 km autour du Tricastin.

1.9

SYMBIOSE:

une plate-forme de modélisation et de simulation du risque radiologique sanitaire et environnemental

Marc-André GONZE, Christophe MOURLON, Laurent GARCIA-SANCHEZ, Séverine LE DIZES-MAUREL, Christian TAMPONNET, Victor CHEN, Philippe CALMON

Laboratoire de modélisation environnementale

Emmanuel VIEILLETOILE, Fabien VERMOREL

Loïc PILORGET, Aurélien CAVALAN, Mathieu NOBLET CRIL Technology

Lionel CHAILAN, Houda LABIDI, Matthieu JOBELIN ASSYSTEM France

- SYMBIOSE (Simulation de l'impact sur l'homme d'une contamination radioactive dans l'environnement) est un programme de recherche et développement, cofinancé par EDF, dont l'objectif est de développer une plate-forme de modélisation des transferts de radionucléides dans les écosystèmes, ainsi que de leur impact dosimétrique sur l'homme et l'environnement (faune et flore). Cet outil, développé au sein du Laboratoire de modélisation environnementale de l'IRSN, a pour vocation d'accompagner les études d'évaluation du risque radiologique pour une large gamme de problématiques : fonctionnement normal ou accidentel des installations nucléaires. démantèlement des installations. évaluation de sûreté des installations de stockage de déchets.
- La dernière version mise en production industrielle (SYMBIOSE V1.1) a été livrée en juin 2008 aux unités intéressées, dont : la Direction de l'environnement et de l'intervention/le Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes, le Service des situations d'urgence et d'organisation de la crise, la Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets/ le Service de sûreté des irradiateurs, des accélérateurs et de la gestion des déchets, la Direction de la radioprotection de l'homme/le Service d'études et d'expertise en radioprotection, EDF/Septen (CNPE en fonctionnement accidentel) et EDF/Ciden (CNPE en fonctionnement normal et démantèlement).

Le système modélisé

Les milieux et processus modélisés dans la plate-forme SYMBIOSE V1.1 sont représentés dans *la figure 1*. Le domaine modélisé couvre les systèmes fluviaux et marins, les systèmes agricoles, les sols de subsurface (zone non saturée), le système alimentaire et l'homme, ainsi que quelques interactions à leurs interfaces. Les interactions avec les systèmes non modélisés (en particulier le système atmosphérique avec les dépôts secs ou humides, les installations et leurs rejets liquides) sont considérées comme des données d'entrée. Les principales grandeurs calculées sont des activités, (bio)masses, flux, débits de dose et doses à l'homme.

La gamme des radionucléides traités inclut près de 60 éléments chimiques, dont l'hydrogène, le carbone et le chlore, éléments pour lesquels une modélisation spécifique a été adoptée. La prise en compte des filiations radioactives est programmée pour fin 2009.

Le domaine ainsi couvert est modélisé au travers d'une cinquantaine de sous-modèles (ou modules). Un module est dédié à un sous-système particulier (ex.:chaîne trophique fluviale, processus de collecte des aliments) ou un groupe de radionucléides spécifique (ex.: 3_H et 14_C). Deux modules peuvent aussi ne se différencier que par leur niveau de complexité dans la résolution des mécanismes ou des équations décrivant les mécanismes bio-physico-chimiques (approches empirique ou mécaniste, approches réaliste ou conservative), ou par la gamme d'échelles spatio-temporelles couverte.

(SYSTÈME ATMO)	(Dépôt)		(Dépôt)			Inhalation (Externe)	
	SYSTÈME FLUVIAL		Irrigation pour l'abreuvage des animaux	X	Récolte de nourriture et collecte d'eau	Inhalation Externe	
		SYSTÈME MARIN			Récolte de nourriture	Inhalation Externe	
			SYSTÈME AGRICOLE	Migration	Récolte de nourriture	Inhalation Externe	
			Irrigation	VADOZE	Collecte d'eau		
			Alimentation animale		SYSTÈME ALIMENTAIRE	Ingestion	
						НОММЕ	
	(Rejet)	(Rejet)		(Rejet)			(SYSTÈME DE REJET)

Figure 1 Matrice d'interaction explicitant les composants (en diagonale) et les interactions entre composants (hors diagonale) modélisés dans la plate-forme SYMBIOSE V1.1. En italique sont indiqués des composants non modélisés (système atmosphérique et installation) bien qu'ils influencent le système par le jeu d'interactions (rejets, dépôts et doses externes dues au panache).

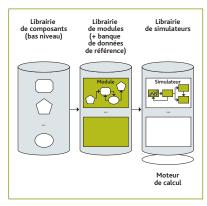


Figure 2 Schéma simplifié de l'architecture de la plate-forme SYMBIOSE V1.1.

Les prévisions dans le temps pour les grandeurs calculées sont représentées pour chacun des modules, sur un support spatial qui lui est propre ou qu'il partage avec d'autres modules (ex.: grille de calcul, réseau monodimensionnel, collection de points distribués dans l'espace). Cette approche modulaire confère à SYMBIOSE une grande flexibilité, en permettant notamment la mise en œuvre de simulations plus ou moins complexes selon l'objectif recherché.

La plate-forme

Comme indiqué dans la figure 2, la plateforme SYMBIOSE est structurée autour des quatre composants logiciels suivants:

- une librairie de modules, incluant une banque de valeurs de référence pour l'ensemble des paramètres radioécologiques impliqués dans le système à modéliser;
- une librairie de simulateurs ;
- un moteur de calcul;
- une librairie de composants bas niveau résultant d'une décomposition élémentaire des modules.

Un simulateur est un code de calcul construit par interfaçage de modules préexistants dans la plate-forme. La résolution en temps et en espace du système d'équations sousjacent à chaque simulateur est assurée par le moteur de calcul. Ce dernier est doté de solveurs numériques variés, permettant de traiter des systèmes à dynamique temporelle complexe (ex.: coexistence de soussystèmes rapides et lents, ou continus et discontinus). L'introduction de méthodes probabilistes pour la prise en compte des incertitudes et de méthodes d'analyse de sensibilité est programmée pour fin 2009.

Une telle architecture permet en fait d'accueillir une large gamme d'activités métier en radioécologie, de la simple recherche d'information au développement de modules et simulateurs, ainsi qu'à la conduite d'études à l'aide de simulateurs clés en main.

1.10

LA CRÉATION DU GROUPEMENT NATIONAL DE RECHERCHE TRASSE au sein du programme PACEN (CNRS)

Denise STAMMOSE

Laboratoire de recherche sur le stockage géologique des déchets et les transferts dans les sols



Figure 1 Plate-forme expérimentale de Tchernobyl.

- Dans le cadre du Programme interdisciplinaire sur l'aval du cycle et de l'énergie nucléaire (PACEN), l'IRSN et le CNRS ont étendu, en 2008, leur partenariat sous la forme d'un Groupement national de recherche (GRN) sur le transfert des radionucléides dans le sol, le sous-sol et vers les écosystèmes (TRASSE). La création de ce GNR s'inscrit pleinement dans les missions de recherche de l'IRSN sur les risques nucléaires et radiologiques, et renforce la position du CNRS en tant qu'acteur des recherches sur l'aval du cycle électronucléaire, conformément à la loi 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs.
- TRASSE permettra d'accélérer le développement des connaissances et des compétences scientifiques des équipes

- de recherche du CNRS et de l'IRSN, dans le domaine des mécanismes de transfert des radionucléides dans l'environnement complexe de la surface terrestre et de la biosphère, via des courts-circuits des barrières de confinement d'un site de stockage ou d'entreposage de déchets radioactifs.
- TRASSE permettra également une meilleure valorisation des outils expérimentaux dont dispose déjà l'IRSN la station expérimentale (souterraine) de Tournemire et la plate-forme d'expérimentation T22, située dans la zone d'exclusion de Tchernobyl en les ouvrant plus largement aux équipes du CNRS présentes au sein d'unités mixtes de recherche mêlant chercheurs, ingénieurs et doctorants du CNRS, des universités et des grandes écoles. Le GNR est financé à égalité par les deux partenaires et pourrait s'ouvrir ultérieurement à d'autres.



Figure 2 Station expérimentale de Tournemire.

■ Un premier appel à projets a été publié en avril 2008. Après l'évaluation par le conseil scientifique du Groupement des projets soumis, son conseil en a retenu neuf sur la base de considérations à la fois scientifiques et budgétaires. La plupart de ces projets, prévus sur deux ans, sont portés par des associations d'équipes CNRS/IRSN et s'appuient sur les deux plates-formes expérimentales présentées (figures 1 et 2). Un second appel à projets doit être élaboré, au début de l'année 2009, pour une parution à la fin du premier semestre de l'année 2009.



ÉTUDE DES TRANSFERTS FOLIAIRES DES RADIONUCLÉIDES DANS LA BIOSPHÈRE :

une étude dans le « potager » de Tchernobyl, soutenue par l'Andra

Pierre HURTEVENT, Chantal MADOZ-ESCANDE Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie

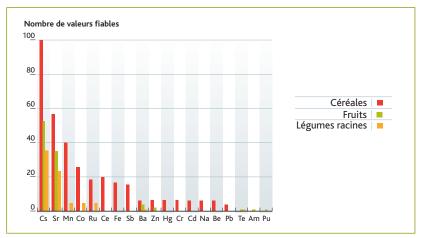
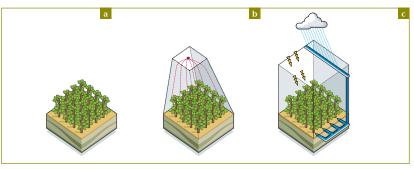


Figure 1 Distribution du nombre de valeurs fiables de facteurs de translocation par élément.

Le travail de synthèse bibliographique et d'expertise des valeurs de paramètres de transfert foliaire dans la biosphère (index de surface foliaire et coefficient de translocation caractérisant l'absorption foliaire et la mobilité d'un élément dans la plante), réalisé par l'IRSN en réponse à une demande de l'Andra (participation au groupe de travail consacré à la révision du Technical Report Series nº 364 de l'AIEA, programme EMRAS 2003-2007), a mis en évidence d'importants manques de connaissances concernant les coefficients de translocation, notamment pour les situations de contamination chronique résultant d'irrigations par aspersion réparties tout au long du cycle végétatif d'une culture. En effet, la majorité des données disponibles sont relatives au césium et au strontium (figure 1); bien que d'autres radionucléides aient fait l'objet d'investigations,

celles-ci sont insuffisantes pour permettre d'en tirer des valeurs fiables, quand elles existent. C'est le cas pour trois radionucléides d'intérêt identifiés par l'Andra, concernant les doses reçues par l'homme par ingestion directe de produits végétaux dans des scénarios d'entreposage à long terme de déchets HAVL: le ³⁶Cl, l'¹²⁹I et le ⁷⁹Se.

■ Le projet FORTRESS⁽¹⁾, démarré fin 2007, a pour objectif d'obtenir expérimentalement des valeurs de facteurs de translocation aux organes consommés pour les principales catégories de plantes cultivées (quatre espèces) pour les trois radionucléides précités. Ces expérimentations mettent en jeu une aspersion globale du feuillage afin de simuler une irrigation par aspersion et de déterminer une valeur réaliste de facteur de translocation. La prise en compte des processus ayant une



Les trois étapes clés successives des expérimentations de transfert foliaire, la protection du sol (a), la contamination-interception foliaire (b) et la conduite de culture avec son dispositif antipluvial et de redistribution des précipitations au pied des cultures (c).

influence majeure (modalités de contamination chronique ou ponctuelle et stades phénologiques clés), ainsi que l'échelle d'approche (plein champ) doivent permettre l'acquisition de valeurs de facteurs de translocation transposables aux conditions réelles. Afin d'obtenir une valeur de facteur de translocation reflétant strictement une contamination foliaire, le sol est protégé de toute contamination et la canopée protégée des précipitations dans le but d'éviter les interférences avec les transferts racinaires et le lessivage pluvial (figure 2). Il est également procédé à la détermination des facteurs d'interception et des indices de surface foliaire au cours du temps, ces derniers permettant d'évaluer la normalité du développement des cultures mais aussi d'enrichir la base de données disponible.

La réalisation de cette étude est planifiée sur 36 mois et est cofinancée par l'Andra. Elle est effectuée sur le site expérimental de plein champ utilisé par l'UIAR(2) dans la zone d'exclusion à proximité du réacteur accidenté de Tchernobyl, site sur lequel se sont déjà déroulés les projets expérimentaux d'étude des transferts sol-plantes MITRIC(3) (2000-2004) et MITRA(4) (2004-2007), dans le cadre de collaborations bipartites IRSN-UIAR. La mise en œuvre de ce type d'expérimentation est très complexe compte tenu de son caractère innovant (conditions naturelles, radionucléides employés) et ce d'autant plus qu'il est visé

d'atteindre un niveau de précision sur les facteurs de translocation de l'ordre de 10 %. Au-delà de l'aspect scientifique, l'enjeu technique de l'étude porte donc principalement sur la conception et le dimensionnement du dispositif expérimental à mettre en place, pour obtenir une dispersion des valeurs aussi faible que possible qui nous assure ainsi d'une bonne reproductibilité des expériences. La surface cultivée totale ne pouvant pas être étendue compte tenu des implications en termes de moyens (infrastructure, main-d'œuvre), l'ensemble des considérations techniques à prendre en compte pour la réalisation du dispositif a été étudié à l'aide d'un système d'analyse, de façon à obtenir un dimensionnement optimal.

■ En particulier, il est apparu que la bonne maîtrise de la phase de contamination aura une contribution majeure pour l'atteinte des objectifs en termes de qualité des résultats. Sa mise au point est l'enjeu principal du premier cycle de culture (2008). Ce cycle est également dédié à la mise en place du dispositif et à l'évaluation de son efficacité ; des essais en milieux contrôlés (serres) seront menés en parallèle pour les essais préliminaires à une application plein champ. Les résultats de ce premier cycle cultural sont attendus pour la fin 2008 et le retour d'expérience doit bénéficier aux deux cycles culturaux suivants qui, eux, doivent s'effectuer de façon maîtrisée.

⁽¹⁾ Foliar transfers of radionuclides in agricultural

⁽²⁾ Ukrainian institute of agricultural radiology.

⁽³⁾ Migration et transfert de l'iode et du chlore.

⁽⁴⁾ Migration et transfert des actinides.

1.12

PROJET MÉDIUM:

étude du mélange et de la dispersion des sédiments par l'utilisation de marqueurs particulaires dans l'estuaire de la Seine

Dominique BOUST Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville L'estuaire de la Seine est l'exutoire unique d'un bassin-versant, fortement marqué par l'homme, de près de 75 000 km². Le fleuve y apporte chaque année quelques millions de tonnes de particules sédimentaires porteuses de nombreux contaminants, provenant des activités humaines. Ce flux de particules sédimentaires est partiellement expulsé en Baie de Seine orientale au rythme des crues du fleuve ; il y provoque l'envasement de zones d'intérêt halieutique (frayères pour les poissons) ou touristique (plages du Calvados) et le développement de vasières subtidales. Ces processus sont accélérés par le remplissage naturel de l'estuaire et la modification de sa géométrie induite par les aménagements portuaires. Dans le même temps, des particules sédimentaires d'origine marine se mélangent au stock estuarien ainsi formé et contribuent au comblement de l'estuaire. Elles peuvent même pénétrer bien en amont, jusque dans la région rouennaise, comme l'attestent les concentrations décroissantes vers du 60Co l'amont, ce radionucléide étant majoritairement relâché par l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague.

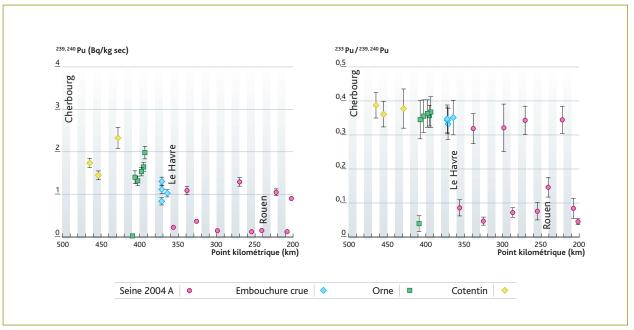
L'objectif du projet MÉDIUM (2004-2007) était de caractériser ces deux voies d'apport de particules sédimentaires, marine et fluviatile, à l'aide de marqueurs minéralogiques, comme les argiles, et géochimiques (éléments stables et radionucléides), de façon à comprendre leur contribution respective sur une aire géographique allant du barrage

de Poses, situé à 40 kilomètres en amont de Rouen, jusqu'à la côte est du Cotentin.

■ La contribution du Laboratoire de radiochimie de l'IRSN a consisté à utiliser des radionucléides d'origines naturelle et artificielle présents dans la fraction fine (inférieure à 50 µm) des sédiments, pour répondre à la question posée. Nous en donnons ci-après une illustration, fondée sur des mesures de ²³⁸Pu et ²³⁹, ²⁴⁰Pu.

La *figure 1* montre l'évolution des activités du PU²³⁹⁺PU²⁴⁰ et du rapport d'activité ²³⁸Pu/^{239, 240}Pu dans les fractions fines des sédiments entre le barrage de Poses (limite amont de la marée dynamique) et Cherbourg.

Comme attendu, les stations situées à l'amont des barrages dans la Seine et l'Orne présentent des activités faibles de 239, ²⁴⁰Pu et des rapports ²³⁸Pu/^{239, 240}Pu caractéristiques des retombées des essais atmosphériques, hors de toute influence industrielle. Pour les autres stations, les activités mesurées de ^{239, 240}Pu font clairement apparaître deux ensembles : d'une part, des valeurs inférieures à 0,4 Bq.kg⁻¹ sec (certaines stations des berges de la Seine), d'autre part, des valeurs comprises entre 0,8 et 1,2 Bq.kg⁻¹ sec, montrant une augmentation de la contamination dans l'embouchure et dans la Baie de Seine occidentale, y compris dans l'Orne. Les valeurs du rapport d'activité ²³⁸Pu/^{239,} ²⁴⁰Pu (RI) permettent de conforter cette distinction.



Activités de ²³⁸Pu et de ²³⁸Pu et rapport d'activité ²³⁸Pu/²³⁹, ²⁴⁰Pu dans les fractions fines des sédiments entre Poses (PK201) et Cherbourg (l'origine des points kilométriques est à Paris, au pont Marie).

- Aux activités les plus faibles de ^{239+ 240}Pu correspondent des rapports isotopiques peu élevés, compris entre 0,07 et 0,15; aux autres stations, dans la Seine, à son embouchure et en Baie de Seine (y compris l'Orne), les activités les plus élevées correspondent à des rapports isotopiques compris entre 0,34 et 0,39.
- Ces observations montrent que l'ensemble du continuum Seine-Baie de Seine, y compris l'Orne jusqu'au barrage situé à 16 km en amont de son embouchure, est envahi par un stock sédimentaire relativement homogène, qui porte l'empreinte de particules marines marquées par les rejets de l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague (rapport isotopique de 0,4). Les rapports isotopiques plus faibles mesurés dans quelques stations de la Seine s'expliquent par le mélange en proportions variées d'un stock très ancien exclusivement marqué par les retombées atmosphériques (RI = 0,04) et d'un stock clairement marqué par les rejets de l'usine de La Hague (RI = 0,4).
- La comparaison avec des mesures réalisées en 1995 montre qu'il a fallu une dizaine d'années pour que la pénétration de particules marines s'étende jusqu'à Poses et demeure de façon pérenne sur l'ensemble du cours du fleuve.
- Le projet MÉDIUM a été financé par le GIP Seine aval; il a été réalisé en collaboration avec l'équipe UMR-CNRS 6143 M2C, Laboratoire de morphodynamique continentale et côtière, universités de Caen et de Rouen.

1.13

RADIOACTIVITÉ CHEZ LES ORGANISMES de sites hydrothermaux sous-marins

Sabine CHARMASSON, Antoine LE FAOUDER

Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin

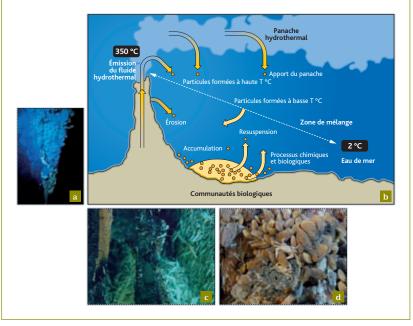
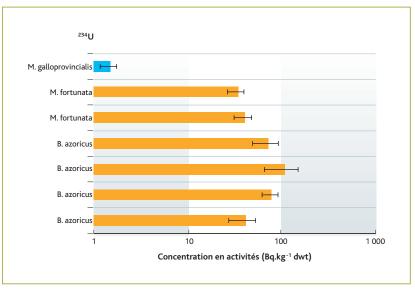


Figure 1 a) Fumeur noir. b) Schéma de fonctionnement d'une source hydrothermale.
c) Essaim de crevettes. d) Colonie de modioles.

- Les sources hydrothermales localisées le long des dorsales océaniques sont connues depuis la fin des années 1970. Elles constituent certainement l'une des plus grandes découvertes de ces trente dernières années en océanographie et dans le domaine du fonctionnement des écosystèmes.
- La circulation hydrothermale prend naissance dans le réseau de fissures et de crevasses qui se développe au cours du refroidissement du magma. L'eau de mer, dense et froide, s'infiltre par ces anfractuosités au sein de la croûte océanique et circule au contact des roches volcaniques. À l'approche des chambres magmatiques, elle s'échauffe par conduction et voit sa densité diminuer. L'eau de mer lessive les roches basaltiques et sa composition

physico-chimique évolue : elle se réchauffe, s'acidifie, se charge en sels minéraux, en éléments métalliques (Zn, Mn, Fe, Si), en radioéléments (familles U-Th) et en gaz dissous. Sous l'effet de la pression, le fluide ainsi formé (re)jaillit au niveau du plancher océanique en des points focalisés. Lorsque le fluide atteint le fond de l'océan, son refroidissement brutal, dû au fort gradient thermique, provoque la précipitation massive des éléments transportés (figure 1). En s'accumulant, les particules finissent par construire des cheminées, d'où leur nom de « fumeurs », qui peuvent atteindre jusqu'à 2 m de diamètre et 15 m de hauteur, par lesquelles le fluide chaud continue de sortir. La composition du fluide hydrothermal, son débit et sa température sont variables d'un site à l'autre et même d'un point d'émission

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo



re 2 Activités en ²³⁴U (Bq.kg⁻¹ poids sec) des tissus mous d'organismes hydrothermaux (modioles Bathymodiolus azoricus et crevettes Microcaris fortunata) comparées à celles d'une moule côtière (Mytilus galloprovincialis).

à l'autre, en fonction du degré de mélange du fluide à l'eau de mer.

■ En dépit du caractère extrême de ces environnements, de nombreuses espèces, pour la plupart endémiques, sont présentes dans la zone de mélange entre le fluide hydrothermal et l'eau de mer, où les conditions sont extrêmement fluctuantes. La biomasse peut atteindre 50 kg de matière vivante par mètre carré mais la diversité spécifique est relativement faible. Cette « explosion » de vie dans un milieu sans lumière, où la quantité de matière organique venant de la surface est sans rapport avec les biomasses observées par ailleurs, a surpris l'ensemble de la communauté scientifique. La découverte dans les tissus de beaucoup de ces organismes de bactéries capables d'utiliser l'énergie libérée par la transformation chimique de certains composés du fluide hydrothermal, en particulier l'hydrogène sulfuré, a remis en question les processus de la genèse de la vie sur Terre.

■ Le premier objectif du projet mené par l'IRSN est de valider l'hypothèse d'une radioactivité naturelle élevée au sein de l'écosystème hydrothermal et notamment dans la faune chimiosynthétique qui le compose. Pour ce faire, les niveaux d'imprégnation en radioéléments de certains organismes (moules, crevettes) qui colonisent ces systèmes ont été déterminés. La radioactivité mesurée (U et Th par ICP-MS, Po et Pb par comptage alpha) est supérieure d'un à deux ordres de grandeur à celle mesurée dans les organismes côtiers (figure 2). De telles valeurs révèlent une exposition chronique à une toxicité radiologique et chimique.

L'étude des niveaux d'imprégnation par les contaminants est d'un intérêt considérable pour la compréhension des phénomènes écotoxicologiques, particulièrement la bioaccumulation et les transferts par les chaînes trophiques. L'objectif est ainsi de mettre en relation les niveaux d'imprégnation établis et le développement par les organismes étudiés d'une résistance à la forte toxicité environnante, indispensable à leur survie.

LES FAITS MARQUANTS

en quelques dates

SOUTENANCE D'HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

25 ianvier 2008

■ Laurent POURCELOT a soutenu son habilitation à diriger des recherches (HDR) sur la « Variabilité des dépôts atmosphériques et des transferts des radioéléments artificiels dans les sols », au Centre de géochimie de la surface-CNRS à Strasbourg.

SOUTENANCES DE THÈSES

25 avril 2008

■ Bénédicte BRIAND a soutenu sa thèse sur la « Construction d'arbres de discrimination pour expliquer les niveaux de contamination radioactive des végétaux », à Cadarache.

13 juin 2008

Sandra LAGAUZERE a soutenu sa thèse sur l'« Influence de la bioturbation des macro-invertébrés benthiques sur le comportement biogéochimique de l'uranium au sein des sédiments d'eau douce », à Cadarache (Bouchesdu-Rhône).

9 septembre 2008

■ Olivia DARCHEVILLE a soutenu sa thèse sur le « Rôle des composantes géochimiques et microbiologiques d'un sol sur le comportement du sélénium en conditions oxiques et anoxiques », à Avignon.

27 octobre 2008

■ Pierre MAZET a soutenu sa thèse sur l'« Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau » à Fontenay-aux-Roses (Hauts-de-Seine).

30 octobre 2008

Florence ZEMAN a soutenu sa thèse sur la « Toxicité d'un mélange binaire sur la daphnie Daphnia magna : étude des effets biologiques de l'uranium et du sélénium seuls et en mélange », à Cadarache.

5 décembre 2008

François DUFOIS a soutenu sa thèse sur la « Modélisation du transport particulaire dans le Golfe du Lion en vue d'une application au devenir des traceurs radioactifs issus du Rhône ». à Toulon.

AUTRES FAITS MARQUANTS

Avril 2008

■ Nomination de Denis Boulaud comme vice-Président de la Commission scientifique de l'Institut national de recherche et de sécurité (INRS).

Mai 2008

■ Nomination de Frédérique Eyrolle parmi les 5 membres du comité scientifique de l'IASWS (International Association for Sediment Water Science).

Juillet 2008

■ Le projet HEMI-Breaks (Heavy-Metal Induced DNA strand Breaks), en collaboration avec le CEA et coordonné par l'INSERM, a obtenu un financement de l'ANR dans le cadre du programme contaminants, écosystèmes et santé. L'objectif est d'effectuer une étude systématique au niveau cellulaire des cassures double brin de l'ADN produites par les métaux traces. L'IRSN y étudiera les effets de l'uranium pour établir des liens entre ces cassures et les conséquences sur la fécondité des individus, la viabilité des œufs, et le développement embryonnaire chez des modèles animaux.

Juillet 2008

■ L'IRSN, Laboratoire national de référence radionucléides à partir du 1er juillet 2008
Reprenant la mission jusqu'alors confiée à l'Agence française de sécurité sanitaire des aliments (Afssa), l'IRSN a été désigné par la Direction générale de l'alimentation (DGAL)
Laboratoire national de référence radionucléides. À ce titre, l'IRSN animera le réseau des laboratoires agréés par la DGAL, organisera des essais interlaboratoires d'aptitude, réalisera, le cas échéant, des analyses officielles et confirmera les résultats des laboratoires. Cette nouvelle mission confirme le savoir-faire de

l'Institut en métrologie de la radioactivité et répond à un objectif de rationnalisation des compétences entre les acteurs concernés.

Octobre 2008

Organisation d'un séminaire avec les laboratoires participant aux essais interlaboratoires lorsque le prescripteur est l'ASN

La surveillance de la radioactivité dans l'environnement est l'une des missions de l'IRSN qui assure la gestion du réseau national de mesure de la radioactivité dans l'environnement prévu par l'article R. 1333-11 du code de la santé publique. Pour pouvoir alimenter ce réseau en données, les laboratoires de mesure doivent être agréés par l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN). Dans ce cadre, les laboratoires, en complément d'un dossier de demande d'agrément à présenter à l'ASN, se soumettent périodiquement à des essais interlaboratoires organisés par l'IRSN. C'est dans ce contexte que l'IRSN a organisé le premier séminaire sur les essais interlaboratoires de mesures de la radioactivité de l'environnement en octobre 2008. Pendant cette rencontre les différents aspects des essais ont été présenté aux 60 laboratoires participants.

Octobre 2008

■ PROTECT (Protection of the Environment from Ionising Radiation in a Regulatory Context), action de coordination EURATOM qui a réuni le Centre d'écologie et d'hydrologie anglais (CEH), l'Autorité de sûreté radiologique suédoise (SSM), l'Agence de radioprotection norvégienne (NRPA) et l'IRSN, s'est achevé en octobre 2008. Le consortium a émis plusieurs recommandations de portée internationale, cohérentes avec les travaux de l'UNSCEAR ou de la CIPR dans le domaine de la radioprotection de l'environnement.

Les accidents dans les installations nucléaires





2	LES ACCIDENTS dans les installations nucléaires	76
2.1	EFFET DU CONFINEMENT SUR UN FEU DE NAPPE dans un local ventilé mécaniquement	78
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
2.2	CARACTÉRISATION DE LA COMBUSTION d'un matériau liquide	89
2.3	SYNTHÈSE DES RÉSULTATS de l'essai FPT2 du programme PHÉBUS-PF	91
2.4	ÉLABORATION ET APPLICATION EN SÛRETÉ NUCLÉAIRE de la base de données thermodynamiques MEPHISTA relative au combustible	102
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
2.5	PROTECTION DES INSTALLATIONS NUCLÉAIRES CONTRE LES IMPACTS D'AVION: essais d'impact de projectiles déformables réalisés par VTT en Finlande	114
2.6	SARNET : réalisations majeures et perspectives	116
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
2.7	ÉTUDE DU COMPORTEMENT DE L'IODE DANS L'ENCEINTE DE CONFINEMENT D'UN RÉACTEUR ACCIDENTÉ : premiers résultats du programme EPICUR	129
2.8	ÉVALUATION DES CONSÉQUENCES D'ACCIDENTS MAJEURS EN PRÉSENCE D'AIR : progrès récents	131
2.9	LES FAITS MARQUANTS en quelques dates	139

LES ACCIDENTS dans les installations nucléaires

Michel SCHWARZ

Direction de la prévention des accidents majeurs

es installations nucléaires, qu'il s'agisse de réacteurs de production d'électricité, de réacteurs utilisés à des fins expérimentales ou de laboratoires du cycle du combustible sont des installations complexes en constante évolution. L'expertise des dispositions prises par leurs exploitants pour prévenir les accidents susceptibles de se produire ou en limiter les conséquences requiert des compétences pointues et une connaissance approfondie de l'ensemble des phénomènes impliqués.

C'est pourquoi l'Institut mène des recherches, notamment expérimentales, et développe des outils de calcul, le plus souvent dans le cadre de coopérations scientifiques avec d'autres laboratoires de recherche nationaux ou internationaux, des universités ou des organismes étrangers supports techniques d'autorités de sûreté.

Les articles qui suivent donnent un aperçu de sujets auxquels l'Institut consacre d'importants moyens de recherche.

■ Un départ de feu dans une installation nucléaire est, comme dans bien d'autres installations, un événement redouté. Il convient de le maîtriser rapidement avant que des organes importants pour la sûreté de l'installation ou le confinement des produits radioactifs contenus dans celle-ci soient rendus inopérants. C'est pourquoi l'Institut réalise des expériences en vraie grandeur afin de valider les outils avancés de simulation numérique qu'il développe et utilise pour évaluer les conséquences d'un feu. Deux articles sont consacrés à ce sujet :

- le premier présente une synthèse des études expérimentales réalisées par l'IRSN depuis plus de vingt ans sur les feux dans des locaux confinés et ventilés mécaniquement, qui sont caractéristiques des installations nucléaires ; cette question est abordée par l'IRSN selon deux axes complémentaires : la réalisation d'essais à échelle réelle mais aussi le développement d'outils de calcul ;
- le second illustre les recherches de base menées avec d'autres laboratoires, en l'occurrence l'Ineris, pour avancer dans la compréhension fine des mécanismes permettant de calculer la puissance d'un feu.
- La probabilité d'un accident majeur entraînant la fusion du cœur d'un réacteur est très faible, grâce à l'ensemble des dispositions prises par les exploitants pour l'éviter. Néanmoins, les rejets de produits radioactifs qui pourraient se produire dans un tel cas font l'objet d'études qui reposent sur un ensemble de travaux de recherche conduits dans le monde, mais surtout en France. Ils visent à valider le logiciel de simulation numérique ASTEC, développé en coopération étroite avec la GRS et devenu une référence en Europe. Cinq articles illustrent les importants travaux menés par l'Institut dans ce domaine :
- le premier présente une synthèse des résultats de l'essai FPT2, réalisé en 2004, dans le réacteur nucléaire d'essai PHÉBUS du CEA; il s'agissait d'un essai dit intégral, c'est-à-dire représentant aussi fidèlement que possible, à échelle réduite, l'ensemble des phénomènes se produisant lors de la fusion d'un cœur de réacteur à eau; les enseignements tirés sont extrêmement importants et ont permis de faire progresser significativement les connaissances;



- le deuxième article donne un aperçu des études menées à l'IRSN pour se doter des données nécessaires pour prédire d'une manière fiable la progression de la fusion du cœur d'un réacteur. Il faut en effet maîtriser les données thermodynamiques de base des composants qui le constituent et des systèmes dans lesquels ils peuvent se combiner;
- le troisième article décrit le succès qu'a connu le réseau d'excellence européen sur les accidents de fusion de cœur que l'Institut a dirigé lors des quatres dernières années et dont l'objectif était de coordonner l'ensemble des recherches menées en Europe dans ce domaine ;
- le quatrième article illustre les recherches menées par l'IRSN à l'aide d'un irradiateur installé à Cadarache sur le comportement de l'iode; l'isotope 131 de l'iode peut en effet conduire à des risques sanitaires importants en cas de rejet accidentel; l'Institut conduit de nombreux travaux sur ce thème et participe à de nombreux programmes internationaux;
- le cinquième article fait le point sur l'évolution des connaissances sur le comportement physico-chimique du ruthénium, un produit de fission qui, s'il était rejeté en grande quantité, pourrait conduire à un risque important. La physico-chimie joue un rôle majeur en ce sens qu'elle détermine la nature chimique sous laquelle un produit radioactif se trouve après avoir été relâché par le combustible en cas d'accident majeur. De cette nature dépend sa volatilité, c'est-à-dire sa propension à atteindre l'enceinte de confinement sous forme de gaz et à s'échapper dans l'environnement en cas de fuite.

L'enceinte de confinement d'un réacteur offre la dernière protection permettant d'éviter des rejets en cas de défaillance des deux autres « barrières » que constituent la gaine métallique entourant le combustible et le circuit primaire du réacteur. Le dernier article illustre les travaux menés par l'Institut pour évaluer la vulnérabilité aux chocs des ouvrages de génie civil.

EFFET DU CONFINEMENT SUR UN FEU DE NAPPE dans un local ventilé mécaniquement

Stéphane MELIS

Laboratoire d'étude de l'incendie et de développement de méthodes pour la simulation et les incertitudes

Laurent AUDOUIN, Hugues PRETREL

Laboratoire d'expérimentation des feux

L'IRSN étudie plus précisément depuis plus de vingt ans l'évolution d'un feu dans des locaux confinés et ventilés mécaniquement, caractéristiques des installations nucléaires. Pour les installations du cycle du combustible, ces études visent à mieux évaluer les conditions qui pourraient menacer le confinement des matières radioactives en cas d'incendie. Celui-ci peut en effet affecter ce confinement de différentes manières : soit en provoquant une mise en suspension de matière radioactive dans le bâtiment ; soit en perturbant les écoulements du réseau de ventilation qui assure en temps normal une dépression dans les locaux et un sens de circulation de l'air des zones peu contaminées vers les zones fortement contaminées ; soit en dégradant les filtres à très haute efficacité qui assurent le dernier niveau de filtration avant rejet à l'extérieur (échauffement par les gaz, colmatage par les suies) ; soit enfin en endommageant le confinement mécanique (portes coupe-feu, clapets) qui vise à assurer la sectorisation de l'installation. Une simulation correcte de ces phénomènes repose de manière cruciale sur une modélisation précise de la puissance dégagée par le foyer et de la durée du feu. Outre les effets d'échelle, un des points importants est l'interaction forte qui existe entre, d'une part, le développement d'un feu dans un environnement sous-oxygéné, d'autre part, le comportement aéraulique du réseau de ventilation. Depuis plusieurs années, cette question est abordée par l'IRSN selon deux axes complémentaires : la réalisation d'essais à échelle réelle, notamment dans le cadre des programmes FLIP (en collaboration avec Areva) et PRISME (mené sous l'égide de l'OCDE), mais aussi le développement d'outils de calcul comme ISIS - logiciel 3D - ou SYLVIA, qui traite de l'ensemble de l'installation avec son réseau de ventilation.

La puissance dégagée par les combustibles peut être obtenue, pour la plupart d'entre eux, de façon relativement immédiate dans des conditions bien ventilées à l'aide d'essais dans des calorimètres⁽¹⁾ à petite, moyenne ou grande échelle. Par ailleurs, dans la plupart des

tion dans le jeu de données de la puissance du feu mesurée expérimentalement permet d'obtenir un accord acceptable entre calcul et expérience pour les principaux paramètres caractérisant les conséquences d'un incendie, comme la température des gaz et leur pression dans les locaux. Cependant, dans les cas réels d'incendie dans une installation, la connaissance de la puissance du foyer concerné en

logiciels de calcul traitant des feux dans un compartiment, l'introduc-

Le principe du calorimètre est d'estimer la puissance dégagée par la combustion à partir de la mesure simultanée du débit aspiré par une hotte et des teneurs des différents produits de combustion et de l'oxygène.

atmosphère libre n'est pas suffisante pour prédire son évolution au cours du temps en milieu confiné, du fait de l'interaction forte qui existe entre la combustion et la ventilation du local dans lequel le feu se développe. En effet, le confinement modifie de façon significative certains paramètres physico-chimiques clés qui environnent le foyer, comme le taux d'oxygène ou la température des murs et celle des gaz et, d'une façon plus générale, le flux de chaleur à la surface du combustible. En retour, ces paramètres affectent à la fois la vitesse de pyrolyse du combustible et la chaleur de combustion, à partir desquelles on détermine la puissance du feu⁽²⁾. Cette rétroaction présente encore des difficultés de modélisation. Par ailleurs, en influant sur le taux de pyrolyse, le confinement du feu joue aussi un rôle sur sa durée, qui est un des paramètres importants d'un incendie puisque les équipements contribuant à la sûreté, comme les portes coupe-feu, ne sont conçus que pour résister un temps limité à une agression thermique.

Dans l'industrie nucléaire, les compartiments sont en général hermétiquement séparés les uns des autres et reliés par un réseau de ventilation. La ventilation mécanique assure une cascade de dépressions destinée à prévenir toute fuite accidentelle de matière radioactive vers l'extérieur. Les locaux contenant de la matière radioactive sont maintenus en dépression et l'air qui en sort est filtré grâce à des filtres à très haute efficacité. Cette configuration particulière joue un rôle important en cas d'incendie puisqu'elle conduit très souvent à des feux dits sous-ventilés, i.e. se développant dans une atmosphère appauvrie en oxygène parce que la ventilation apporte moins d'oxygène que n'en consommerait la combustion du foyer à l'air libre; or, c'est dans ce régime de combustion dit sous-ventilé que les paramètres physico-chimiques environnant le feu ont le plus d'influence sur la combustion.

La pyrolyse du combustible

Depuis plus de vingt-cinq ans, de nombreux chercheurs se sont intéressés à l'influence du confinement sur la puissance dégagée par un feu en nappe. Les expériences menées par Takeda, Fleischman ou plus récemment par Quintiere [Utiskul et al., 2005] concernent surtout des compartiments de taille limitée (1 m³ au maximum), dotés d'une ventilation naturelle, le plus souvent par des ouvertures verticales simulant une porte ouverte. Cette configuration a permis d'identifier différents régimes de combustion en fonction de la taille des ouvertures : non oscillant, oscillant stable et oscillant instable. Par ailleurs, des taux de pyrolyse jusqu'à sept fois supérieurs à ceux observés à l'air libre ont été rapportés ; l'influence du rayonnement

supplémentaire dû au confinement peut expliquer ces observations. À plus grande échelle [Peatross et Beyler, 1997] ou dans des dispositifs permettant de contrôler le taux d'oxygène par dilution à l'azote [Tewarson *et al.*, 1981], une décroissance linéaire du débit de pyrolyse avec la concentration en oxygène a par contre été observée.

La pyrolyse du combustible résulte de sa vaporisation, qui est un processus endothermique. Elle se déduit du bilan des flux de chaleur à la surface de la nappe liquide : le débit surfacique de perte de masse \dot{m}'' est relié aux flux incidents dans la phase gazeuse ϕ_{cond} , ϕ_{rad} , ϕ_{conv} (respectivement par conduction, rayonnement et convection) et au flux par conduction/convection vers l'intérieur du liquide combustible ϕ_{liq} par la chaleur de vaporisation L_{vap} :

$$\dot{m}''.L_{vap} = \underbrace{\phi_{cond} + \phi_{rad} + \phi_{cony}}_{phase\ gazeuse} - \underbrace{\phi_{liq}}_{phase\ liquide}$$

La *figure 1* illustre les principaux phénomènes qui affectent ce bilan d'énergie ainsi que les enjeux de modélisation associés. Pour des combustibles disposés horizontalement, au-delà d'une certaine taille, le rayonnement de la flamme devient bien supérieur aux échanges par convection et par conduction dans la phase gazeuse. Le flux rayonné est étroitement lié à la production de suies ; les précurseurs des suies se forment au-delà d'une certaine température (autour de 1350 K) et les agrégats qui constituent les suies pleinement formées contribuent de façon prépondérante aux propriétés radiatives de la flamme. Ainsi, une diminution de la production de suies s'accompagne d'une baisse du taux de pyrolyse du combustible. La modélisation détaillée de la formation et de l'oxydation des suies nécessite à la fois de traiter une chimie extrêmement complexe et souvent lente par rapport aux temps caractéristiques des écoulements dans la flamme, de représenter précisément des champs de température dans la flamme et de calculer quels seront la formation des agrégats et le rayonnement associé ; c'est pourquoi les phénomènes qui influencent le débit de pyrolyse comme la production de suies sont souvent modélisés de façon analytique ou empirique.

L'effet d'échelle

Pour des foyers de dimension supérieure à 10 cm, une augmentation de taille s'accompagne d'une augmentation de la zone où des suies sont présentes. La flamme est alors plus opaque et rayonne plus vers le foyer. C'est aussi pour cette raison que les grands foyers sont moins sensibles au rayonnement venu du milieu ambiant. Selon Hottel et Babrauskas [Babrauskas, 1983], la taille de la zone de production de suies dépend linéairement de la taille du foyer (D) et une corrélation relie le débit de pyrolyse par unité de surface \dot{m}''_{bv} à celui pour les très grands foyers \dot{m}''_{∞} par un coefficient $k\beta$ qui tient compte à la fois de la propension du combustible à produire des suies et des propriétés optiques des agrégats de suies.

$$\frac{\dot{m}''_{bv}(D)}{\dot{m}''_{\infty}} = 1 - e^{-k\beta \cdot D}$$

⁽²⁾ La puissance du feu est donnée par la relation $Q=\dot{m}$. ΔH_c , où ΔH_c est la chaleur de combustion, c'est-à-dire la chaleur dégagée par la réaction d'un kilogramme de combustible, et \dot{m} . est le débit de pyrolyse. Ce dernier est le plus souvent exprimé comme le produit de la surface du foyer par le taux surfacique de pyrolyse \dot{m} ".

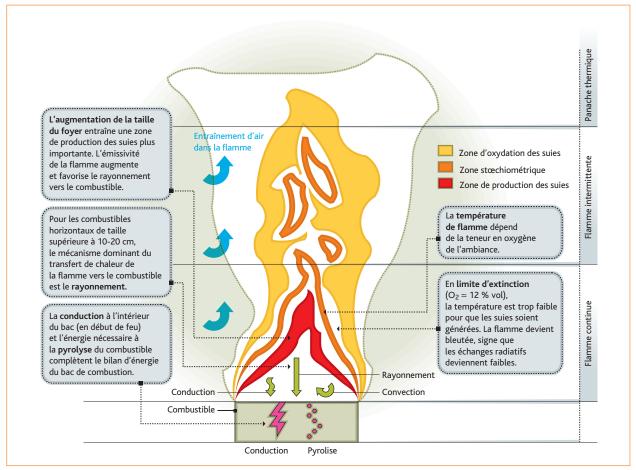


Figure 1 Représentation idéale de la flamme et principaux mécanismes influençant le débit de pyrolyse du combustible.

La *figure 2* présente la bonne adéquation de cette corrélation aux mesures effectuées sur du TPH⁽³⁾ sous la hotte calorimétrique SATURNE de l'IRSN, pour différentes tailles du bac de combustion [Pretrel, 2007].

L'effet de la diminution d'oxygène dans le milieu ambiant

La littérature technique indique une dépendance linéaire du débit de pyrolyse (\dot{m}'') à la concentration d'oxygène dans le milieu ambiant (Y).

$$\frac{\dot{m}''(Y,D)}{\dot{m}''_{bv}(D)} = (1+\alpha)\frac{Y}{Y_{bv}} - \alpha$$

Ce débit est exprimé par rapport à celui correspondant à des conditions bien ventilées (indicées $_{bv}$, avec $Y_{bv} = 0,233$ pour des conditions standards) avec un coefficient de dépendance linéaire α qui varie selon les auteurs : [Peatross et Beyler, 1997] proposent $\alpha = 1,1$ alors que d'autres [Utiskul *et al.*, 2005] utilisent $\alpha = 0$ mais ajoutent à cette corrélation une fonction de la température du milieu ambiant. Cette dépendance est illustrée sur la *figure 3* pour un essai du

programme PRISME SOURCE : à chaque instant, les mesures expérimentales du débit de pyrolyse et de la concentration en oxygène près du foyer confortent la corrélation de Peatross et Beyler pour cette configuration.

Les effets transitoires en début de feu

Dans les expériences, le feu est démarré artificiellement, soit grâce à un panneau radiant, soit à l'aide d'une petite flamme pilote dirigée vers le bac où se trouve le combustible. L'expérience proprement dite ne commence qu'après cette phase de démarrage de quelques minutes. En début de feu, deux phénomènes tendent à faire croître progressivement le débit de pyrolyse du combustible ; d'une part, la flamme se propage à l'ensemble du bac de combustion ; la vitesse de propagation est relativement importante (quelques cm/s) si bien que le bac est rapidement entièrement enflammé ; d'autre part,

⁽³⁾ Le tétra-propylène hydrogéné (TPH) est un dodécane (C₁₂H₂₆) utilisé comme solvant dans l'industrie nucléaire.

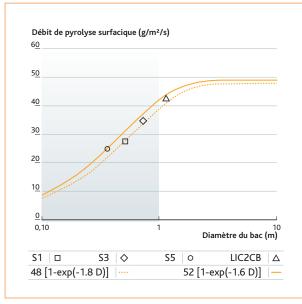


Figure 2 Effet d'échelle sur le débit de pyrolyse pour différents bacs contenant du TPH et lois de Babrauskas associées.

le liquide combustible, qui est initialement froid et constitue donc un puits de chaleur, s'échauffe progressivement par conduction en son sein de la chaleur rayonnée reçue à sa surface, ce qui favorise sa vaporisation. En supposant un flux de chaleur incident constant et en remarquant que le liquide contenu dans le bac se comporte thermiquement comme un milieu semi-infini, il est possible d'établir une solution analytique de mise en température du liquide qui permet d'exprimer l'accroissement du débit de pyrolyse en fonction du temps et des propriétés thermophysiques du combustible, de sa température initiale et des dimensions du bac. La *figure 4* présente une comparaison de ce modèle, en cours de validation à l'IRSN, avec les résultats des essais réalisés sous la hotte SATURNE dans le cadre du programme PRISME SOURCE pour différentes tailles de bac.

L'extinction du feu par manque d'oxygène

Lorsque la concentration d'oxygène dans le milieu ambiant diminue, des phénomènes d'extinction apparaissent, limités tout d'abord à certaines régions de la flamme puis provoquant l'extinction totale du feu. Deux approches sont actuellement proposées pour modéliser ces phénomènes. La première (voir [Beyler, 2005] pour une revue bibliographique) est fondée sur le fait que la température de la flamme décroît avec la concentration d'oxygène par dilution du comburant jusqu'à provoquer l'extinction de la flamme. La seconde approche [Delichatsios, 2007] modélise les échanges thermiques entre la flamme et le combustible et en déduit un nombre de transfert de masse critique déterminant l'extinction de la flamme.

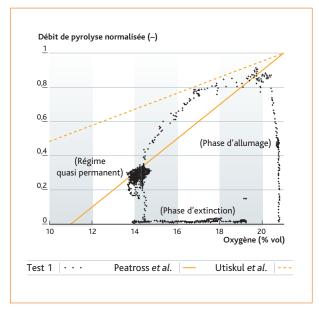


Figure 3 Effet de la diminution de la concentration d'oxygène sur le débit de pyrolyse lors du test 1 (0,4 m² de TPH dans l'installation DIVA, programme PRISME SOURCE) et corrélations associées.

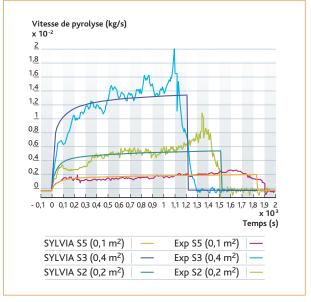


Figure 4 Modélisation de la croissance du débit de pyrolyse à l'allumage pour trois tailles de bac de TPH brûlant en atmosphère libre.

Il est difficile à l'heure actuelle de trancher entre ces deux approches et une solution d'ingénieur consiste à appliquer un critère d'extinction à partir d'une valeur seuil du débit de pyrolyse surfacique (environ 10 g/m²/s), déduit d'un grand nombre de résultats d'essais de feu de nappe liquide ; il reste à établir les bases théoriques justifiant cette valeur.

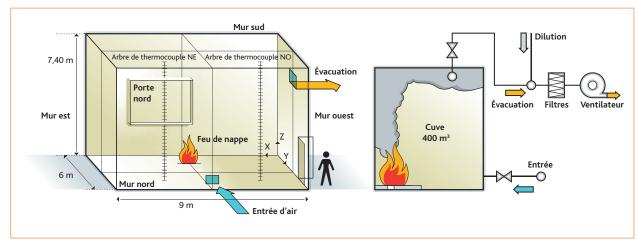


Figure 5 Installation PLUTON (400 m³).

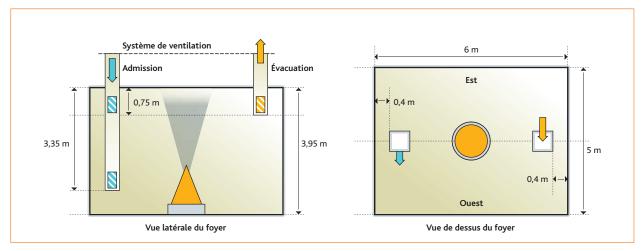


Figure 6 Installation DIVA (120 m³).

Des expériences globales pour valider les modèles

L'étude des feux de nappe en milieu confiné a conduit à réaliser de nombreux essais à l'IRSN. Leur spécificité réside, d'une part, dans les dimensions des locaux mis en œuvre et, d'autre part, dans l'utilisation d'un réseau de ventilation mécanique. Deux installations implantées sur le site de Cadarache ont été utilisées : PLUTON (figure 5) est un caisson en béton de 400 m³ d'une hauteur de 7,5 m alors que DIVA (figure 6) se compose de plusieurs locaux en béton de 120 m³ et de 4 m de haut. Le réseau de ventilation de PLUTON est réglé de telle sorte que les résistances aérauliques soient plus importantes à l'admission qu'à l'extraction ; le réglage de celui de DIVA est plus équilibré. Différentes conditions expérimentales ont été étudiées dans ces installations en modifiant le taux de ventilation, le type de combustible et la taille du bac de combustion.

Ces essais fournissent des données très intéressantes concernant l'influence du confinement sur la combustion ; en particulier, ils mettent fréquemment en évidence un état quasi stationnaire de relativement longue durée. Une sélection de ces expériences a été utilisée pour valider les modèles ; leurs principales caractéristiques sont présentées dans le *tableau 1*.

Toutes les expériences ont été instrumentées avec des thermocouples de type K positionnés sur des axes de mesure verticaux, ce qui a permis une cartographie précise de la température des gaz dans le local. La concentration en oxygène est mesurée par des analyseurs de type SERVOMEX 4100 à trois endroits du local où se développe le feu : l'un est situé près du foyer à 35 cm au-dessus du sol ; les deux autres sont placés à 80 cm au-dessus du sol et à 70 cm sous le plafond. Une concentration « moyenne » d'oxygène dans le local est estimée à partir de ces deux dernières mesures. Le tableau 2 résume les principaux résultats de ces expériences.

Test	Surface du bac (m²)	Combustible	Installation	Débit de ventilation initial (kg/s)	Masse de combustible (kg)	Position de la branche d'admission	Coefficient d'équivalence global Φ
1 ^(a)	0,4	TPH	DIVA	0,183	15,0	haute	0,97
2 ^(a)	0,4	TPH	DIVA	0,337	15,7	haute	0,53
3(a)	0,4	TPH	DIVA	0,192	15,7	haute	0,93
4 (a)	0,2	TPH	DIVA	0,187	7,2	haute	0,39
5(a)	0,4	TPH	DIVA	0,187	16,0	basse	0,95
6 ^(a)	0,4	TPH	DIVA	0,067	15,8	basse	2,66
7(b)	1	TBP/TPH(c)	PLUTON	0,247	41,2	haute	1,73
8(p)	0,4	TBP/TPH	PLUTON	0,4	16,7	basse	0,37
9(a)	0,56	Huile ^(d)	DIVA	0,12	20,0	haute	0,91

Tableau 1 Caractéristiques des essais. (a) [Pretrel et Querre, 2005a]. (b) [Audouin et Tourniaire, 2000] ; [Pretrel et Such, 2005b]. (c) Bac situé contre un mur. (d) Liquide préchauffé à 250 °C avant le feu.

Test	Débit de pyrolyse en milieu ouvert (g/m²/s)	Débit de pyrolyse durant le régime quasi permanent (g/m²/s)	Oxygène moyen du « local feu » durant le régime quasi permanent (% vol)	Concentration moyenne d'oxygène près du foyer durant le régime quasi permanent (% vol)	Température moyenne des gaz durant le régime quasi permanent (K)
1	34,7	10,0	14,9	14,2	435
2	34,7	15,0	17,2	15,5	470
3	34,7	10,5	14	14,2	435
4	28,7	14,5	18,0	16,3	400
5	34,7	16,0	11,7	16,1	475
6	34,7	10,5	13,2	13,5	435
7	38,2	8,3	14,9	n/a	448
8	31,8	20,0	16,6	18,5	399
9	28,6	9,3	14,3	14,8	428

Tableau 2 Principaux résultats.

Tous les essais présentent une augmentation de température limitée par rapport aux températures conduisant à une inflammation généralisée⁽⁴⁾, alors que la diminution de la concentration d'oxygène est souvent importante ; cela permet d'étudier l'influence de la concentration d'oxygène sur le taux de pyrolyse en s'affranchissant de l'effet de la température.

Deux expériences (figures 6 et 7) ont conduit à une extinction précoce du feu par manque d'oxygène alors que les autres essais présentent une phase de régime quasi permanent caractérisée par un débit de pyrolyse bien inférieur à celui observé en milieu ouvert pour les mêmes types de bac.

⁽⁴⁾ L'inflammation généralisée (flashover en anglais) correspond à l'embrasement simultané de toute matière combustible présente dans le local; on suppose habituellement qu'une température de 875 K (~ 600 °C) dans la partie supérieure du local conduit à une inflammation généralisée.

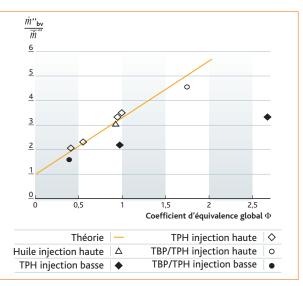


Figure 7 Inverse du débit de pyrolyse en régime quasi permanent en fonction du coefficient d'équivalence global.

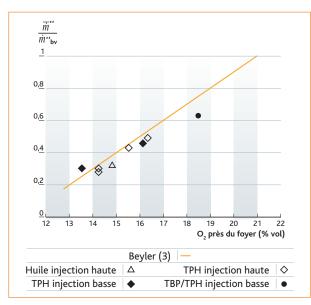


Figure 8 Corrélation de Peatross et Beyler (α = 1,1).

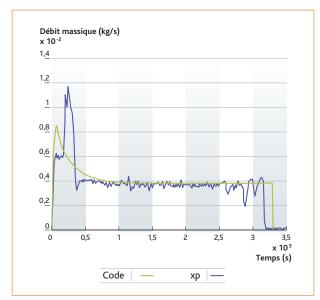


Figure 9 Débit de pyrolyse (test 1).

Validation de l'approche du « réacteur bien mélangé »

L'approche du « réacteur bien mélangé » consiste à considérer le local où se développe le feu comme un réacteur où les propriétés sont homogènes; de simples bilans de masse et d'énergie permettent alors de déterminer les caractéristiques générales des gaz et des parois du local. Cette approche est utilisée notamment pour caractériser les incendies après l'embrasement généralisé mais aussi pour mener des études dimensionnelles visant à établir les paramètres prépondérants pour la modélisation. L'application de cette approche au cas d'un feu confiné dans un local doté d'un réseau de ventilation conduit à une formule fournissant le débit de pyrolyse en régime quasi permanent [Melis et Audouin, 2008] : en considérant que les branches d'admission et d'extraction suivent une loi de Bernoulli, la conservation de la masse, de l'oxygène et de l'énergie dans le local permet de déterminer la fraction d'oxygène durant le régime quasi permanent et donc le débit de pyrolyse.

$$\frac{\overline{\dot{m}''}}{\dot{m}''_{bv}} = \frac{1}{1 + \frac{q_o}{\overline{q}} (1 + \alpha) \Phi} \text{ avec } \frac{\overline{q}}{q_o} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{T}{T_o} - 1\right) \frac{P_o - P_{aval}}{P_{born} - P_{aval}}}}$$

Cette formule relie le débit de pyrolyse du combustible durant la phase quasi stationnaire (\vec{m}'') au débit de pyrolyse dans une ambiance bien ventilée (\vec{m}''_n) . Elle fait apparaître trois termes :

- \blacksquare le coefficient de dépendance à la concentration d'oxygène α ;
- le rapport \overline{q}/q_0 du débit de ventilation en régime quasi permanent au débit de ventilation nominal de l'installation ; ce rapport dépend

faiblement de la température du local et des cascades de dépression en régime nominal dans le réseau de ventilation, si bien que $\overline{q}/q_0=0.9$ est une approximation satisfaisante ;

■ le coefficient d'équivalence global⁽⁵⁾ $\Phi = A_f \dot{m}_{bv}^{"} s / q_0 Y_{bv}$ où Af est la surface du foyer et s la masse d'oxygène consommée par masse de combustible brûlée à la stœchiométrie ; ce coefficient exprime le rapport de la demande en oxygène du foyer par rapport à l'oxygène fourni par la ventilation en régime nominal.

La figure 7 suggère deux types de comportements de la combustion durant le régime quasi permanent : les essais pour lesquels l'admission d'air est en partie haute du local sont en remarquablement bon accord avec la théorie du « réacteur bien mélangé », alors qu'un écart important est observé lorsque l'admission est située près du sol :

- lorsque l'admission d'air est en partie haute, la convection de l'air frais vers le bas du local assure le mélange des gaz, de telle sorte que la stratification des gaz est atténuée;
- au contraire, les feux dans des compartiments dotés d'une admission d'air en partie basse se rapprochent des feux ventilés naturellement par une porte, pour lesquels une importante stratification thermique des gaz est observée. Le foyer et la partie basse du local baignent alors dans une ambiance peu viciée et favorable à la combustion qui est alimentée par l'arrivée d'air frais, tandis que les produits de combustion s'accumulent en partie haute du local.

⁽⁵⁾ Le coefficient d'équivalence global a été introduit par Tewarson (en anglais Global Equivalence Ratio ou GER); il caractérise la sous-ventilation d'un feu par rapport à la stœchiométrie.

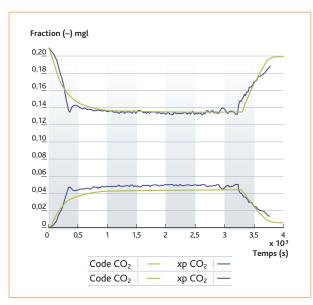


Figure 10 Concentrations en oxygène et en CO₂ (test 1).

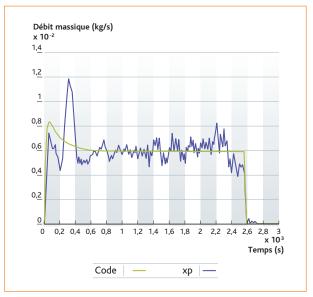


Figure 11 Débit de pyrolyse (test 2).

La différence entre la concentration d'oxygène moyenne et la concentration d'oxygène près du foyer (*tableau 2*) confirme cette analyse.

Dans les deux cas, pourtant, la corrélation de Peatross et Beyler $(\alpha = 1,1)$ s'applique de façon satisfaisante (*figure 8*).

L'approche du « réacteur bien mélangé » ne permet donc pas de prédire dans toutes les configurations le comportement du feu. Elle fait cependant apparaître le coefficient d'équivalence global comme une grandeur sans dimension caractéristique de l'incendie : ce nombre est utilisé pour classer *a priori* les expériences et les scénarios d'incendie et joue un rôle important pour décrire le domaine de qualification des codes de calcul.

Validation de l'approche à zones (logiciel SYLVIA)

Description de l'approche à zones

L'approche du « réacteur bien mélangé » montre qu'une estimation correcte de l'oxygène disponible pour la combustion est indispensable à une bonne modélisation de la puissance dégagée par un feu. Les modèles dits à zones permettent de tenir compte, de manière simplifiée, de la stratification thermique des gaz dans un local en feu. Le volume du local est divisé en deux zones avec une hauteur de l'interface variant dans le temps ; dans chaque zone, les propriétés thermodynamiques (pression et température des gaz, concentration des différentes espèces) sont supposées uniformes. Le logiciel de

calcul SYLVIA, développé par l'IRSN, s'inspire de cette modélisation simplifiée des locaux tout en décrivant en détail l'ensemble du réseau de ventilation.

Le réseau de ventilation est modélisé comme un assemblage de branches et de nœuds. Les branches représentent les conduites de ventilation, les ventilateurs, les filtres, etc. ; l'inconnue principale est le débit des gaz et l'équation associée est une forme généralisée de l'équation de Bernoulli, tenant compte de l'inertie de quantité de mouvement. Les nœuds représentent soit les locaux, soit les points de connexion entre les branches ; la conservation de la masse de chaque espèce et la conservation de l'énergie permettent de déterminer les propriétés thermodynamiques du gaz dans les branches et dans les nœuds.

Les murs sont maillés en deux dimensions mais la conduction de la chaleur n'est résolue que dans le sens de l'épaisseur : un maillage graduel plus serré près de la surface permet de tenir compte des gradients de température importants dans les murs. Les transferts de chaleur se font par convection naturelle dans les locaux et par convection forcée dans les branches ; les coefficients de transfert de chaleur sont obtenus grâce à des corrélations classiques de la littérature technique. Les échanges de chaleur par rayonnement concernent la flamme, les murs et les gaz ; le modèle utilisé est un modèle de point source : le feu est représenté comme une source ponctuelle émettant une puissance rayonnée, qui est une fraction constante de la puissance dégagée par le feu. L'absorption et l'émission par les gaz tiennent compte des teneurs en dioxyde de carbone, en vapeur d'eau et en suies.

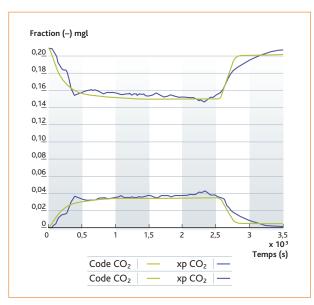


Figure 12 Concentrations en oxygène et en CO₂ (test 2).

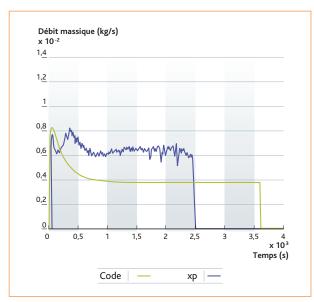


Figure 13 Débit de pyrolyse (test 5).

L'une des originalités de SYLVIA est le calcul du débit de pyrolyse alors que la plupart des codes de calcul dédiés à l'incendie utilisent cette grandeur comme une donnée d'entrée.

Les différents phénomènes qui affectent le débit de pyrolyse sont traités grâce à des corrélations : l'effet d'échelle est calculé par la corrélation de Babrauskas; l'impact de la diminution de la concentration d'oxygène est traité par la corrélation de Peatross et Beyler, la concentration d'oxygène utilisée étant interpolée à partir des concentrations dans la zone supérieure et dans la zone inférieure en fonction de la hauteur de l'interface entre les zones; les effets transitoires en début de feu sont calculés à partir des propriétés thermophysiques du combustible liquide; enfin, l'extinction du feu advient soit après consommation de toute la quantité de combustible, soit lorsque le débit de pyrolyse surfacique décroît en deçà d'une valeur critique.

La réaction de combustion est considérée comme constante, de même que la chaleur de combustion ; ainsi, il existe une relation linéaire entre le débit de pyrolyse, la production des produits de combustion, la consommation d'oxygène et la chaleur dégagée.

Validation de SYLVIA

La comparaison systématique des prédictions du logiciel SYLVIA avec les résultats des essais à grande échelle réalisés à l'IRSN a permis une large validation de ce logiciel. Les *figures 9* à *14* illustrent la dynamique des feux de nappe en milieu confiné. Deux exemples représentatifs d'essais où le conduit d'admission d'air est en position haute sont donnés par les tests 1 et 2 (*figures 9* à *12*): le débit de

pyrolyse ainsi que les concentrations d'oxygène et de dioxyde de carbone sont calculés de façon très satisfaisante durant le régime quasi stationnaire, le comportement de la pyrolyse en début de feu n'étant toutefois reproduit que de façon approximative. L'accord est moins bon lorsque la gaine d'admission est située en position basse, bien que l'approche à zones fournisse de meilleurs résultats que l'approche du « réacteur bien mélangé ».

Un exemple de cette configuration est le test 5 illustré par les *figures* 13 et 14. La légère déviation par rapport à la corrélation de Peatross et Beyler (*figure* 7) ne suffit pas à expliquer l'écart entre le calcul et l'expérience. Dans ce cas, c'est la chimie de la réaction qui varie significativement par rapport à des conditions bien ventilées: lorsque la partie supérieure de la flamme est environnée d'une atmosphère viciée, la combustion devient moins exothermique, consomme moins d'oxygène et produit plus de monoxyde de carbone et de suies. Ce phénomène – non modélisé – est mis en évidence en observant le rapport CO/CO₂ qui est dix fois plus important dans le test 5 que dans le test 1 (2 % et 0,2 % respectivement), ces deux tests ne différant que par la position de la bouche d'admission d'air.

Plus généralement, le confinement peut avoir deux effets aux conséquences opposées selon la valeur du coefficient d'équivalence global :

 pour les feux faiblement sous-ventilés, la diminution du débit de pyrolyse entraîne un accroissement de la durée du feu par rapport à celle du même foyer brûlant à l'air libre, aggravant ainsi les conséquences thermiques de l'incendie;

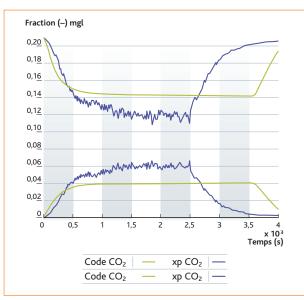


Figure 14 Concentrations en oxygène et en CO₂ (test 5).

Durée du feu calculée (s)

5 000

4 000

2 000

1 000

2 000

1 000

1 000

1 000

1 000

1 TPH injection haute
Huile injection haute
TBP/TPH injection basse
TPH injection basse
TPH injection haute
TBP/TPH injection

Figure 15 Comparaison des durées de feu calculées et expérimentales pour l'ensemble des essais.

• au contraire, lorsque la sous-ventilation est importante, c'est-àdire pour de grandes valeurs du coefficient d'équivalence global, la pyrolyse du combustible n'est plus suffisante pour entretenir la combustion et le feu s'éteint avant que la totalité du combustible ne soit consommée, atténuant ainsi les conséquences thermiques de l'incendie. Les tests 6 et 7 sont représentatifs de cette extinction précoce.

Comme le montre la *figure 15*, ces deux effets sont correctement prédits en utilisant une simple approche à zones couplée avec la corrélation de Peatross et Beyler. Cependant, le modèle surestime largement la durée du feu pour le test 5.

■ Conclusion

La modélisation d'un feu dans un environnement confiné nécessite avant tout une prédiction correcte de la puissance dégagée par la combustion et donc du taux de pyrolyse du combustible. Pour des milieux bien ventilés, la littérature technique propose des corrélations permettant de tenir compte des différents phénomènes qui influent sur la pyrolyse. L'effet d'échelle et les aspects transitoires de début du feu ont été étudiés avec des combustibles liquides d'intérêt pour la sûreté nucléaire, lors de feux réalisés sous la hotte calorimétrique SATURNE. Pour les milieux faiblement ventilés, de nombreuses expériences permettant l'étude de l'effet du confinement sur le foyer ont été réalisées à l'IRSN dans les dispositifs PLUTON et DIVA, ceux-ci étant composés

de locaux fermés et connectés à un réseau de ventilation. L'effet principal du confinement peut être exprimé par une décroissance linéaire du taux de pyrolyse avec la réduction de la concentration d'oxygène. Cependant, la littérature technique rapporte différentes valeurs du coefficient de linéarité, celui proposé par Peatross et Beyler présentant la meilleure adéquation avec les expériences réalisées à l'IRSN. L'effet de la viciation sur le débit de pyrolyse a donc pu être plus précisément quantifié pour des combustibles liquides. Les travaux dans ce domaine doivent être poursuivis pour étudier la validité de ces modèles pour des combustibles charbonneux ou pour des foyers verticaux.

Par ailleurs, la viciation de l'environnement près du foyer peut aussi entraîner une extinction du feu ; un critère d'extinction fondé sur le débit surfacique de pyrolyse du combustible permet une modélisation satisfaisante de ce phénomène.

Références

- L. Audouin, B. Tourniaire (2000). Incident heat fluxes from pool fires close to a wall in a well-confined compartment, 8th int. conference on nuclear engineering.
- V. Babrauskas (1983). Estimating large pool fire burning rate, Fire technology, 19:251-261.
- V. Babrauskas (2002). Heat Release Rates, The SFPE Handbook of Fire Protection Engineering (3rd ed), DiNenno P.J. (ed.), National Fire Protection Association, Quincy, MA 02269, 2002, p. 3/1.
- C.-G. Beyler (2005). A brief history of the prediction of flame extinction based upon flame temperature, Fire Safety Journal 29: 425-427.
- M.-A. Delichatsios, M.-M. Delichatsios (1997). Fire Safety Science-Proceedings of the Fifth International Symposium, International Association for Fire Safety Science, 1997, p. 153-164.
- M.-A. Delichatsios (2007). Surface extinction of flame on solids: some interesting results, Proceedings of the 31st Symposium International on Combustion, The Combustion Institute, 2007, p. 2749-2756.
- S. Melis, L. Audouin (2008). Effects of vitiation on the heat release rate in mechanically-ventilated compartment fires, Fire Safety Science-Proceedings of the Ninth International Symposium, International Association for Fire Safety Science, 2008.
- M.-J. Peatross, C.-L. Beyler (1997). Ventilation Effects on Compartment Fire Characterization, Fire Safety Science-Proceedings of the Fifth International Symposium, International Association for Fire Safety Science, 1997, p. 403-414, doi:10.3801/IAFSS.FSS.5-403.
- H. Pretrel, P. Querre (2005a). Experimental Study of Burning Rate Behaviour in Confined and Ventilated Fire Compartments, Fire Safety Science-Proceedings of the Eighth International Symposium, International Association for Fire Safety Science, 2005, p. 1 217-1 229, doi:10.3801/IAFSS.FSS.8-1 217.
- H. Pretrel, J.-M. Such (2005b). Effect of ventilation procedures on the behaviour of a fire compartment scenario, Nuclear engineering and design 23: 2155-2169, doi:10.1016/j.nucengdes.2005.03.003.
- H. Pretrel (2007). Phenomenological study of large scale pool fire behaviour in free atmosphere, 11th International Conference on Fire Science and Engineering, Interflam 2007.
- J.-G. Quintiere, A.-S. Rangwala (2004). A theory for flame extinction based on flame temperature, Fire and Materials 28:387-402, doi:10.1002/fam.835.
- A. Tewarson, J.-L. Lee, R.-F. Pion (1981). The Influence of Oxygen Concentration on Fuel Parameters for Fire Modeling, Proceedings of the Eighteenth Symposium (International) on Combustion, Combustion Institute, 1981, p. 563-570, doi:10.1016/S0082-0784(81)80061-6.
- Y. Utiskul, J.-G. Quintiere, A.-S. Rangwala, B.-A. Ringwelski, K. Wakatsuki, T. Naruse (2005). Compartment Fire Phenomena under Limited Ventilation, Fire Safety Journal 40: 367-390, doi:10.1016/j.firesaf.2005.02.002.

2.2

CARACTÉRISATION DE LA COMBUSTION d'un matériau liquide

Laurent AUDOUIN
Laboratoire d'expérimentation des feux
Stéphane DUPLANTIER
Division des rises paraidents la (Incair)

Division des risques accidentels (Ineris)

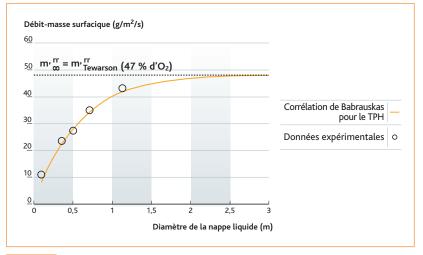


Figure 1 Débit-masse surfacique de combustible en fonction du diamètre du bac.

■Au cours d'un incendie, la chaleur dégagée par la combustion du combustible vaporisé conditionne l'évolution du feu et détermine ses caractéristiques, comme la hauteur de la flamme au-dessus du foyer, l'énergie rayonnée de la flamme vers l'environnement proche, la température et la vitesse des gaz dans la flamme et le panache des fumées. En pratique, cette puissance thermique peut être estimée en multipliant le débit-masse surfacique (DMS) de combustible par la surface du foyer et par la chaleur de combustion, qui est une propriété thermodynamique du matériau. Or, le DMS d'un combustible liquide dépend de la taille du bac le contenant, comme l'illustre la *figure 1* pour le TPH (tétra-propylène hydrogéné), qui est un hydrocarbure liquide utilisé dans le processus de retraitement des combustibles nucléaires. La mesure du DMS d'un combustible est effectuée à l'aide d'un cône calorimètre pour des diamètres de bacs variant entre environ 10 cm (figure 2a) et plusieurs mètres (figure 2b). Les résultats expérimentaux ainsi obtenus permettent de déterminer les paramètres d'une corrélation donnant le DMS en fonction du diamètre de la nappe liquide (voir l'exemple de la *figure 1*). La base de données des DMS de matériaux combustibles est utilisée pour réaliser des simulations de scénarios d'incendie avec les logiciels de calcul.

La réalisation d'essais à petite échelle étant plus simple, plus rapide et moins coûteuse que la réalisation d'essais à grande échelle, les chercheurs travaillent depuis quelques années à la mise au point d'un protocole expérimental qui permettrait d'estimer, sur la base des seuls essais à petite échelle, le DMS pour un foyer de grande dimension (diamètre supérieur à environ 1 m). L'Ineris⁽¹⁾ et l'IRSN ont, dans le cadre d'un partenariat de recherche sur ce sujet, contribué à franchir avec succès une première étape en proposant une méthode permettant de déterminer la valeur asymptotique du DMS aux grandes échelles (notée $\dot{m}_{...}^{"}$) pour des combustibles liquides à partir

⁽¹⁾ Institut national de l'environnement industriel et des risques.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo



Figure 2 a) Calorimètre de Tewarson à petite échelle (Ineris) (bac de l'ordre de 10 cm de diamètre). b) Calorimètre à grande échelle (IRSN) (bac de l'ordre de 1 m de diamètre).

d'essais réalisés dans un calorimètre de Tewarson. Cette méthode consiste à mesurer le DMS d'un matériau brûlant dans un milieu environnant suroxygéné (c'est-à-dire avec une fraction volumique d'oxygène supérieure à 21 %), comme proposé dans la technique FRST(2).

L'étude réalisée avec l'Ineris a montré que le niveau de suroxygénation nécessaire pour atteindre la valeur asymptotique \dot{m}''_{∞} du DMS est corrélé au paramètre adimensionnel χ_s . Celui-ci représente le rapport entre les chaleurs de gazéification et de combustion, qui sont des propriétés thermodynamiques du matériau. Concrètement, la valeur \dot{m}''_{∞} d'un matériau possédant un χ_s de 0,018 (comme le TPH par exemple) sera obtenue en faisant brûler un échantillon de ce matériau dans la chambre de Tewarson sous une atmosphère à 47 % d'oxygène en volume (*figure 1*).

À ce jour, cette technique expérimentale pour déterminer le DMS à grande échelle a été vérifiée avec succès pour neuf combustibles liquides. L'étape suivante consistera à étendre le domaine de validité de cette nouvelle approche empirique à d'autres combustibles liquides et à rechercher une modélisation des phénomènes physico-chimiques mis en jeu. À plus long terme, il est envisagé de vérifier si cette approche peut être étendue aux combustibles solides qui possèdent une dégradation thermique plus complexe (pyrolyse avec oxydation de surface, avec résidus charbonneux, etc.).

■ Les premiers résultats obtenus dans le cadre de ce partenariat scientifique entre l'Ineris et l'IRSN ont fait l'objet d'une publication commune au 11e Congrès d'Interflam, qui s'est tenu à Londres en septembre 2007.

⁽²⁾ FRST: Flame Radiation Scaling Technique. Cette approche proposée dans les années 1980 par Tewarson s'appuie sur la constatation empirique qu'un matériau en feu dans un environnement suroxygéné montre un DMS plus élevé qu'en milleu ambiant.

SYNTHÈSE DES RÉSULTATS de l'essai FPT2 du programme PHÉBUS-PF

Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement

Depuis l'accident du réacteur n° 2 de la centrale nucléaire américaine de Three Mile Island (TMI-2), le 28 mars 1979, qui a conduit à la fusion d'environ la moitié du cœur du réacteur, avec des rejets limités de produits de fission, de nombreux organismes dans le monde ont renforcé leurs recherches en sûreté par la réalisation d'un ensemble de programmes expérimentaux. Le programme expérimental PHÉBUS-PF, conduit dans le réacteur PHÉBUS du CEA, a été lancé par l'IPSN en 1988 et constitue l'un des principaux programmes de recherche internationaux consacrés aux accidents graves des réacteurs à eau (accidents de fusion de cœur). Il s'agissait d'expériences globales, c'est-àdire reproduisant de la manière la plus réaliste possible l'ensemble des phénomènes physiques attendus lors d'un accident de fusion de cœur. Les résultats expérimentaux de ce programme, qui complètent ceux obtenus à partir d'essais à effets séparés⁽¹⁾, constituent des éléments majeurs de validation des différents outils de simulation numérique utilisés pour les analyses de sûreté des réacteurs à eau légère [Birchley et al., 2005 ; Clément, 2003a ; Clément et al., 2006; Evrard et al., 2003; Schwarz et al., 1999; Schwarz et al., 2001], notamment le logiciel ASTEC [Van Dorsselaere et Allelein, 2004] développé par l'IRSN en collaboration avec le GRS et le logiciel ICARE/CATHARE.

Le programme PHÉBUS-PF comprenait cinq essais, qui ont été réalisés avec succès de 1993 à 2004 [Clément et al., 2006]. L'essai FPT2, réalisé du 12 au 16 octobre 2000, est la quatrième expérience du programme. Ses particularités résidaient dans l'étude de fusion du cœur dans des conditions appauvries en vapeur d'eau contenant de l'acide borique, avec un puisard basique évaporant alors que les essais précédents représentaient un environnement riche en vapeur d'eau avec un puisard acide non évaporant⁽²⁾. Les données expérimentales, acquises pendant l'essai puis durant les campagnes d'examens non destructifs et destructifs qui ont suivi l'essai, ont été dépouillées et leur cohérence globale a été analysée. Les enseignements provenant des résultats de l'essai FPT2 [Clément et al., 2006; March, 2008; Grégoire et al., 2008] sont présentés dans ce document.

Description de l'installation expérimentale

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 de fusion de cœur [Schwarz et al., 1999; Clément et al., 2003b], la dégradation de crayons de combustible et d'un crayon absorbant de neutrons⁽³⁾ jusqu'à la formation d'un bain fondu. Elle permet également d'étudier le relâchement et le transport des matériaux résultant de la dégradation

- (1) Il s'agit d'examiner un nombre réduit de phénomènes.
- (2) Ces conditions sont choisies selon la séquence accidentelle que l'on souhaite
- (3) Utilisé dans les réacteurs nucléaires pour réguler la puissance.

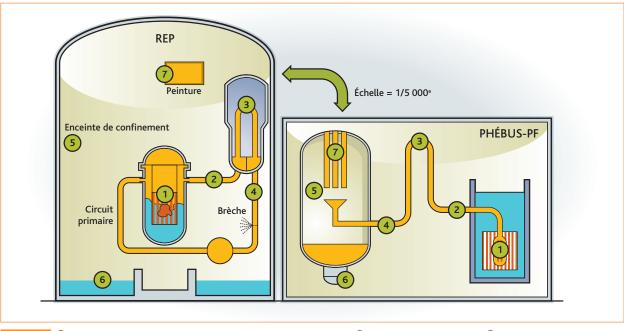


Figure 1 ① Grappe constituée de crayons de combustible et du crayon absorbant. ② Branche chaude des circuits. ① U inversé simulant le générateur de vapeur. ② Branche froide des circuits. ③ Volume gazeux du réservoir simulant l'enceinte de confinement. ③ Volume liquide simulant le puisard. ② Surfaces peintes.

(produits de fission relâchés par le combustible, vapeurs ou aérosols provenant de la dégradation des crayons de combustible et du crayon absorbant) dans le circuit primaire et l'enceinte de confinement. Une attention particulière est accordée au comportement de l'iode, du fait des conséquences radiologiques importantes que le relâchement de ce radionucléide dans l'environnement pourrait avoir dans les jours qui suivent la fusion du cœur.

Les différents phénomènes physiques étudiés lors de l'essai FPT2 interviennent (*figure 1, partie droite*) :

- dans le cœur du réacteur simulé par une grappe constituée de 18 crayons de combustible UO₂ préalablement irradiés à un taux de combustion de 32 GWj/tU dans le réacteur BR3⁽⁴⁾, de deux crayons instrumentés composés de combustible vierge UO₂ et d'un crayon absorbant de neutrons en argent-indium-cadmium (AIC) ; les gaines du combustible sont en Zircaloy⁽⁵⁾ et celle du crayon absorbant en acier, avec un tube guide en Zircaloy(①) ;
- dans le circuit primaire, représenté par une partie chaude dont les parois sont régulées à 700 °C (② nommée dans la suite « branche chaude ») et une partie froide dont les parois sont régulées à 150 °C (② nommée dans la suite « branche froide »), reliées par un tube en forme de U inversé de 4 m de haut simulant les générateurs de vapeur (③);
- dans l'enceinte de confinement simulée par un réservoir⁽⁶⁾ de 10 m³ dont la surface est électropolie, et comprenant, en partie

inférieure, un volume de 120 litres rempli d'une solution tamponnée à un pH basique de neuf simulant le puisard d'un réacteur (③), un volume gazeux (⑤) et, en partie supérieure, des surfaces peintes, refroidies et donc condensantes (7) (②). La section froide du circuit débouche dans le volume libre de ce réservoir, simulant une brèche en aval d'un générateur de vapeur.

Ces trois zones sont simulées approximativement à l'échelle 1/5 000e par rapport à un réacteur nucléaire à eau sous pression de type 900 MWe ((*figure 1, partie gauche*).

Elles sont finement instrumentées : mesure des débits, des températures, mesure des rayonnements par spectrométrie γ adaptée aux forts taux de comptage, mesure de la concentration en hydrogène et de la concentration en oxygène, et prélèvements séquentiels d'échantillons du fluide transporté dans le circuit, de l'atmosphère du volume du réservoir et du liquide du puisard. En particulier, trois tubes à gradients thermiques (TGT), présentant un profil de température des parois régulé de 700 °C et 150 °C, sont installés en branche chaude afin d'évaluer les températures de condensation des éléments et en déduire leur spéciation chimique. Des mesures non

- (4) Réacteur exploité par la société Belgonucleaire à Mol, en Belgique.
- (5) Alliage de zirconium.
- (6) Dans la suite du texte, cet élément est nommé « réservoir ».
- (7) Dans la suite du texte, ces éléments sont nommés « condenseurs ».
- (8) Images en coupe du dispositif d'essai sur lesquelles chaque pixel est affecté à une densité.

destructives sont réalisées après l'essai dans l'installation, d'une part, pour quantifier les émetteurs de rayonnements γ retenus dans les échantillons prélevés dans les circuits et le réservoir, d'autre part, pour caractériser la dégradation du combustible (radiographies X, tomodensitométries (B)) et spectrométrie γ pour établir un profil de répartition des émetteurs γ dans la grappe). Des mesures destructives sont également réalisées sur la grappe de combustible [Bottomley et al., 2007] et sur une sélection d'échantillons prélevés dans les circuits et le réservoir afin d'obtenir plus d'informations sur les phénomènes respectivement de dégradation de la grappe et d'émission d'aérosols.

Objectifs de l'essai FPT2

Les objectifs spécifiques à l'essai FPT2 se déclinaient de la façon suivante :

Dans la grappe

- Obtenir une dégradation importante des crayons de combustible et du crayon absorbant les neutrons allant jusqu'à la fusion de 20 % du combustible, soit environ 2 kg.
- Observer les conséquences en termes d'émission, par la grappe, de produits de fission et de matériaux de structure, en présence d'une atmosphère à basse pression (0,2 MPa), riche en hydrogène et contenant de l'acide borique.

Dans les circuits expérimentaux

Le principal objectif était d'étudier le transport et la rétention des produits de fission et des matériaux de structure dans le circuit primaire à basse pression (0,2 MPa), dans une atmosphère hautement réductrice⁽⁹⁾. Il s'agissait également d'obtenir des données sur la chimie des produits de fission, notamment sur l'influence de l'acide borique et sur les interactions des produits de fission avec les parois des circuits à haute température, en particulier là où des changements importants de température sont attendus (à la sortie du dispositif d'essai et à l'entrée du tube simulant les générateurs de vapeur).

Dans le réservoir

L'objectif principal était d'étudier la chimie des produits de fission, et en particulier de l'iode, dans les heures et les jours qui suivent leur émission depuis la grappe, ainsi que l'effet de la présence d'acide borique. Les phénomènes de radiochimie de l'iode dans l'eau du puisard et dans l'atmosphère devaient être particulièrement examinés, à l'aide de nombreux moyens de mesure dédiés. Les surfaces peintes placées à la fois dans l'eau du puisard et dans l'atmosphère du réservoir (condenseurs) constituaient une source de composés organiques pouvant réagir avec l'iode. Les températures des différents éléments du réservoir étaient imposées de façon

- à favoriser l'évaporation d'eau à partir du puisard et promouvoir le transfert de l'iode volatil depuis le puisard vers le volume gazeux. En complément des objectifs indiqués ci-dessus figurait également la caractérisation :
- de la taille des aérosols arrivant dans le réservoir et de leurs processus de dépôt (sédimentation par gravitation vers le fond du réservoir, diffusiophorèse⁽¹⁰⁾ vers les condenseurs et dépôts sur les parois électropolies du réservoir);
- de l'empoisonnement éventuel par les produits de fission de plaques catalytiques utilisées dans les enceintes des réacteurs nucléaires pour recombiner l'hydrogène en eau et ainsi éviter les risques d'explosion associés.

La plupart de ces objectifs ont été atteints. Toutefois, la plupart des débitmètres associés aux prélèvements de la branche chaude n'ayant pas fonctionné, il n'a pas été possible d'établir les courbes de flux d'émission des différents éléments en branche chaude. En revanche, les mesures par spectrométrie γ réalisées en ligne sur le réservoir et les courbes de flux établies en branche froide au moyen de mesures de spectrométrie γ effectuées après l'essai sur des prélèvements sont globalement très cohérentes. Elles fournissent des grandeurs quantitatives fiables concernant les cinétiques et les quantités d'éléments arrivant dans le réservoir. Il est à noter qu'il n'y a pas eu de mesure de bore dans les échantillons.

Déroulement de l'essai FPT2

Avant l'essai proprement dit, la grappe a été soumise à une « réirradiation » dans le réacteur PHÉBUS pendant huit jours, en vue de recréer un inventaire représentatif de produits de fission à vie courte (comme l'iode 131, dont la période radioactive est d'environ huit jours). Ensuite, durant environ trente-sept heures, la grappe a été séchée et les conditions aux limites ajustées. Pendant la phase de dégradation qui a suivi et a duré environ six heures, la pression dans les circuits expérimentaux a été de 0,2 MPa et le débit d'injection de vapeur d'eau en partie basse de la grappe de 0,5 g/s (l'acide borique a été ajouté à la vapeur d'eau avec une concentration massique en bore de 1 000 ppm). La puissance du réacteur a été augmentée par rampes et paliers successifs conduisant à la dégradation progressive de la grappe d'essai (figure 2). Lorsque les objectifs de dégradation ont été atteints, le réacteur a été arrêté. Ce transitoire a été suivi du refroidissement de la grappe de combustible pendant environ une heure, puis de l'isolement du réservoir.

⁽⁹⁾ Représentative de situations où la vapeur d'eau est quasiment complètement transformée en hydrogène par la réaction d'oxydation du Zircaloy des gaines du combustible

⁽¹⁰⁾Les aérosols sont entraînés par la condensation de la vapeur sur les parties refroidies des condenseurs.

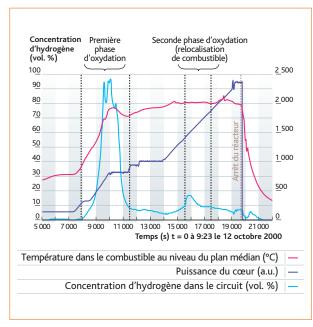


Figure 2 Chronologie générale de la phase de dégradation de l'essai FPT2. Puissance du cœur nourricier, température du combustible à la position axiale 500 mm et concentration d'hydrogène dans les circuits.

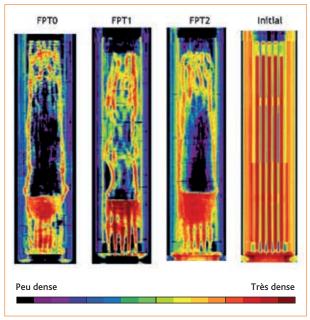


Figure 3 Radiographies X des dispositifs d'essai PHÉBUS-PF avant et après les essais FPT0, FPT1 et FPT2.

Il était prévu d'introduire le dispositif portant les coupons de recombineurs d'hydrogène dans l'atmosphère du réservoir pendant trente minutes entre l'arrêt du réacteur et la fin de l'injection de vapeur, mais cette opération n'a pas pu être réalisée du fait d'un blocage mécanique⁽¹¹⁾.

Ensuite, la phase expérimentale a été poursuivie avec une phase à long terme de quatre jours, qui a consisté en trois phases successives :

- une phase dite « aérosols » d'environ trente-sept heures, dédiée à l'analyse des mécanismes de dépôt des aérosols dans le réservoir ; pendant cette phase, les conditions thermohydrauliques du réservoir sont restées inchangées ;
- une phase de lavage de vingt-trois minutes visant à transférer au puisard les aérosols déposés sur le fond hémisphérique du réservoir où ils ont sédimenté; pour cela, l'eau du puisard a été aspergée par une boucle dédiée sur le fond hémisphérique du réservoir;
- une phase de chimie de deux jours, consacrée à l'analyse de la chimie de l'iode dans le puisard et l'atmosphère, en particulier à sa spéciation; la température de l'eau a alors été portée de 90 °C à 120 °C afin de favoriser un cycle d'évaporation condensation entre le puisard et les condenseurs, de 0,98 g/s pendant la phase de chimie.

Principaux résultats concernant la dégradation de la grappe

Les principaux événements détectés à partir des mesures en ligne dans la grappe, les circuits et l'enceinte, lors de la montée en puissance du réacteur, sont les suivants :

- la première **rupture de gaine** a eu lieu, autour du plan médian de la grappe (~ 406 mm), pour une température proche de 800 °C, comme lors des essais précédents ;
- la rupture du crayon absorbant a eu lieu vers 500 mm; la température maximale mesurée alors sur le tube-guide était de l'ordre de 1 350 °C; cette température est proche de la température de la fusion de l'acier (1 425 °C, valeur mesurée un peu plus tard sur le tube-guide à 500 mm);
- la principale phase d'oxydation est survenue peu après la rupture du crayon absorbant, dans la partie médiane de la grappe, avec une température maximale dans la grappe de l'ordre de 1 590 °C à 500 mm; aucun déplacement significatif de matériaux n'a été détecté pendant cette principale phase d'oxydation, au contraire de l'essai FPT1, au cours duquel l'oxydation était plus violente;
- un déplacement de matériaux depuis le centre de la grappe vers le bas a été observé à partir de la phase d'échauffement pour une température d'environ 2 000 °C et a conduit à la formation d'un bain fondu dans la partie inférieure de la grappe, comme pour les essais précédents ;
- une cheminée s'est formée dans le bain fondu et a permis

⁽¹¹⁾ Pour l'essai PHÉBUS-FPT3, le dispositif portant les coupons de recombineurs d'hydrogène a été amélioré et introduit avec succès [Biard et al., 2007].

le passage de la vapeur d'eau ; ensuite, la cheminée s'est bouchée, le bain fondu a occupé toute la section de la grappe d'essai et une importante élévation de température a été enregistrée, conduisant à l'arrêt du réacteur.

Pendant l'essai FPT2, la cinétique de production d'hydrogène (figure 2) a été plus lente que pour les essais FPT0 et FPT1 : la plus faible vitesse d'injection de la vapeur d'eau, de l'ordre de 0,5 g/s dans l'essai FPT2 au lieu d'environ 2 g/s lors des essais FPT0 et FPT1, a conduit à une progression plus lente du front d'oxydation du Zircaloy des gaines ; le front d'oxydation s'est déplacé axialement, d'abord dans les niveaux inférieurs, à une vitesse de 1,7 mm/s, puis dans la partie supérieure de la grappe. Toutefois, la durée de production d'hydrogène a été plus longue (une concentration en H₂ supérieure à 10 % en volume pendant quarante-trois minutes) et a conduit à une période de 18 minutes pendant laquelle la concentration volumique en hydrogène dans le circuit a été comprise entre 75 % et 97 %.

Comme pour les essais précédents, une seconde phase d'oxydation moins marquée a été observée dans la phase finale de la dégradation de la grappe, lorsque des matériaux se sont écoulés dans la partie inférieure de la grappe. Pendant cette phase d'oxydation tardive, qui a duré environ dix-huit minutes (avec une concentration en hydrogène supérieure à 10 % en volume), une concentration maximale d'hydrogène de 17 % dans les circuits a été atteinte pendant trois à quatre minutes.

Les quantités d'hydrogène produites pendant la dégradation conduisent à estimer que 81 % du Zircaloy des gaines a été oxydé.

L'état final de la grappe a pu être observé sur une radiographie réalisée après l'essai. La *figure 3* montre au centre la présence d'une cavité, en partie basse la présence d'un bain fondu constitué par des matériaux fondus mélangés et relocalisés, en parties haute et basse des crayons déformés. Comme prévu, une dégradation significative de la grappe a été obtenue pendant l'essai FPT2 (de l'ordre de celle observée lors de l'essai FPT0 et plus prononcée que celle observée lors de l'essai FPT1).

La prise de masse totale dans la partie inférieure a été évaluée, à partir des examens non destructifs, à 3,9 kg dont 1,1 kg associé à l'oxydation des gaines en Zircaloy, le reste était associé à la relocalisation des matériaux. Ces observations sont cohérentes avec l'objectif initial de l'essai en termes de dégradation.

Principaux résultats concernant les circuits et le réservoir

Émission des produits de fission, transport et dépôt de ces produits dans le circuit primaire

Pendant l'essai FPT2, comme lors des précédents essais, l'émission et le transport de matériaux dans le circuit primaire sont fortement corrélés aux événements survenant au niveau de la grappe. Trois principales phases d'émission ont pu être identifiées :

- la première émission significative a été observée pendant la première phase d'oxydation ;
- la deuxième phase d'émission a été quasi stationnaire (elle a été observée pour les produits de fission et les éléments du crayon absorbant) et s'est poursuivie quasiment jusqu'à la deuxième phase d'oxydation;
- une troisième émission significative (matériaux moins volatils) a été mesurée dans le réservoir lors de la deuxième phase d'oxydation, qui correspond à l'oxydation de la partie basse de la grappe associée au début de la relocalisation et de la liquéfaction du combustible.

Après la formation du bain fondu, aucune arrivée significative de produits de fission n'a été observée dans le réservoir, ce qui ne signifie cependant pas qu'il n'y a plus eu d'émission puisqu'une partie des matériaux émis peut se déposer dans les circuits.

Les éléments peuvent être classés en fonction de leur cinétique d'arrivée dans le réservoir :

- l'émission des gaz rares a démarré dès le début de la première phase d'oxydation; ils se sont accumulés dans le réservoir beaucoup plus rapidement que les produits de fission volatils;
- les produits de fission volatils et semi-volatils (Cs, I, Rb puis, avec un peu de retard, Te et Mo) sont arrivés dans le réservoir à un débit quasiment constant depuis la fin de la première oxydation jusqu'à la fin de la deuxième oxydation, ce qui est en accord avec une dégradation progressive de la grappe FPT2 (figure 4); c'est aussi le cas de l'indium, provenant du crayon absorbant. Le molybdène est devenu mesurable dans le réservoir seulement après la première phase d'oxydation, ce qui suggère que le relâchement de ce corps est faible pendant la phase riche en hydrogène et ne devient significatif que pendant la phase suivante, riche en vapeur d'eau; cette observation est cohérente avec la volatilité plus élevée de la forme oxydée du molybdène par rapport à celle du métal;
- les produits de fission peu volatils (Ba, La, Y, Sr), l'argent (provenant essentiellement du crayon absorbant), les éléments des structures et de l'instrumentation (Zr, Re, W) et le combustible ont été principalement émis pendant la fin du transitoire (deuxième phase d'oxydation et échauffement final).

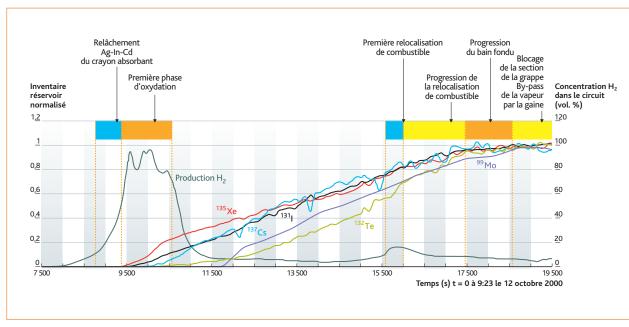


Figure 4 Arrivée des produits de fission volatils dans le réservoir et concentration d'hydrogène dans les circuits.

Les éléments peuvent être regroupés en fonction de leur fraction globale de relâchement depuis la grappe de combustible :

- éléments fortement relâchés (environ 80 % de l'inventaire initial dans la grappe (noté par la suite i.i.); exemple : les gaz rares (tels que le Xe);
- produits de fission volatils (I, Te et Cs), avec une fraction émise comprise entre 67 % et 81 % i.i. (*tableau 1*);
- eléments faiblement ou très faiblement relâchés (tels que Ba ou Zr), de l'ordre de 1,2 % i.i. et 0,015 % i.i. (pour Ba et Zr), voire beaucoup moins.

Les éléments peuvent également être classés en fonction des quantités qui sont arrivées dans le réservoir (« inventaire réservoir ») :

- les gaz rares tels que Xe et Kr, qui ne réagissent pas avec les surfaces des circuits, atteignent le réservoir sans rétention dans les circuits de sorte que l'« inventaire réservoir » est identique aux quantités émises à partir de combustible (respectivement environ 79 % i.i. et 60 % i.i.);
- les produits de fission fortement volatils, notamment l'iode I (57 % i.i.) et le césium Cs (41 % i.i.), ont eu des comportements similaires à ceux observés lors de l'essai FPT1;
- pour quelques éléments, une fraction comprise entre 10 % et 40 % de l'inventaire initial peut arriver dans le réservoir (Rb (32 % i.i.), Mo (31 % i.i.), Te (28 % i.i.), Cd (23 % i.i.), etc.). Cependant, Rb, Te et Cd ont été significativement moins transportés dans le réservoir que lors de l'essai FPT1, où ils étaient plus volatils avec des « inventaires réservoir » de l'ordre de 50 % i.i.;

- les autres éléments sont arrivés en faibles quantités dans le réservoir : c'est le cas de Sn (6,8 % i.i.), In (5,7 % i.i.), W (3,7 % i.i.), Ag (1,5 % i.i.) et Tc (0,92 % i.i.). Parmi ces éléments, les quantités de Sn, Ag et Tc ont été significativement inférieures à celles mesurées lors de l'essai FPT1, où les « inventaires réservoir » ont été respectivement de 33 % i.i., 6,7% i.i. et 21 % i.i.;
- quelques éléments sont arrivés en quantités négligeables dans le réservoir (moins de 0,5 % i.i.) : Sr, Ba, Ru, La, U, Zr et Re. Pour la plupart de ces éléments, les quantités dans le réservoir ont été significativement inférieures à celles mesurées lors de l'essai FPT1.

Comme lors des essais précédents, le baryum est faiblement émis, alors que les essais à effets séparés laissaient penser que les conditions réductrices et les hautes températures augmenteraient la fraction émise de ce corps. Les résultats de l'essai FPT2 confirment donc le comportement faiblement volatil du baryum, probablement lié aux réactions entre le baryum et les matériaux de gainage [Dubourg et Taylor, 2001].

La composition massique (*figure 5*) des aérosols transportés au réservoir a été dominée par les produits de fission (Cs - 19 %, Mo - 20 %), les éléments du crayon absorbant (Ag -16 %, Cd - 15 %, In - 11 %) et un élément présent dans les gaines (Sn - 7 %). La masse totale a été estimée à 55 g en tenant compte de l'oxydation des matériaux. Cette valeur est faible en comparaison des 125 g (12) mesurées lors de l'essai FPT1 [Jacquemain *et al.*, 2000 ; Dubourg *et al.*, 2005].

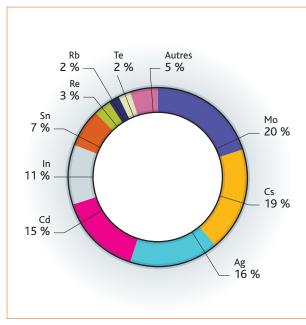


Figure 5 Composition massique de l'ensemble des aérosols arrivés dans le réservoir lors de l'essai FPT2.

Cet écart significatif peut s'expliquer en partie par le plus faible débit d'injection de vapeur d'eau lors de l'essai FPT2 (facteur 4 par rapport à l'essai FPT1). Celui-ci, d'une part, modifie les phénomènes de dégradation et donc la masse et la composition des éléments émis, d'autre part, augmente le temps de résidence dans la grappe et dans les circuits et favorise ainsi le dépôt de certains éléments dans ces derniers.

Dépôts

Les processus de dépôt sur la surface des circuits incluent la condensation des espèces vapeur dans les zones de transition thermique, l'impaction, la thermophorèse et la sédimentation d'aérosols. Les dépôts sont probablement suivis d'interactions chimiques avec les surfaces ou avec les éléments déposés. Lors de l'essai FPT2, la faible vitesse d'injection de vapeur d'eau (0,5 g/s) a provoqué un dépôt significatif de produits de fission volatils (Cs, I et Mo) dans la partie supérieure de la grappe d'essai (figure 6). Ce comportement n'avait pas été observé lors des essais FPTO et FPT1, réalisés avec une vitesse d'injection de vapeur d'eau plus élevée (2 g/s), au cours desquels des dépôts importants ont été observés dans les parties des circuits situées en aval (dans le plénum supérieur situé au-dessus de la grappe et dans le tube simulant les générateurs de vapeur). Mis à part le tellure qui s'est déposé de manière très significative dans le plénum supérieur situé au-dessus de la grappe et dans la branche chaude, et l'iode dont les dépôts dans le plénum supérieur et la ligne verticale ont été similaires à ceux de l'essai FPT1 (avec toutefois une répartition inversée), les dépôts dans le plénum supérieur,

	Émission depuis la grappe (% i.i.)	Inventaire dans le réservoir (% i.i.)
Cs	67	41
T	72	57
Те	81	28
Мо	52	31

Tableau 1 Comparaison des fractions relâchées de différents produits de fission émis par le combustible et atteignant le réservoir.

la ligne verticale et le tube simulant les générateurs de vapeur ont été moins significatifs lors de l'essai FPT2 que lors des essais FPT1 et FPT0. Les quantités globales déposées dans les circuits sont présentées dans le *tableau 1*.

Après l'arrêt du réacteur, environ 45 % du césium déposé dans le plénum supérieur et dans la ligne verticale se sont revolatilisés et déposés principalement sur les surfaces du tube simulant les générateurs de vapeur. Ces phénomènes de revaporisation peuvent s'expliquer par une baisse de la pression partielle du césium dans l'écoulement gazeux⁽¹³⁾. En outre, le tellure radioactif déposé en branche chaude s'est transformé en iode par décroissance radioactive. Cet iode volatil a également été transporté vers le tube simulant les générateurs de vapeur. Ces observations indiquent qu'en cas de brèche en branche chaude, les dépôts de tellure et de césium en branche chaude sont susceptibles de conduire à une émission supplémentaire respectivement d'iode et de césium sous forme volatile.

Propriétés physico-chimiques des matériaux émis dans les circuits

Dans la branche chaude, des fractions significatives de césium et d'iode ont été détectées sous la forme de vapeurs⁽¹⁴⁾ et d'aérosols. Les mesures effectuées sur les prélèvements dans les circuits après l'essai FPT2 montrent que, d'une part, la spéciation des vapeurs évolue au cours des différentes phases de la dégradation, d'autre part, l'iodure de césium n'est pas la seule espèce iodée, contrairement à ce qui était communément admis.

Les matériaux condensés soit se sont déposés sur les parois du tube simulant les générateurs de vapeur, soit ont été transportés en branche froide sous forme d'aérosols mixtes. Leur taille est de l'ordre de 0,5 à 1 μ m et ils peuvent parfois s'agglomérer.

⁽¹²⁾ Si on tient compte des gaz rares xénon et krypton, la masse qui est arrivée dans le réservoir est de 150 g pour FPT1 et de 90 g pour FPT2.

⁽¹³⁾ Correspondant à l'injection de vapeur d'eau, qui a été maintenue pendant une heure après l'arrêt du réacteur afin de refroidir la grappe de combustible.

⁽¹⁴⁾ Ici, les vapeurs désignent des composés qui condensent entre 150 °C et 700 °C, par opposition aux gaz qui ne condensent pas.

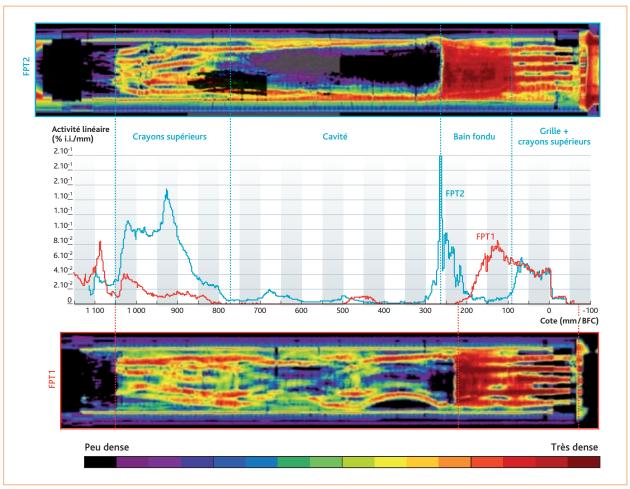


Figure 6 Comparaison des profils de répartition du ¹³⁷Cs dans la grappe de combustible lors des essais FPT1 et FPT2.

La masse totale d'aérosols transportée a été de l'ordre de 60 g en branche chaude et de 45 g en branche froide (sans considérer la contribution de l'oxygène dans les oxydes formés). La concentration d'aérosols dans les circuits a atteint son maximum pendant la dernière phase d'oxydation et sa composition massique a évolué au cours des différentes étapes de la dégradation : environ 12 % de la masse totale est passée dans la branche froide pendant la première phase d'oxydation (dominée par les matériaux du crayon absorbant, notamment le cadmium), 17 % pendant la phase conduisant à la fusion et à la relocalisation du combustible (majoritairement les produits de fission volatils Cs et Mo, l'argent provenant principalement du crayon absorbant et l'étain provenant des structures) et 71 % pendant la seconde phase d'oxydation (dominée par l'argent, avec des quantités significatives de produits de fission volatils (Cs et Mo) de matériaux absorbants tels que Cd et de matériaux de structure tels que Sn).

Comportement des aérosols dans le réservoir

Dans le réservoir, les aérosols sont soumis à trois phénomènes de déposition (March *et al.*, 2007 ; March 2008) :

- la diffusiophorèse, qui correspond à l'entraînement d'aérosols par condensation de vapeur sur les condenseurs⁽¹⁵⁾;
- la sédimentation gravitaire sur le fond du réservoir (puisard et fond hémisphérique du réservoir);
- le dépôt sur l'ensemble des parois du réservoir.

La plupart des isotopes détectés par spectrométrie γ ont un comportement global similaire. La sédimentation gravitaire est le mécanisme majeur dans le réservoir ; en moyenne, 74 % de « l'inventaire réservoir » se dépose sur le fond du réservoir. La diffusiophorèse conduit à un entraînement de 12 % de « l'inventaire

⁽¹⁵⁾ Les condensats sont récupérés en partie basse dans une capsule qui est vidangée dans le puisard dès que le niveau atteint un seuil.

réservoir » vers les condenseurs. La vitesse de dépôt des aérosols sur les condenseurs est, comme le débit de condensation, quatre fois plus faible que lors des essais FPTO et FPT1, ce qui est cohérent avec un débit d'injection/condensation de vapeur d'eau quatre fois plus faible lors de l'essai FPT2 (0,5 g/s au lieu de 2 g/s lors des essais FPTO et FPT1). Les mesures ont montré des dépôts non négligeables sur les parois du réservoir (environ 11 % de « l'inventaire réservoir »), ce qui est plus élevé que lors de l'essai FPT1 (2 % au maximum). Ces différences de dépôts peuvent s'expliquer en partie par la taille des aérosols, inférieure lors de l'essai FPT2 par rapport à l'essai FPT1.

À la fin de la « phase aérosols », les fractions « d'inventaire réservoir » déposées sur les parois et le fond du réservoir ont été quasiment similaires pour tous les éléments tandis que la répartition entre le puisard et les condenseurs dépend de la solubilité des éléments. Les éléments solubles (essentiellement le césium et le rubidium) ont été presque totalement retrouvés dans le puisard tandis que les éléments non solubles se sont répartis entre le puisard et les condenseurs.

Pendant la « phase de dégradation » et le début de la « phase aérosols », la solubilité des aérosols conduit à trois grandes classes :

- les éléments qui se trouvent principalement dans la phase aqueuse et sont réputés solubles (Cs, Rb et I);
- les éléments partiellement solubles dans l'eau (Ba, Mo, Cd, Re et Tc);
- les éléments qui restent quasiment insolubles (Ce, Te, Zr, Ru, Sn, In, Ag, W et U). Ce comportement est équivalent à celui observé lors de l'essai FPT1 (avec un puisard acide), sauf pour l'iode qui, lors de l'essai FPT1, s'est comporté comme un élément soluble pendant la dégradation puis comme un élément insoluble pendant la « phase aérosols ».

Dans l'atmosphère du réservoir, la taille des aérosols tend à grandir au cours de la « phase de dégradation », avec un diamètre aérodynamique médian en masse qui a augmenté de 1,4 μ m pendant la première phase d'oxydation, à 3,68 μ m au début de la « phase aérosols ».

Émission et comportement de l'iode dans les circuits

L'émission de l'iode à partir du combustible pendant la « phase de dégradation » a été estimée à environ 73 % i.i., ce qui est plus faible que lors des essais FPT1 et FPT0 (environ 87 % i.i.). Cette différence peut s'expliquer par les dépôts significatifs observés dans la partie supérieure de la grappe. Cette rétention est liée aux températures plus basses mesurées dans cette zone, du fait d'une plus faible vitesse d'injection de la vapeur d'eau (facteur 4 par rapport au cas des essais FPT1 et FPT0). Par ailleurs, dans le plénum

supérieur et la ligne verticale, l'iode a probablement réagi avec les produits de fission (Cs) et les matériaux du crayon absorbant (Ag, In et Cd) pour former des vapeurs métalliques d'iode et conduire à des dépôts significatifs, respectivement 4,1 % i.i. dans le plénum supérieur et 0,4 % i.i. dans la ligne verticale (à titre de comparaison, lors de l'essai FPT1, les dépôts étaient respectivement de 1,5 % et 3,8 %), où d'importantes chutes de température des parois ont été mesurées. Dans la branche chaude, comme lors des essais précédents, l'iode a été trouvé essentiellement sous forme de vapeur, à 700 °C, l'iode gazeux ne représentant que 0,1 % i.i. et l'iode sous forme d'aérosols représentant entre 10 % i.i. et 44 % i.i. selon la phase de dégradation, ce qui est plus important que lors de l'essai FPT1 (inférieur à 15 % i.i.).

Pendant la « phase de dégradation », différentes formes chimiques de l'iode transportées sous forme de vapeur en branche chaude du circuit primaire ont pu être mises en évidence, grâce à l'analyse des condensats déposés sur les parois des lignes de prélèvements et le tube à gradient thermique dans une zone où la température a chuté de 700 °C à 150 °C. Au moins deux espèces ont pu être différenciées : l'iodure de césium, détecté uniquement après la phase d'oxydation principale, et une deuxième espèce plus volatile non identifiée à ce jour. Pendant l'essai FPT2, environ 6,2 % i.i. se sont déposés sur le tube simulant les générateurs de vapeur, avec un profil de dépôt exponentiel caractéristique d'un dépôt d'aérosols par thermophorèse. Ce comportement diffère de celui observé lors des essais FPTO et FPT1, pour lesquels les deux mécanismes de condensation des vapeurs et de thermophorèse des aérosols avaient été observés, conduisant à des dépôts plus élevés, 23,5 % i.i. pour l'essai FPTO et 19,2 % i.i. pour l'essai FPT1. En effet, durant l'essai FPT2, la faible injection de vapeur d'eau peut conduire à un dépôt, non mesuré, par condensation en amont du tube simulant les générateurs de vapeur.

Dans la branche froide, la majeure partie de l'iode est transportée sous forme d'aérosols et environ 57 % i.i. ont atteint le réservoir, ce qui est légèrement plus faible que lors des essais FPTO/FPT1 (environ 63 % i.i.) [Clément et al., 2006 ; Girault et al., 2006 ; Jacquemain et al., 1999].

Comportement de l'iode dans le réservoir

Pendant la « phase de dégradation », l'iode qui a atteint le réservoir s'est déposé essentiellement par gravitation sur le fond du réservoir et dans le puisard (74 % de « l'inventaire réservoir »), le reste étant soit entraîné par diffusiophorèse vers les condenseurs (11 % de « l'inventaire réservoir »), soit déposé sur les parois du réservoir (11 % de « l'inventaire réservoir »). Ce comportement est typique des aérosols. La solubilité de l'iode dans le puisard (pH de l'ordre de ~ 9)

a évolué au cours de l'essai. Avant le lavage du fond hémisphérique du puisard, l'iode collecté dans le puisard était essentiellement sous forme d'espèces solubles ou de suspensions colloïdales. L'iode apporté pendant la phase de lavage a entraîné la fraction d'iode non soluble, réduisant à 66 % la fraction d'iode soluble. Deux mécanismes peuvent expliquer cette évolution :

- pendant la « phase de lavage », de l'iode soluble et des éléments non solubles (particules d'argent) ont été ajoutés simultanément dans le puisard; l'iode a pu ensuite réagir avec ces éléments pour former des espèces d'iode non solubles;
- les espèces d'iode déposées sur le fond hémisphérique du réservoir peuvent avoir réagi chimiquement avec d'autres éléments présents dans l'atmosphère du réservoir pour former des espèces d'iode non solubles, qui ont été ensuite entraînées vers le puisard lors du lavage.

Lors de la « phase de chimie » de l'essai FPT2, la fraction d'iode sous forme soluble a été beaucoup plus élevée que lors des essais précédents (l'iode était quasiment entièrement non soluble lors de l'essai FPT1). Cette différence peut s'expliquer du fait d'un rapport molaire Ag/I plus faible (seulement 10 alors qu'il était de 50 lors de l'essai FPT1 et 2 000 lors de l'essai FPT0), qui ralentit la cinétique de la réaction entre Ag et I et du fait de pH basique qui ne favorisait pas la formation de l'espèce non soluble AgI [Funke et al., 1996].

Lors de l'essai FPT2, la fraction gazeuse d'iode mesurée dans le réservoir a atteint son maximum, environ 0,3 % (i.i.) de la masse d'iode initialement présente dans la grappe, pendant la seconde phase d'oxydation, alors que lors des essais FPT0 et FPT1, le maximum a été atteint lors de la première phase d'oxydation. L'évolution à long terme de la fraction d'iode gazeux dans l'atmosphère est représentée sur la *figure 7*.

Comme lors des essais précédents, une diminution rapide de la fraction d'iode gazeux dans l'atmosphère du réservoir a été observée après la seconde phase d'oxydation (de 0,3 % i.i. à 0,1 % i.i.), ce qui suggère un piégeage efficace de l'iode sur les surfaces peintes refroidies. Pendant la « phase aérosols », la fraction d'iode gazeux a atteint un palier de 0,1 à 0,15 % i.i., correspondant probablement à l'atteinte d'un équilibre physico-chimique de l'iode dans le réservoir. Après la phase de lavage, la fraction d'iode gazeux a diminué d'un ordre de grandeur, pour atteindre 0,01 % i.i. à la fin de la « phase de chimie ». Cette décroissance n'avait pas été observée lors de l'essai FPT1, au cours duquel la fraction d'iode gazeux avait été multipliée par deux après la phase de lavage pour atteindre un équilibre autour de 0,2 % i.i. Cette différence est attribuée au pH basique (pH ~ 9) du puisard et aux conditions évaporantes retenues pour l'essai FPT2, alors que pour l'essai FPT1, le pH était acide (pH ~ 5) et le puisard non évaporant.

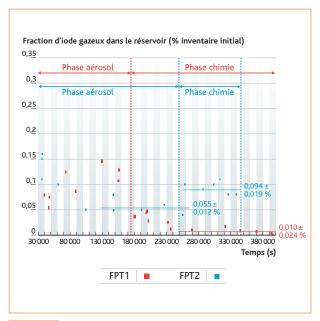


Figure 7 Évolution à long terme de la fraction d'iode gazeux dans l'atmosphère du réservoir lors des essais FPT1 et FPT2.

Par ailleurs, une diminution des dépôts d'iode sur les surfaces du réservoir a été observée pendant la « phase de chimie » : ~ 0,9 % i.i. et ~ 0,2 % i.i. de l'iode se sont respectivement désorbés des parois du réservoir et des surfaces peintes condensantes. Dans le dernier cas, le mécanisme de désorption n'est pas lié à une désorption gazeuse mais résulte probablement du lavage des surfaces condensantes du à la condensation car cette diminution des dépôts a également été observée pour le Mo et le Te présents uniquement sous forme d'aérosols. Lors des trois essais FPTO, FPT1 et FPT2, la fraction d'iode gazeux pendant la « phase de chimie » était faible (moins de 0,1 % i.i.) en raison de sa rétention dans le puisard.

Lors des essais FPTO et FPT1, le mécanisme de piégeage résultait de la présence d'argent (provenant principalement du crayon absorbant), dont l'effet était favorisé par le pH acide. Lors de l'essai FPT2, la consommation d'iode gazeux était favorisée, d'une part, par l'augmentation du transfert de masse entre le puisard et l'atmosphère du réservoir (favorisée par un cycle d'évaporation/condensation de 0,98 g/s), d'autre part, par les réactions d'hydrolyse dans les conditions du puisard avec un pH basique (~ 9) et une température élevée (120 °C).

Tout au long de l'essai FPT2, la fraction d'iode gazeux sous forme inorganique a été prédominante (80 à 90 % de l'iode gazeux total), contrairement au cas des essais FPT0 et FPT1 où l'iode organique était le composant majoritaire.

Perspectives

Globalement, les objectifs de l'essai FPT2 ont été atteints de manière satisfaisante [Gregoire et al., 2008] et les nombreux résultats expérimentaux obtenus lors de cet essai ont, soit permis de confirmer les observations expérimentales faites lors des précédents essais (par exemple, l'effet de l'argent sur le piégeage de l'iode dans le puisard par formation de AgI non soluble), soit apporté des enseignements complémentaires (par exemple, CsI n'est pas la principale espèce iodée transportée dans les circuits). L'essai FPT3 [Biard et al., 2007], réalisé avec succès du 18 au 22 novembre 2004, a clôturé le programme expérimental PHÉBUS-PF

Sa particularité a résidé dans l'utilisation du carbure de bore comme matériau absorbant en bore, au lieu de l'argent-indium-cadmium. Les études expérimentales relatives aux accidents graves des réacteurs nucléaires à eau se poursuivent à l'IRSN, avec le programme international TERME SOURCE [Clément et Zeyen, 2005b], qui consiste en des essais à effets séparés.

L'évaluation des rejets dans l'environnement en cas d'accident grave nécessite de transposer les résultats obtenus au cas d'un réacteur de puissance dans les outils de simulation numérique. Ce travail est en cours.

Références

- B. Biard, Y. Garnier, J. Guillot, C. Manenc, P. March, F. Payot (2007). FPT3 preliminary report, Document PHÉBUS-PF IP/06/569.
- J. Birchley, T. Haste, H. Bruchertseifer, R. Cripps, S. Güntay, B. Jäckel (2005). PHÉBUS-FP: Results and significance for plant safety in Switzerland, Nuclear Engineering and Design, vol. 235, p. 1 607-1 633.
- P. Bottomley et al. (2007). Post irradiation examination of the lower part of the PHÉBUS-FPT2 degraded bundle, International Congress on Advanced Power Plants (2007), Nice, France, May 13-18.
- B. Clément (2003a). Summary of the PHÉBUS-FP Interpretation status, Proc. 5th Technical seminar on the PHÉBUS-FP programme, Aix-en-Provence, France, June 24-26.
- B. Clément, N. Hanniet-Girault, G. Repetto, D. Jacquemain, A.-V. Jones, M.-P. Kissane, P. Von der Hardt (2003b). LWR severe accident simulation: synthesis of the results and interpretation of the first PHÉBUS-FP experiment FPTO, Nuclear Engineering and Design, vol. 226, p. 5-82.
- B. Clément, R. Zeyen (2005b). The PHÉBUS Fission Product and SOURCE TERM international programs, International Conference Nuclear Energy for New Europe 2005, Bled, Slovenia, September 5-8.
- B. Clément, N. Girault, G. Repetto, B. Simondi-Teisseire (2006). Les enseignements tirés du programme PHÉBUS-PF, RST IRSN 2006, 84-96.
- R. Dubourg, R.P. Taylor (2001). A qualitative comparison of barium behaviour in the PHÉBUS-FPTO test and analytical tests, Journal of Nuclear Materials, vol. 294, p. 32-38.
- R. Dubourg, H. Faure-Geors, G. Nicaise, M. Barrachin (2005). Fission product release in the first two PHÉBUS tests FPTO and FPT1, Nuclear Engineering and Design, vol. 235, p. 2 183-2 208.
- J.-M. Evrard, C. Marchand, E. Raimond, M. Durin (2003). Use of PHÉBUS-FP Experimental Results for SOURCE TERM Assessment and Level 2 PSA, Proc. 5th Technical seminar on the PHÉBUS-FP programme, Aix-en-Provence, France, June 24-26.
- F. Funke, G.-U. Greger, A. Bleier, S. Hellmann, W. Morell (1996). The reaction between iodine and silver under severe PWR accident conditions, Chemistry of Iodine in Reactor Safety, Workshop proceedings Würenlingen, Switzerland 10-12 June, NEA/CSNI/R(96)6.
- N. Girault, S. Dickinson, F. Funke, A. Auvinen, L. Herranz, E. Krausmann (2006). *Iodine behaviour under LWR accidental conditions: lessons learnt from analyses of the first two PHÉBUS-FP tests, Nuclear Engineering and Design, vol. 236, p. 1 293-1 308.*
- A.-C. Gregoire, P. March, F. Payot, B. Biard. A. de Bremaecker, S. Schlutig (2008). FPT2 final report, Document PHÉBUS IP/08/579.
- D. Jacquemain, N. Hanniet, C. Poletiko, S. Dickinson, C. Wren, D. Powers, E. Krausmann, F. Funke, R. Cripps, B. Herrero (1999). An Overview of the Iodine Behaviour in the Two First PHÉBUS Tests FPTO and FPT1, OECD Workshop on Iodine Aspects of Severe Accident Management, Vantaa, Finland, May 18-20.
- D. Jacquemain, S. Bourdon, A. de Bremaecker, M. Barrachin (2000). FPT1 final report, Document PHÉBUS IP/00/479.
- P. March, F. Payot, B. Simondi-Teisseire (2007). Fission product behaviour in the containment during the FPT2 test, MELCOR Cooperative Assessment meeting, Albuquerque (NM), USA, September 18-20.
- P. March (2008). Fission product behaviour in the PHÉBUS containment, American Nuclear Society: 2008 Annual Meeting, Anaheim, USA, June 8-12.
- M. Schwarz, G. Hache, P. Von der Hardt (1999). PHÉBUS-FP: a severe accident research programme for current and advanced light water reactors, Nuclear Engineering and Design, vol. 187, p. 47-6Z.
- M. Schwarz, B. Clément, A.-V. Jones (2001). Applicability of PHÉBUS-FP results to severe accident safety evaluations and management measures, Nuclear Engineering and Design, vol. 209, p. 173-181.
- J.-P. Van Dorsselaere, H.-J. Allelein (2004). ASTEC and SARNET Integrating Severe Accident Research In Europe, Proc. EUROSAFE Forum, Berlin, Germany, 2004.

ÉLABORATION ET APPLICATION EN SÛRETÉ NUCLÉAIRE

de la base de données thermodynamiques MEPHISTA relative au combustible

Marc BARRACHIN

Laboratoire d'études du corium et du transfert des radioéléments

Les combustibles nucléaires sont des matériaux complexes, soumis à des contraintes d'environnement particulières (irradiation en fonctionnement normal, milieu oxydant et températures élevées en conditions accidentelles, etc.). La connaissance de leur comportement en fonctionnement normal et en conditions accidentelles nécessite le recours à de nombreuses disciplines qui incluent, entre autres, la thermodynamique, la physique du solide, la mécanique...

Parmi ces disciplines, la thermodynamique joue un rôle tout à fait particulier. Elle permet de connaître l'état d'ordre du matériau (autrement dit les phases à l'équilibre), la manière dont cet état est modifié en fonction des variables d'état, par exemple la composition et la température, et par suite les conditions dans lesquelles une transformation peut se produire dans un sens déterminé. Certes, elle ne dit rien sur les mécanismes de transformation ou sur la durée de leur mise en œuvre et donc rien sur la cinétique d'atteinte de l'équilibre. Mais il est important de pouvoir distinguer les évolutions possibles de celles qui ne le sont pas, et c'est ce que la thermodynamique permet de faire de façon certaine. En ce sens, la thermodynamique est au cœur de l'ensemble des disciplines utilisées pour décrire le comportement du combustible.

Étudier par la thermodynamique les transformations d'un combustible nucléaire n'a de sens que si l'on considère à la fois les éléments constitutifs de ce combustible (ou matrice combustible, par exemple uranium et oxygène pour le combustible à base de dioxyde d'uranium utilisé dans les réacteurs à eau sous pression, REP) et les produits de fission créés par irradiation. La connaissance de la thermodynamique du système complet est essentielle pour différentes raisons, qui tiennent tant à la sûreté du composant combustible (par exemple, endommagement de la gaine à la suite d'une interaction chimique entre celle-ci et le combustible irradié dans le cas d'un composant REP), qu'à sa performance (par exemple impact des différentes phases sur l'évolution des propriétés du combustible en cours d'irradiation).

Dans les conditions normales d'irradiation en REP, les produits de fission vont se trouver au sein de la matrice de combustible dans différentes phases et dans différents états physiques (condensé ou gazeux) [Kleykamp, 1985]:

- sous forme d'oxydes dissous dans la matrice pour près de la moitié d'entre eux : Sr, Y, Zr, La, Ce, Nd... ;
- sous forme de phases oxydes : Ba et Nb ;
- sous forme de phases métalliques : Mo, Ru, Tc, Pd, Rh;
- sous forme gazeuse : Br, Rb, Te, I, Cs ;
- sous forme d'atomes dissous dans la matrice ou de bulles de gaz de fission : Xe et Kr.

La difficulté vient du fait que la nature chimique de certains produits de fission appartenant notamment aux trois premières familles n'est pas figée et peut évoluer avec la température de fonctionnement, le potentiel d'oxygène dans le combustible et le taux de combustion.

Lors d'un un accident grave (accident impliquant la fusion partielle d'éléments de la matrice combustible), le rôle des produits de fission doit être examiné sous un angle différent. Les plus volatils d'entre eux (Xe, I, Cs, Te) sont relâchés depuis le cœur du réacteur lors de sa dégradation et constituent une partie possible des rejets des produits radioactifs. D'autres moins volatils (Zr, La), pour certains à l'origine de dégagements de chaleur, peuvent rester piégés à l'intérieur du combustible et contribuent à chauffer le cœur et à le dégrader. Dans cette situation, la thermodynamique du combustible doit être étudiée, en incluant, en plus des réactions chimiques entre le combustible et les produits de fission, les interactions possibles entre le combustible dégradé et sa gaine (et éventuellement certains matériaux de structure), et ce, pour différentes atmosphères gazeuses représentatives des scénarios accidentels et pour un domaine de température pouvant aller jusqu'à la température de fusion du combustible.

On apprécie dès à présent la complexité du système chimique à traiter, notamment à cause de sa taille (nombre d'éléments chimiques à prendre en compte) mais également à cause des associations possibles entre les différents éléments chimiques (formation de composés par exemple). Il est donc nécessaire de disposer d'une modélisation thermodynamique suffisamment complète en termes d'éléments chimiques pour décrire de manière précise le comportement thermodynamique de chacun d'entre eux.

Démarche d'élaboration des bases thermodynamiques

De manière classique, la connaissance de la thermodynamique d'un matériau s'appréhende par l'établissement d'un diagramme de phases, qui est une représentation graphique de l'état d'ordre du matériau en fonction, généralement, de la composition et de la température. Le diagramme de phases est déterminé de manière expérimentale à partir des mesures de différentes propriétés (températures de changement de phase, composition des phases après trempe, etc.). Des recueils répertorient ces diagrammes établis par l'expérience pour les matériaux simples, les systèmes binaires (c'està-dire composés de deux éléments chimiques, voir par exemple [Hansen et Anderko, 1991]) et certains systèmes ternaires (trois éléments). Pour un combustible, la tâche est d'une tout autre

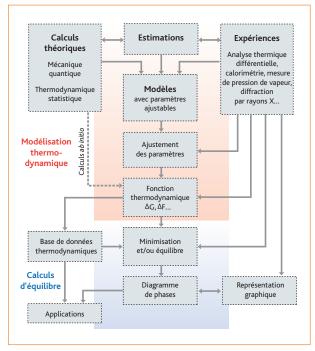


Figure 1 Description schématique de la méthode CALPHAD, utilisée pour l'élaboration de la base de données thermodynamiques MEPHISTA.

ampleur, compte tenu du nombre des éléments chimiques à considérer et du domaine de température à couvrir. On comprend aisément qu'une approche expérimentale ne peut pas répondre à elle seule à ce défi, même si, comme nous le verrons, elle demeure indispensable.

Une autre approche consiste à construire un diagramme de phases par calcul. L'approche la plus fondamentale consiste à écrire la fonction de partition thermodynamique (Z) représentative des propriétés microscopiques du matériau et à étudier les singularités de Z pour déterminer les limites de phases. Z permet d'accéder à l'ensemble des grandeurs thermodynamiques (par exemple, l'énergie de Gibbs s'écrit G = -kTLnZ à la limite thermodynamique).

Le calcul (même approché) d'une fonction de partition est certainement le problème le plus difficile à résoudre en thermodynamique. Pour ce faire, il faut disposer d'un modèle approprié pour écrire l'énergie interne du système (généralement à partir de sa structure électronique) et d'une approximation pour le calcul de l'entropie (champ moyen, simulation Monte Carlo...) [Finel, 1987; Barrachin, 1993]. Cette méthodologie, déjà très complexe pour un système binaire, se révèle rapidement impraticable dès que l'on considère des matériaux constitués de plus de trois éléments chimiques.

Pour les matériaux complexes, l'approche retenue consiste dès lors à déterminer, pour chaque phase susceptible d'apparaître dans le diagramme de phases, son comportement thermodynamique macroscopique. Pour un diagramme de phases à pression constante, ce comportement peut être décrit par l'énergie de Gibbs, G. La forme mathématique de G pour une phase donnée est, en toute généralité, une fonction de la composition et de la température. Pour écrire explicitement cette fonction, il faut le plus souvent faire appel à des modèles dont la finalité est de décrire la réalité microscopique du matériau autant que faire se peut mais en veillant en général à garder une forme relativement simple à l'expression de G.

Les coefficients de ces modèles sont déterminés à partir de données expérimentales ou, à défaut, à partir d'hypothèses. À partir des énergies de Gibbs des différentes phases, on peut alors déterminer la fonction « énergie de Gibbs » sur l'ensemble des domaines de composition et de température, et obtenir par minimisation de cette fonctionnelle les domaines de stabilité des phases, c'est-à-dire les phases susceptibles de se former pour une composition et une température données.

Cette méthode appelée méthode CALPHAD (CALculation of PHAse Diagram), décrite pour la première fois par [Kaufman et Bernstein, 1970] (figure 1) à la fin des années 1960, permet de rapprocher la thermodynamique des équilibres de phase de J.-W. Gibbs et le calcul numérique. C'est cette approche mixte, reposant à la fois sur le calcul et sur l'expérience, et très largement utilisée pour la description des matériaux complexes, qui a été mise en œuvre pour décrire la thermodynamique du combustible dans la base de données MEPHISTA.

Contrairement à l'approche dite fondamentale décrite précédemment, la méthode CALPHAD n'est que partiellement prédictive, puisque la construction des énergies de Gibbs des différentes phases s'appuie sur des ajustements de modèles pour reproduire des résultats expérimentaux. Elle présente néanmoins l'avantage de pouvoir prédire la thermodynamique d'un matériau complexe à partir de la seule modélisation des systèmes binaires et ternaires, ce qui en fait une méthode très puissante. Elle permet également d'intégrer dans une fonction unique (G) les informations expérimentales déduites des diagrammes de phases (limites des domaines de stabilité et températures de transition essentiellement), et celles provenant de mesures des grandeurs thermodynamiques (enthalpies de formation, activité, potentiels chimiques, etc.), et d'assurer ainsi une cohérence entre ces différentes sources d'information. Néanmoins, il faut garder à l'esprit que ce sont les grandeurs thermodynamiques qui fixent de manière univoque le niveau énergétique des énergies de Gibbs des différentes phases, ce que ne

permet pas la seule donnée de la topologie du diagramme de phases. C'est un point très important à considérer lorsque l'on cherche à modéliser la thermodynamique d'un matériau complexe. En ce sens, c'est la richesse des informations expérimentales et notamment des mesures de grandeurs thermodynamiques qui permet d'associer à la modélisation thermodynamique un niveau de pertinence pour le matériau considéré. Pour la base MEPHISTA, ce niveau de pertinence est décliné sous forme d'un niveau de qualité associé à la modélisation de chacun des systèmes binaires et ternaires.

Modèles pour décrire l'énergie de Gibbs des différentes phases

Pour mettre en œuvre la méthode CALPHAD, il est nécessaire d'établir la dépendance en température et en composition des énergies de Gibbs, G, des différentes phases. Cette dépendance est fonction de la nature de la phase : on distingue les corps purs (U, O, etc.), les composés stæchiométriques (U_3O_8 , ZrO_2 , etc.) et les solutions (solides – par exemple $UO_{2\pm x}$ – ou liquides).

Pour les éléments et les composés stœchiométriques, les grandeurs thermodynamiques fondamentales sont l'enthalpie standard de formation ($\Delta H_{f,298.15K}^0$), l'entropie à la température ambiante ($S_{298.15K}^0$) et l'évolution avec la température de la chaleur spécifique à pression constante ($C_p^0(T)$). À partir de ces grandeurs, G peut être calculée à l'aide des équations classiques suivantes :

$$G(T) = \Delta H(T) - TS(T)^{(a)}$$

avec :

$$\begin{cases} S(T) = S_{298.15K}^{0} + \int_{298.15K}^{T} \frac{C_{p}^{0}(T)}{T} dT \end{cases} (b) \\ \Delta H(T) = \Delta H_{f,298.15K}^{0} + \int_{298.15K}^{T} C_{p}^{0}(T) dT \end{cases}$$

La forme analytique utilisée pour exprimer la chaleur spécifique à pression constante $(C_p^0(T))$ conduit à une expression générale de G(T) de la forme :

$$G(T) = a_0 + a_1 T + b_0 T L n T + a_2 T^2 + a_3 T^3 + a_1 T^{-1} + \dots$$

Pour les solutions qui peuvent être stables sur un domaine de concentration étendu, G est développée comme une fonction de la température T et de la composition $c = (c_i)_{i=1,N}$ (N étant le nombre de constituants de la solution).

Cette double dépendance de G est généralement prise en compte à travers la somme de deux termes :

$$G(c,T) = G^{ref}(c,T) + G^{m\'el}(c,T)$$

Le premier terme, $G^{ref}(c,T)$, est la somme pondérée des énergies de Gibbs des constituants de la solution :

$$G^{ref}(c,T) = \sum_{i=1}^{N} c_i G_i(T)$$

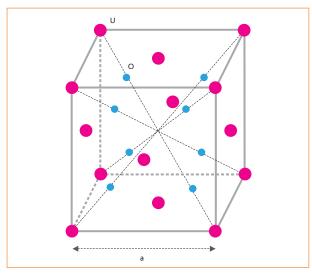


Figure 2 Structure cristalline du dioxyde d'uranium : le sous-réseau des atomes d'uranium est cubique à faces centrées, le sous-réseau des atomes d'oxygène est cubique simple avec une maille a/2.

Le second terme, $G^{m\'el}(c,T)$, correspond à l'énergie de Gibbs de mélange de la solution. Toute la difficulté réside dans l'estimation de ce terme de mélange pour lequel différents modèles existent, chaque nouveau modèle étant développé pour accroître la fiabilité de l'extrapolation de G dans les domaines des températures et des compositions, pour lesquels il n'y a pas d'information expérimentale disponible.

De manière générale, on écrit l'énergie de Gibbs de mélange comme la somme de deux termes, le premier correspondant à l'énergie de Gibbs d'un mélange idéal (mélange « sans interaction d'excès »(1) entre les différents constituants de la solution : c'est l'hypothèse du gaz parfait), le second traduisant la déviation de l'énergie de Gibbs de mélange par rapport à cette hypothèse d'idéalité (déviation appelée énergie de Gibbs de mélange d'excès) :

$$G^{m\acute{e}l}\left(c,T\right)=G^{m\acute{e}l}_{id}\left(c,T\right)+G^{m\acute{e}l}_{ex}\left(c,T\right)$$

avec

$$G_{id}^{m\'el}(c,T) = RT \sum_{i}^{N} c_{i} \ln c_{i}$$

L'énergie de Gibbs de mélange d'excès est usuellement approchée à l'aide des polynômes de [Redlich et Kister, 1948] :

$$G_{\text{ex}}^{\text{mél}}(c,T) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{j} c_{i} c^{j} \sum_{j}^{m} L_{ij}^{m}(T) (c_{i} - c_{j})^{m}$$

Les expressions précédentes présentent un caractère très général, caractère qui permet de séparer les différentes contributions (de

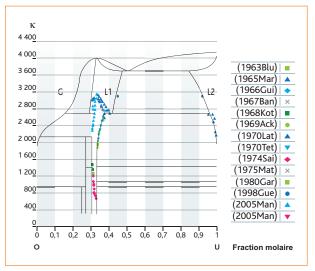


Figure 3 Diagramme de phase O-U calculé (MEPHISTA, trait plein) avec, en comparaison, les points expérimentaux (voir également la figure 6 pour le zoom autour de la composition UO_2 à haute température).

référence, idéal et d'excès). Toutefois, chacune de ces contributions peut prendre des formes sensiblement différentes selon le modèle. Pour la description de la thermodynamique des combustibles oxydes, le choix des modèles relatifs aux phases solutions présentes dans le système binaire O-U (qui est le système principal à modéliser) est particulièrement important. Le dioxyde d'uranium, UO₂, cristallise dans la structure cubique de type fluorine (CaF₂) (*figure 2*).

L'ordonnancement des atomes dans la solution solide non stœchiométrique $UO_{2\pm x}$ peut être décrit à l'aide d'un modèle à trois sous-réseaux avec défauts (voir [Sundman et Agren, 1981]) ; ces défauts permettent de couvrir l'ensemble du domaine des compositions de la solution à l'aide d'un même modèle. Le premier sous-réseau contient les atomes d'uranium, le second les atomes d'oxygène et des défauts de type lacunaire permettant de décrire le domaine de compositions sous-stœchiométrique (UO_{2-x}) ; le dernier sous-réseau contient les atomes d'oxygène en position interstitielle pour UO_{2+x} . Cette représentation n'est pas tout à fait conforme à la réalité microscopique telle que décrite par [Willis, 1964] mais elle permet de représenter les informations expérimentales obtenues pour élaborer le diagramme de phases (*figure 3*) et les mesures de grandeurs thermodynamiques (*figure 4*), très nombreuses sur le système U-O.

Pour la solution liquide, l'énergie de Gibbs est calculée à l'aide du modèle associé, développé par [Prigogine, 1950], dans lequel on suppose un mélange non idéal entre les atomes d'uranium et d'oxygène et les molécules de dioxyde d'uranium.

Cette description permet de couvrir l'ensemble du domaine des compositions, de la solution liquide depuis le métal (uranium pur) jusqu'à l'oxyde sur-stœchiométrique (UO_{2+x}).

 [«] Sans interaction d'excès » signifie que la force d'interaction entre des atomes de nature différente est de l'ordre de la moitié de la somme des forces d'interaction entre atomes de même nature.

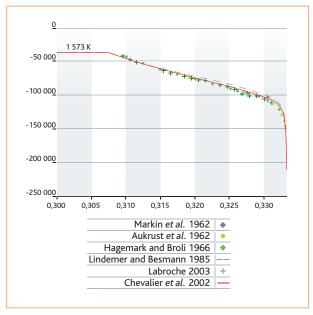


Figure 4 Potentiel d'oxygène 1/2 ΔG_{02} en $kJ.mol^{-1}$, calculé à 1 573 K pour la solution solide $U_{x(U)}O_{2/3}$ en fonction de x(U) avec, en comparaison, les points expérimentaux.

Température (K) Réflectivité, unités arbitraires 3 400 3 300 3 200 3 100 3 100 7 2,5 1,5 2 800 2 700 2 700 2 600 0,1 0,2 0,3 0,4 0,5 0,6 0,7 0,8 0,9 1 1,1 Temps (s)

Figure 5

Détermination par la méthode de flash laser des températures de liquidus et de solidus pour le système UO₂-ZrO₂ pour la composition 80 % mol. UO₂, 20 % mol. ZrO₂, programme COLOSS [Ronchi et Sheindlin, 2002].

Base de données thermodynamiques MEPHISTA

La base de données MEPHISTA (Multiphase Equilibria in Fuels via Standard Thermodynamic Analysis) [Cheynet et Fischer, 2006] est en cours d'élaboration depuis 2000 pour la description de la thermodynamique du combustible. Ce travail est réalisé dans le cadre d'une collaboration entre, d'une part, la société Thermodata, l'Institut national de physique de Grenoble (INPG), le Centre national de la recherche scientifique (CNRS) et, d'autre part, l'IRSN. Cette base contient les coefficients des énergies de Gibbs des phases susceptibles de se former dans le système chimique O-U-Pu-Zr-Fe-Si-C-Ba-Cs-La-Mo-Sr-Ru. L'oxygène (O), l'uranium (U) et le plutonium (Pu) sont les éléments constitutifs des combustibles oxydes, le zirconium (Zr est le matériau constitutif de la gaine du crayon combustible mais peut également être considéré comme un produit de fission), le barium (Ba), le césium (Cs), le lanthane (La), le molybdène (Mo), le strontium (Sr) et le ruthénium (Ru) sont les produits de fission importants pour la description de la thermodynamique du combustible irradié.

Dans la base MEPHISTA, le fer (Fe) est traité pour pouvoir décrire les interactions entre le crayon combustible et certains matériaux de structure (structures internes de la cuve, gaine de la barre de commande, etc.) en conditions accidentelles. Les éléments chimiques silicium (Si) et carbone (C) ont été ajoutés à la base pour pouvoir étudier la thermodynamique du combustible TRISO des réacteurs à haute température (HTR) [Phélip et al., 2006]. Enfin,

l'argon et l'hydrogène sont traités exclusivement dans la modélisation des énergies de Gibbs des composés gazeux.

Pour mesurer l'ampleur du travail réalisé, on peut mentionner que la constitution de la base MEPHISTA a nécessité la modélisation des énergies de Gibbs de 49 phases solutions, 219 corps purs ou composés stœchiométriques condensés et 151 composés gazeux.

Cette modélisation permet de traiter la thermodynamique de combustibles irradiés aussi différents que le dioxyde d'uranium (UO_2) et le MOX utilisés dans les REP ou encore les particules TRISO (combustible UO_2 ou UO_2 – UC_2) envisagées pour les réacteurs à haute température de 4^e génération. La base MEPHISTA permet également des applications pour les combustibles de type carbure qui pourraient être utilisés pour la filière des réacteurs à neutrons rapides refroidis au gaz (GFR pour *Gas Fast Reactor*) et pour les combustibles oxydes de la filière des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (SFR pour *Sodium Fast reactor*).

Il est prévu d'enrichir, dans les prochaines années, la base MEPHISTA par l'ajout d'éléments chimiques permettant de compléter la liste des produits de fission et donc d'obtenir une description plus fine de la thermodynamique des combustibles oxydes, en particulier les produits de fission participant à la phase dite métallique Pd-Tc-Ru-Mo-Rh. Il est également envisagé d'étendre cette base aux éléments dopants actuellement prévus pour les combustibles oxydes, tels que le gadolinium et le chrome.

Programmes en support à l'élaboration de la base MEPHISTA

Comme nous l'avons mentionné plus haut, la qualité de l'approche CALPHAD dépend essentiellement des mesures expérimentales disponibles pour déterminer les coefficients des énergies de Gibbs. Les systèmes binaires métalliques ont été pour l'essentiel étudiés expérimentalement; en revanche, les données relatives aux systèmes binaires oxydes et en particulier ceux incluant les oxydes d'uranium et de plutonium sont en nombre plus limité. Les informations expérimentales relatives aux systèmes ternaires et quaternaires sont encore plus réduites.

Depuis plus de dix ans, un large effort expérimental a été entrepris dans le cadre de divers programmes internationaux et nationaux pour combler les lacunes évoquées ci-dessus. Ces programmes, dans lesquels l'IRSN s'est fortement impliqué, ont eu pour noms CIT (projet de la Commission européenne – CE), COLOSS (CE) (exemple de détermination des températures de *liquidus* et de *solidus* dans le système UO₂-ZrO₂ – *figure 5*), RASPLAV (projet OCDE/CSNI(²)), MASCA (projet OCDE/CSNI), MASCA2 (projet OCDE/CSNI), ENTHALPY (projet CE) et CORPHAD (projet ISTC(³)); ils ont porté notamment sur le système quaternaire U-O-Zr-Fe [Chevalier et al., 2004; Bechta et al., 2006; Bechta et al., 2007], système clé pour la description de la dégradation des crayons combustibles en conditions accidentelles.

Cet effort se poursuit aujourd'hui avec le programme ISTC PRECOS, dans lequel l'IRSN est un partenaire important.

La base MEPHISTA intègre au fur et à mesure l'ensemble des données expérimentales nouvelles obtenues dans le cadre des programmes mentionnés ci-dessus, ainsi que celles publiées dans la littérature technique ouverte, en procédant à une réactualisation régulière des coefficients des expressions des énergies de Gibbs, ce qui permet d'accroître constamment son niveau de pertinence. En ce sens, elle constitue un outil unique pour la capitalisation des connaissances en thermodynamique dans le domaine du combustible nucléaire.

En dépit de ces efforts continus, il subsiste des domaines de compositions et de températures pour lesquels il n'existe pas de donnée expérimentale. La thermodynamique des équilibres de phases étant une discipline ancienne (XIX^e siècle), il faut garder à l'esprit que tout ce qui n'a pas déjà été fait est difficile à réaliser. Faire appel à des hypothèses de modélisation pour construire les énergies de Gibbs de certaines phases peut alors devenir une autre voie. Dans ce cadre, il est important de confronter ces hypothèses à d'autres choix. Cette confrontation peut se faire lors de comparaisons entre bases thermodynamiques. Dans le cadre du programme ENTHALPY en 2003 [Debremaecker et al., 2003], une comparaison entre la base MEPHISTA et la base THMO élaborée par AEA-Technology (Grande-Bretagne) a été conduite, avec pour objectif d'établir un consensus

	Calculée	Mesurée
Cs ₂ MoO ₄	-1 664,9	-1 514,5 ± 1,0
Cs ₂ UO ₄	-1 879,9	-1 928,2 ± 1,0
Cs ₂ ZrO ₃	-1 587,9	-1 584,8 ± 1,0

Tableau 1 Comparaison des enthalpies standards de formation obtenues par calcul de structure électronique [F. Gupta, 2008] et des enthalpies mesurées [Cordfunke et Konings, 1990] (en kJ.mol⁻¹).

sur les hypothèses de modélisation [Cheynet *et al.*, 2004]. Il est envisagé de poursuivre l'exercice dans le cadre du réseau collaboratif SAMANTHA⁽⁴⁾ (en cours de mise en place), avec la base développée au *Royal Military College* du Canada.

Une autre source d'information peut être constituée par les résultats des calculs de structure électronique, dans lesquels on résout les équations de la mécanique quantique. Nous ne rentrerons pas ici dans le détail théorique de ces calculs mais il faut savoir que l'application de cette approche permet d'obtenir les valeurs des enthalpies de formation ($\Delta H_{J, 298. \, 15K}^{0}$) pour les composés stœchiométriques avec une précision satisfaisante ; ces valeurs peuvent contribuer à la détermination des coefficients des expressions des énergies de Gibbs (équations (a) et (b)). À titre d'exemple, le $tableau\ 1$ compare, pour certains composés stœchiométriques de césium, les enthalpies standards de formation $\Delta H_{J, 298. \, 15K}^{0}$ obtenues par calcul de structure électronique et les enthalpies mesurées.

Applications en sûreté nucléaire

La base de données MEPHISTA et la base de données NUCLEA, plus spécialement dédiée à la thermodynamique du corium, sont utilisées par de nombreux instituts, partenaires industriels ou universités: EDF, CEA, Areva, VTT (Finlande), AEA-T (Grande-Bretagne), Alexandrov RIT (Russie), KAERI (Corée du Sud), AECL (Canada), RisØ National Laboratory (Danemark), Boise State University (USA)...

À l'IRSN, elles sont utilisées, soit couplées à des logiciels développés au sein de l'Institut, simulant la dégradation du cœur en conditions accidentelles (par exemple, le code ICARE/CATHARE [Salay et Fichot, 2005]), soit en support à l'interprétation de différents essais (par exemple, les essais réalisés dans le cadre des programmes OCDE MASCA [Barrachin et Defoort, 2004]).

- $\hbox{(2)} \quad {\it CSNI: Committee on the Safety of Nuclear Installations}. \\$
- (3) ISTC: International Science and Technology Centre.
- (4) Le réseau collaboratif SAMANTHA (Simulation by Advanced Mechanistic and Thermodynamic Approaches to nuclear fuels), piloté par l'IRSN, a pour objectif le développement de modèles détaillés qui décrivent le comportement des produits de fission dans le combustible.

Ci-après sont présentées deux applications récentes de la base MEPHISTA, la première relative à l'interprétation des essais du programme PHÉBUS-PF et plus particulièrement à l'estimation de la température de perte d'intégrité du combustible en conditions accidentelles dans un réacteur à eau sous pression [Barrachin et al., 2008], la seconde étant plus prospective puisque consacrée au comportement des produits de fission dans le combustible TRISO, qui pourrait être utilisé dans les réacteurs à très haute température VHTR de 4º génération [Barrachin et al., 2008].

Température de perte d'intégrité du combustible en conditions accidentelles graves

Lors d'un hypothétique accident grave de fusion du cœur d'un réacteur à eau sous pression dû à une perte du refroidissement et à l'indisponibilité des systèmes de sauvegarde, l'interaction entre la gaine en zircaloy-4 et le combustible ($\rm UO_2$) est le mécanisme principal de dégradation des crayons combustibles et donc du cœur. Le combustible peut être soumis à différents environnements gazeux (vapeur d'eau et hydrogène), qui déterminent la nature de l'interaction entre la gaine et le combustible, et la température à partir de laquelle le combustible perd son intégrité. Les conditions d'exposition du combustible évoluent au cours d'un scénario accidentel ; le combustible peut ainsi être exposé à des températures comprises entre 900 K et 2 800 K, et à des atmosphères très diverses pouvant aller d'un environnement fortement oxydant (présence d'une grande quantité de vapeur d'eau) à un environnement fortement réducteur (riche en hydrogène).

Dans un environnement réducteur, l'affinité chimique du Zircaloy pour l'oxygène va conduire à extraire l'oxygène du combustible et ainsi le réduire pour partiellement le dissoudre. Cette interaction entre la gaine et le combustible démarre à 1 273 K lorsque les matériaux sont en contact, ce qui est généralement le cas pour un crayon de combustible irradié. À 2 023 K, la liquéfaction de la gaine accélère le processus d'interaction qui conduit, *in fine*, à la perte d'intégrité du combustible à une température de l'ordre de 1 000 K, inférieure à la température de fusion de l'UO₂ (3 120 K).

Dans un environnement fortement oxydant, la phénoménologie est significativement différente. L'exposition de la gaine à une telle atmosphère diminue le processus d'interaction précédemment décrit puisque la gaine est rapidement oxydée par l'atmosphère environnante, et l'interaction entre la gaine oxydée (ZrO₂) et le combustible (UO₂) ne débute qu'à très haute température (2 800 K, d'après le diagramme de phase UO₂-ZrO₂), conduisant de fait à une liquéfaction du combustible plus « tardive ».

Cette compréhension des phénomènes de dégradation du combustible en fonction des caractéristiques de l'atmosphère environnante a

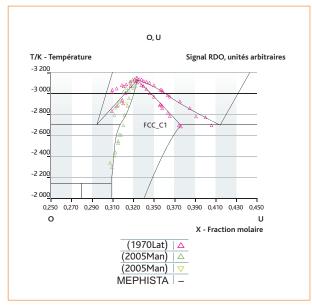


Figure 6 Diagramme de phases O-U (partie à haute température, zoom de la figure 3), avec en comparaison les points expérimentaux de [Manara et al., 2005].

longtemps prévalu, jusqu'aux conclusions établies après les deux premiers essais du Programme PHÉBUS-PF (FPT0 et FPT1), dédié à l'étude d'une situation d'accident de fusion du cœur dans un REP [Clément et al., 2003 ; Jacquemain et al., 2000]. Ces essais conduits sous atmosphère oxydante (à une pression de 0,2 MPa) avec du combustible UO_2 , non irradié pour FPT0, irradié à 2,4 % at. pour FPT1, ont mis en évidence une perte d'intégrité du combustible autour de 2 500 K, c'est-à-dire 300 K plus bas que ce qui était généralement attendu.

L'analyse de la composition du combustible après l'essai FPT1 (solution solide de composition $[U_{0,86}Zr_{0,12}Fe_{0,005}Cr_{0,001}Nd_{0,006}Pu_{0,004}Ce_{0,004}]O_{2,08-2,11})$ a montré qu'il avait effectivement réagi avec la gaine oxydée, ainsi qu'avec certains matériaux dits de structure (tels que le fer à l'état oxydé) mais que lui-même avait également subi une oxydation. Pour déterminer la température de liquéfaction d'un tel matériau, ainsi que l'influence relative des différents effets (irradiation, matériaux de gainage et de structure, oxydation du combustible) sur cette température, la base MEPHISTA apparaît naturellement comme un outil pertinent.

L'ensemble des expériences conduites sur le dioxyde d'uranium irradié montrent que l'influence des produits de fission sur sa liquéfaction est faible pour des taux de combustion allant jusqu'à 5 % at. [Bates, 1970; Yamanouchi *et al.*, 1988]. La présence de produits de fission ne peut donc être pas invoquée pour expliquer l'abaissement de la température de perte d'intégrité du combustible dans les essais FPTO et FPT1.

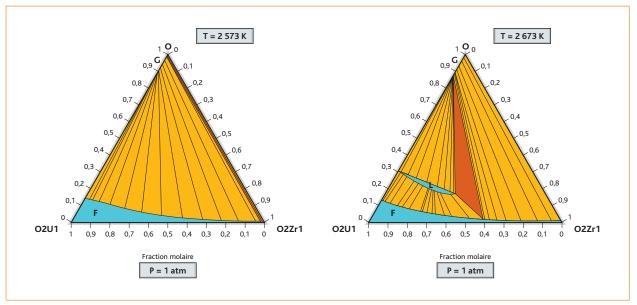


Figure 7 Diagramme de phases UO₂-ZrO₂-O à P_{tot} = 0,1 MPa à 2 573 K (à gauche) et à 2 673 K (à droite).

Composition	T ^L (K)	T ^S (K)	Composition	T ^L (K)	TS(K)
(U _{0,88} Zr _{0,12}) O _{2,000}	3 080	3 020	(U _{0,88} Zr _{0,12}) O _{2,08-2,11}	2 980 - 2 960	2 760 - 2 660
(U _{0,87} Zr _{0,12} Fe _{0,01}) O _{2,00}	3 060	2 860	(U _{0,87} Zr _{0,12} Fe _{0,01}) O _{2,08-} 2,11	2 960 - 2 920	2 560 - 2 460

Tableau 2 Températures de liquidus (T^L) et solidus (T^S), calculées par MEPHISTA pour des compositions représentatives de celles mesurées après l'essai FPT1.

Les calculs thermodynamiques (tableau 2) montrent que l'oxydation du combustible contribue seule à abaisser significativement la température à laquelle celui-ci commence à se liquéfier (température de solidus). Cet effet pourrait être également avancé pour expliquer les températures de perte d'intégrité du combustible mesurées lors des essais VERCORS, conduits sous atmosphère oxydante [Pontillon et al., 2005].

Dans les calculs, l'apparition de la phase liquide pour la composition mentionnée ci-avant est liée à la modélisation des différentes phases (liquide [L], solution sur-stœchiométrique [F] et gaz [G]) à haute température dans le système binaire U-O (figure 6) et l'extrapolation de cette modélisation dans le domaine de composition délimité par UO₂, ZrO₂ et O dans le système ternaire U-O-Zr (figure 7). La modélisation du système binaire U-O tient compte du potentiel d'oxygène de la solution sur-stœchiométrique UO_{2+x} [Chevalier et al., 2004], ainsi que des récentes mesures réalisées par [Manara et al., 2005] sur la liquéfaction des solutions solides UO_{2+x}. Ces deux sources d'information, qui permettent de fixer de façon univoque les énergies de Gibbs des différentes phases à haute température,

appuient la validité des calculs thermodynamiques présentés. Ces évaluations mettent en évidence le rôle que pourrait jouer l'oxydation du combustible sur sa liquéfaction dans les conditions d'un accident de fusion du cœur et la nécessité de traiter ce mécanisme dans les logiciels qui simulent la dégradation du cœur afin de mieux quantifier, en fonction du temps, la masse de matériaux qui s'écoule au fond de la cuve du réacteur et de pouvoir ainsi estimer les risques de percement de la cuve.

Comportement des produits de fission dans les combustibles TRISO prévus pour les réacteurs à haute température

Le réacteur à très haute température (VHTR) est l'une des options technologiques faisant l'objet de recherches dans le cadre du développement de nouvelles filières pour la 4^e génération de réacteurs nucléaires.

C'est un réacteur à neutrons thermiques, refroidi à l'hélium gazeux et utilisant du graphite comme modérateur. Le combustible, dont la température est comprise entre 1 273 et 1 473 K, dans les conditions nominales, relève d'une technologie spécifique : il est

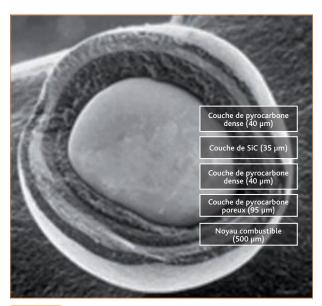


Figure 8 Vue en coupe d'une particule TRISO.

T/K - Température 3 600 3 200 2 800 2 400 2 000 BCT X 1 600 1 200 C3U2(S) 800 40<u>0</u> <-C1(GRA_HEX_A9) -C1U1(FCC_B1) U1(ORT_A20)-> 0.2 0.3 X - Fraction molaire (43Car) | 🗆 (52Mal) | <> (61Wit) | 🛆 (66Sea) | 🗆 (69Ben) | 🛆 (43Sno) | O (59Bro) (63Wit) ∇ (52Mal) (60Blu) (63Wit) MEPHISTA | -(52Chi) | 🗸 (60Blu) | O (65Gui)

Figure 9 Diagramme de phase C-U calculé (MEPHISTA, trait plein) avec, en comparaison, les points expérimentaux.

constitué de particules (appelées TRISO) d'UO₂ de diamètre inférieur au millimètre, enrobées de différentes couches de revêtement (fiqure 8) ayant chacune une fonction spécifique.

En particulier, les couches de confinement (les deux couches de pyrocarbone dense et la couche de carbure de silicium) sont séparées du noyau combustible par une couche poreuse (appelée *buffer*), dont le rôle est de confiner les gaz relâchés par le noyau (produits de fission, monoxyde et dioxyde de carbone résultant de l'interaction entre l'oxygène libéré par le noyau d'UO₂ lors de la fission et le carbone du *buffer*) et également de limiter l'effet du gonflement sous irradiation de la partie combustible sur les couches externes.

La fonction de confinement des différentes couches est primordiale compte tenu des taux de combustion visés par la filière, puisqu'il est prévu de pouvoir aller jusqu'à 15 % at. Dans ce cadre, la tenue des couches de confinement aux sollicitations mécaniques exercées par les gaz (monoxyde de carbone et produits de fission gazeux), ainsi que la rétention effective des produits de fission (PF) à l'intérieur des particules TRISO doivent pouvoir être démontrées.

Pour évaluer précisément ces fonctions, les aspects cinétiques des interactions entre les éléments chimiques doivent être examinés [Barrachin et al., 2008], ce que la thermodynamique ne permet pas de faire. Néanmoins, elle permet d'évaluer l'état physique et la forme chimique possible des différents produits de fission, ainsi que la production de monoxyde et dioxyde de carbone à l'équilibre (approche conservative).

La forme chimique des produits de fission et la production des gaz CO et ${\rm CO_2}$ dépendent, entre autres paramètres, du potentiel d'oxygène et de la température. Le potentiel d'oxygène est difficile à évaluer et l'on ne dispose que de peu de mesures. Des estimations ont été faites par [Lindemer et Nordwall, 1974] qui indiquent, pour des particules irradiées à 6 % at., des valeurs comprises entre – 480 et – 380 kJ.mol⁻¹ à 1 450 K et entre – 500 and – 380 kJ.mol⁻¹ à 1 873 K. Cette incertitude impose de réaliser les calculs thermodynamiques en fonction du potentiel d'oxygène qui est calculé de manière autocohérente par MEPHISTA.

Le calcul thermodynamique de la production de CO et CO₂ dépend de la modélisation du système ternaire U-C-O. Dans MEPHISTA, cette modélisation s'appuie, d'une part, sur les modélisations des deux systèmes binaires U-O (*figure 3*) et U-C (*figure 9*), d'autre part, sur la modélisation des phases ternaires sur la base de la revue bibliographique de [Potter, 1972]. MEPHISTA permet de calculer, sans ajustement préalable (ce qui constitue une bonne validation de la modélisation thermodynamique), les pressions de CO mesurées au-dessus des différents domaines de compositions du système ternaire U-C-O [Gossé *et al.*, 2006].

La *figure 10* présente l'évolution des pressions du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone (CO et CO_2) dans le volume libre du *buffer* de la particule TRISO à 1 450 K et à 1 873 K en fonction du potentiel d'oxygène. Les températures choisies correspondent respectivement aux conditions nominales de fonctionnement et à la température maximale acceptable pour les situations

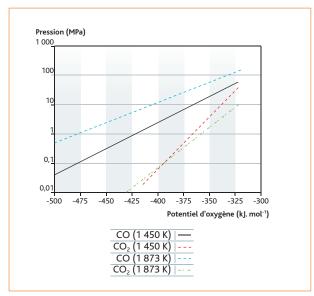


Figure 10 Évolution des pressions de CO et CO₂ à l'équilibre thermodynamique dans le buffer d'une particule TRISO à 1 450 K et 1 873 K, en fonction du potentiel d'oxygène.

Figure 11 Évolution de la répartition du césium dans les différentes phases à 1 450 K, en fonction du potentiel d'oxygène.

accidentelles dans la conception actuelle des réacteurs VHTR. Les calculs montrent que la pression conduisant à la rupture de la couche de SiC (estimée à 100 MPa) est obtenue pour un potentiel d'oxygène compris entre – 330 and – 325 kJ.mol⁻¹.

Cette valeur, qui a été mesurée dans le combustible UO_2 d'un réacteur de type REP pour un taux de combustion de l'ordre 9 % at. [Walker $et\,al.$, 2005], devrait être atteinte pour le combustible VHTR pour des taux de combustion plus importants, compte tenu de la différence des enrichissements respectifs en 235 U. Si l'on suppose que les gaz de fission (Xe et Kr) sont complètement relâchés depuis le noyau, leur contribution relative à la pression interne totale peut être importante pour des taux de combustion modérés (de l'ordre de 5 % at.), sans que toutefois celle-ci ne menace la tenue mécanique de la particule.

La contribution des autres produits de fission volatils à la pression totale est beaucoup plus faible. Cependant, les examens de particules TRISO après irradiation [Minato et al., 1994] ont montré que, si le noyau fissile retenait généralement les terres rares (La, Nd, etc.) et une partie des éléments des alcalino-terreux (Ba, Sr), certains produits de fission étaient susceptibles de diffuser vers le buffer et d'y être piégés (Cs), et même de migrer vers l'extérieur de la pastille (pour certains produits de fission métalliques comme Ag) sans que les mécanismes de migration soient tout à fait compris.

La base de données MEPHISTA permet d'étudier la forme chimique du césium dans la particule TRISO, forme chimique qui influe de

manière cruciale sur son relâchement aux conditions nominales et en conditions accidentelles. Les calculs thermodynamiques montrent qu'en présence de carbone (du *buffer*) et pour un potentiel d'oxygène inférieur à $-385\ kJ.mol^{-1}$, les carbures de césium C_nCs (n = 8,10,24,36,48,60) sont susceptibles de se former à 1 450 K et qu'en conséquence, le césium serait piégé dans le *buffer* (*figure 11*).

Néanmoins, la stabilité de ces composés n'a été étudiée qu'à relativement basse température. Les données thermodynamiques de la base de données MEPHISTA utilisées pour la construction des énergies de Gibbs de ces composés stæchiométriques proviennent de mesures entre 670 K et 1 070 K [Salzano et Aronson, 1965; Salzano et Aronson, 1966].

À plus hautes températures (correspondant à une situation accidentelle), la décomposition de ces composés pourrait engendrer un relâchement de césium depuis le *buffer*. À partir des données thermodynamiques et de la compréhension de la nature des liaisons chimiques dans ces composés, une approche a été développée par [Salzano et Aronson, 1967] pour prédire les conditions dans lesquelles les carbures de césium pourraient se former ou se décomposer.

L'utilisation de cette approche montre qu'à une température de 1 873 K, le césium ne devrait pas s'associer au carbone.

Il ne devrait donc pas contribuer aux relâchements gazeux à partir de la particule TRISO. Ce point est actuellement à l'étude dans le cadre du programme européen RAPHAEL [Phélip et al., 2006].

■ Conclusions et perspectives

Le développement de la base de données thermodynamiques MEPHISTA a commencé, il y a huit ans, à l'initiative de l'IRSN, en collaboration avec la société Thermodata, l'INPG et le CNRS. Elle contient, aujourd'hui, la modélisation d'un système chimique relativement large, qui permet de traiter de nombreuses questions thermodynamiques relatives au combustible irradié, qu'il soit de type oxyde ou de type carbure. Les travaux futurs de modélisation seront engagés selon deux axes principaux :

- l'extension de la base MEPHISTA à d'autres éléments, notamment les éléments dopants du combustible, pour pouvoir décrire de manière plus fine l'évolution du potentiel d'oxygène en fonction de l'irradiation, grandeur thermodynamique clé pour la détermination des formes chimiques des produits de fission ;
- l'analyse et la prise en compte des données expérimentales résultant des différents programmes expérimentaux en cours (ITSC PRECOS notamment).

Enfin, il est envisagé d'utiliser la base MEPHISTA en support à l'élaboration de modèles de thermodynamique adaptés pour le logiciel de calcul MFPR (*Module for Fission Product Release*), traitant du comportement des produits de fission dans le combustible, développé à l'IRSN en collaboration avec IBRAE (Russie).

Remerciements

L'auteur tient à remercier B. Cheynet (Thermodata) et E. Fischer (INPG) pour le travail de modélisation thermodynamique qui a été conduit depuis plusieurs années, tant pour la constitution de la base de données MEPHISTA que pour celle de la base de données NUCLEA, dédiée plus spécifiquement à la thermodynamique du corium. Il remercie également ses collègues de l'TRSN, R. Dubourg et M. Kissane, pour leur collaboration au travail relatif au comportement des produits de fission dans le combustible TRISO, et F. Gupta, pour sa contribution à ce travail de synthèse.

Références

- M. Barrachin (1993). Contribution à l'étude de l'ordre local dans le système nickel-vanadium par diffusion diffuse de neutrons, doctorat de l'université Paris XI-Orsay.
- M. Barrachin, F. Defoort (2004). Thermophysical properties of in-vessel corium: MASCA programme related results, Proceedings of the OECD MASCA Seminar, Aix-en-Provence (France), 10-11 June.
- M. Barrachin, P.-Y. Chevalier, B. Cheynet, E. Fischer (2007). New modelling of the U-O-Zr phase diagram in the hyper-stoichiometric region and consequences for the fuel rod liquefaction in oxidising conditions, J. Nucl. Mater. 375, 397.
- M. Barrachin, R. Dubourg, M. Kissane, V. Ozrin (2008). Progress in understanding fission-product behaviour in TRISO-coated UO₂ fuel particles, European Material Reseach Society (EMRS 2008), Strasbourg (France), May.
- J.-L. Bates (1970). Melting Point of Irradiated Uranium Dioxide, J. Nucl. Mater. 36, 234.
- S.-V. Bechta, E.-V. Krushinov, V.-I. Almjashev, S.-A. Vitol, L.-P. Mezentseva, Yu.-B. Petrov, D.-B. Lopukh, V.-B. Khabensky, M. Barrachin, S. Hellmann, K. Froment, M. Fischer, W. Tromm, D. Bottomley, F. Defoort, V.-V. Gusarov (2006). *Phase diagram of the ZrO*₂-FeO system, J. Nucl. Mater. 348, 114.
- S.-V. Bechta, E.-V. Krushinov, V.-I. Almjashev, S.-A. Vitol, L.-P. Mezentseva, Yu.-B. Petrov, D.-B. Lopukh, V.-B. Khabensky, M. Barrachin, S. Hellmann, K. Froment, M. Fischer, W. Tromm, D. Bottomley, F. Defoort, V.-V. Gusarov (2007). *Phase diagram of the UO*₂-FeO₁+x system, J. Nucl. Mater. 362, 46.
- P.-Y. Chevalier, E. Fischer (2001). Thermodynamic modeling of the C-U and B-U binary systems, J. Nucl. Mater. 288, 100.
- P.-Y. Chevalier, B. Cheynet, E. Fischer (2004). Progress in the thermodynamic modeling of the U-O-Zr ternary system, Calphad 28, 15.
- B. Cheynet, P. Chaud, P.-Y. Chevalier, E. Fisher, P. Masson, M. Mignanelli (2004). NUCLEA Propriétés dynamiques et équilibres de phases dans les systèmes d'intérêt nucléaire. Journal de Physique IV, 113, 61.
- B. Cheynet, E. Fischer (2006). MEPHISTA: A Thermodynamic database for new generation nuclear fuels, http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00222025/fr/.
- B. Clément, N. Hanniet-Girault, G. Repetto, D. Jacquemain, A.-V. Jones, M.-P. Kissane, P. von der Hardt (2003). LWR severe accident simulation: synthesis of the results and interpretation of the first PHÉBUS-FP experiment FPTO. Nucl. Eng. Des. 225, 5.
- E.-HP. Cordfunke, R.-JM. Konings (1990). Thermochemical data for reactor materials and fission products, North Holland.
- A. Debremaecker, M. Barrachin, F. Jacq, F. Defoort, M. Mignanelli, P.-Y. Chevalier, B. Cheynet, S. Hellmann, F. Funke, C. Journeau, P. Piluso, S. Marguet, Z. Hózer, V. Vrtilkova, L. Belovsky, L. Sannen, M. Verwerft, P.-H. Duvigneaud, K. Mwamba, H. Bouchama, C. Ronneau (2003). European thermodynamical database for in and ex-eessel applications, FISA 2003, Luxembourg (Luxembourg), 10-13 November.
- A. Finel (1987). Contribution à l'étude des effets d'ordre dans le cadre du modèle d'Ising : états de base et diagrammes de phase, doctorat d'État de l'université Pierre et Marie Curie.
- S. Gossé, C. Guéneau, C. Chatillon, S. Chatain (2006). Critical review of carbon monoxide Pressure measurements in the uranium-carbon-oxygen ternary system, J. Nucl. Mater. 352, 13.
- F. Gupta (2008). Étude du comportement du produit de fission césium dans le dioxyde d'uranium par méthode ab initio, doctorat de l'université Paris XI-Orsay.
- M. Hansen, K. Anderko (1991). Constitution of binary alloys, Genium Publishing Corporation, New York.
- F.-C. Iglesias, B.-J. Lewis, P.-J. Reid, P. Elder (1999). Fission product release mechanisms during reactor accident conditions, J. Nucl. Mater. 270, 21.
- D. Jacquemain, S. Bourdon, M. Barrachin, A. Debremaecker (2000). FPT1 Final Report, IP/00/479.
- L. Kaufman, H. Bernstein (1970). Computer calculation of phase diagrams with special reference to refractory metals, Academic Press, New York.
- H. Kleykamp (1985). The chemical state of fission products in oxide fuels, J. Nucl. Mater. 131, 221.
- T.-B. Lindemer, H.-J. de Nordwall (1974). An analysis of chemical failure of coated UO₂ and other oxide fuels in the high temperature gas-cooled reactor, Technical Report ORNL-4926, Oak Ridge National Laboratory.
- D. Manara, C. Ronchi, M. Sheindlin, M. Lewis, M. Brykin (2005). Melting of stoichiometric and hyperstoichiometric uranium dioxide, J. Nucl. Mater. 342, 148.
- K. Minato, T. Ogawa, K. Fukuda, M. Shimizu, Y. Tayama, I. Takahashi (1994). Fission product behavior in Triso-coated UO2 fuel particles, J. Nucl. Mater. 208, 266.
- M. Phélip, F. Charollais, S. Shihab, K. Bakker, P. Guillermier, P. Obry, T. Abram, M.A. Fütterer, E. Toscano, H. Werner, M. Kissane (2006). High-temperature reactor fuel technology in the european projects HTR-F1 and RAPHAEL. Proceedings of the 3rd International Topical Meeting on High temperature reactor technology, 1-4 Oct., Johannesburg, South Africa.
- Y. Pontillon, P.-P. Malgouyres, G. Ducros, G. Nicaise, R. Dubourg, M. Kissane, M. Baichi (2005). Lessons learnt from VERCORS tests. Study of the active role played by UO_Z-ZrO_Z-FP interactions on irradiated fuel collapse temperature, J. Nucl. Mater. 344, 265.
- P.-E. Potter (1972). The uranium-plutonium-carbon-oxygen systems-the ternary systems uranium-carbon-oxygen and plutonium-carbon-oxygen, and the quaternary system uranium-Plutonium-carbon-oxygen, J. Nucl. Mater. 42, 1.
- I. Prigogine (1950). Thermodynamique chimique, R. Defay (Ed.), Dunod.
- O. Redlich, A.-T. Kister (1948). Algebraic representation of thermodynamic properties and the classification of solutions, Ind. Eng. Chem. 40, 345.
- C. Ronchi, M. Sheindlin (2002). Laser-pulse melting of nuclear refractory ceramics, Int. J. of Thermophysics 23(1), 293.
- M. Salay, F. Fichot (2005). Modelling of Metal-Oxide Corium Stratification in the Lower Plenum of a Reactor Vessel, International Topical Meeting on Nuclear Thermal-Hydraulics (NURETH-11), Avignon (France).
- F.-J. Salzano, S. Aronson (1965). Thermodynamic Properties of the Cesium-Graphite Lamellar Compounds, J. Chem. Phys. 43, 149.
- F.-J. Salzano, S. Aronson (1966). Stability of Phases in the Cesium-Graphite System, J. Chem. Phys. 45, 2, 221.
- F.-J. Salzano, S. Aronson (1967). The Compatibility of Graphite with Cesium, Nucl. Eng. Des. 28, 51.
- B. Sundman, J. Agren (1981). A Regular Solution Model for Phases with Several Components and Sublattices Suitable for Computer Applications, J. Phys. Chem. Solids 42, 297.
- C.-T. Walker, V.-V. Rondinella, D. Papaioannou, S. Van Winckel, W. Goll, R. Manzel, (2005). On the Oxidation State of UO₂ Nuclear Fuel at a Burn-up of Around 100 MWd/kgHM, J. Nucl. Mater. 192.
- B.-T.-M. Willis (1964). Structures of UO_2 , UO_2 +x and U_{409} by Neutron Diffraction, J. Phys. France 25, 431.
- S. Yamanouchi, T. Tachibana, K. Tsukui, M. Oguma (1988). J. Nucl. Sci. Tech. 25(6), 528.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

2.5

PROTECTION DES INSTALLATIONS NUCLÉAIRES CONTRE LES IMPACTS D'AVION :

essais d'impact de projectiles déformables réalisés par VTT en Finlande

François TARALLO

Bureau d'analyse du génie civil et des structures Les études des conséquences de l'impact d'un avion sur la sûreté d'une installation nucléaire sont réalisées par les exploitants d'installations et évaluées par l'IRSN. Elles s'appuient notamment sur l'étude du comportement mécanique des ouvrages de génie civil sous l'effet d'impacts, pour évaluer ces conséquences à l'égard des exigences de sûreté de l'installation.

Jusqu'aux années 1990, ces études concernaient essentiellement des agressions localisées et modérément énergétiques (petit avion de tourisme, avion militaire) et utilisaient des méthodes empiriques d'étude du comportement des structures (perforation localisée de dalles).

■ Depuis quelques années, d'une part, la définition des agressions considérées a évolué (impacts plus étendus et plus énergétiques), d'autre part, les capacités des logiciels de calcul et des serveurs ont nettement progressé, permettant de prendre en compte l'interaction entre le projectile et la cible en transitoire avec une analyse en dynamique rapide.

Toutefois, ces nouvelles capacités de calcul doivent être accompagnées de la réalisation d'essais simples et aisément modélisables, permettant une compréhension fine des phénomènes et la validation des outils de simulation.

- Dans le cadre de la prise en compte de chutes d'avions commerciaux sur un réacteur EPR, l'autorité de sûreté finlandaise (STUK) a fait réaliser en 2004, par l'organisme public de recherche VTT (Valtion Teknillinen Tutkimuskeskus), une installation permettant d'effectuer des essais d'impact de projectiles sur des cibles (plaques métalliques et dalles en béton). En 2006, l'IRSN s'est joint à ce programme, dont la première phase s'achève début 2009 ; une deuxième phase se déroulera de 2009 à 2011.
- L'objectif de ce programme est la réalisation d'essais dont l'analyse peut être effectuée par les méthodes usuelles de la résistance des matériaux, afin d'améliorer la compréhension puis la capacité de simulation numérique des phénomènes physiques observés. En conséquence, les principaux paramètres des essais sont à une échelle suffisante pour l'étude des ouvrages en béton armé sous l'effet de l'impact d'avion.
- La première phase du programme d'essais prend en compte les deux sujets essentiels pour l'évaluation du comportement des ouvrages de génie civil soumis à un impact : d'une part, les mécanismes d'écrasement du projectile et les forces d'impact correspondantes, d'autre part, le comportement mécanique de l'ouvrage « cible » soumis à ces forces d'impact.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

- Le premier sujet fait l'objet d'essais d'impact de tubes métalliques déformables sur des plaques en acier « rigides », équipées pour la mesure des forces de contact, en particulier au plus près de la surface touchée. Ces essais visent l'acquisition d'une donnée essentielle pour l'évaluation des conséquences de l'impact d'un projectile déformable sur une cible : l'évolution de la force de contact échangée entre le projectile et la cible pendant la durée de l'impact.
- Depuis la publication en 1968 de la méthode du professeur Riera⁽¹⁾, cette force est généralement évaluée par le calcul, en tenant compte des répartitions de masse et de force d'écrasement du projectile le long de son axe. Une partie des essais de VTT permettent de valider le choix pratique de ces répartitions et d'identifier les limites d'application de la méthode.

En particulier, des premiers résultats suggèrent que, dans des conditions expérimentales comparables, les projectiles remplis d'eau communiqueraient à la cible une impulsion supérieure à celle communiquée par des projectiles exempts de liquide, ces derniers communiquant à la cible une impulsion comparable à leur quantité de mouvement avant l'impact.

- En conséquence, la méthode de Riera ne serait pas strictement applicable au cas de projectiles contenant une part significative de liquide. Ce phénomène, qui peut affecter de façon significative les analyses de sûreté relatives à certaines agressions externes, doit encore être confirmé par des essais dédiés, qui seront réalisés dans la seconde phase du programme expérimental.
- Le second sujet fait l'objet d'essais d'impact avec les mêmes tubes métalliques sur des dalles en béton armé carrées de 2 m de côté et d'une épaisseur comprise entre 15 cm et 25 cm. Un des principaux objectifs

visés par ces essais est la prévision des déplacements et des désordres dans les structures en béton armé sollicitées au-delà de leur limite élastique.

- Ces essais mettent en évidence les principaux modes de fonctionnement du béton armé (flexion et cisaillement) et permettent d'améliorer les simulations numériques des éléments de structure soumis à des sollicitations entraînant les déformations des matériaux acier et béton dans le domaine non linéaire, voire jusqu'à la rupture. Des simulations numériques à l'aide d'un logiciel de résolution de problèmes de mécanique en dynamique rapide (LS-DYNA) ont déjà été réalisées et donnent des résultats satisfaisants dans le cas des dalles sollicitées en flexion.
- En s'appuyant notamment sur un programme expérimental de qualification d'éprouvettes constituées du béton des essais VTT, l'IRSN souhaite faire développer, dans les codes de calcul LS-DYNA et le code de calcul aux éléments finis CAST3M, une loi de comportement dédiée au comportement du béton soumis à de fortes sollicitations dynamiques.

Par ailleurs, des simulations à l'aide du modèle simplifié d'une dalle permettent de quantifier les paramètres macroscopiques qui pilotent son comportement dynamique en flexion: la rigidité de la dalle, qui détermine la fréquence de ses vibrations et le moment plastique des sections de béton armé qui détermine son déplacement final.

La poursuite du travail de définition et d'interprétation des essais doit conduire à la mise au point d'une méthode de simulation du comportement des ouvrages de génie civil soumis à un impact. Cette méthode sera applicable au cas des ouvrages réels et viendra supporter les évaluations de sûreté menées par l'IRSN.

⁽¹⁾ J. Riera (1968). On the stress analysis of structures subjected to aircraft impact forces. Nuclear engineering and design, 8:415-426.

SARNET: réalisations majeures et perspectives

Thierry ALBIOL

Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement

Jean-Pierre VAN DORSSELAERE

Direction de la prévention des accidents majeurs

Bernard CHAUMONT

Division des programmes de recherche

Tim HASTE

Paul Scherrer Institut

Christophe JOURNEAU

Commissariat à l'énergie atomique

Leonhard MEYER

Forschungzentrum Karlsruhe GmbH

Bal Raj SEHGAL

AlbaNova University Center

Bernd SCHWINGES, David BERAHA

Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit GmbH

Alessandro ANNUNZIATO, Roland ZEYEN

Commission européenne

51 organisations ont mis en commun leurs capacités de recherche dans le réseau SARNET (Severe Accident Research NETwork of Excellence), afin de travailler sur les sujets considérés comme les plus importants pour améliorer toujours plus la sûreté des centrales nucléaires (Nuclear Power Plants [NPPs]) existantes et futures dans le domaine des accidents graves (Severe Accidents [SA]). Ce projet, cofinancé par la Commission européenne (CE) dans le cadre du 6º Programme-cadre, a été établi pour optimiser l'utilisation des moyens disponibles et constituer des groupes de recherche durables dans l'Union européenne. SARNET s'attaque à la fragmentation pouvant exister entre les différents programmes nationaux de R&D, en définissant des programmes de recherche communs et en développant des méthodologies et des outils informatiques communs pour l'évaluation de la sûreté. SARNET comprend la plupart des acteurs participant à la recherche sur les accidents graves en Europe, plus le Canada.

Pour atteindre ces objectifs, toutes les organisations rassemblées en réseau dans SARNET contribuent à un programme conjoint d'activités consistant à :

mettre en œuvre un outil de communication avancé (Advanced

Communication Tool [ACT]) pour accéder à toutes les informations du projet, promouvoir l'échange d'informations et gérer les documents ;

 harmoniser et réorienter les programmes de recherche et en définir de nouveaux;

- analyser les résultats expérimentaux fournis par les programmes de recherche pour développer une vision commune des phénomènes correspondants;
- développer le code européen ASTEC (code « intégral » utilisé pour prédire le comportement des centrales nucléaires pendant un accident grave hypothétique), qui tire profit en termes de modèles physiques des connaissances générées au sein de SARNET;
- développer les bases de données scientifiques où sont stockés dans un format commun (DATANET) tous les résultats des programmes de recherche;
- développer une méthodologie commune pour l'évaluation probabiliste de la sûreté des centrales nucléaires;
- développer des cours et rédiger un livre sur les accidents graves, destiné aux étudiants et aux chercheurs;
- promouvoir la mobilité du personnel entre les différentes organisations européennes.

Cet article présente les réalisations majeures après quatre ans et demi de fonctionnement du réseau en termes de connaissances acquises, d'amélioration du code de référence européen ASTEC, de dissémination des résultats et d'intégration des programmes de recherche menés par les différents partenaires.

Après cette première période (2004-2008), cofinancée par la CE, un autre contrat pour les quatre années suivantes est en cours de négociation avec la CE dans le cadre du 7^e Programme-cadre. Au cours de cette période, les activités du réseau se concentreront principalement sur les problèmes considérés comme prioritaires au cours de la première période ; les activités expérimentales seront directement incluses dans les travaux communs et le réseau évoluera vers une autosuffisance complète. Les bases de cette évolution sont présentées dans la dernière partie de cet article.

Contexte et objectifs de SARNET

Les centrales nucléaires exploitées en Europe sont conçues selon les principes de défense en profondeur. Elles comportent en particulier des systèmes robustes d'ingénierie et de confinement destinés à protéger le public contre les rejets de radioactivité pour toute une série d'accidents hypothétiques.

Néanmoins, dans certaines circonstances de très faible probabilité, des scénarios d'accident grave peuvent provoquer une fusion du cœur et un endommagement de la centrale conduisant à la dispersion de matière radioactive dans l'environnement, et constituant ainsi un risque pour la santé du public.

En 2004, de nombreux travaux avaient déjà été réalisés dans le domaine de la recherche sur les accidents graves des réacteurs à eau grâce, en particulier, aux nombreuses actions européennes entreprises dans le cadre des 4e et 5e Programmes-cadre de la Commission européenne. Malgré ces travaux, plusieurs sujets demeuraient pour lesquels des activités de recherche étaient nécessaires pour réduire des incertitudes considérées comme importantes et consolider les plans de gestion des accidents graves [Magallon et al., 2005].

Les programmes de recherche sur les accidents graves ont été – et sont encore – décidés aux niveaux nationaux. Des accords de coopération sont souvent conclus autour de ces programmes nationaux, mais le sont au cas par cas. Face à la réduction inévitable des budgets nationaux dans ce domaine, il a été nécessaire de mieux coordonner les efforts pour optimiser l'utilisation des moyens humains et expérimentaux disponibles afin d'améliorer encore la sûreté des centrales nucléaires existantes et futures.

De ce fait, depuis avril 2004, 51 organisations, incluant des soutiens techniques aux autorités de sûreté (TSO), des industriels, des organismes de recherche et des universités, ont décidé de saisir l'opportunité offerte par la CE dans le cadre du 6º Programme-cadre de regrouper de manière durable au sein du réseau SARNET (Severe Accident Research NETwork of Excellence) leurs capacités de recherche dans le domaine des accidents graves. Ces organisations sont issues de 18 États membres de l'Union européenne (Autriche, Belgique, Bulgarie, République tchèque, Finlande, France, Allemagne, Grèce, Hongrie, Italie, Lituanie, Pays-Bas, Roumanie, Slovaquie, Slovénie, Espagne, Suède, Royaume-Uni), de Suisse, du Canada et des centres de recherche communs de la CE (figure 1).

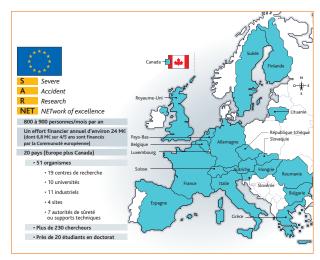


Figure 1 Caractéristiques générales de SARNET.

Le réseau bénéficie des complémentarités existantes entre les différents partenaires (experts en matériaux/chimie des produits de fission, essais à petite échelle/grande échelle, matériaux simulants/réels, expérimentateurs/développeurs de modèles/développeurs de codes) et les renforce [Micaelli et al., 2005].

Les objectifs généraux de SARNET sont :

- de s'attaquer à la fragmentation qui existe entre les différentes organisations de R&D, notamment en définissant des programmes de recherche communs et en développant/validant des outils informatiques;
- d'harmoniser les méthodologies appliquées pour l'évaluation des risques et d'améliorer les outils d'évaluation probabiliste de sûreté [EPS] de niveau 2;
- de diffuser la connaissance aux nouveaux venus de l'Union européenne plus efficacement et en les associant plus étroitement à la définition et à la conduite des programmes de recherche;
- de rassembler les scientifiques de haut niveau en recherche sur les accidents graves pour constituer un leadership mondial en outils informatiques pour l'évaluation des risques liés aux accidents graves;
- de former de nouvelles générations d'experts en accidents graves.

Cette publication présente les réalisations majeures après quatre ans et demi de fonctionnement du réseau en termes de connaissances acquises, d'amélioration du code de référence européen ASTEC pour les accidents graves, de diffusion des résultats et d'intégration des programmes de recherche menés par les différents partenaires.

Organisation

Le réseau SARNET est organisé selon une structure à deux niveaux. Au premier niveau, un conseil d'administration (*Governing Board*) est en charge des décisions stratégiques et est conseillé par un comité consultatif (*Advisory Committee*). Au second niveau, une équipe de gestion (*Management Team*) est chargée de la gestion quotidienne du réseau.

Le conseil d'administration examine les progrès faits par le réseau, en particulier en termes d'intégration progressive, et fait des recommandations sur les futures orientations. Il décide de la répartition de la contribution financière de la CE et approuve le programme des activités.

Le conseil d'administration est constitué d'un membre désigné par chaque contractant et d'un représentant de la CE en tant qu'observateur. Les membres font en général partie de la haute direction de leur organisation et peuvent attribuer les ressources de leur organisation pour l'exécution des activités de SARNET.

Le comité consultatif conseille le conseil d'administration sur les orientations stratégiques des activités de recherche de SARNET. Il comporte des responsables des organisations utilisatrices finales, incluant des industriels, électriciens et organismes de réglementation (qui ne sont pas nécessairement des membres de SARNET), nommés par le conseil d'administration.

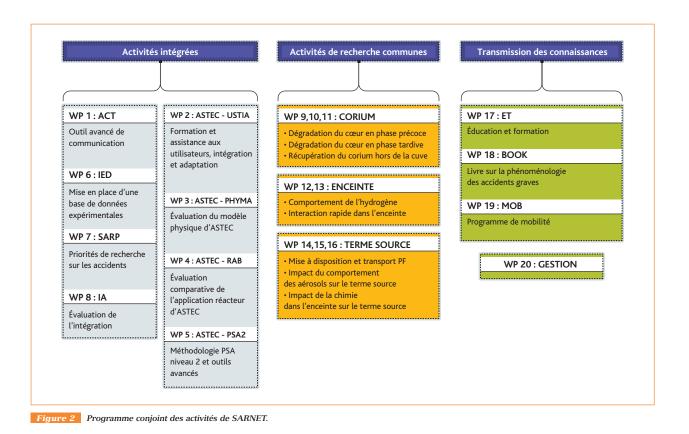
L'équipe de gestion est en charge, au nom du conseil d'administration, de l'administration quotidienne de SARNET.

En cohérence avec l'organisation du programme conjoint des activités (Joint Programme of Activities [JPA]) (voir Programme conjoint des activités), l'équipe de gestion se compose du coordinateur SARNET qui dirige l'équipe, du responsable de l'outil de communication avancé (Advanced Communication Tool Leader), du coordinateur ASTEC, du responsable EPS2, du responsable de la base de données expérimentales (Experimental Database Leader), du responsable des priorités de recherche sur les accidents graves (Severe Accident Research Priorities Leader), de trois coordinateurs scientifiques (domaines du corium, du confinement et du terme source), du coordinateur des activités de dissémination de l'excellence (Excellence Spreading Coordinator) et d'un secrétaire.

L'équipe de gestion surveille les progrès faits dans les différentes activités, examine avec les chefs de projet correspondants les actions possibles pour surmonter les difficultés potentielles, examine les nouveaux projets, promeut les collaborations au sein du réseau et avec les organisations externes (OCDE, ISTC, AIEA, etc.), fait des propositions au conseil d'administration pour la mise à jour du programme des activités, et diffuse les informations à l'intérieur et à l'extérieur du réseau, en particulier en organisant régulièrement des conférences et des séminaires spécialisés et via le site Web public de SARNET. Le coordinateur agit sous la direction du conseil d'administration et lui rend compte de ses activités. Il présente au conseil d'administration des rapports techniques et financiers, et met en application ses décisions, notamment en mettant à jour le programme des activités. Il est, en outre, responsable des relations avec la CE qui, chaque année, organise un examen de l'état d'avancement du projet effectué par un panel d'experts indépendants.

Programme conjoint des activités

Pour réaliser les objectifs de SARNET, un programme conjoint des activités (JPA) a été établi et mis à jour chaque année. Toutes les organisations en réseau dans SARNET contribuent au JPA, qui est subdivisé en 20 projets internes (*figure 2*), pouvant être regroupés en trois catégories :



- activités d'intégration pour renforcer les liens entre les organisa-
- activités de recherche conjointes pour faire progresser la connaissance;
- activités de dissémination de l'excellence pour diffuser la connaissance.

Principales réalisations

Les principales réalisations, après quatre ans et demi de fonctionnement du réseau, sont décrites ci-après.

Activités d'intégration

Les éléments d'intégration du programme sont considérés comme étant de la plus haute importance et constituent les éléments clés du JPA.

Un outil de communication avancé [Advanced Communication Tool (ACT)] a été mis en œuvre pour permettre la communication entre les partenaires du projet et la gestion des documents. ACT est un concept clé pour atteindre les objectifs de SARNET: la technologie actuelle des portails fournit un support unifié pour une collaboration efficace au sein du réseau, en particulier:

- accès, recherche, publication de documents et de codes (concept de stockage des connaissances);
- contact et communication avec les partenaires (services interactifs et collaboratifs);
- coordination des actions/programmes (gestion coopérative du réseau);
- liens vers les projets des communautés satellites (projets de R&D, sites connexes).

La plate-forme ACT a été réalisée en se basant sur l'application MS Sharepoint Portal Server. L'accès est fourni par des navigateurs Web, permettant de se connecter à partir de n'importe quelle connexion Internet. L'accès à cet outil a été accordé à environ 250 utilisateurs de SARNET et ACT est utilisé intensivement et efficacement : 500 à 1 000 accès par mois, 8 000 éléments stockés (figure 3). En outre, un site Web public (www.sar-net.org) fournissant les informations essentielles sur SARNET a été mis en œuvre.

DATANET, le réseau de bases de données expérimentales de SARNET, a été développé et tenu à jour pour assurer la préservation, l'échange et le traitement des données expérimentales sur les accidents graves, y compris toute la documentation connexe. Les données sont les données expérimentales existantes que les partenaires SARNET

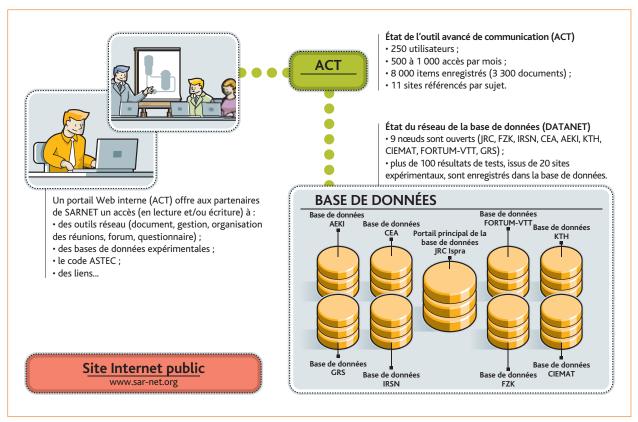


Figure 3 Systèmes d'information de SARNET.

souhaitent partager au sein du réseau et toutes les nouvelles données générées au sein de SARNET. DATANET est basé sur l'outil STRESA développé par JRC Ispra et se compose d'un réseau avec plusieurs bases de données locales (ou nœuds). Il est possible, depuis la base de données centrale, de se connecter à d'autres bases de données locales ; des connexions directes aux bases de données locales sont également possibles, ce qui accroît le potentiel et la puissance de ce type de système. Actuellement, il existe neuf nœuds : le nœud central à JRC Ispra et des nœuds locaux à FZK, IRSN, CEA, CIEMAT, FORTUM-VTT, AEKI, KTH et GRS. Des cours de formation ont été périodiquement organisées à JRC Ispra. À ce jour, les résultats de plus de 100 expériences ont été entrés dans la base (figure 3).

Le code intégral européen pour les accidents graves ASTEC [Van Dorsselaere et al., 2006], développé conjointement par l'IRSN et la GRS, est le principal composant d'intégration et contribue efficacement à la dissémination de la connaissance. En outre, la plupart des activités conjointes de recherche sont liées à ASTEC car l'un de leurs objectifs fondamentaux est de fournir des modèles physiques à intégrer dans ASTEC et de les valider. L'échange d'informations sur les modèles détaillés développés par les différents experts via

l'interprétation des expériences conduit à des modèles communs dans les différents codes détaillés (par exemple ICARE/CATHARE et ATHLET-CD pour la dégradation du cœur). À partir de ces modèles détaillés, des modèles simplifiés sont ensuite élaborés et introduits dans le code ASTEC.

28 organisations collaborent avec l'IRSN et la GRS sur le développement du code et son évaluation. ASTEC décrit le comportement de l'ensemble d'une centrale nucléaire dans une situation d'accident grave, y compris la gestion de l'accident grave par les procédures et les systèmes d'ingénierie. Il est intensivement utilisé par l'IRSN pour les EPS de niveau 2 pour les REP de 900 et 1 300 MWe, et par la GRS pour son étude de consolidation des EPS2 pour les réacteurs 1 300 MWe Konvoi. En outre, de plus en plus de partenaires l'utilisent pour les calculs de scénarios d'accidents complets.

Une collaboration étroite et efficace entre les utilisateurs et les développeurs d'ASTEC a été mise en place en utilisant l'outil ACT et l'outil Web MARCUS pour la maintenance du code. Des cours de formation sur l'utilisation du code ont été organisés. Trois versions principales du code ont été livrées aux partenaires :V1.1 mi-2004,

V1.2 mi-2005 et V1.3 fin 2006 (avec une mise à jour V1.3 rev2 fin 2007). D'importantes améliorations ont été apportées à la documentation du code depuis le début de SARNET. Trois réunions du club des utilisateurs ASTEC, la dernière ayant eu lieu en avril 2008, ont permis une discussion directe fructueuse entre les utilisateurs et les développeurs.

Des développements ont été effectués par le CEA sur les modèles de comportement du corium dans le fond de cuve et sur le refroidissement externe de la cuve, y compris la validation sur les expériences LIVE (FZK), SULTAN (CEA) et ULPU (université de Santa Barbara). D'autres modèles ont été proposés ou améliorés après discussion entre les partenaires, par exemple : relâchement d'argentindium-cadmium et de ruthénium du cœur, oxydation du carbure de bore B₄C, transfert de masse d'iode et oxydation radiolytique dans l'enceinte (voir détails et autres exemples au point Activités conjointes de recherche). D'autres améliorations sont prévues dans un futur proche, comme sur la remise en suspension mécanique des aérosols dans les circuits. ASTEC a également été utilisé pour préparer et interpréter plusieurs expériences, comme QUENCH et LIVE à FZK. Des calculs préliminaires de scénarios d'accident pour des réacteurs à eau bouillante et des réacteurs de type CANDU, effectués avec les versions actuelles du code, ont donné des résultats prometteurs. Ils ont permis de hiérarchiser et spécifier les adaptations nécessaires des modèles.

Une validation poussée du code a été effectuée par les partenaires sur 65 expériences (analytiques et intégrales), souvent des problèmes standards internationaux de l'OCDE. Généralement, les résultats peuvent être considérés comme bons, même très bons pour la thermohydraulique des circuits, la dégradation du cœur et le comportement des aérosols et produits de fission. De nombreuses applications ont été effectuées pour divers scénarios d'accident grave dans des centrales nucléaires de différents types (REP, Konvoi 1 300, Westinghouse 1 000, VVER-440, VVER-1 000 et RBMK), y compris des comparaisons avec d'autres codes. L'accord peut être considéré comme bon avec les codes intégraux MELCOR et MAAP4 sur les tendances et les ordres de grandeur des résultats, et très bon avec les résultats des codes détaillés tels qu'ATHLET-CD et ICARE/CATHARE pour la dégradation du cœur. La robustesse numérique d'ASTEC a été grandement améliorée depuis le début de SARNET.

L'IRSN et la GRS prennent désormais en compte tous les souhaits des utilisateurs sur l'évolution d'ASTEC pour la nouvelle série de versions ASTEC V2. La première d'entre elles, V2.0, qui doit sortir en juin 2009, sera applicable à l'EPR (en particulier son récupérateur de corium) et inclura la plupart des modèles détaillés d'ICARE2, code de référence de l'IRSN pour la dégradation du cœur.

L'harmonisation de la méthodologie des EPS de niveau 2 est aussi une activité d'intégration. L'EPS de niveau 2 est un outil puissant pour évaluer la vulnérabilité spécifique des centrales nucléaires en ce qui concerne les accidents graves. Elle évalue les scénarios possibles en termes de fréquence, perte de l'intégrité de l'enceinte et rejet radioactif dans l'environnement, et quantifie la contribution des mesures de prévention et d'atténuation en termes de réduction des risques. Différentes approches sont utilisées en Europe, dérivées plus ou moins de celles mises en œuvre aux USA. Une description et une comparaison des principales méthodes utilisées par les différents partenaires pour élaborer leurs EPS ont été consignées dans un document. Pour de nombreux problèmes concernant les EPS de niveau 2, des questionnaires ont été établis et les réponses ont été analysées pour définir les prochaines étapes de l'harmonisation. Des études de cas ont ensuite été effectuées sur des problèmes spécifiques comme la combustion de l'hydrogène, la chimie de l'iode, le refroidissement du corium et ses interactions avec le béton (ICB), les rejets précoces importants, les définitions des états finaux stabilisés du réacteur et les méthodes d'interface des EPS de niveaux 1 et 2. Un certain degré d'harmonisation a été atteint et des recommandations ont été rédigées.

Un rapport sur l'état actuel des connaissances sur les méthodes de fiabilité dynamique a été rédigé et les limites des méthodes classiques qui pourraient être dépassées en utilisant ces méthodes de fiabilité ont été identifiées. Un examen des avantages d'une des méthodes possibles (simulation dynamique de Monte Carlo des arbres d'événements) a été réalisé pour une situation de perte d'alimentation générale. De gros efforts ont été consacrés à un exercice de benchmark (quantification du risque de défaillance de l'enceinte de confinement provoquée par l'activation d'un système de sûreté au cours de la phase de dégradation du cœur en cuve). Cet exercice de benchmark a permis de comparer les méthodes de fiabilité dynamique avec les méthodes classiques. Enfin, une définition précise des exigences d'ASTEC pour les besoins des EPS de niveau 2 et des travaux sur le couplage d'ASTEC avec des outils probabilistes sont en cours.

Le projet interne Severe Accident Research Priority (SARP) a permis d'identifier des priorités de recherche, avec comme objectif de réorienter progressivement les programmes nationaux existants et de contribuer à en lancer de nouveaux de manière coordonnée, en éliminant les doublons et en développant des complémentarités. Cette activité s'est déroulée en étroite collaboration avec les participants représentant des organisations de soutien technique aux autorités de sûreté, l'industrie et des organismes publics. Comme pour le tableau de classement et d'identification des phénomènes (Phenomena Identification and Ranking Table [PIRT]) élaboré dans le cadre du projet européen EURSAFE [Magallon et al., 2005],

le spectre complet des situations d'accident grave, allant du dénoyage du cœur à la stabilisation du corium à long terme, l'intégrité de l'enceinte à long terme et au rejet de produits de fission dans l'environnement a été pris en compte. Une attention toute particulière a été apportée à une approche orientée risque pour se concentrer véritablement sur les problèmes en suspens les plus pertinents. Au final, un consensus a été atteint et 18 problèmes principaux ont été classés en quatre catégories.

Six sujets sont considérés comme devant être étudiés de manière approfondie avec une haute priorité :

- refroidissement du cœur par renoyage et refroidissement des débris :
- configuration du bain de corium dans le puits de cuve lors d'une ICB et refroidissement du corium par injection d'eau par le haut;
- relocalisation du bain fondu dans l'eau, interaction combustibleliquide de refroidissement (Fuel Coolant Interaction [FCI]) hors cuve;
- mélange et combustion de l'hydrogène dans l'enceinte ;
- impact de l'oxydation (conditions d'oxydation du Ru/pénétration d'air pour les éléments combustibles à fort taux de combustion et MOX) sur le terme source ;
- chimie de l'iode dans le circuit primaire (RCS) et dans l'enceinte. Quatre sujets ont reçu une priorité moyenne ; leur étude doit se poursuivre tel que cela est déjà prévu dans les différents programmes de recherche. L'évaluation du risque est cernée grâce aux progrès considérables des connaissances mais certaines questions sont encore à traiter :
- génération d'hydrogène pendant le renoyage et relocalisation du bain fondu dans la cuve :
- refroidissement du corium dans le fond de cuve ;
- intégrité de la cuve après un refroidissement externe de la cuve ;
- échauffement direct de l'enceinte par éjection du corium sous pression après rupture de cuve.

Pour cinq sujets, les connaissances actuelles sont considérées comme suffisantes vu l'état actuel des connaissances et l'importance des risques et de la sûreté, et compte tenu des activités en cours : ces sujets sont en priorité basse ; ils pourraient être clos une fois les activités en cours terminées :

- refroidissement du corium dans un récupérateur avec un refroidissement externe ;
- écoulement du corium dans le puits de cuve après rupture de la cuve;
- formation de fissures et fuites dans l'enceinte de confinement en béton ;
- impact du comportement des aérosols sur le terme source (dans les tubes des générateurs de vapeur et dans les fissures de l'enceinte de confinement);
- impact du renoyage du cœur sur le terme source.

Trois sujets sont considérés comme « pouvant être clos ». Compte tenu de l'état actuel des connaissances et compte tenu du risque considéré comme faible par rapport aux autres sujets, avec un risque supérieur et des incertitudes plus grandes, aucun autre programme expérimental n'est nécessaire :

- intégrité du circuit primaire et répartition de la chaleur ;
- interaction entre corium et céramique d'un récupérateur de corium hors cuve, refroidissement par injection d'eau par le bas;
- FCI comportant une explosion de vapeur dans la cuve fragilisée.

Ce classement des sujets permettra de réaffecter les compétences et la main-d'œuvre aux sujets de haute priorité, à la fois pour le 7e Programme-cadre de la CE et pour les autres projets internationaux (projets de l'OCDE, par exemple).

Activités conjointes de recherche

Ces activités constituent la base de la R&D du réseau. Liées aux priorités de recherche susmentionnées, leur objectif est de résoudre les problèmes prioritaires en suspens. Elles sont réparties en trois domaines : comportement du corium, intégrité de l'enceinte de confinement et terme source.

Pour ces trois domaines, la même méthode a été adoptée: examen et sélection des expériences pertinentes disponibles, synthèse des analyses et interprétation des données fournies par ces expériences, examen des modèles physiques, synthèse et proposition de nouveaux modèles ou d'améliorations de modèles pour ASTEC.

Corium

Le comportement du corium est un vaste sujet concernant plus de la moitié des problèmes sélectionnés dans le PIRT du programme EURSAFE [Magallon *et al.*, 2005]. L'étude du comportement du corium s'étend de la phase précoce de la dégradation du cœur à la phase tardive de formation du corium dans le cœur et de relocalisation du corium hors cuve.

Un effort important est actuellement consacré au développement et à l'amélioration des bases de données des propriétés physiques des matériaux et de thermodynamique du corium.

Les activités conjointes ont été réalisées par 22 partenaires de SARNET [Journeau et al., 2008], comme par exemple la contribution à la définition et à l'interprétation des essais, des exercices de benchmark et des améliorations des modèles associés: essais CCI-OCDE sur l'ICB; essai QUENCH-10 sur la pénétration d'air dans une grappe de crayons; essai QUENCH-11 sur la dégradation et le renoyage d'une grappe; essai QUENCH-12 sur une grappe VVER; essais COMET-L1 et L2 sur l'ICB en géométrie 2D; essais LIVE sur

Des activités similaires ont été entreprises pour les projets de l'ISTC (International Science and Technology Centre): PARAMETER sur le renoyage du cœur par le haut, METCOR sur l'impact des interactions thermomécaniques sur le comportement de la cuve et CORPHAD sur la thermodynamique du corium (et l'amélioration de la base de données NUCLEA). Pour le programme international TERME SOURCE (voir la partie Terme source suivante), FZK et l'IRSN ont harmonisé leurs matrices d'essais sur l'oxydation du Zircaloy par des mélanges air/vapeur, et sur l'oxydation et la dégradation du carbure de bore B₄C.

Parmi les principales réalisations sur le corium [Journeau et al., 2008], nous pouvons citer comme exemples les éléments suivants :

- la compréhension des phénomènes d'oxydation sous vapeur et sous air a été améliorée et les corrélations d'oxydation ont été validées. L'importance de la composition des matériaux a été démontrée. Des recherches sur les nouveaux matériaux de gaine, en particulier sur la production d'hydrogène et le relâchement des produits de fission, sont nécessaires ;
- les données sur l'oxydation du carbure de bore B₄C collectées grâce aux expériences effectuées à FZK et à l'IRSN permettent une interprétation commune de l'essai intégral PHÉBUS-FPT3;
- le lancement des expériences LIVE (phase de dégradation tardive en cuve) a démarré une nouvelle série de travaux de modélisation sur le comportement du bain en cuve ;
- les différents modèles de défaillance de la cuve par rupture due au fluage ont été comparés et une compréhension commune de l'essai OLHF-1 de l'OCDE a été obtenue. La modélisation de l'évolution des fissures est en cours ;
- les analyses sur le refroidissement des lits hétérogènes de débris 2D ont montré une capacité de refroidissement accrue par rapport aux lits de particules 1D. Ceci relance l'intérêt pour ce problème, que ce soit expérimentalement ou numériquement, y compris des recherches sur la formation du lit de débris ;
- des essais récents d'ICB ont donné des résultats inattendus avec une anisotropie d'ablation marquée pour les matériaux riches en silice. L'interprétation et la modélisation de ce comportement doivent être poursuivies;
- des concepts de récupérateurs de corium basés sur l'étalement (EPR) et sur l'injection d'eau par le bas (COMET, collecteurs annulaires) sont à l'étude et des progrès ont été faits en ce qui concerne leur modélisation;
- la validation de la base de données thermodynamiques et chimiques NUCLEA a été étendue grâce à l'analyse des expériences financées par la CE et un exercice interlaboratoires a évalué les incertitudes des analyses par spectrométrie de rayons X à dispersion d'énergie (EDX).

Les efforts de recherche sur les phénomènes énergétiques pouvant potentiellement menacer l'intégrité de l'enceinte de confinement concernent le comportement de l'hydrogène et les interactions rapides dans l'enceinte. En ce qui concerne le premier point, la combustion de l'hydrogène et l'atténuation des risques associés sont étudiés en se concentrant sur la formation de mélanges de gaz combustibles, la composition locale des gaz et les modes de combustion potentiels, y compris la cinétique des réactions à l'intérieur des recombineurs catalytiques. La répartition de l'hydrogène à l'intérieur de l'enceinte est étudiée pour évaluer le risque de fortes concentrations. Des programmes expérimentaux sur la combustion avec gradients de concentration (ENACCEF à l'IRSN) et la cinétique des recombineurs (REKO-3 à FZJ) ont été réalisés et/ou sont en cours. Les résultats expérimentaux ENACCEF ont été utilisés pour un benchmark avec 3 codes CFD (Computational Fluid Dynamic) 3D différents (FLUENT, TONUS-3D et REACFLOW). Les résultats ont révélé certaines faiblesses des modèles de combustion. De nouveaux essais sont prévus : dans l'installation ENACCEF sur l'interaction des flammes d'hydrogène avec l'aspersion, et dans l'installation REKO-3 sur l'inflammation des gaz sur des éléments catalytiques chauds. Les résultats seront utilisés pour la validation des codes de calcul.

La principale réalisation en ce qui concerne le mélange de l'atmosphère de l'enceinte est la simulation des expériences d'aspersion dans l'enceinte qui ont été effectuées dans des installations à petite échelle (TOSQAN à l'IRSN) et à grande échelle (MISTRA au CEA). Les phénomènes de dépressurisation de l'atmosphère et de disparition de la stratification ont été traités. Des simulations numériques de ces expériences ont été réalisées avec des codes CFD et des codes dits « à zones » (en anglais Lumped-parameter). Les résultats ont démontré la faisabilité de telles simulations, qui pourraient également être appliquées aux enceintes réelles d'ici quelques années, lorsque des capacités de calcul suffisantes seront disponibles.

Actuellement, toutefois, l'application des outils CFD à l'enceinte ne peut pas être effectuée avec une résolution suffisante du fait de la vaste gamme d'échelles de turbulence concernées et de la puissance de calcul nécessaire. Les simulations CFD du fonctionnement des recombineurs catalytiques (Passive Autocatalytic Recombiners [PAR]) avec des modèles d'enceinte 2D simplifiés représentent une première étape importante vers des simulations complètes de l'interaction PAR-atmosphère dans des centrales réelles. Les simulations d'expériences de condensation effectuées dans l'installation CONAN (université de Pise) ont permis d'évaluer les différents modèles de condensation de la vapeur utilisés dans les codes CFD, phénomène influant de manière importante sur le comportement de l'atmosphère.

En ce qui concerne les interactions rapides, les FCI (Fuel Coolant Interaction) sont étudiées pour accroître la connaissance des paramètres affectant l'énergétique de l'explosion vapeur lors de la relocalisation du corium dans l'eau et déterminer le risque de rupture de la cuve ou de l'enceinte. Les investigations portent sur les processus spécifiques comme le pré-mélange, la fragmentation du bain fondu et le mode de transfert thermique des particules. Les travaux sur les FCI ont été étroitement liés à la phase 1 du programme OCDE/SERENA, dont l'objectif est d'évaluer les capacités de la génération actuelle des codes de calcul FCI pour prédire la sollicitation des structures du réacteur par une explosion vapeur et d'atteindre un consensus sur la compréhension des phénomènes de FCI importants en situation réacteur [Buck et al., 2008].

Les codes MC3D et IKEMIX/IDEMO ont été principalement utilisés à cet effet. De plus, un certain nombre d'expériences ont été effectuées dans les installations MISTEE et DEFOR à KTH, et KROTOS au CEA Cadarache, qui a redémarré après déménagement du centre JRC Ispra. Leur objectif est de compléter la compréhension de la fragmentation et de l'explosion des bains de corium. La principale réalisation a été d'obtenir un consensus sur le fait qu'une explosion de vapeur à l'intérieur de la cuve ne provoquerait pas une défaillance de la cuve, ce qui permet de clore le problème d'explosion vapeur dans la cuve en termes de risque, et sur le fait qu'une explosion de vapeur hors cuve pourrait endommager le puits de cuve. Toutefois, le niveau des chargements dans ce dernier cas ne peut pas être prédit du fait de la grande dispersion des résultats. Les raisons majeures de cette dispersion sont l'incertitude sur la répartition du vide dans la zone de pré-mélange, induisant de gros écarts sur les conditions initiales de l'explosion, et l'incertitude sur le comportement explosif des bains de corium. Ces incertitudes seront traitées expérimentalement et analytiquement lors de la phase 2 du programme OCDE/SERENA et dans la suite du réseau SARNET.

Le deuxième problème concernant les interactions rapides est l'échauffement direct de l'enceinte (*Direct Containment Heating [DCH]*) après rupture de cuve. Ceci inclut la dispersion du corium dans différents compartiments du réacteur, les processus de transfert thermique et les processus chimiques comme la production et la combustion de l'hydrogène. Les conséquences du DCH étant essentiellement liées à la géométrie du puits de cuve, une base de données a été établie pour les types de centrales EPR, REP-1 300 français, VVER-1 000 et le réacteur allemand Konvoi par un programme expérimental exécuté dans les installations DISCO (FZK). Pour les centrales EPR et VVER-1 000, le problème du DCH peut être considéré comme clos du fait de la géométrie du puits de cuve. Les efforts d'amélioration des capacités de prédiction du code CFD MC3D, d'une part, et des codes COCOSYS et ASTEC, d'autre part, seront poursuivis. Les exercices

de benchmark ont révélé de graves lacunes en ce qui concerne la modélisation actuelle : les corrélations de dispersion des débris doivent être mieux adaptées aux géométries du puits de cuve et des modèles adéquats d'oxydation et de combustion de l'hydrogène sont nécessaires car ce sont les phénomènes réellement menaçants pour l'intégrité de l'enceinte (les résultats expérimentaux ont montré que les effets thermiques directs seuls ne devraient pas menacer l'intégrité de l'enceinte). Sur la base des données expérimentales disponibles, l'extrapolation à l'échelle réacteur de la combustion de jets d'hydrogène dans une atmosphère air-vapeur-hydrogène doit être établie à l'aide de codes de combustion (COM3D, REACFLOW), puis les paramètres de modélisation doivent être transférés aux codes avec des modèles DCH (codes CFD ou COCOSYS) et finalement adaptés à ASTEC.

Terme source

Dans le domaine du terme source, le relâchement, le transport et le dépôt des produits de fission ont été étudiés, y compris en situation d'entrée d'air dans la cuve, donc dans un environnement oxydant. Pour le transport et le dépôt, une étude s'est concentrée sur l'iode, à la fois sa volatilité dans le circuit primaire (en particulier pour l'interaction avec les rejets concomitants d'Ag/In/Cd) et sa partition gaz-liquide dans l'enceinte (étendue également au ruthénium). Une autre étude a porté sur le comportement des aérosols dans des scénarios particulièrement importants pour le risque: séquences de contournement de l'enceinte (en particulier rupture de tube de générateur de vapeur ou RTGV), fissures traversantes de l'enceinte et revolatilisation thermique et mécanique. Les principales réalisations sont détaillées dans [Haste et al., 2006]

Un effort important a été consacré à la poursuite du programme expérimental international TERME SOURCE (ISTP) lancé par l'IRSN, le CEA et EDF avec le soutien de la CE [Clément et Zeyen, 2005]. L'interprétation des essais AECL et RUSET (ces derniers à AEKI) disponibles a montré que le rejet de Ru se produit sous forme d'oxyde, après une période d'incubation au cours de laquelle une oxydation complète du combustible et de la gaine se produit. Les essais RUSET et VTT ont montré que les formes d'oxyde peuvent rester assez volatiles dans les zones de température inférieure pour être transportées jusqu'à l'enceinte de confinement du réacteur sous une forme gazeuse stable, ce qui est un résultat très important. Ces essais se poursuivent actuellement. Les conditions des essais du futur programme VERDON (CEA) [Clément et Zeyen, 2005] ont été définies via des simulations de scénarios d'entrée d'air. Ces nouvelles données seront utilisées pour valider la modélisation ASTEC. La proposition d'expérience VERONIKA, dans un cadre ISTC, sur le relâchement de produits de fission depuis un combustible

VVER fortement irradié a été examinée et les propositions SARNET de matrice d'essais ont été adoptées. Un exercice similaire a été mené sur le projet d'essais EVAN sur la chimie de l'iode, dont les résultats sont actuellement en cours d'évaluation. Les expériences FIPRED (INR) ont fourni des données sur l'autodésintégration des pastilles d'UO₂.

En ce qui concerne le transport des produits de fission, l'IRSN a interprété la chimie de l'iode dans le circuit en se basant sur les données fournies par les essais PHÉBUS-FP et VERCORS HT (ces derniers au CEA). Dans des conditions réductrices et sans matériaux des barres de contrôle, il semble relativement clair que l'iode est transporté principalement sous forme d'iodure de césium (et rubidium). Dans des conditions oxydantes, cela est plus compliqué : l'iode peut être sous la forme CsI ou, en présence de matériaux des barres de contrôle, sous forme d'autres iodures métalliques, ou encore, si ces matériaux des barres de contrôle ne sont pas présentes, les conditions deviennent alors favorables à la formation de HI. Ces points ont encore besoin d'être confirmés. Le programme expérimental CHIP (IRSN) [Clément et Zeyen, 2005], auquel VTT procure un support expérimental, fournit des données cinétiques et thermodynamiques sur le transport de l'iode à travers le circuit primaire, en particulier en ce qui concerne les systèmes clés tels que {I-Cs-O-H}.

Ces données seront utilisées pour améliorer les modèles ASTEC et extrapoler les résultats expérimentaux aux conditions des réacteurs. Dans l'essai QUENCH-13 sur une grappe (FZK), effectué avec un puissant support expérimental (PSI, AEKI) et théorique (PSI, GRS, EDF), notamment avec des essais à petite échelle associés, la production d'aérosols d'Ag/In/Cd après une rupture des barres de contrôle REP a été mesurée pour la première fois, ainsi que leur spéciation par intervalles de temps. Ces données ont été corrélées avec la dégradation de la grappe et comparées à celles issues des essais analytiques antérieurs EMAIC (CEA). Des calculs d'interprétation de ces essais, en même temps que des essais PHÉBUS-FP, sont en cours. Des améliorations des modèles seront entreprises lorsque cela sera nécessaire.

Plusieurs installations ont étudié la rétention d'aérosols dans le générateur de vapeur dans des conditions de RTGV : PSAERO/ HORIZON (VTT), PECA/SGTR (CIEMAT) et ARTIST (PSI). Globalement, ces essais ont montré que les scénarios « humides » (ceux avec une rupture sous le niveau d'eau secondaire) fourniraient une rétention efficace des particules et que même les scénarios « secs » pourraient capturer une fraction, bien que plus petite, des particules pénétrant dans le côté secondaire. Les essais VTT ont montré que la remise en suspension est importante pour la rétention d'aérosols dans

les tubes horizontaux et qu'elle est accrue par de brusques variations de la vitesse. Tous les modèles de remise en suspension disponibles sont en cours d'évaluation par comparaison aux données (STORM à EC/JRC Ispra et nouveaux résultats VTT) et entre eux; les données VTT serviront à développer un nouveau modèle empirique. Les essais de revolatilisation dans l'installation à petite échelle REVAP (JRC/ITU) sur des échantillons PHÉBUS-FP montrent que la revaporisation du Cs peut être très élevée (~ 95 %) sur les substrats métalliques plats. Les dépôts de CsOH sur l'acier inoxydable ont le même comportement que les dépôts de PHÉBUS-FP. VTT démarre de nouveaux essais sur la spéciation des aérosols de revaporisation, complémentaires à ceux du programme CHIP susmentionné.

La rétention d'aérosols dans les fissures de l'enceinte de confinement peut être efficace, en particulier en présence de vapeur (essais SIMIBE à l'IRSN). Des modèles autonomes ou intégrés à des codes ont été développés. Ils seront testés par rapport aux données tirées des expériences COLIMA (CEA), qui seront effectuées sur la plateforme expérimentale PLINIUS. Une équipe SARNET fournit l'assistance avant essai.

Les installations portant sur la chimie de l'enceinte de confinement sont PHÉBUS-FP, CAIMAN, SISYPHE, CHALMERS, PARIS et EPICUR [Clément et Zeyen, 2005], ainsi que RTF (AECL) avec les données de l'essai P9T3 récemment fournies. Le document lodine Data Book, compilé par Waste Management Technology, fournit un examen critique des données chimiques et des modèles. Les résultats CAIMAN ont montré qu'en présence de peintures, sous irradiation et à haute température, l'iode organique peut être la forme dominante d'iode gazeux ; dans des conditions alcalines, les concentrations en iode gazeux diminuent de plusieurs ordres de grandeur. Le transfert de masse entre le puisard et la phase gazeuse a été étudié dans l'installation SISYPHE : les conditions d'évaporation augmentent la vitesse de transfert de la phase liquide à la phase gazeuse et modifient les concentrations d'équilibre en iode, la concentration en iode du puisard étant réduite. Le modèle bien connu à deux films a été étendu à ces conditions et implanté dans ASTEC. Un modèle plus mécaniste est actuellement en cours de validation [Herranz et al., 2007].

L'effet du rayonnement sur l'atmosphère de l'enceinte et l'effet des impuretés métalliques dans le puisard ont été étudiés respectivement dans les programmes expérimentaux PARIS et CHALMERS, alors que CHALMERS et VTT ont étudié la spéciation des oxydes/nitroxydes d'iode formés dans l'atmosphère par radiolyse. Les modèles de formation d'iode organique prennent en compte les mécanismes thermiques et radiolytiques dans les phases gazeuses et liquides. Il y a toutefois des écarts dans la modélisation aqueuse,

essentiellement en ce qui concerne les sources organiques. Les données fournies par les essais EPICUR sont en cours d'interprétation à l'aide de codes tels que ASTEC/IODE, INSPECT et LIRIC.

Le comportement du ruthénium à l'intérieur de l'enceinte a été étudié expérimentalement et théoriquement par l'IRSN (essais EPICUR) et par CHALMERS, ainsi que les effets du chauffage des produits de fission sur les recombineurs autocatalytiques passifs, pour lesquels ASTEC/SOPHAEROS a modélisé avec succès les essais en laboratoire RECI (IRSN); les effets de mise à l'échelle sont actuellement étudiés. Enfin, un exercice de benchmark avec plusieurs codes sur l'essai intégral ThAI-Iod9 sur la chimie de l'iode dans l'enceinte a été réalisé sous la coordination de la GRS.

Intégration des activités de recherche

Les paragraphes précédents ont mis en évidence qu'une réelle intégration des activités de recherche a été obtenue grâce :

- aux collaborations sur les calculs de préparation et d'interprétation des expériences; par exemple PSI sur les essais QUENCH à FZK;
- aux réalisations conjointes d'expériences; par exemple, des expérimentateurs de VTT ont installé et exploité une instrumentation spécifique pour les expériences CHIP à l'IRSN;
- aux définitions et interprétations conjointes des expériences (de nombreux « cercles d'interprétation » ont été créés et sont véritablement actifs);
- aux comparaisons entre résultats de codes de calcul;
- à la diffusion des codes aux partenaires pour obtenir une vision commune des phénomènes expérimentaux (essentiellement les modules ASTEC);
- aux échanges sur l'application des résultats de R&D à l'échelle des réacteurs;
- aux exercices inter-laboratoires pour les analyses EDX d'échantillons de corium prototypiques par trois laboratoires (Cadarache, France; Karlsruhe, Allemagne; Rez en République tchèque);
- aux réunions techniques annuelles sur chacun des trois domaines (comportement du corium, intégrité de l'enceinte de confinement et terme source), complétées par un grand nombre de réunions de spécialistes.

Activités de dissémination de l'excellence

Le troisième type d'activité majeur concerne la dissémination de l'excellence. Les organisations plus expérimentées ont commencé à disséminer l'excellence en rédigeant un cours pédagogique sur la phénoménologie des accidents graves, destiné aux étudiants en doctorat et aux jeunes chercheurs, dispensé en juin 2006 sur cinq jours. Un cours de formation sur la progression des accidents (données, analyses et incertitudes), destiné plutôt aux spécialistes en sûreté nucléaire plus expérimentés, a été dispensé en mars 2007

sur cinq jours. Enfin, un troisième cours, couvrant à la fois la phénoménologie et les codes de simulation des scénarios d'accident grave, a été organisé à Budapest en avril 2008. 40 à 100 personnes ont assisté à chacun de ces cours.

En outre, un livre sur la phénoménologie des accidents graves est en cours de rédaction. Il couvre les aspects historiques des principes et de la sûreté des réacteurs à eau, les phénomènes concernant la progression des accidents à l'intérieur de la cuve, la défaillance de l'enceinte, le relâchement et le transport des produits de fission. Il contient une description des outils d'analyse ou des codes, de la gestion et de la limitation des conséquences des accidents graves, et enfin de la gestion de l'environnement. Il donne également des éléments sur les réacteurs de 3e génération. Les partenaires qui ont convenu de travailler ensemble à la préparation de ces cours et à la rédaction de ce livre sont les universités, les TSO(1), les laboratoires nationaux et les industriels qui partagent leur grande expérience et leur talent au sein de SARNET.

Un programme de mobilité, grâce auquel les étudiants et les chercheurs peuvent aller dans différents laboratoires de SARNET pour enrichir leur formation, complète ces activités de dissémination de l'excellence. 33 transferts, d'une durée moyenne de trois mois, ont été financés par SARNET.

Trois conférences (European Review Meetings on Severe Accident Research – ERMSAR) ont été organisées en France, Allemagne et Bulgarie sous forme de forums pour la communauté accidents graves. Elles sont devenues un des événements mondiaux majeurs en ce qui concerne ce sujet.

Enfin, on peut dénombrer environ 300 exposés ou communications SARNET dans des conférences ou des journaux scientifiques. La liste complète est fournie dans le rapport de synthèse final (public) de SARNET [Albiol *et al.*, 2008].

Prolongement de SARNET

Le contrat SARNET avec la CE a couvert une période de quatre ans et demi, d'avril 2004 à septembre 2008. À partir de 2006, un groupe de travail spécifique, composé de neuf représentants du conseil d'administration, a été créé pour préparer une poursuite du réseau. Une réponse positive au deuxième appel d'offres du 7e Programmecadre de la CE a été obtenue et le contrat est actuellement en cours de négociation. Le réseau devrait donc encore être cofinancé par la CE pendant quatre années supplémentaires.

(1) Organismes techniques de sûreté.

Au cours de cette période, les activités du réseau se concentreront principalement sur les sujets à haute priorité (voir Activités d'intégration) et les activités expérimentales seront directement incluses dans le programme commun et partiellement financées. L'objectif est que le réseau évolue vers une autosuffisance complète. Les bases de cette évolution sont présentées ci-après.

41 partenaires d'Europe, plus le Canada, la Corée et les États-Unis mettront en réseau leurs capacités de recherche dans le projet SARNET2. Dans la continuité de SARNET, le projet a été défini de manière à optimiser l'utilisation des moyens disponibles et à constituer un consortium durable, où sont développés des programmes de recherche communs sur les accidents graves et un outil informatique commun (code intégral ASTEC).

Dans sa deuxième phase, l'organisation du réseau sera similaire à celle de la première phase. Pour accroître l'efficacité des prises de décision, le conseil d'administration sera remplacé par un comité directeur (le *Steering Committee*) de 10 membres, en charge de la stratégie, conseillé par un comité consultatif composé de responsables des organisations utilisatrices finales (e.g. des électriciens).

Une assemblée générale, composée d'un représentant de chacun des contractants du consortium et d'un représentant de la CE, sera convoquée une fois par an pour information et consultation sur l'avancement des activités du réseau, sur le plan de mise en œuvre détaillé et sur les décisions prises par le Steering Committee. Au second niveau, comme pour SARNET, une équipe de gestion — management team — (coordinateur et sept responsables de projet) aura comme tâche la gestion quotidienne du réseau.

Les activités clés d'intégration et de dissémination de l'excellence seront poursuivies: collecte des données expérimentales disponibles sous un format commun dans une base de données scientifiques, intégration dans ASTEC des connaissances acquises dans le réseau (et en particulier l'extension de l'applicabilité à tous les types de centrales nucléaires européennes), dissémination des connaissances via le site Web public SARNET et l'outil ACT, organisation de conférences et de séminaires, organisation de sessions d'enseignement et de formation, encouragement à l'échange d'étudiants et de chercheurs. En outre, les priorités de recherche seront mises à jour périodiquement. Les activités EPS2 ne seront pas poursuivies dans le réseau car un contrat CE spécifique sur l'harmonisation des études EPS2 a été établi et a démarré courant 2008 (www. asampsa2.eu).

Contrairement à la première phase, les activités de recherche conjointes de la deuxième phase incluront les programmes expé-

rimentaux. Conformément aux recommandations de la CE, parmi les problèmes de haute priorité définis lors de SARNET (voir Activités d'intégration), les efforts expérimentaux seront principalement consacrés à deux sujets considérés comme de la plus haute importance et pour lesquels une réelle avancée vers la clôture du problème est prévue : d'une part refroidissement du corium et des débris, et d'autre part, ICB. Les autres sujets de haute priorité ne seront pas négligés. Les analyses communes des résultats expérimentaux et les activités de comparaison entre modèles/codes, pour élaborer une vision commune des phénomènes correspondants, seront poursuivies via différents cercles techniques. Les liens avec les utilisateurs finaux et avec d'autres programmes internationaux et organisations comme l'OCDE/NEA, l'ISTC et d'autres programmes cofinancés par la CE (principalement SNE-TP, PHÉBUS-FP, ISTP, ASAMPSA2) seront maintenus et renforcés. Une ouverture progressive des activités aux réacteurs de génération IV sera également envisagée.

Enfin, le réseau évoluera vers une véritable autosuffisance financière *via* la création d'une entité juridique. Plus de détails sont fournis dans [Albiol *et al.*, 2008].

■ Conclusion

Les activités du réseau d'excellence SARNET ont débuté en avril 2004, avec comme objectif ambitieux mais extrêmement important de fournir un cadre approprié pour une intégration durable des capacités européennes de recherche sur les accidents graves.

En intégrant les connaissances acquises dans le code européen ASTEC et la base de données DATANET, SARNET met véritablement en place les conditions nécessaires pour préserver les connaissances générées par des milliers de personnes.ans consacrées à la recherche et les diffuser à un grand nombre d'utilisateurs finaux. Le code ASTEC ainsi que DATANET sont dorénavant activement utilisés.

En promouvant le travail collaboratif dans le domaine des EPS de niveau 2, SARNET a commencé à créer les conditions nécessaires pour harmoniser les approches et faire de l'Europe un leader sur les méthodologies d'évaluation des risques pour les accidents graves.

Grâce à un programme d'enseignement et de formation (organisation de cours, rédaction d'un livre destiné aux jeunes scientifiques), SARNET développe des synergies avec les établissements d'enseignement afin que ce domaine d'activités reste attrayant pour les jeunes. Ces actions sont renforcées par un programme de mobilité efficace, qui permet des échanges fructueux entre les laboratoires européens pour les jeunes étudiants et chercheurs.

En promouvant un travail de R&D collaboratif dans les domaines du comportement du corium, de l'intégrité de l'enceinte et du terme source, SARNET a permis de progresser vers la résolution des problèmes résiduels et la fourniture de recommandations de modélisation pour ASTEC. Des propositions ont été faites pour différents modèles ASTEC et leur mise en œuvre a été effectuée ou est en cours.

La poursuite du réseau SARNET permettra d'en faire clairement une référence en termes de priorités de recherche dans le domaine des accidents graves et d'avoir un impact sur les programmes nationaux et les budgets associés. Progressivement, toutes les activités de recherche dans ce domaine seront coordonnées par le réseau, ce qui contribuera à une utilisation optimisée des ressources européennes.

Remerciements

Nous remercions tout spécialement les responsables des projets et sous-projets: M. Steinbrück (FZK), G. Repetto (IRSN), C. Duriez (IRSN), W. M. Ma (KTH), V. Koundy (IRSN), M. Bürger (IKE), B. Spindler (CEA), H. Wilkening (JRC/IE), I. Kljenak (JSI), D. Magallon (CEA), P. Giordano (IRSN), L. Herranz (CIEMAT). L'équipe de gestion s'est fortement appuyée sur eux comme relais techniques vers tous les membres du réseau, trop nombreux pour pouvoir les nommer, mais auxquels les auteurs expriment toute leur reconnaissance. Enfin et surtout, les auteurs remercient la Commission européenne et son représentant (M. Hugon, qui a montré un réel intérêt profond pour le réseau) pour le financement de SARNET dans le cadre du 6º FP, domaine « Fission nucléaire : sûreté des installations nucléaires existantes », contrat numéro FI6O-CT-2004-509065.

Références

- T. Albiol et al. (2008). Presentation of SARNET2, European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR 2008), Nesseber, Bulgaria.
- T. Albiol et al. (2008). SARNET Final Activity Report (Synthesis), SARNET Deliverable N° 124 (to be issued also as a EC public report with a specific number).
- M. Buck et al. (2008). Status of FCI Modeling and Reactor Applications: Achievements during the SARNET Project, European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR 2008), Nesseber, Bulgaria.
- B. Clément, R. Zeyen (2005). The PHÉBUS-FP and International SOURCE TERM Programmes, Proc. Int. Conf. on Nuclear Energy for New Europe, Bled, Slovenia.
- T. Haste et al. (2006). SARNET, Integrating Severe Accident Research in Europe: Key Issues in the Source Term Area, Proc. Int. Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP '06), Reno, Nevada, USA.
- L. E. Herranz, J. Fontanet, L. Cantrel (2007). Impact of Evaporative Conditions on Iodine Mass Transfer during Severe Accidents, 12th Int. Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-12), Pittsburgh, Pennsylvania, USA.
- C. Journeau et al. (2008) European Research on the Corium Issues within the SARNET Network of Excellence, Proc. Int. Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP '08), Anaheim, California, USA (2008).
- D. Magallon et al. (2005). European Expert Network for the Reduction of Uncertainties in Severe Accident Safety Issues (EURSAFE), Nuclear Engineering and Design, vol. 235, p. 309-346.
- J.-C. Micaelli et al. (2005). SARNET: A European Cooperative Effort on LWR Severe Accident Research, Proc. European Nuclear Conference, Versailles, France.
- J.-P. Van Dorsselaere, H.-J. Allelein, K. Neu (2006). Progress and Perspectives of ASTEC Applications in the European Network SARNET, Proc. EUROSAFE Forum, Paris, France.

ÉTUDE DU COMPORTEMENT DE L'IODE DANS L'ENCEINTE DE CONFINEMENT D'UN RÉACTEUR **ACCIDENTÉ**: premiers résultats du programme EPICUR

Séverine GUILBERT Laboratoire de réalisation d'équipements expérimentaux Karine BOUCAULT, Cédric GOMEZ, Laurent MARTINET, Cécile PASCAL

Laboratoire d'expérimentation environnement et chimie

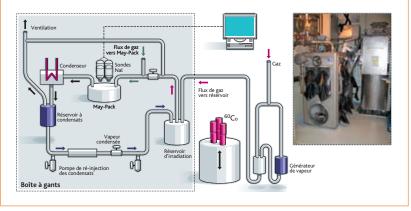


Schéma et photographie de la boucle d'essai EPICUR.

- L'iode est l'un des produits de fission les plus radiotoxiques pouvant être relâchés dans l'environnement lors d'un d'accident de réacteur à eau sous pression (REP) conduisant à la fusion du cœur. La quantité d'iode radioactif rejetée dans l'environnement à la suite d'une fuite de l'enceinte ou par un éventage filtré de celle-ci dépend de la forme chimique sous laquelle l'iode se trouve. L'évolution de la concentration d'iode volatil dans l'enceinte est déterminée par un équilibre entre les réactions de formation, de fixation sur les surfaces et de destruction des composés de l'iode.
- Les réactions chimiques de l'iode en phase liquide (solution présente au fond de l'enceinte du réacteur) ont été très étudiées ces trente dernières années et la compréhension des mécanismes mis en jeu s'est fortement améliorée, en particulier grâce aux essais réalisés dans le réacteur PHÉBUS à Cadarache. Cependant, les données à
- températures et débits de dose élevés, sont trop peu nombreuses pour pouvoir prédire avec précision les fractions d'iode volatiles susceptibles de se former. Pour compléter la base de données existante, l'IRSN a mis en place un programme de recherche utilisant l'irradiateur EPICUR et a réalisé des essais avec des mesures en ligne de la volatilisation de l'iode sous rayonnement dans le cadre du programme international TERME SOURCE (ISTP)(1).
- Lors des essais, l'iode en phase liquide est simulé par une solution d'iodure (127I), tracée à l'iode radioactif (131) et placée dans un réservoir de 5 l simulant l'enceinte de confinement (50 000 m³). Ce réservoir est connecté à la boucle d'essais, qui comprend des filtres sélectifs pour piéger les aérosols, l'iode non organique (I₂) et les espèces organiques iodées (figure 1). Les espèces iodées volatiles formées sous l'effet de l'irradiation (débits de dose de l'ordre

⁽¹⁾ Le programme ISTP est financé par l'IRSN, EDF, le CEA, la Commission européenne, l'US-NRC, AFCL Suez-Tractebel et PSI

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

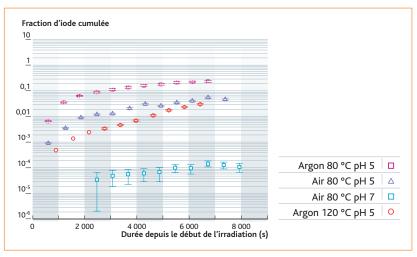


Figure 2 Fraction de l'iode piégée sur le filtre sélectif de l'iode moléculaire et contenue initialement dans la solution, effet du pH et de la température sur la volatilité de l'iode pour une concentration initiale d'iodure de 10⁻⁵ mol.L⁻¹.

de 3,5 kGy.h-1) et sous l'effet de la température (80-120 °C) sont transférées depuis le réservoir jusqu'aux filtres par un flux de gaz. Des sondes Nal permettent de mesurer en ligne par spectrométrie γ les activités piégées sur les différents filtres et ainsi de remonter aux cinétiques de formation des espèces iodées.

- Cinq essais dédiés à l'oxydation radiolytique des iodures ont été réalisés dans l'installation EPICUR (Études physicochimiques de l'iode confiné sous rayonnement) de l'IRSN à Cadarache entre mai 2005 et juillet 2007. L'influence de la présence d'oxygène, de la température, de la concentration initiale en iodure et du pH sur la formation d'iode moléculaire a été étudiée.
- Les résultats obtenus confirment que la volatilité de l'iode décroît fortement lorsque le pH de la solution passe de 7 à 5 (figure 2). La température de la solution et la présence d'oxygène ont moins d'effet sur la volatilité de l'iode. Enfin, les résultats obtenus pour des concentrations initiales en iodure comprises entre 10-4 et 10-5 mol.L-1 indiquent que ce paramètre a relativement peu d'impact sur la volatilité de l'iode. Ces données

expérimentales sont utilisées pour valider les modèles de comportement de l'iode du logiciel franco-allemand ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code), utilisé pour des études de sûreté. Il s'agit d'identifier les points forts et les points faibles de ce logiciel et, si nécessaire, de développer de nouveaux modèles pour améliorer l'estimation de la quantité d'iode volatil en cas d'accident grave.

■ Actuellement, les essais EPICUR menés visent à étudier la formation d'iodures organiques à partir de peintures immergées (simulant les surfaces peintes de l'enceinte) ou à partir de peintures chargées en iode et placées dans la phase gazeuse (simulant les surfaces aériennes de l'enceinte sur lesquelles de l'iode peut se déposer).

ÉVALUATION DES CONSÉQUENCES D'ACCIDENTS MAJEURS EN PRÉSENCE D'AIR:

progrès récents

Olivia COINDREAU

Laboratoire d'études et de simulation des accidents graves

Joëlle FLEUROT

Laboratoire d'études et de simulation des accidents majeurs

Franck ARREGHINI

Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles

Christian DURIEZ

Laboratoire d'expérimentation en mécanique et matériaux

Les gaines des crayons de combustible des réacteurs à eau sous pression (REP) constituent la première barrière de confinement des produits radioactifs présents dans le cœur de tels réacteurs. Elles peuvent être mises en contact avec l'air lors de certains accidents : d'une part, en cas de dénoyage prolongé d'assemblages de combustible irradiés, lors de leur manutention ou lors de leur entreposage en piscine ; d'autre part, lors d'un accident de fusion du cœur où les gaines de combustible sont mises en contact avec l'air, soit après rupture de la cuve, soit lorsque l'accident intervient alors que la cuve est ouverte. Ces accidents se déroulent respectivement à « basses » températures (600-1 100 °C) et « hautes » températures (900-2 200 °C).

Pourquoi l'air peut-il accroître les risques ?

La probabilité d'un accident de fusion du cœur est extrêmement faible, puisque cet accident suppose à la fois une perte de refroidissement du combustible et la défaillance partielle ou totale des systèmes de sauvegarde. Toutefois, lors d'un tel accident, l'exposition à l'air des gaines en alliage de zirconium est l'un des phénomènes physico-chimiques clés de l'évolution de l'accident.

La réaction d'oxydation du zirconium avec l'air étant fortement exothermique (énergie libérée supérieure d'environ 85 % à celle de la réaction d'oxydation par la vapeur), elle peut donner lieu à des situations d'emballement de la température, avec destruction de la première barrière de confinement et accélération de la dégradation des assemblages de combustible.

De plus, cette réaction d'oxydation par l'air peut conduire à deux conséquences supplémentaires :

- le relâchement de tétraoxyde de ruthénium, composé extrêmement volatil [Mun et al., 2007];
- la formation de nitrure de zirconium hautement inflammable en cas de consommation totale de l'oxygène de l'air.

Dans la suite de cet article, seront présentés un transitoire accidentel et les phénomènes associés. Seront ensuite détaillés les récents travaux de recherche réalisés dans le cadre de programmes internationaux en vue d'améliorer les connaissances des phénomènes correspondants, ainsi que des logiciels de calcul utilisés.

Dénoyage d'assemblages de combustible : quels risques et comment les évaluer ?

Après avoir été irradiés en réacteur, les assemblages de combustible sont entreposés sous eau successivement dans la piscine de désactivation située près du réacteur puis, quand ils ont perdu suffisamment de puissance résiduelle, dans une piscine d'entreposage de l'usine de La Hague en attendant leur retraitement. L'entreposage sous eau est assuré en plaçant individuellement chaque assemblage irradié dans une alvéole (solidaire du fond de la piscine) qui garantit son maintien en position verticale (*figure 1*), même en cas de séisme.

Le dénoyage d'une piscine de désactivation ou d'entreposage de combustibles irradiés peut conduire, en fonction du scénario accidentel et des moyens d'urgence mis en œuvre par l'exploitant pour rétablir le niveau d'eau de la piscine, à une mise en contact de la partie dénoyée des assemblages entreposés avec l'air du bâtiment. Dans cette situation de perte de refroidissement des assemblages, on s'attend à une montée en température de la partie dénoyée des crayons de combustible sous l'effet de la chaleur qui se dégage encore du combustible, du fait de son irradiation en réacteur (puissance résiduelle).

Le premier risque associé à cet échauffement accidentel des assemblages de combustible est une défaillance de la première barrière qui sépare les produits de fission de l'environnement. Celle-ci peut intervenir du fait de la rupture des gaines des crayons de combustible par perte de leurs propriétés mécaniques, sous l'effet de la pression interne due au gaz de remplissage et aux gaz de fission. Deux mécanismes principaux d'échange de chaleur ont été identifiés et limitent naturellement l'échauffement des assemblages de combustible pendant l'accident. Le premier mécanisme est la convection naturelle de l'air qui s'établit dans le bâtiment d'entreposage, de par la juxtaposition de volumes d'air refroidi situés plutôt dans la partie haute du bâtiment et de volumes d'air chaud localisés au niveau de la zone basse d'entreposage : ce mécanisme de convection peut ainsi permettre un refroidissement efficace de la partie dénoyée des alvéoles d'entreposage et de leurs assemblages de combustible. L'autre mécanisme d'échange, qui intervient à plus haute température, est constitué par le rayonnement entre les gaines d'assemblage et les alvéoles, d'une part, et entre les alvéoles et les structures du bâtiment et de la piscine, d'autre part.

L'efficacité du refroidissement des assemblages dénoyés par convection naturelle d'air et par rayonnement dépend en particulier de la configuration de l'entreposage, de la répartition des assemblages et de leur puissance résiduelle, ainsi que de la compacité du réseau d'alvéoles.

Dans certaines situations d'entreposage impliquant des assemblages de combustible irradiés, les études menées à l'IRSN ont montré que le risque de réaction très exothermique d'oxydation des gaines en zircaloy par l'air est réel, conduisant à un emballement

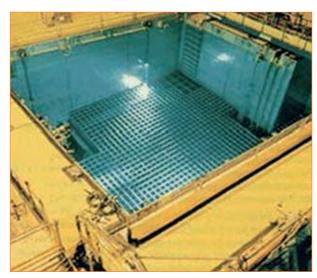
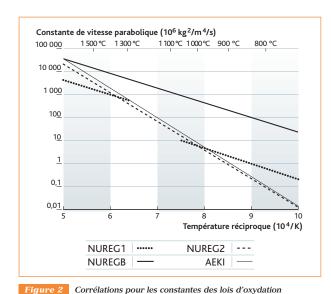


Figure 1 Rack d'entreposage d'assemblages irradiés dans une piscine de réacteur US.

des températures des assemblages, dans des délais pouvant aller de quelques heures à quelques dizaines d'heures. Le risque principal associé à un tel emballement thermique est tout d'abord celui d'un relâchement additionnel de produits de fission ou de formes d'oxyde d'uranium rendues volatiles au contact de l'air. L'autre risque important associé à l'oxydation exothermique des gaines de combustible par l'air est la fragilisation voire la fusion de certains composés métalliques (zircaloy, acier), préjudiciable à la tenue mécanique, au refroidissement et à la manutention post-accidentelle des assemblages.

Les études concernant les accidents de dénoyage de piscine menées actuellement à l'IRSN se concentrent en particulier sur les risques associés à l'oxydation du zircaloy par l'air. Ces études se déclinent sur trois échelles différentes : les gaines des crayons de combustible, l'assemblage et son entreposage, et enfin le bâtiment et sa piscine d'entreposage.

Ces études visent tout d'abord à mieux comprendre les mécanismes physico-chimiques qui dirigent au niveau microscopique la réaction d'oxydation du zircaloy par l'air, dans laquelle l'azote joue en particulier un rôle très important. Cette compréhension, qui vient de la réalisation et de l'interprétation des essais analytiques MOZART(1), est indispensable pour élaborer des modèles d'oxydation qui prennent en compte les différents régimes cinétiques de la réaction d'oxydation, fonction en particulier de la température et de l'épaisseur d'oxyde déjà formée. L'utilisation de modèles d'oxydation, validés expérimentalement, permet d'évaluer par le calcul et avec plus de précision les seuils de température à partir desquels apparaît le risque d'emballement thermique des assemblages dénoyés, de localiser les zones



paraboliques recommandées dans le rapport OPSA.

d'apparition de l'emballement et de prédire les conditions de propagation de l'emballement au sein des assemblages.

L'étude des conditions de l'oxydation des crayons dénoyés par l'air demande aussi que soit évalué le comportement thermomécanique des assemblages lors de l'accident. Les premiers calculs réalisés à l'aide du logiciel ICARE-CATHARE⁽²⁾ [Fichot et al., 2006], pour un assemblage entreposé dans son alvéole ou manutentionné en dehors de son alvéole, ont montré que la déformation des crayons de combustible induite par fluage lors de la première phase de montée en température pouvait influer notablement sur les conditions de circulation naturelle de l'air dans les alvéoles et donc sur les conditions d'apparition et d'entretien de la réaction d'oxydation du zircaloy. Les calculs ont également montré que, compte tenu des débits de circulation d'air relativement faibles auxquels on peut s'attendre dans les assemblages entreposés (fonctions de la configuration et de la compacité de l'entreposage), l'oxydation du zircaloy conduit à une consommation totale de l'oxygène de l'air disponible (phénomène dit de starvation qui limite l'emballement thermique): on a alors l'apparition d'un front d'emballement dans l'assemblage, en aval duquel les gaines sont plongées dans une atmosphère principalement composée d'azote, ce qui conduit sur de longues durées à la formation de composés de nitrure de zirconium très fragiles mécaniquement et qui peuvent s'enflammer lorsqu'ils sont à nouveau mis en contact avec de l'oxygène.

Enfin, des études et des calculs sont prévus à une échelle macroscopique représentative de l'ensemble de l'entreposage de la piscine, pour évaluer la manière dont l'accident et en particulier un emballement localisé à un assemblage de forte puissance pourraient se propager à d'autres assemblages de puissance résiduelle plus faible. Ces calculs devraient faire intervenir le code ASTEC⁽³⁾ [Van Dorsselaere *et al.*, 2005], ainsi que le logiciel aux éléments finis CFX⁽⁴⁾.

Mentionnons enfin que l'IRSN s'est récemment engagé dans un important programme expérimental piloté par l'US/NRC et réalisé au Sandia National Laboratory. Des essais sont ainsi prévus de 2009 à 2011 pour étudier et mesurer le comportement de maquettes représentatives d'assemblages de réacteurs à eau sous pression dans leur environnement d'entreposage, lorsqu'ils sont exposés à de l'air au-dessus de 600 °C. Les résultats de ces essais américains serviront de base de validation aux modèles de calcul utilisés à l'IRSN pour les études des accidents de dénoyage.

Quels programmes de recherche en vue d'améliorer la connaissance et les outils de calcul ?

Démarche scientifique

Un état de l'art, relatif à la problématique d'oxydation sous air des gaines des crayons de combustible, mené par l'IRSN en 2003 [Le Dantec, 2004] a fait ressortir, d'une part, une grande disparité des résultats expérimentaux existants, d'autre part, un manque de représentativité des gaines utilisées lors des essais réalisés, car n'ayant jamais été introduites dans un réacteur et donc ne comportant pas de traces de corrosion (ni oxydation, ni absorption d'hydrogène de l'eau).

Toutefois, dans les limites des essais existants, des lois paraboliques représentant des cinétiques d'oxydation du Zirconium par l'air ont été établies (*figure 2*); elles sont fondées sur les recommandations du rapport OPSA⁽⁵⁾ [Shepherd *et al.*, 2000] et utilisées dans les logiciels de calcul de transitoires accidentels. Lors de la qualification de ces logiciels sur des essais intégraux tels que les essais CODEX-AIT1 et QUENCH-10, essais simulant un transitoire accidentel avec oxydation par l'air d'une grappe d'une vingtaine de crayons de combustible, l'insuffisance de ces modèles a été clairement mise en évidence [Duriez *et al.*, 2008]. En particulier, il est apparu que les modèles basés sur les cinétiques de réaction d'oxydation parabolique

- (1) MOZART : mesure de l'oxydation du zirconium par l'air en température.
- (2) ICARE/CATHARE: couplage entre le logiciel mécaniste de fusion du cœur ICARE 2, développé par l'IRSN, et le logiciel thermohydraulique CATHARE 2, développé par le CEA, l'IRSN, EDF et Areva-NP.
- (3) ASTEC: Accident Source Terme Evaluation Code.
- (4) CFX: Computational Fluid Dynamix.
- (5) OPSA: Oxidation Phenomena in Severe Accident.

ne permettaient pas la prise en compte de l'ensemble des phénomènes physiques importants et n'étaient pas conservatifs.

Dans le cadre du programme international TERME SOURCE piloté par l'IRSN (programme ISTP) et auquel collaborent différents partenaires nationaux et internationaux, un programme d'essais analytiques dénommé MOZART, dédié à l'étude de l'oxydation en présence d'air des gainages de combustible, a été proposé [Le Dantec, 2006].

En parallèle, des travaux de recherche visant à améliorer la compréhension et la modélisation des phénomènes relatifs à l'oxydation sous air des gaines de combustible ont été menés dans le cadre du réseau d'excellence SARNET⁽⁶⁾ [Micaelli *et al.*, 2006], dans le cadre du 6º PCRD. Ainsi, certains partenaires du réseau (FZK, INR et IRSN) ont réalisé des programmes expérimentaux [Duriez *et al.*, 2008], d'autres partenaires (ENEA, GRS...) ont contribué à l'amélioration des modèles existants [Coindreau *et al.*, 2008]. La finalité de l'ensemble de ces travaux est d'enrichir la base expérimentale nécessaire au développement et à la qualification des modèles du logiciel intégral ASTEC [Van Dorsselaere *et al.*, 2005], logiciel de calcul européen de référence utilisé pour étudier les accidents avec fusion du cœur d'un réacteur à eau.

Progression dans la compréhension des phénomènes physiques

Dans le cadre du programme expérimental MOZART, démarré en 2004 et poursuivi jusqu'à fin 2007, l'IRSN a réalisé des essais d'oxydation à petite échelle sur des gaines en alliage de zirconium. Les échantillons, des tronçons de gaine de combustible de 1 à 2 cm de long, étaient oxydés sous air en conditions isothermes dans une thermobalance. Cet outil permet de faire de l'analyse thermogravimétrique (ATG), c'est-à-dire qu'il permet de suivre en temps réel la prise de masse de l'échantillon pendant qu'il réagit à haute température avec l'atmosphère qui l'entoure. La vitesse d'oxydation est obtenue par dérivation par rapport au temps du signal de prise de masse. La gamme de températures couverte par les essais MOZART s'étendait de 600 à 1 200 °C, domaine pour lequel, en situation accidentelle, les emballements thermiques et réactionnels sont attendus. Après chaque essai, des coupes métallographiques des échantillons étaient réalisées afin d'interpréter les résultats. Les différents alliages de zirconium qui sont utilisés dans les réacteurs à eau sous pression français ont été étudiés : le Zircaloy-4 (alliage à base d'étain), le M5 (alliage récent à base de niobium mis au point par Areva) et le Zirlo (à base d'étain et de niobium, commercialisé par l'américain Westinghouse). Les gainages étaient utilisés dans un premier temps à l'état brut, tels que reçus du fabricant. Dans



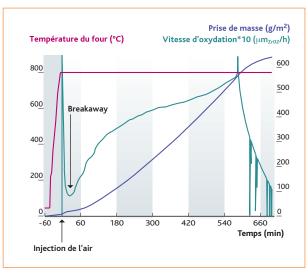


Figure 3 Exemple d'essai d'oxydation isotherme à la thermobalance : oxydation à 800 °C d'un échantillon de Zircaloy-4, poursuivi jusqu'à oxydation complète.

une deuxième étape, les échantillons étaient pré-oxydés à basse température sous vapeur d'eau avant l'oxydation sous air, pour simuler un état initial corrodé représentatif d'assemblages usés. Enfin, quelques essais ont été réalisés pour évaluer l'effet éventuel de l'hydrogène dissous dans le métal, que l'on sait être présent dans les gaines en fin de vie.

Ce programme d'essais à petite échelle a permis, d'une part, de fournir une base de données de cinétiques d'oxydation sous air détaillée, d'autre part, de converger vers une meilleure compréhension de la phénoménologie de dégradation sous air des alliages de zirconium, en précisant notamment le rôle fondamental joué par l'azote [Duriez et al., 2008 ; Duriez et al., 2009].

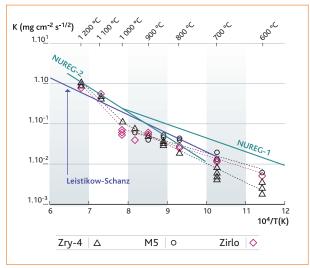
Un résultat type d'essai thermogravimétrique sur échantillon de gaine neuve est présenté sur la *figure 3*. Après une montée en température sous argon, la prise de masse débute lorsque commence le balayage sous air du four. L'essai ici est poursuivi jusqu'à oxydation totale du métal, qui se traduit par une stabilisation du signal de prise de masse. Sur le signal dérivé, on identifie deux régimes cinétiques distincts.

Un premier régime, dit de pré-transition, où après un pic intense dû à l'oxydation du métal nu, la vitesse d'oxydation décroît parce que se forme une couche d'oxyde protectrice dont l'épaisseur augmente progressivement. Le régime cinétique est ici piloté par la diffusion en phase solide de l'oxygène dans la couche de zircone jusqu'à l'interface métal/oxyde. En première approximation, le régime peut être décrit par une loi parabolique du type $\Delta m/S = k t^{1/2}$, où k est une constante appelée constante parabolique de réaction

et Δm/S est la prise de masse rapportée à l'unité de surface de métal. Les constantes paraboliques de réaction ont été déterminées pour les trois alliages étudiés. Elles sont présentées dans la figure 4 et comparées à différentes recommandations, disponibles dans la littérature technique, pour décrire l'oxydation en régime parabolique des alliages de zirconium à haute température, sous vapeur d'eau et sous air. Dans la partie basse du domaine de température couvert, les valeurs expérimentales obtenues pour le Zircaloy-4 sont sensiblement plus faibles que celles des deux autres alliages, ce qui correspond à une diffusion plus lente de l'oxygène dans la couche de zircone. Le changement de pente observé à 1 000 °C correspond à la limite de phase monoclinique/quadratique de la zircone. Globalement, les données obtenues sont plus proches des corrélations cinétiques « vapeur » que des recommandations données dans le rapport OPSA [Shepherd et al., 2000], très conservatives, communément utilisées dans les logiciels de calcul des accidents majeurs pour décrire l'oxydation sous air.

Pour une épaisseur qui dépend de la température et de l'alliage, la couche de zircone protectrice se fissure sous l'effet des fortes contraintes en compression dont elle est le siège, ce qui donne lieu à une augmentation de la vitesse d'oxydation. La fissuration est associée à un changement de phase quadratique \rightarrow monoclinique de la zircone lorsque les contraintes sont relaxées, ce qui induit une microfissuration de l'oxyde et contribue à lui faire perdre son caractère protecteur. Ce phénomène complexe de fissuration et de transformation de phase est appelé breakaway en anglais. La technique thermogravimétrique permet une détermination précise du moment du changement de la cinétique et de l'épaisseur associée, calculée à partir de la prise de masse au minimum de la courbe de vitesse. Les épaisseurs au changement de cinétique mesurées pour les trois alliages étudiés s'échelonnent de quelques μm à basse température à plusieurs dizaines de μm à 1 000 °C (figure 5). Au-dessus de 1 000 °C, on n'observe plus de breakaway, la couche d'oxyde protecteur croît jusqu'à des valeurs importantes et le régime cinétique reste parabolique.

Lorsque le *breakaway* a lieu, le régime après la transition est pratiquement linéaire aux basses températures (jusqu'à 700 °C): après une rapide augmentation, la vitesse d'oxydation se stabilise à une valeur constante. Mais à partir de 800 °C, la vitesse ne cesse d'augmenter après la transition. Sur les métallographies, on observe près de l'interface métal/oxyde la formation de particules de nitrure de zirconium (ZrN), dispersées dans un oxyde de structure poreuse (*figure 6*). ZrN se forme au départ au fond des fissures de la couche d'oxyde dense, là où l'oxygène a été consommé et l'azote s'est accumulé. C'est une situation de déficit local en oxygène, à l'échelle microscopique. Le front d'oxydation continue sa progression vers



Constantes paraboliques de réaction déterminées à partir des cinétiques isothermes dans le domaine pré-transition. Comparaisons avec les recommandations du NUREG préconisées pour l'oxydation sous air et avec la recommandation de Leistikow-Schanz pour l'oxydation sous vapeur d'eau.

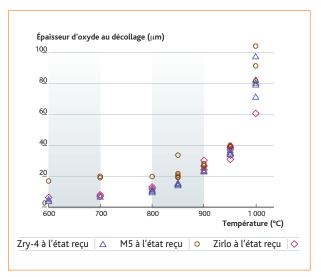


Figure 5 Épaisseur de la couche d'oxyde protectrice à la rupture (breakaway), pour les trios alliages étudiés.

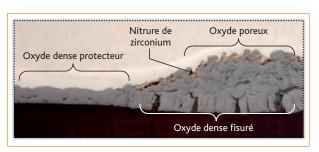


Figure 6 Métallographie d'un échantillon de Zircaloy-4 oxydé sous air à 850 °C.

l'intérieur du matériau et les particules de ZrN sont converties en oxyde. Le fort accroissement de volume associé à cette conversion génère la fissuration de l'oxyde, ce qui lui donne son caractère poreux et non protecteur. Une fois initié, ce mécanisme de croissance de l'oxyde poreux sous l'effet de la nitruration est autoentretenu car l'azote libéré par l'oxydation du nitrure reste piégé dans le matériau et est disponible pour former à nouveau des particules de nitrure à partir du métal. Le fluage important du métal généré par ce mécanisme de nitruration-oxydation, associé à son caractère auto-entretenu, explique l'accroissement continu de la vitesse de dégradation de la gaine observé après le breakaway. La présence d'une couche initiale de corrosion favorise le passage à ce régime de nitro-oxydation, ce qui se traduit par une diminution de la durée ou même une absence de régime parabolique pour les échantillons préalablement corrodés à basse température. Toutefois, si la couche de corrosion est épaisse (~ 60 - 80 μm), elle joue un rôle protecteur vis-à-vis de l'apport d'oxygène et la dégradation de l'échantillon peut être finalement plus lente que pour un échantillon initialement neuf.

Par ailleurs, en situation accidentelle, les atmosphères enrichies en azote qui peuvent être rencontrées localement vont également favoriser le passage à ce régime nitruré.

La réaction d'oxydation du zirconium par l'air apparaît donc comme un phénomène complexe, où l'azote joue un rôle prépondérant en produisant une forte accélération de la dégradation. Compte tenu du caractère très exothermique des réactions du Zr avec l'oxygène et l'azote, on comprend pourquoi l'exposition à l'air des assemblages de combustible peut dès lors conduire à des emballements bien plus importants que pour une exposition à la vapeur d'eau. La prise en compte de ces phénomènes dans les logiciels de simulation des accidents graves (accidents de dénoyage de piscines d'entreposage, accidents de fusion de cœur de réacteur) est donc indispensable.

Amélioration de la modélisation

Initialement, le logiciel ICARE, module du logiciel intégral ASTEC, simulant le comportement des assemblages de combustible au cours d'un transitoire accidentel, prenait en compte les phénomènes

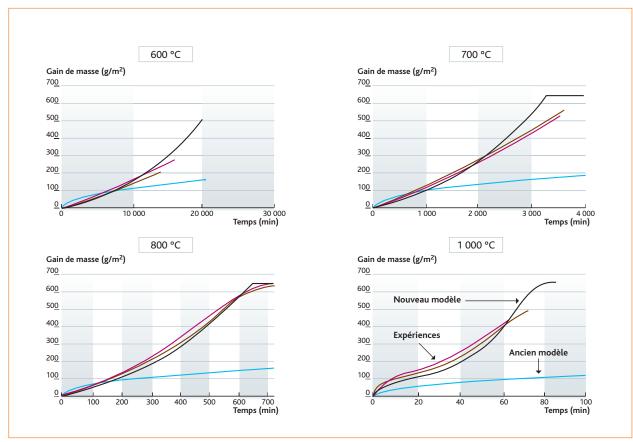


Figure 7 Comparaison entre les résultats expérimentaux MOZART (courbes marron et rose) et les courbes de prise de masse calculées avec le logiciel ICARE/CATHARE: modèle d'oxydation standard (loi parabolique) en bleu, nouveau modèle prenant en compte la transition cinétique (breakaway) en trait plein noir.

d'oxydation sous air de façon partielle en utilisant les cinétiques de réaction d'oxydation paraboliques provenant des recommandations OPSA [Shepherd et al., 2000], pour l'évaluation de l'accroissement de la couche de zircone (oxyde de zirconium). Les résultats de qualification de ce modèle sur l'essai QUENCH-10 [Mladin et al., 2006] ont montré que le logiciel ICARE pouvait prédire de façon fiable l'évolution des températures pour la phase de pré-oxydation (sous un mélange de vapeur et d'argon), mais ne reproduisait pas correctement la phase d'oxydation sous air et sous-estimait en particulier les emballements en température.

Il est donc apparu nécessaire d'améliorer ce modèle d'oxydation sous air. Une étude des résultats expérimentaux issus du programme MOZART et des essais réalisés dans le cadre du programme SARNET a conduit à établir un nouveau modèle simulant les phénomènes se produisant au cours de la réaction d'oxydation par l'air des gaines des crayons de combustible, afin de différencier les cinétiques d'oxydation avant et après le *breakaway*, et également d'évaluer l'instant de cette transition [Coindreau *et al.*, 2008].

Ainsi, le nouveau modèle évalue un régime d'oxydation avant le *breakaway*, par une cinétique d'oxydation parabolique qui permet de décrire au cours du temps le gain en masse total. Le modèle donne la possibilité d'utiliser différentes corrélations pour le calcul de cette cinétique d'oxydation, issues de NUREG1-2⁽⁷⁾ [Powers *et al.*, 1994], NUREGB et AEKI [Shepherd *et al.*, 2000], ainsi qu'une corrélation établie à partir des résultats MOZART.

En ce qui concerne l'évaluation de l'instant de *breakaway*, les résultats des essais MOZART ont montré qu'une transition entre la phase d'oxydation parabolique et la phase d'oxydation accélérée apparaissait pour une valeur critique du gain en masse fortement dépendante de la température. De plus, il est apparu que le gain en masse à l'instant de la transition pouvait être corrélé à la température par une loi hyperbolique, basée sur l'hypothèse que la transition cinétique est liée à un changement de phase de la couche de zircone de quadratique à monoclinique.

Après le *breakaway*, le nouveau modèle décrit une cinétique d'oxydation accélérée, pour le gain en masse total, en utilisant une loi empirique établie sur la base des nouveaux résultats expérimentaux :

$$\frac{d \left(\Delta m / S\right)^{0.5}}{dt} = K_a \, avec \, K_a [kg^{0.5} \, m^{-1} \, s^{-1}] = 45.9 \, exp \, (-1.325 x 10^5 / RT)$$

Afin d'apprécier l'apport de cette nouvelle modélisation, les essais MOZART isothermes ont été calculés avec l'ancien et le nouveau modèle. Une comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats du logiciel (*figure 7*) montre que le temps pour une oxydation complète de la gaine, estimé avec l'ancien modèle, est largement

surestimé par rapport au nouveau modèle, dont la prédiction est très proche des observations expérimentales et donc plus conservative, en termes de taux d'oxydation et vitesse de montée en température.

■ Conclusions – perspectives

Les programmes de recherche sur l'oxydation sous air des gaines des assemblages de combustible menés au cours de ces dernières années ont permis d'approfondir la connaissance des phénomènes physiques mis en jeu. Plus particulièrement, les nouvelles données expérimentales obtenues dans le cadre des programmes internationaux ISTP et SARNET ont mis en évidence que :

- les cinétiques d'oxydation paraboliques issues des recommandations OPSA, habituellement utilisées, ne peuvent décrire qu'une partie limitée du transitoire de dégradation de la gaine;
- la transition d'un régime d'oxydation parabolique à un régime d'oxydation accéléré doit être traitée.

Pour tenir compte de l'ensemble de ces observations, les modèles des logiciels de simulation des transitoires accidentels ont évolué et les premières applications montrent une meilleure prédiction par rapport aux résultats expérimentaux. Ces améliorations constituent une avancée importante des logiciels de simulation. Ainsi, ces logiciels devraient permettre de réaliser des évaluations plus réalistes des conséquences, en termes de cinétique d'oxydation et d'emballement des températures, induites par des transitoires accidentels mettant en contact les gaines des crayons de combustible avec l'air.

Toutefois, dans le futur, des progrès sont encore envisagés. Concernant le passage d'un régime d'oxydation à l'autre, il est apparu que des essais complémentaires étaient nécessaires pour caractériser plus précisément cette transition. Les modèles actuels traitent de façon globale, par une loi cinétique accélérée, les différents phénomènes qui vont impacter la vitesse d'oxydation durant la phase post-transition. Toutefois, l'analyse des résultats expérimentaux a montré que la cinétique d'oxydation des gaines de crayons de combustible en alliage de zirconium semblait être fortement liée au comportement mécanique de la couche de zircone. Il est donc nécessaire à terme de développer un modèle détaillé simulant les différents phénomènes importants impactant l'état de contraintes de cette couche de zircone, tels que, par exemple, l'augmentation du volume de cette couche, la présence de nitrure à l'interface métal oxyde et l'oxydation du ZrN formé. De plus, les modèles actuels doivent être étendus aux nouveaux gainages tels que le Zirlo et le M5.

⁽⁷⁾ NUREG: Nuclear Reactor Regulation.

Références

- O. Coindreau et al. (2008). Modelling of accelerated cladding degradation in air for severe accident codes, ERMSAR, Nesseber, Bulgaria, 23-25 septembre 2008.
- C. Duriez, T. Dupont, B. Schmets, F. Enoch (2008). Zircaloy-4 and M5® high temperature oxidation and nitriding in air, J. Nucl. Mat. 308, p. 30-45.
- C. Duriez, M. Steinbrück, D. Ohai, T. Meleg, J. Birchley, T. Haste (2009). Separate-effects tests on zirconium cladding degradation in air ingress situations, Nucl. Eng. Design 239, p. 244-253.
- F. Fichot et al. (2006). Multi-dimensionnal approches in severe accident modelling and analyses, NET.
- G. Le Dantec (2004). Étude bibliographique sur l'oxydation des gaines de combustible en zircaloy sous air, Note technique DPAM/SEMCA 2004-25.
- G. Le Dantec (2006). Separate effect tests on oxidation of fuel cladding by air. Definition of the needs, SOURCE TERM Program, ISTP Report N° 14.
- S. Leistikow, G. Schanz (1987). Oxidation kinetics and related phenomena of Zircaloy-4 fuel cladding exposed to high temperature steam and hydrogen-steam mixtures under PWR accident conditions, Nucl. Eng. Des. 103, p. 65-84.
- J.C. Micaelli et al. (2006). SARNET. A European Cooperative Effort on LWR Severe Accident Research, Revue Générale Nucléaire, n° 1, January-February 2006.
- M. Mladin, G. Guillard, F. Fichot (2006). Post-Test Analysis of QUENCH-10 Experiment with ICARE/CATHARE, In 12th Int. QUENCH Workshop, FZ Karlshrue, October 2006, ISBN 976-3-923704-57-6.
- C. Mun et al. (2007). Étude de la chimie du Ruthénium dans l'enceinte de confinement en cas d'accident grave, IRSN, Rapport scientifique et technique.
- D.A. Powers, L.N. Kmetyk, R.C. Schmidt (1994). A Review of Technical Issues of Air Ingression during Severe Reactor Accidents, NUREG/CR-6218, September 1994.
- I. Shepherd et al. (2000). Oxidation Phenomena in severe Accidents (OPSA), INV-OPSA (99)-P008, EUR 19528 EN.
- J.P. Van Dorsselaere et al. (2005). ASTEC and SARNET, Integrating severe accident research in Europe, ICAPP'05 (15-49 mai), Séoul (Corée). http://sarnet.grs.de/default.aspx.

LES FAITS MARQUANTS

en quelques dates

SOUTENANCES DE THÈSES

14 février 2008

■ Elie CHALOPIN a soutenu sa thèse sur la « Caractérisation des propriétés radiatives d'un milieu poreux par la méthode RDFI — Application à un cœur dégradé de réacteur », à Paris.

24 septembre 2008

Florence GUPTA a soutenu sa thèse sur l'«Étude du comportement du produit de fission césium dans le dioxyde d'uranium par méthode *ab initio* », à Cadarache (Bouches-du-Rhône).

29 octobre 2008

Sébastien DESTERCKE a soutenu une thèse dans le domaine du traitement de l'information en présence d'incertitudes et dont le sujet s'intitulait « Méthodes de synthèse de l'information probabiliste imprécise », à l'université Paul Sabatier de Toulouse.

AUTRES FAITS MARQUANTS

Février 2008

■ Plate-forme COPERNIC

5 février 2008 : labellisation, par le pôle de compétitivité régional PACA Gestion des risques et vulnérabilité des territoires, de la plate-forme partenariale de compétences sur l'incendie COPERNIC, portée par l'IRSN. Cette plate-forme permettra aux entreprises de bénéficier des moyens d'essais et des compétences de l'IRSN dans les domaines du risque d'incendie

Avril 2008

■ Dépôt d'un brevet sur un dispositif de mesure de déplacement d'une surface et son application à la mesure de la régression de la surface d'un matériau combustible optiquement transparent en feu.

Mai 2008

Mise en service de CHIP

Le 14 mai 2008 a eu lieu la mise en service de CHIP, nouvelle installation destinée à la quantification et à la caractérisation des rejets d'iode radioactif en cas de fusion du cœur de réacteur nucléaire. Le programme expérimental CHIP (chimie de l'iode dans le circuit primaire) qui utilise une nouvelle installation d'essais située à Cadarache (Bouches-du-Rhône), vise à accroître les capacités d'expertise de l'Institut pour la prévention et la gestion de crise, en cas de rejet d'iode radioactif dans l'environnement.

2 L'homme et les rayonnements ionisants





3	L'HOMME et les rayonnements ionisants	142
3.1	LE RETOUR D'EXPÉRIENCE DE L'EXPERTISE DES ACCIDENTS DE RADIOTHÉRAPIE et la recherche sur les complications des radiothérapies	144
	flashinfoflashinfoflashinfoflash	
3.2	DE NOUVEAUX BIO-INDICATEURS MIS EN ŒUVRE lors de l'accident de Dakar	151
3.3	MICROLOCALISATION DES RADIONUCLÉIDES À L'ÉCHELLE TISSULAIRE par l'utilisation de la microscopie ionique analytique	154
3.4	LES ÉTUDES ÉPIDÉMIOLOGIQUES DES LEUCÉMIES autour des installations nucléaires chez l'enfant et le jeune adulte : revue critique	165
3.5	NOUVELLE APPROCHE POUR LE SUIVI ÉPIDÉMIOLOGIQUE DES TRAVAILLEURS EXPOSÉS AU RISQUE DE CONTAMINATION INTERNE utilisation de la matrice emploi-exposition	
	flashinfoflashinfoflashinfoflash	
3.6	DÉVELOPPEMENT D'UN FANTÔME INSTRUMENTÉ pour la mesure de la dose efficace au poste de travail	177
3.7	LES NOUVEAUX DOSIMÈTRES INDIVIDUELS pour le suivi des travailleurs	179
3.8	LES FAITS MARQUANTS en quelques dates	182

L'HOMME et les rayonnements ionisants

Patrick GOURMELON

Direction de la radioprotection de l'homme

a radioprotection de l'homme est un domaine qui sollicite des compétences pluridisciplinaires et très complémentaires.

Un tel plateau technique s'est avéré indispensable à la bonne réalisation de l'expertise d'incidents ou d'accidents radiologiques survenus récemment. Le retour d'expérience de ces événements a fait la preuve qu'une expertise de qualité, rapide et efficace, ne peut s'opérer que dans un environnement technique performant qui s'appuie sur des programmes de recherche dynamiques.

- L'IRSN s'est fait depuis de nombreuses années une renommée, tant nationale qu'internationale, dans la gestion médicale des accidents d'irradiation. Des équipes pluridisciplinaires ont permis, dans plusieurs cas concrets, de faire une expertise sur les causes et les conséquences médicales et sanitaires des accidents. Le premier article de ce chapitre retrace les derniers accidents survenus en radiothérapie et en radiochirurgie, et présente les recherches de l'Institut sur les mécanismes biologiques des complications des traitements de radiothérapie. Le retour d'expérience des expertises de ces accidents a effectivement souligné l'importance de maintenir une recherche active dans ce domaine. Les travaux en radiopathologie devraient, dans les années à venir, renforcer les connaissances à la fois sur les risques inhérents à la radiothérapie, mais également sur l'utilisation de la thérapie cellulaire dans le traitement des brûlures radiologiques.
- L'estimation de la dose reçue au niveau de l'organisme ou de l'organe cible demeure encore aujourd'hui une difficulté dans les situations de contamination interne. Il est donc primordial de

connaître précisément la localisation et le temps de résidence des radionucléides dans l'organisme. Depuis plusieurs années, l'Institut poursuit ses recherches sur l'utilisation de techniques innovantes pour améliorer l'évaluation du risque dans de telles situations d'exposition. L'article sur la microscopie ionique analytique met en valeur les travaux de recherche qui ont permis de déterminer les sites d'accumulation préférentiels de l'uranium à l'échelle tissulaire et cellulaire. Sur des modèles expérimentaux mis en place dans le cadre du programme ENVIRHOM (versant santé et environnement), des cartographies très précises situant la microlocalisation de l'uranium au sein de divers organes sensibles ont été pour la première fois réalisées, grâce à l'analyse par microscopie ionique analytique. Ce type d'études devrait permettre de mieux appréhender à la fois les mécanismes biologiques mis en jeu, mais également les conséquences physiologiques, voire pathologiques des phénomènes de bioaccumulation de radionucléides.

■ L'impact sanitaire et environnemental des installations nucléaires représente une question récurrente sur les effets des faibles doses. Si toutes les classes de population sont concernées, la population infantile est particulièrement étudiée. Une publication allemande, parue fin 2007, a déclaré un risque accru de leucémies chez les enfants (0 à 4 ans) résidant à moins de 5 km des installations. L'IRSN a réalisé, à la demande de l'Autorité de sûreté nucléaire, une revue critique des études publiées dans ce domaine. Il en ressort que de nombreux travaux ont cherché à expliquer des excès de leucémies observés localement autour de certains sites nucléaires



en s'intéressant à de multiples facteurs de risque potentiels. Ces études, de natures très diverses, présentent le plus souvent des limites méthodologiques qui rendent difficile la mise en évidence d'un lien de causalité. Même si l'hypothèse infectieuse liée au brassage de population autour des sites nucléaires semble la plus étayée, la détermination des causes des excès de leucémies observés localement est limitée par un manque de connaissances sur les facteurs de risque des leucémies infantiles. C'est dans ce domaine que devraient être initiées des études épidémiologiques de grande ampleur, au niveau national ou international.

■ Le suivi de l'exposition des travailleurs est une des préoccupations majeures de l'Institut. Au travers de ses diverses activités, l'IRSN a le souci d'améliorer en permanence ses compétences dans l'estimation des doses reçues. La mise en place récente de nouveaux outils d'évaluation des risques reflète cette volonté. Ainsi, le dernier article décrit la méthodologie qui a été mise en place pour mieux estimer les éventuels effets cancérigènes d'une contamination interne chez les travailleurs de l'industrie nucléaire française (Areva). De nouvelles investigations ont été menées pour évaluer rétrospectivement, aux différents postes de travail, l'exposition à l'uranium et aux produits chimiques associés. La création d'une base de données appelée « matrice emploi-exposition » (MEE) a permis une reconstitution des expositions individuelles. Dans un contexte d'absence de données individuelles d'exposition interne, la MEE constitue une alternative pour l'évaluation rétrospective de cette exposition. Elle peut facilement être transposée à d'autres établissements de l'industrie nucléaire. Cette approche permettra d'envisager de nouvelles études épidémiologiques, dont le but est de mieux quantifier les risques associés aux expositions des travailleurs aux rayonnements ionisants.

LE RETOUR D'EXPÉRIENCE DE L'EXPERTISE DES ACCIDENTS DE RADIOTHÉRAPIE

et la recherche sur les complications des radiothérapies

Marc BENDERITTER, Fabien MILLIAT, Agnès FRANÇOIS

Laboratoire de radiopathologie et thérapie expérimentale

L'Institut a été amené ces dernières années à apporter son expertise sur les causes et les conséquences médicales de surdosages de radiothérapie. Ce travail a été facilité par les compétences pluridisciplinaires qu'il a su développer en précurseur dans ce domaine depuis de nombreuses années.

Le retour d'expérience souligne la nécessité de développer de nouveaux programmes de recherche dans le domaine des complications médicales des radiothérapies qui anticipent l'évaluation du risque lié à l'évolution de cette discipline.

Radiothérapie et radioprotection des patients – bénéfices et risques associés

Plusieurs centaines de milliers de patients sont atteints de cancers chaque année et plus de la moitié de ces patients sont traités, ou ont été traités par radiothérapie, seule ou en combinaison avec d'autres traitements comme la chirurgie ou la chimiothérapie. Ainsi, le nombre de personnes traitées chaque année par radiothérapie est estimé à 200 000 en France, 1,5 million en Europe et 1 million aux États-Unis. L'efficacité de l'éradication des tumeurs par radiothérapie progresse rapidement mais le corps médical est encore trop souvent confronté aux toxicités secondaires de ces radiothérapies affectant les tissus sains (5 à 10 % des patients).

En France, la radiothérapie s'inscrit dans un cadre réglementaire qui s'appuie sur la directive européenne 97/43 Euratom du Conseil du 30 juin 1997. Cette directive est spécifique de la radioprotection des patients et a été transposée dans le code de la santé publique. Les deux principes de base sont la justification de l'acte et l'optimisation

de la protection. La justification consiste en une confirmation argumentée du choix de la technique et l'optimisation vise à réduire les doses aux tissus sains « autant que possible », tout en assurant la qualité du traitement.

Accidents de surdosage de radiothérapie

En France, depuis 2005, tout événement survenant dans une installation de radiothérapie susceptible de porter atteinte à la santé des personnes doit être déclaré auprès de l'Autorité de sûreté nucléaire. Après enquête, l'événement peut être qualifié d'incident, voire d'accident grave. Depuis 2005, une vingtaine d'incidents ou d'accidents de radiothérapie ont ainsi été déclarés. Ces accidents de surdosage de radiothérapie sont de gravités différentes et sont souvent associés à de nouvelles modalités de radiothérapie, telles que la radiothérapie conformationnelle (accidents au CHU de Grenoble et à l'hôpital d'Épinal) ou encore la radiothérapie stéréotaxique (accidents au CHU de Lyon Sud et au CHU de Toulouse) (figure 1).

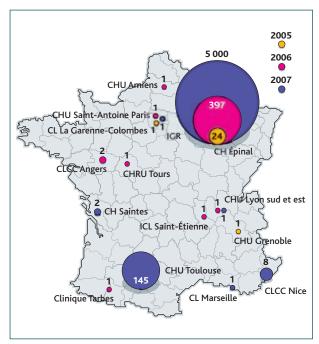


Figure 1 Incidents et accidents de radiothérapie ayant nécessité une expertise de la part de l'Institut. Le nombre de patients impliqués dans ces incidents/accidents de radiothérapie sont figurés dans les cercles.

Apport de l'expertise de l'Institut dans les accidents de surdosage de radiothérapie

Entre mai 2004 et mai 2005, au centre hospitalier Jean Monnet d'Épinal, 24 patients ont été particulièrement surexposés lors d'un traitement pour cancer de la prostate par radiothérapie conformationnelle. Le 12 octobre 2006, le ministre de la Santé a saisi l'Institut pour une mission faisant appel à son expertise en radiopathologie « afin que la prise en charge médicale de chacune des victimes de l'accident de radiothérapie d'Épinal soit réévaluée et que le meilleur soin possible leur soit apporté ». Une deuxième saisine du ministre a été envoyée à l'IRSN en mars 2007, concernant le surdosage potentiel de 423 patients au centre Jean Monnet d'Épinal pendant la période (2001-2006).

Enfin, récemment, une troisième saisine a été adressée à l'Institut concernant les patients traités par radiothérapie de 1987 à 2001 dans ce même établissement. Les conclusions de ces différents rapports d'expertise ont mis en évidence des écarts de procédure dans la mise en place des traitements et le suivi des patients, ainsi que l'existence de surdosages systématiques. Les connaissances et les compétences acquises par l'IRSN sur la toxicité pour les tissus sains des radiothérapies des cancers de la sphère abdominopelvienne ont contribué largement à évaluer l'état sanitaire des

patients, à les classer suivant la sévérité de leurs complications et à proposer des pistes thérapeutiques au comité médical *ad-hoc* en charge de la gestion médicale de ces patients.

L'accident de radiochirurgie stéréotaxique au centre hospitalier universitaire de Toulouse (CRRS) a impliqué une cohorte de 145 patients, traités au niveau du système nerveux central pour des tumeurs bénignes (neurinomes, méningiomes, adénomes hypophysaires), malignes (métastases cérébrales, gliomes) et des lésions vasculaires (malformations artério-veineuses). L'ASN a sollicité l'IRSN pour analyser le risque sanitaire résultant de la sur-irradiation à laquelle ces patients ont pu être soumis, suite à l'étalonnage inapproprié de l'accélérateur. Les circonstances avaient été analysées dans le premier rapport d'expertise de l'Institut, remis le 16 octobre 2007. Bien que concernant un nombre élevé de patients traités sur une période de plusieurs mois, l'accident de radiochirurgie du CRRS est très différent des accidents de radiothérapie survenus à Épinal. L'accident de Toulouse est dû à une erreur initiale d'étalonnage de l'accélérateur. Cette erreur a induit des écarts de doses délivrées aux patients, variables d'un patient à l'autre, en fonction des volumes cibles d'intervention et selon les pathologies traitées. L'impact sanitaire de cet accident en termes de complications neurologiques secondaires radio-induites était donc particulièrement complexe à appréhender. L'évaluation de l'impact sanitaire a nécessité de recourir à une démarche scientifique particulière, menée en plusieurs étapes, pour partie sur le site du CRRS, et qui a mobilisé sur certaines périodes plusieurs dizaines de personnes de l'IRSN. Cette expertise a permis d'évaluer l'état sanitaire et psychologique des patients et de les classer selon la sévérité de leurs complications. Une reconstitution dosimétrique personnalisée a été nécessaire pour chacun des 145 patients. Les recommandations émises par l'IRSN ont été largement reprises par l'ASN afin de mettre en place les mesures nécessaires à la gestion de cet accident. Les expertises collégiales fournies par l'IRSN ont mobilisé les compétences de ses physiciens d'hôpitaux, de ses dosimétristes et radiopathologistes. Elles ont participé à la prise de conscience des risques inhérents à de telles pratiques médicales. Un certain nombre de leçons ont pu être tirées de ces différentes expertises. Elles s'inspirent pour beaucoup de l'expérience acquise dans le domaine de la sûreté nucléaire.

Renforcer le contrôle des équipements avant leur mise en service

Les équipements de radiothérapie les plus récents permettent de délivrer des doses de mieux en mieux ciblées sur le volume de la tumeur à irradier, en épargnant les tissus sains environnants. Ainsi, des doses plus élevées peuvent-elles en principe être utilisées de façon sûre en vue d'une meilleure performance thérapeutique. Ces appareils de plus en plus complexes intègrent des mécanismes très sophistiqués de réglage balistique automatique du rayonnement ionisant, pilotés par des logiciels intégrés qui assurent également des fonctions de sûreté. En revanche, la plupart de ces équipements ne permettent pas au radiothérapeute de vérifier directement, lors des séances de traitement, la dose effectivement délivrée ainsi que sa géométrie spatiale. Il en résulte que l'interface homme-machine et plus largement la conception intégrée de la sûreté d'emploi de ces équipements sont des paramètres critiques de la qualité et de la sécurité des traitements.

L'IRSN observe que la réglementation relative à leur mise sur le marché repose sur une directive européenne dont le premier objectif est la « libre circulation » des appareils médicaux sur le marché européen, sur la base de leur conformité à des normes harmonisées. Or les conditions de mise en œuvre de cette directive ne permettent pas d'examiner en profondeur la sûreté de conception d'équipements aussi complexes et innovants que, par exemple, les cyberknife (appareil utilisant un bras robotisé sur lequel est monté un accélérateur linéaire de particules, technologie présentant l'avantage de réaliser des irradiations stéréotaxiques et ainsi de contourner les organes sensibles). Il en va de même pour ce qui concerne le processus de mise en service de ces équipements, qui n'apporte pas toujours toutes les garanties nécessaires, notamment en matière d'étalonnage. L'IRSN estime que le contrôle de ces équipements intrinsèquement porteurs de risques radiologiques significatifs pour les patients devrait être renforcé, pour se rapprocher, dans ses méthodes, de celui exercé sur les installations nucléaires.

Développer la culture de sûreté dans les centres de radiothérapie

La mise en œuvre du Plan cancer a conduit à accélérer l'acquisition d'équipements complexes dans les centres de radiothérapie. Le recours à ces équipements permet de conduire en masse des traitements plus performants au bénéfice des patients, comme en attestent les statistiques disponibles au plan national. Mais, bien que des techniques d'assurance qualité aient été systématiquement mises en place pour garantir le respect des procédures opératoires, l'IRSN estime que, dans de nombreux centres, l'insuffisance des effectifs de radiophysiciens et, au-delà, l'insuffisance de culture de sûreté au sein des équipes de radiothérapie laissent encore trop de place à la possibilité d'occurrence non détectée de dysfonctionnements, notamment au niveau du réglage des appareils, susceptibles d'entraîner des conséquences graves pour les patients.

La systématisation progressive de la pratique de la dosimétrie *in vivo*, le renforcement et la reconnaissance de la profession des radiophysiciens, tant numériquement qu'en ce qui concerne leur formation académique et leur place dans l'organisation des services de radiothérapie constituent des facteurs de progrès.

Mieux appréhender les données cliniques relatives aux effets secondaires des radiothérapies

De nombreuses études, provenant d'équipes de différents pays, ont été publiées au sujet de la fréquence d'apparition de complications liées aux radiothérapies pour différents types de pathologies et une classification internationale existe pour classer en différents « grades » la sévérité de ces effets secondaires. En outre, certains centres de radiothérapie assurent un suivi clinique approfondi et de longue durée de leurs patients. Cependant, au plan national, les expertises que l'IRSN a réalisées à la demande des pouvoirs publics à la suite d'incidents ou d'accidents de radiothérapie ont mis en lumière l'hétérogénéité, selon les centres hospitaliers, des protocoles de suivi clinique des patients.

Dans le cas de l'accident d'Épinal, la quasi-absence de suivi a été une cause déterminante de la non-détection de dysfonctionnements ayant entraîné sur de longues périodes un détriment sanitaire grave pour de nombreux patients. L'IRSN estime que des progrès restent à faire pour mettre en place, sans doute sur l'initiative des organismes professionnels, une approche harmonisée et systématique du suivi clinique des patients qui faciliterait la comparaison des pratiques professionnelles, ainsi que la conduite des recherches visant au progrès des protocoles de radiothérapie. Un tel suivi clinique serait un gage supplémentaire de la sécurité des traitements, dans la mesure où il permettrait aussi une remontée d'indices d'alerte vers le radiothérapeute.

Accroître l'effort de recherche sur les effets secondaires des irradiations

En France, chaque année, 60 % des cancers sont traités par radiothérapie externe et 3,8 millions de séances sont réalisées. Cette technique a de loin le meilleur rapport coût-efficacité puisque 50 % des traitements curatifs représentent seulement 12 % des coûts de cancérologie. Cependant, en contrepartie de ce rendement apparaissent des effets secondaires variables suivant les organes traités. Certains d'entre eux disparaissent spontanément alors que d'autres apparaissent de façon inéluctable. De 5 à 10 % des patients

développent malheureusement des complications tardives plus ou moins sévères de leur radiothérapie. En France, nous ne disposons pas de registre des taux de complications tardives des traitements par radiothérapie, ce qui rend extrêmement difficile la conduite d'études épidémiologiques en ce domaine.

L'IRSN estime donc qu'il existe un déficit de connaissances sur l'évaluation et la quantification du risque de ce type de complications. La création de registres nationaux des complications des radiothérapies et le lancement d'études épidémiologiques pilotées à la fois par des radiothérapeutes mais également par des médecins des différentes spécialités médicales concernées (gastro-entérologues, pneumologues, dermatologues, neurologues...) devraient permettre de contribuer à mieux évaluer ce risque de complications.

Alors que les fonds financiers alloués à la recherche en cancérologie sont importants et ont abouti à des progrès significatifs, aucun financement significatif n'est dédié à la recherche sur les complications des radiothérapies. L'Institut Gustave Roussy, l'un des plus importants centres de traitement des cancers en Europe, et l'IRSN se sont engagés en précurseurs dans cette voie depuis plusieurs années. Ce partenariat a permis de commencer à appréhender les mécanismes biologiques en cause dans le développement des complications des radiothérapies, d'identifier des bio-marqueurs et de proposer de nouveaux traitements. Les premiers transferts cliniques de cette recherche sont en cours.

L'IRSN estime que, pour le plus grand bénéfice des patients, le développement de programmes de recherche translationnelle ayant pour objectif la transposition des connaissances scientifiques sur les complications des radiothérapies au domaine clinique est un enjeu majeur dans le contexte actuel et à venir. Des programmes de recherche pluri-institutionnels devront associer les compétences complémentaires dans les domaines de la radiobiologie, de la radiopathologie, de la radiothérapie et de la dosimétrie, afin de créer une synergie opérationnelle autour de l'évaluation des risques dans l'optimisation des traitements utilisant les rayonnements ionisants à des fins médicales.

Les complications des radiothérapies dans les cas les plus sévères sont encore aujourd'hui hors d'atteinte des schémas thérapeutiques classiques. L'IRSN estime que le développement de programmes de recherche translationnelle ayant pour objectif la validation de l'utilisation de nouvelles approches thérapeutiques, comme la thérapie cellulaire, dans le traitement des complications sévères des radiothérapies, ainsi que la sécurisation de son transfert clinique, est nécessaire afin d'assurer aux patients les meilleurs soins possibles dans ces situations critiques.

Le positionnement de l'Institut en termes de R&D sur les effets secondaires de la radiothérapie

Recherche sur les mécanismes biologiques des complications des radiothérapies

Une attention particulière a été portée sur les complications intestinales, qui s'inscrivent dans un processus évolutif classiquement décliné en effets précoces et tardifs. Les effets précoces, ou entérite radio-induite aiguë, affectent la plupart (80 %) des patients traités en radiothérapie abdomino-pelvienne et peuvent évoluer progressivement vers une fibrose radio-induite, ou entérite radioinduite chronique (5 à 10 % des patients). Ces complications sont susceptibles d'avoir un impact clinique très important en raison de la chronicité des lésions, de la morbidité et de la mortalité associées à ces complications. L'IRSN a développé ses programmes de recherche à partir de l'hypothèse d'une toxicité des rayonnements ionisants résultant d'un processus de cicatrisation pathologique des tissus irradiés. Les effets précoces sont dus à l'impact des rayonnements ionisants sur les compartiments tissulaires hautement prolifératifs, tels que l'épithélium et la micro-vascularisation. Ces effets précoces participent au développement des effets tardifs, on parle alors de fibrose conséquentielle. Les effets tardifs résultent d'une atteinte des compartiments vasculaire et mésenchymateux, on parle alors de fibrose primaire. Différents types d'irradiation localisée sont maintenant disponibles au niveau expérimental chez l'animal, permettant d'obtenir sur différents organes (intestin, peau, poumon) des lésions comparables à celles observées chez l'homme.

Dans ce contexte, les objectifs des recherches menées à l'IRSN sont de :

- comprendre les mécanismes impliqués dans la réponse cellulaire et tissulaire des tissus sains compris dans le champ de l'irradiation;
- proposer de nouveaux outils de diagnostic et de pronostic des effets secondaires de la radiothérapie durant la phase cliniquement silencieuse ;
- proposer de nouveaux traitements radioprotecteurs pour les tissus sains sans effet radioprotecteur pour la tumeur.

Les programmes de recherche réalisés abordent ces questions à différents stades : ils couvrent ainsi des études sur de nouvelles cibles thérapeutiques jusqu'à la mise en place d'études de développement clinique de phase II.

Développer des modèles expérimentaux pour l'étude des complications des radiothérapies de la sphère abdomino-pelvienne

L'analyse des complications radiologiques intestinales chez l'homme nécessite de travailler sur un grand nombre de résections chirurgi-

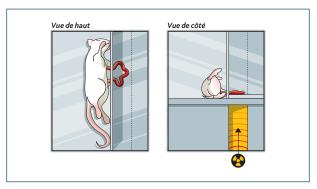


Figure 2 Modèle expérimental d'irradiation simulant les complications des radiothérapies de la zone abdomino-pelvienne chez l'animal.

cales, relativement difficiles à obtenir. L'association de l'IRSN avec une structure hospitalière permet d'obtenir ces pièces chirurgicales (résection des intestins grêles radiques) et d'accéder à la « tissuthèque » du service d'anatomopathologie. Ce matériel biologique précieux permet d'étudier la physiopathologie de l'entérite radique chez le patient.

Par ailleurs, la description précise de la cascade des événements tissulaires après irradiation nécessite des études cinétiques, impossibles à mettre en œuvre chez l'homme. Des modèles expérimentaux de fibrose radique ont donc été mis en place chez le rat et la souris pour décrire les modifications morphologiques intestinales après irradiation. Malgré leurs limites, ces modèles animaux concourent à apporter des renseignements utiles sur les processus lésionnels et cicatriciels du tissu digestif. L'un d'eux consiste à fixer définitivement par chirurgie une anse de l'intestin grêle dans le scrotum après castration. Il permet l'irradiation fractionnée de la même anse et ainsi de modéliser la fibrose radique primaire. Un autre modèle développé à l'IRSN consiste à irradier à dose unique une anse de l'intestin grêle extériorisée juste pour l'irradiation. Ce modèle permet de développer une fibrose dite conséquentielle (fiqure 2).

Des modèles de culture cellulaire pour la caractérisation de la cicatrisation pathologique intestinale sont également développés. Les cellules du mésenchyme, notamment les myofibroblastes subépithéliaux, les cellules musculaires lisses et les cellules endothéliales sont les plus utilisées au laboratoire de radiopathologie de l'IRSN, car ces cellules participent à la toxicité tissulaire des radiothérapies. À partir de prélèvements effectués chez le patient, des cultures primaires ont été obtenues et permettent d'étudier spécifiquement la réponse d'un type cellulaire ou les interactions entre deux partenaires cellulaires par des techniques de co-culture. L'objectif est d'acquérir, à l'aide de ces différents modèles, des

connaissances sur les mécanismes associés à l'initiation, à la progression des complications des radiothérapies et à leur traitement. Ces nouvelles connaissances peuvent être alors corrélées aux observations cliniques chez les patients et de nouvelles cibles thérapeutiques validées lors d'études cliniques réalisées avec les partenaires hospitaliers.

Caractériser les mécanismes d'initiation et de progression des effets secondaires de la radiothérapie

Une partie des mécanismes généraux de fibrogénèse dans un modèle de fibrose intestinale radio-induite a été récemment caractérisée dans le laboratoire de radiopathologie de l'IRSN. Deux facteurs biologiques impliqués dans l'initiation et la progression de l'entérite radique ont été étudiés : le *Transforming Growth Factor* β (TGF β) et le *Connective Tissue Growth Factor* (CTGF).

Le TGF β est une cytokine dont la sécrétion est ubiquitaire. Elle est impliquée dans la régulation des mécanismes de différenciation et de prolifération de nombreux types cellulaires. Les trois isoformes (β 1, 2 et 3) se lient au même récepteur mais diffèrent dans leur expression cellulaire. Le CTGF est, quant à lui, un facteur de croissance impliqué dans les processus de fibrose. Il est produit en grande quantité par des cellules spécifiques, les fibroblastes, après activation par le TGF β .

Les lésions vasculaires sont considérées comme un événement déterminant dans l'initiation et la progression des dommages tissulaires radio-induits, en générant des phénomènes d'ischémie et d'hypoxie tissulaire contribuant aux effets délétères observés dans les fibroses radiques. Les mécanismes physiopathologiques et moléculaires impliqués dans la pathogenèse des dommages vasculaires radio-induits ont été recherchés, dans l'optique de mettre en place des stratégies thérapeutiques visant à protéger les tissus sains après irradiation.

Dans un premier temps, des lésions vasculaires ont été caractérisées sur des prélèvements de rectum de 38 patients ayant subi une radiothérapie préopératoire dans le cadre d'un traitement d'adénocarcinome du rectum. Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec le Dr E. Deutsch (radiothérapeute à l'Institut Gustave Roussy de Villejuif) et le Pr J.-C. Sabourin (pathologiste au CHU de Rouen). Les lésions vasculaires observées sont remarquables par leur caractère focal et l'absence de systématisation. Des marquages immuno-histochimiques ont permis de mettre en évidence chez ces patients une fibrose vasculaire caractérisée par l'importance de la prolifération, de la migration et du phénotype fibrogénique des cellules musculaires lisses vasculaires (*figure 3*). Dans un deuxième temps, une partie des mécanismes physiopathologiques à l'origine des fibroses vasculaires radio-induites a été recherchée.

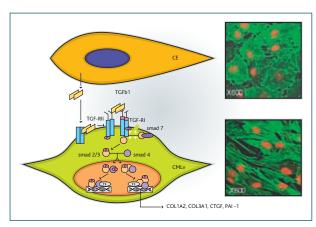


Figure 3 Cascade moléculaire impliquée dans le développement de la fibrose vasculaire. Le TGF 1 se lie aux récepteurs de type II, qui recrutent alors les récepteurs de type I. Suite à ce recrutement, les récepteurs de type II phosphorylent les récepteurs de type I activant leur activité kinase. À leur tour, les récepteurs de type I ainsi activés recrutent et phosphorylent les médiateurs intracellulaires de la cascade du TGF 1, appelés les protéines SMAD. Cette activation des facteurs de transcription SMAD se caractérise par leur translocation nucléaire puis leur fixation au niveau de séquences d'ADN à d'autres facteurs de transcription (TF), situés dans des promoteurs de gènes cibles, activant ainsi leur transcription.

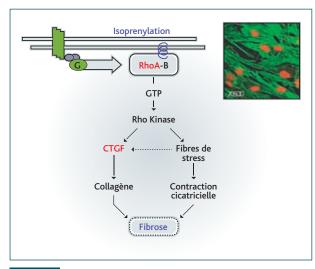


Figure 4 Cascade moléculaire impliquée dans le développement de la fibrose intestinale. Le CTGF joue un rôle primordial dans la progression de la fibrose. Ce facteur de croissance pro-fibrosant est sous le contrôle de la voie Rho et peut être modulé pharmacologiquement, notamment par les statines.

La possibilité d'une réponse intégrée de l'ensemble du vaisseau après irradiation n'a jamais été explorée. Ainsi, les perturbations radio-induites du remodelage matriciel vasculaire pourraient résulter des dysfonctionnements des relations entre les cellules endothéliales (CE) et les cellules musculaires lisses (CMLV).

Des modèles de co-culture ont été développés afin d'étudier, in vitro, les communications entre ces deux types cellulaires. Il a été montré que la prolifération des CMLV est stimulée en présence de CE irradiées. D'autre part, des résultats ont mis en évidence une plus grande capacité des CMLV à migrer dans une zone lésée en présence de CE irradiées. Concernant le phénotype fibrogénique, il a été montré que plusieurs protéines - CTGF, PAI-1, COL1A2 et COL3A1 – impliquées dans les mécanismes cellulaires stimulés après irradiation, sont augmentées dans les CMLV en présence de CE irradiées. Afin de caractériser les facteurs solubles pouvant être impliqués dans l'induction de cette différenciation fibrogénique, la sécrétion du facteur de croissance TGFβ1 a été mesurée après irradiation des CE. Cette sécrétion est stimulée dans les CE irradiées. Les résultats suggèrent que le TGF\u00e41 issu des CE pourrait activer des voies de signalisation dans les CMLV par des effets paracrines. La cascade moléculaire de signalisation du TGF a été caractérisée. Différents outils de biologie moléculaire (transfection, antisens siRNA Smad3, gene reporter), de pharmacologie (anticorps neutralisant anti-TGFβ-RII) et d'immunocytochimie (translocation nucléaire de SMAD3 et 4) ont permis d'explorer les mécanismes moléculaires aboutissant à la fibrose vasculaire. Ces résultats montrent que les CE stimulent, par des effets paracrines, la différenciation fibrogénique des CMLV après irradiation par un mécanisme TGFβ/SMAD3 dépendant.

Ces travaux contribuent aux connaissances des mécanismes moléculaires impliqués dans les lésions vasculaires après irradiation. Ils mettent en évidence l'importance des relations entre les différents types cellulaires constituant les vaisseaux, en particulier le rôle du facteur biologique TGFβ.

Un deuxième exemple concernant l'étude du rôle du CTGF illustre également l'approche menée par l'Institut dans la recherche sur les mécanismes biologiques des complications des radiothérapies. Le laboratoire de radiopathologie de l'IRSN a récemment caractérisé une partie des mécanismes généraux de la fibrogenèse radio-induite dans un modèle de fibrose intestinale radio-induite, l'entérite radique. Ainsi, des expériences de génomique (puce à ADN) réalisées sur des biopsies de fibrose humaine ont montré l'implication d'une cascade moléculaire, dépendante des petites GTPases de la famille Rho et de leurs effecteurs, les protéines ROCK. Ces protéines de la signalisation intracellulaire interviennent notamment dans l'organisation du cytosquelette des myofibroblastes en contrôlant la polymérisation de l'actine. Les travaux réalisés in vitro ont précisé que la cascade Rho/ ROCK est impliquée dans le maintien de la fibrose radio-induite intestinale via la régulation de l'expression de gènes pro-fibrosants tels que le CTGF et les molécules de la matrice extracellulaire (collagène, fibronectine, MMP...) (figure 4).

D'autre part, les travaux réalisés au laboratoire de radiopathologie montrent que l'inhibition de la voie Rho permet la régulation du phénotype thrombogène et pro-inflammatoire radio-induit dans les cellules endothéliales. Cette caractérisation cellulaire et moléculaire a conduit à évaluer *in vivo* l'efficacité anti-fibrosante d'un inhibiteur pharmacologique de la voie Rho/ROCK, la Pravastatine. Cette molécule a été choisie car elle est utilisée en clinique dans le traitement des pathologies cardiovasculaires depuis plus de dix ans, ce qui permet un transfert aisé vers la clinique.

Proposer de nouvelles options thérapeutiques dans le traitement des effets secondaires des radiothérapies

Dans un premier temps, l'effet préventif de la Pravastatine sur le développement des fibroses intestinales radio-induites tardives chez le rat a été évalué. L'analyse histopathologique des tissus montre que ce traitement contrôle la toxicité intestinale radio-induite à moyen terme (quinze semaines) par une restauration de la structure de la tunique musculaire externe, associée à une diminution de l'étendue des zones de fibro-nécrose. Le résultat le plus significatif est observé vingt-six semaines après l'irradiation. En effet, une restauration quasi complète du tissu est obtenue dans le groupe traité. De plus, les expériences réalisées en collaboration avec l'équipe du Pr J. Bourhis de l'IGR montrent que la Pravastatine n'induit pas de protection tumorale *in vivo* et augmente même la radiosensibilité tumorale *in vitro*. L'effet différentiel observé entre les tissus sains et la tumeur lors des expériences pré-cliniques

a incité à évaluer chez des patientes, traitées par radiothérapie pelvienne pour un cancer du col utérin, l'effet protecteur de la Pravastatine. Cet effet a été comparé à celui obtenu par un traitement placebo sur la symptomatologie digestive, vésicale et vaginale observée dix-huit mois après la radiothérapie.

Dans un deuxième temps, l'effet de la Pravastatine sur la toxicité radio-induite aiguë, sur la qualité de vie des patientes ainsi que son efficacité anti-fibrosante seront testés. Ce protocole a été évalué par le comité d'éthique de l'IGR et a reçu un avis favorable. Il fait l'objet d'un dépôt de PHRC national (projet hospitalier de recherche clinique).

Les perspectives de recherche en radiopathologie

Le retour d'expérience des expertises des accidents de radiothérapie a souligné l'importance de maintenir une recherche active en radiopathologie. Les activités de recherche et d'expertise concernant les fortes doses d'irradiation se structureront les prochaines années autour de deux programmes phares pour l'Institut : un programme de recherche expérimentale sur la problématique des risques liés à l'utilisation des rayonnements ionisants dans le traitement des cancers (ROSIRIS), en association avec l'Inserm, et un programme de thérapie cellulaire visant, entre autres, à sécuriser le transfert clinique de la thérapie cellulaire dans un contexte de traitement innovant des tissus irradiés, en association avec le service de santé des Armées.

Références

- C. Bourgier, V. Haydont, F. Milliat, A. François, V. Holler, P. Lasser, J. Bourhis, D. Mathe, M.C. Vozenin-Brotons (2005). *Inhibition of Rho kinase modulates radiation induced fibrogenic phenotype in intestinal smooth muscle cells through alteration of the cytoskeleton and connective tissue growth factor expression. Gut 54(3), 336-43.*
- F. Milliat, A. Francois, M. Isoir, E. Deutsch, R. Tamarat, G. Tarlet, A. Atfi, P. Validire, J. Bourhis, J.C. Sabourin, M. Benderitter (2006). *Influence of endothelial cells on vascular smooth muscle cells phenotype after irradiation: implication in radiation-induced vascular damages. Am. J. Pathol.* 169(4), 1,484-95.
- F. Milliat, J.C. Sabourin, G. Tarlet, V. Holler, E. Deutsch, V. Buard, R. Tamarat, A. Atfi, M. Benderitter, A. François (2008). Essential role of plasminogen activator inhibitor type-1 in radiation enteropathy. Am. J. Pathol. 172(3),691-701.
- M.C. Vozenin-Brotons, A. Mauviel (2006). How to model the events in cutaneous fibrosis? Med. Sci. (Paris), 22(2), 172-7.
- Rapport DRPH/2006-08. Accident de radiothérapie d'Épinal : mission d'évaluation des pathologies radio-induites et proposition d'actions thérapeutiques, rapport d'avancement n° 1, 6 novembre 2006 (saisine du ministère de la Santé).
- Rapport DRPH/2006-08 bis. Accident de radiothérapie d'Épinal : mission d'évaluation des pathologies radio-induites et proposition d'actions thérapeutiques, rapport d'avancement n° 2, 13 novembre 2006 (saisine du ministère de la Santé).
- Rapport DRPH/2007-02. Expertise d'évaluation des pratiques de radiothérapie au centre hospitalier Jean Monnet d'Épinal, mars 2007 (saisine du ministère de la Santé).
- Rapport DRPH/2007-05. Expertise d'évaluation des pratiques de radiothérapie au centre hospitalier Jean Monnet d'Épinal entre 1987 et 2000, novembre 2007 (saisine du ministère de la Santé).
- Rapport DRPH/2008-03. L'accident de radiochirurgie stéréotaxique au centre hospitalier universitaire de Toulouse : évaluation dosimétrique et clinique, analyse de risque (saisine ASN).

3.2

DE NOUVEAUX BIO-INDICATEURS MIS EN ŒUVRE lors de l'accident de Dakar

Philippe VOISIN Service de radiobiologie et d'épidémiologie

Le 3 juin 2006, à la suite d'un tir effectué avec un gammagraphe sur un chantier à Dakar (Sénégal), une source d'iridium 192 s'est détachée de son câble-guide et est restée bloquée dans la gaine d'éjection. La gaine avec le tube guide ont ensuite été stockés pendant plusieurs semaines dans un bureau, jusqu'au 31 juillet 2006, date à laquelle ce matériel a été emballé puis envoyé par courrier express à Abidjan (Côte d'Ivoire). À la première utilisation du gammagraphe à Abidjan, le manipulateur s'est rendu compte de la présence dans la gaine d'éjection d'un objet bloquant le déplacement de la source et a découvert la source d'iridium détachée de son support.

L'IRSN a été sollicité pour effectuer une évaluation dosimétrique et biologique chez les 65 personnes potentiellement irradiées (que ce soit durant la période de stockage, de la préparation et de la manutention du colis à Dakar, durant le transport par avion ou durant les tentatives de tir à Abidjan) et pour rendre un avis sur la sévérité des dommages radio-induits pour les victimes les plus touchées. Parmi elles, quatre personnes présentant des lésions radio-induites localisées ont été hospitalisées à l'Hôpital d'instruction des armées Percy (Clamart) à partir du 30 août 2006.

Lors d'un accident de grande ampleur, le problème majeur reste le tri des victimes, qui est basé sur la dose d'irradiation reçue ou la sévérité des dommages radio-induits. Dans le cas de l'accident de Dakar, ce tri a été rendu difficile par le temps écoulé entre la date de l'irradiation et la connaissance de l'accident, temps qui a pu, dans certains cas, atteindre plusieurs semaines.

L'évaluation de la dose reçue a été réalisée chez toutes les victimes par dosimétrie biologique. Le dénombrement des aberrations chromosomiques de type dicentrique dans les lymphocytes sanguins s'est déroulé en deux phases : une phase rapide de catégorisation basée sur 50 cellules observées par individu, suivie d'une phase beaucoup plus longue mais plus précise, basée sur l'étude de 250 à 500 cellules par individu.

De nouvelles méthodes testées

D'autres méthodes d'évaluation des dommages radio-induits ont été également utilisées à l'occasion de cet accident. Le but était de vérifier la possibilité de trier une population importante sur des critères simples, pour arriver à une catégorisation en trois ou quatre classes.

Pour la première fois, la détection automatique des dicentriques par analyse des images de microscopie obtenues après culture des lymphocytes irradiés a été utilisée d'une manière systématique.

Sur les 46 individus ayant fait l'objet de cette manipulation, la détection automatique a été plus efficace que l'observation manuelle sur 50 cellules, adoptée en phase de tri.

Cependant, elle s'est avérée moins efficace que l'expertise classique faite sur 500 cellules.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

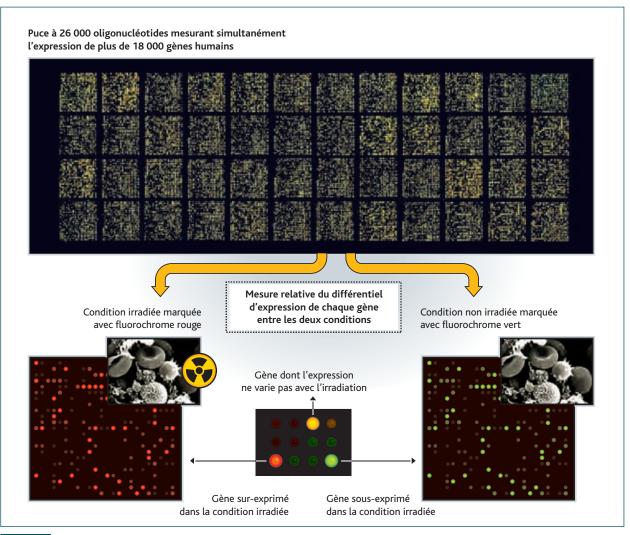


Figure 1 Principe d'hybridation compétitive sur puce à oligonucléotides.

Néanmoins, le développement de cette approche doit être poursuivi, d'autant qu'elle pourrait permettre d'estimer également l'hétérogénéité de l'irradiation.

Une autre technique explorée, l'utilisation des puces à oligonucléotides (figure 1), repose sur l'analyse des niveaux d'expression de certains gènes après irradiation. Ainsi, le niveau d'expression de 25 000 gènes a été mesuré chez les victimes de l'accident de Dakar, à partir des lymphocytes du sang de 20 individus diversement exposés. L'analyse des résultats a permis la sélection de 22 gènes candidats, dont les niveaux

d'expression semblent signer un niveau d'exposition. Malheureusement, des problèmes techniques liés au transport des échantillons n'ont pas permis de valider complètement ces résultats.

Une première estimation de l'atteinte après un accident d'irradiation est classiquement obtenue par une numération-formule sanguine (NFS). Celle-ci permet de connaître l'état des lignées sanguines (globules rouges, globules blancs, plaquettes) et donc de la moelle osseuse, dont la destruction par irradiation peut affecter le pronostic vital de l'individu. En outre, le dosage de la concen-

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

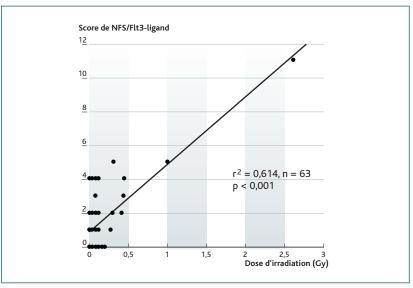


Figure 2 Analyse par régression linéaire entre le score de NFS/Flt3-ligand et la dose d'irradiation définie par dosimétrie biologique par cytogénétique. Les résultats montrent qu'il est possible d'identifier par score les patients ayant reçu une dose d'irradiation supérieure à 0,5 Gy.

tration plasmatique d'un facteur de croissance spécifique, le Flt3-ligand, permet d'évaluer la reprise de l'activité de la moelle osseuse. Ces deux mesures ont été effectuées parallèlement sur l'ensemble des individus potentiellement irradiés. L'analyse combinée des valeurs de NFS et de Flt3-ligand a permis de construire un score de gravité original, qui a montré une très bonne corrélation avec la dose d'irradiation estimée par l'analyse des dicentriques (figure 2).

De plus, cette corrélation a permis d'identifier rapidement les victimes les plus à risque. Néanmoins, pour l'accident de Dakar, le délai important entre l'exposition et l'analyse limite la validité de cette approche. Il sera nécessaire de la confirmer par des études rétrospectives d'autres accidents d'irradiation.

En conclusion, l'accident de Dakar a permis de mettre en pratique et de prouver la validité d'un certain nombre d'approches expérimentales innovantes, résultant des recherches menées par l'IRSN depuis des années sur l'accident radiologique.

MICROLOCALISATION DES RADIONUCLÉIDES À L'ÉCHELLE TISSULAIRE

par l'utilisation de la microscopie ionique analytique

Christine TESSIER, David SUHARD, François REBIÈRE

Laboratoire de radiochimie

Jean-René JOURDAIN

Direction de la radioprotection de l'homme

La compréhension des mécanismes de transport et de transfert des radionucléides incorporés selon un mode chronique dans les écosystèmes et chez l'homme nécessite notamment l'établissement de cartographies de distribution des contaminants dans les structures biologiques cibles des phénomènes de bioaccumulation. Parmi les techniques d'analyse et d'imagerie, la microscopie ionique ou technique SIMS, reposant sur le couplage de l'émission ionique secondaire à un spectromètre de masse, représente un outil performant permettant d'identifier les sites préférentiels d'accumulation des radioéléments à l'échelle tissulaire et cellulaire.

Le devenir de l'uranium

Le programme de recherche ENVIRHOM, mis en place en 2001 à l'IRSN, a pour but d'élargir les connaissances relatives aux risques encourus par l'homme et les écosystèmes exposés selon un mode chronique à de faibles doses de rayonnements ionisants. Ce programme vise à étudier notamment la biocinétique des radionucléides dans l'organisme et leurs effets biologiques dans ces conditions d'exposition. Ainsi, il s'intéresse tout particulièrement à identifier les structures cellulaires et tissulaires susceptibles d'accumuler le ou les radionucléides incorporés, contribuant ainsi à l'acquisition de nouvelles connaissances permettant de mieux appréhender les mécanismes mis en jeu et les conséquences biologiques, voire cliniques, de ces phénomènes de bioaccumulation.

Dans le cadre de l'étude des processus d'accumulation des radionucléides dans les organismes vivants, divers travaux expérimentaux ont été mis en œuvre sur des rongeurs contaminés par du nitrate d'uranyle ajouté à l'eau de boisson [Paquet et al., 2006; Donnadieu-Claraz et al., 2007], ainsi que sur des bivalves d'eau douce Corbicula fluminea, mollusques invertébrés exposés à l'uranium par respiration et nutrition branchiales [Simon et al., 2004 et 2005; Fournier et al., 2005].

Ce présent travail est consacré à l'étude des profils de distribution de l'uranium au sein des organes cibles après contamination interne en mode chronique par ce radioélément. Les matrices biologiques analysées ont été le cortex rénal chez le rat et les branchies de Corbicula fluminea. Différentes techniques d'analyse ont été mises en œuvre : la technique SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) et la technique EFTEM (Energy Filtered Transmission Electron Microscopy), en utilisant les méthodes spectroscopiques EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy) et ESI (Electron Spectroscopic Imaging).

Par ailleurs, ces travaux ont été conduits afin d'apporter des éléments de réponse quant à l'hypothèse selon laquelle l'uranium incorporé selon un mode de contamination chronique pourrait modifier le métabolisme du fer [Donnadieu-Claraz et al., 2007], l'uranium utilisant alors les mêmes transporteurs que ceux du fer. Ainsi, une étude comparative des sites de rétention de ces deux éléments a été réalisée à l'aide de différentes méthodes d'analyse précitées.

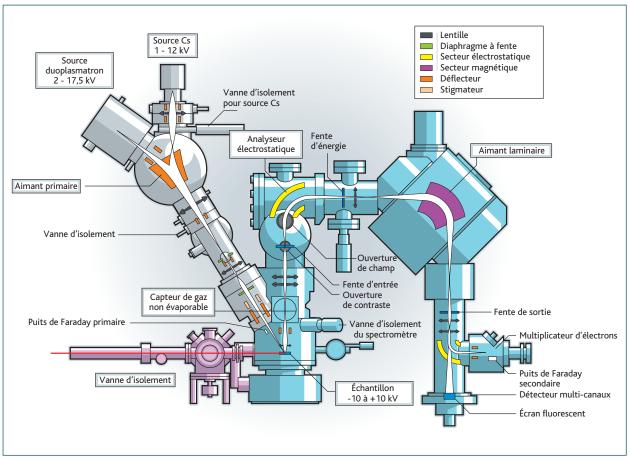


Figure 1 Représentation schématique de l'appareil SIMS 4F-E7 (Caméca).

Des techniques d'analyse complémentaires

La technique SIMS

La technique SIMS, ou microscopie ionique analytique, a pour but l'analyse élémentaire et isotopique d'une surface solide par un faisceau d'ions couplée à un spectromètre de masse. Le principe consiste à bombarder l'échantillon à étudier à l'aide d'un faisceau de particules chargées d'énergie de l'ordre de la dizaine de keV. Ce faisceau d'ions primaires rentre en collision avec les particules cibles, provoquant l'éjection de ces dernières situées à la surface libre, dont une fraction est ionisée spontanément. Ces ions appelés « ions secondaires » vont être ensuite accélérés et analysés à l'aide d'un spectromètre de masse pour restituer la composition chimique et isotopique de la surface de l'échantillon.

Le principe de l'appareil SIMS utilisé dans cette étude (modèle IMS 4F-E7 de la société Caméca), conçu par Castaing et Slodzian [Castaing et al., 1962; Slodzian, 1964], est schématisé sur la *figure 1*.

Une source d'ions primaires produit le faisceau incident, qui est alors transporté, focalisé et balayé sur la surface à analyser grâce à un système de lentilles électrostatiques et de balayage. Les ions secondaires pulvérisés sont accélérés et focalisés dans la colonne secondaire, vers la fente d'entrée du spectromètre de masse. Ce dernier est composé d'un secteur électrostatique qui trie les ions suivant une énergie donnée et d'un secteur magnétique qui sélectionne les ions suivant leur rapport masse/charge. À la sortie du spectromètre, le faisceau d'ions secondaires ainsi sélectionné est dirigé vers un multiplicateur d'électrons, relié à un système électronique. Des spectres de masse, des mesures de rapports isotopiques, des profils de concentration en fonction de la profondeur abrasée peuvent être ainsi réalisés.

De plus, des lentilles situées dans la ligne de transport des ions secondaires avant le spectromètre de masse permettent de restituer l'endroit d'où ont été éjectées les particules de la surface solide. L'acquisition d'images ioniques permettra ainsi de représenter la distribution spatiale des différents éléments d'intérêt au sein de la matrice choisie.

L'ensemble sources, transports des faisceaux et chambre objet est porté sous « un vide secondaire » de l'ordre de 10⁻¹³ bar.

Deux sources d'ions primaires sont utilisées. Le choix de la source dépend du type d'élément à analyser. Pour la détection d'ions secondaires positifs, un faisceau d'ions primaires électronégatifs sera choisi (source oxygène: O₂+, O-). Inversement, la pulvérisation d'ions secondaires négatifs nécessitera l'utilisation d'un faisceau d'ions primaires électropositifs (source de césium Cs+).

Performances et limitations de la technique SIMS

- La technique SIMS permet la détection et la mesure de la quasi-totalité des éléments de la classification périodique, y compris leurs isotopes.
- La sensibilité est de l'ordre de 1 ppm atomique pour la plupart des éléments jusqu'à 1 ppb atomique pour certains éléments. Cette technique offre la possibilité de détecter des éléments traces, voire ultra-traces.
- Des distributions élémentaires au sein d'une surface donnée peuvent être réalisées avec une résolution latérale de l'ordre de 1 µm, ainsi que des profils de concentration en fonction de la profondeur abrasée dans la matrice avec une résolution de l'ordre de 1 nm.
- Cet appareil possède une résolution en masse élevée (jusqu'à environ 10⁴); le pouvoir de résolution en masse est défini par l'expression R = M/ΔM, où M est la masse moléculaire de l'ion détecté. Il permet de discriminer deux éléments de masses moléculaires très proches, distants de ΔM = 10⁻⁴ M.
- Il s'agit d'une méthode d'analyse destructrice ; l'échantillon est érodé au cours de l'expérience.
- La quantification absolue de la concentration d'un élément s'avère cependant délicate, ce qui représente l'inconvénient majeur de la technique. En effet, la complexité du processus d'émission ionique secondaire ne permet pas de modéliser totalement l'analyse et encore moins de la quantifier analytiquement [Wittmaack, 1980; Benninghoven, 1987]. L'obtention d'une concentration absolue est conditionnée par la réalisation de mesures sur des échantillons étalons de même matrice que l'échantillon à analyser, avec des concentrations connues de l'élément et réparties de façon homogène dans la matrice; dans le cas de cette étude, la préparation d'échantillons biologiques étalons est très difficile à réaliser.

La technique EFTEM

Cet appareil offre la possibilité d'utiliser les techniques de spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) et d'imagerie des électrons (ESI), permettant de caractériser et de cartographier les éléments chimiques présents dans l'échantillon avec une très bonne sensibilité et une bonne résolution latérale, de l'ordre de la dizaine de nanomètres [Bordat et al., 2000 ; Lechaire et al., 2008].

Le principe de cette technique réside dans l'analyse de la distribution en énergie des électrons incidents rapides initialement quasi monochromatiques après avoir traversé l'échantillon. Parmi les multiples processus physiques qui sont à l'origine d'une perte d'énergie des électrons au cours de leur traversée dans un solide, l'analyse des pertes d'énergie élevées correspond aux excitations des électrons des particules cibles à partir des orbitales atomiques bien localisées vers les états de Bloch et l'ionisation. Ces seuils d'ionisation sont positionnés à des énergies correspondant aux énergies de liaison des électrons de cœur de l'échantillon et sont superposés à un fond continu décroissant. L'utilisation en mode couplé avec la technique d'imagerie filtrée en énergie permet de cartographier les différents éléments recherchés dans la structure. Cette étude, effectuée en collaboration avec le laboratoire Nurelice de l'Inra (Jouy-en-Josas), a été réalisée sur un EFTEM Zeiss EM 902.

Protocoles expérimentaux et préparation des échantillons biologiques

Les expérimentations animales concernant la contamination des bivalves *Corbicula fluminea* ont été réalisées au laboratoire de radioécologie de l'IRSN [Simon *et al.*, 2004 et 2005]. Les mollusques, collectés dans le lac Sanguinet, situé en Gironde, ont été contaminés par du nitrate d'uranyle en solution dans l'eau de l'aquarium, avec des teneurs en uranium de 500 µg/l et de 20 µg/l. Les durées d'exposition ont été de dix jours pour la concentration la plus forte, et de dix, quarante et quatre-ving-dix jours pour la faible teneur. Les branchies des bivalves ont été ensuite prélevées puis préparées pour être observées au microscope optique. D'autres échantillons ont été utilisés respectivement pour les analyses SIMS et EFTEM. La préparation d'un échantillon biologique en vue de son étude par un faisceau de particules chargées doit répondre à plusieurs exigences :

- dans le cas de l'analyse par SIMS, l'état de surface de l'échantillon doit être parfaitement plan et poli. Dans le cas contraire, le faisceau d'ions issu de la surface à analyser n'est plus isotrope et l'image obtenue est toujours floue, quelle que soit la finesse des réglages;
- les échantillons biologiques sont peu conducteurs, voire isolants. Des effets de charges peuvent ainsi se produire sous bombardement ionique ou électronique, phénomène qui se traduit par une accumulation de charges à la surface de l'échantillon.

Pour remédier à ce problème, des solutions consistent à déposer les coupes sur une plaque conductrice (plaque d'or polie miroir) pour les analyses SIMS ou à déposer une grille d'or sur l'échantillon pour les études au microscope électronique à transmission. Des branchies de bivalves témoins non exposés à l'uranium ont également été préparées, en vue d'être étudiées par ces différentes techniques d'analyse.

Conditions expérimentales	Détection ²³⁸ U+	Détection ⁵⁶ Fe+	
Faisceau d'ions primaires	O ₂ +	O ₂ +	
Énergie du faisceau primaire	12,5 keV	12,5 keV	
Intensité du faisceau primaire	7.10 ⁻⁹ A	2.10 ⁻⁹ A	
Énergie du faisceau secondaire	4,5 keV	4,5 keV	
Balayage du faisceau primaire	200 x 200 μm²	100 x 100 μm²	
Résolution en masse	M/ΔM = 300	M/ΔM = 3 000	

Tableau 1 Conditions expérimentales des analyses réalisées par la technique SIMS (4F-E7; Caméca).

Les expérimentations animales concernant la contamination des rats ont été réalisées par l'IRSN dans le laboratoire de radiotoxicologie [Paquet et al., 2006]. Des rats adultes Sprague-Dawley ont subi une contamination chronique par ingestion d'uranium en buvant, pendant neuf et dix-huit mois, de l'eau minérale contenant du nitrate d'uranyle respectivement enrichi et appauvri. La teneur en uranium de l'eau minérale est de 40 mg/l, correspondant à une ingestion quotidienne par animal d'environ 1 mg d'uranium. Les cortex rénaux ont été prélevés puis préparés pour les études SIMS. Des reins de rats non contaminés à l'uranium ont été également étudiés.

Des conditions expérimentales très précises pour les analyses SIMS et EFTEM

Les conditions expérimentales d'analyse SIMS (choix du faisceau d'ions primaires, intensités primaires, énergies des faisceaux primaires et secondaires, balayage, etc.) sont reportées dans le tableau 1. Une étude préliminaire avait été effectuée afin de déterminer ces conditions expérimentales de façon optimale; en effet, un compromis doit être trouvé entre une vitesse d'abrasion trop importante et une sensibilité de détection maximale.

Ces analyses se sont déroulées en plusieurs étapes. Pour la détection de l'uranium, des spectres de masse ont été obtenus, encadrant la masse 238 du radioélément ; puis, sur la même plage analysée, des images ioniques élémentaires ont été acquises aux masses 40 du calcium, visualisant la morphologie du tissu, et 238 du radionucléide. Ces analyses ont été faites à basse résolution en masse $(M/\Delta M = 300)$. Dans le cas de la détection du principal isotope de fer situé à la masse 56, il est impératif de travailler à haute résolution en masse (M/ Δ M = 3 000) afin de séparer la détection du groupement

⁴⁰Ca¹⁶O+ de masse très proche, également présent dans les tissus biologiques. Pour chaque plage étudiée, des spectres de masse et des images ioniques ⁴⁰Ca+, ⁵⁶Fe+ et ²³⁸U+ ont été réalisés.

Dans le cas des études effectuées avec la technique EFTEM, les éléments fer et uranium ont été identifiés en utilisant respectivement les raies caractéristiques Fe-L_{2,3} (708 eV) et U-O_{4,5} (96 eV). L'image de la structure du tissu a été obtenue en image filtrée à la perte d'énergie de 250 eV. L'énergie du faisceau d'électrons incident est de 120 KeV.

Distribution de l'uranium dans les branchies de Corbicula fluminea

La branchie est un organe situé de chaque côté du corps du mollusque, sous forme de lames externes et internes. Chaque lame est elle-même constituée d'un feuillet ascendant et d'un feuillet descendant, reliés à l'axe branchial (figure 2).

L'élément de base de la branchie est le filament (figure 3). Tous les filaments sont disposés en série, parallèles entre eux. Les branchies remplissent plusieurs fonctions. Elles assurent notamment l'activité respiratoire et la capture des particules alimentaires, grâce à la présence de cils entourant les filaments. Les cils latéraux sont responsables de la circulation de l'eau dans le tissu branchial; les cils latéraux-frontaux collectent les particules alimentaires et les cils frontaux transportent ces dernières vers le corps du bivalve.

Résultats obtenus avec la technique SIMS

Les spectres de masse réalisés sur les échantillons témoins et sur les échantillons contaminés (figure 4) révèlent la présence d'uranium dans les tissus dès dix jours après la contamination. L'absence de pic à la masse 238 dans le spectre de masse de l'échantillon témoin (< 1 cp/s) indique bien que l'uranium détecté dans l'échantillon contaminé provient uniquement de la contamination et confirme que la technique SIMS est tout à fait adaptée à la détection de l'uranium se trouvant à l'état de traces dans les échantillons de Corbicula fluminea. L'exploitation des images ioniques 40Ca+ permet d'appréhender la morphologie de la branchie (figure 5). Les images ioniques ²³⁸U+ acquises pour une contamination de 20 μg/l pendant quatre-vingt-dix jours mettent en évidence une distribution de l'uranium au sein de la branchie.

Cette distribution est hétérogène (sous forme d'amas supérieurs à 1 μm) et se situe principalement dans les filaments et sur la périphérie des jonctions interfolliaires. Celle-ci est obtenue quel que soit le type de contamination étudié.

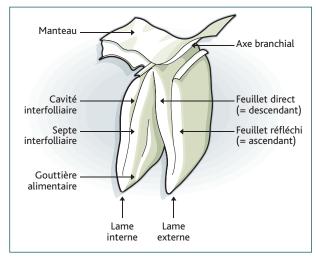


Figure 2 Représentation schématique de la structure des branchies de Corbicula fluminea.

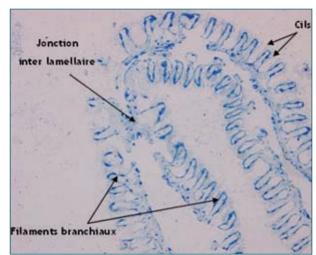


Figure 3 Image optique d'une coupe de branchie de Corbicula

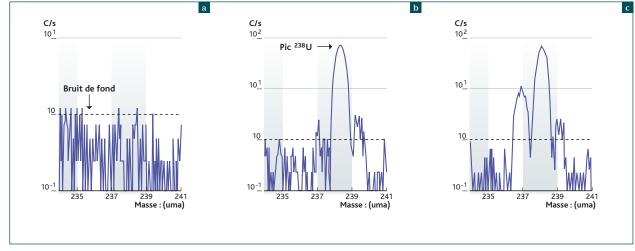


Figure 4 Spectres de masse réalisés sur branchies de Corbicula fluminea. a) Témoins. b) Contaminées 20 µg/l, 10 j. c) Contaminées 20 µg/l, 40 j.

Le *tableau 2* rassemble tous les résultats obtenus. Une accumulation plus importante d'uranium dans les branchies est observée lors d'une contamination avec 500 µg/l. Cependant, cette fixation se fait rapidement après le début de l'exposition. En effet, le temps d'exposition ne semble pas augmenter significativement le niveau de rétention de l'uranium dans la structure branchiale.

Étude comparative des sites de fixation de l'uranium et du fer par la technique SIMS

Les résultats des analyses concernant la détection du fer sur les branchies de mollusques contaminés sont comparables à ceux obtenus dans le cas des témoins (*figure 6*) : rétention de fer sous forme de gros agglomérats (de quelques micromètres de diamètre) dans la matrice branchiale.

	Témoin		20 μg/l 40 jours		
²³⁸ U+ (cps/s)	< 1	70 - 90	50 - 80	90	400

 Tableau 2
 Résultats ²³⁸U* en fonction des conditions d'exposition des bivalves.

Pour les bivalves exposés à l'uranium, les images ioniques ⁵⁶Fe+ et ²³⁸U+ ont été comparées. La superposition des images SIMS (*figure 7*) montre qu'il n'y a pas de colocalisation entre les sites de fixation de ces deux éléments.

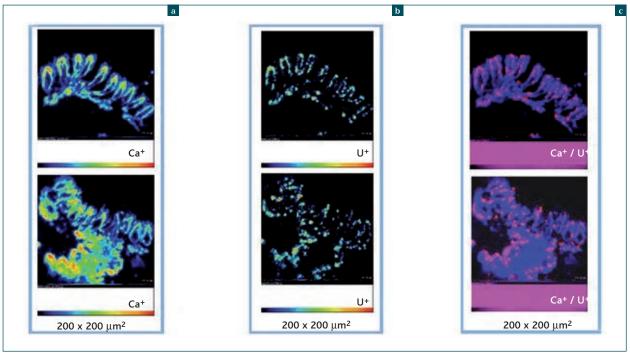


Figure 5 Images ioniques de coupes de branchies de Corbicula fluminea. a) 40Ca*. b) 238U*. c) Superposition 238U* (rouge)/40Ca* (bleu).

Comparaison des résultats obtenus avec d'autres techniques d'analyse et d'imagerie

Il nous a semblé intéressant de confirmer ces résultats par des études réalisées avec d'autres techniques d'analyse : le NanoSIMS 50 (Laboratoire Léon Latarjet/Institut Curie-Orsay) et la microscopie électronique à transmission filtrée en énergie (Laboratoire Nurélice/Inra-Jouy-en-Josas).

Le NanoSIMS 50 de la société Caméca est un appareil de nouvelle génération. Il possède la particularité d'avoir une taille de faisceau d'ions primaires plus petite (pouvant atteindre quelques dizaines de nanomètres) que celle du SIMS de notre laboratoire (de l'ordre du micromètre), permettant ainsi d'obtenir des images ioniques avec une meilleure résolution latérale.

Cet appareil a également l'avantage de détecter cinq éléments en parallèle, c'est-à-dire d'acquérir des profils de distribution élémentaires dans un même microvolume [Guerquin-Kern *et al.*, 2005]. Les images ioniques effectuées avec le NanoSIMS sont tout à fait comparables à celles réalisées au laboratoire et valident ainsi nos résultats. La *figure 8* représente les superpositions des images ²³⁸U+ (en vert), ⁵⁶Fe+ (en bleu) et ⁴⁰Ca+ (en rouge).

Les résultats obtenus avec la technique EFTEM (*figure 9*) montrent les distributions de l'uranium (en rouge) et du fer (en vert) sur

l'image de la structure de la branchie contaminée (en échelle de gris). Ces images chimiques, réalisées avec une résolution latérale de quelques dizaines de nanomètres, ont permis de mettre en évidence, outre l'accumulation d'uranium dans les vésicules situées dans les filaments branchiaux (confirmant les résultats SIMS), la présence du radioélément à l'intérieur des cils frontaux et latéraux situés sur le pourtour des filaments, l'épaisseur de ces cils étant de l'ordre de 200 nm. Nous remarquons également que les sites d'accumulation du fer sont différents de ceux du contaminant.

L'analyse du spectre EELS du faisceau d'électrons primaires transmis, effectuée sur des coupes de branchies témoins, ne décèle pas la présence du radioélément, montrant ainsi que l'uranium présent naturellement dans les échantillons n'influence pas les résultats de la mesure

Distribution de l'uranium dans le cortex rénal de rat

Résultats obtenus par microscopie ionique

Le cortex rénal est composé de glomérules, de tubes contournés proximaux (TCD), d'anses de Henlé, de tubes contournés distaux (TCD) et de collecteurs de Bellini (*figure 10*).

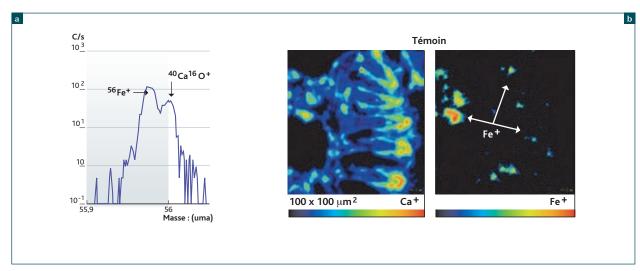


Figure 6 Branchie de Corbicula témoin. a) Spectre de masse. b) Images ioniques ⁴⁰Ca⁺ et ⁵⁶Fe⁺ (100 x 100 μm²).

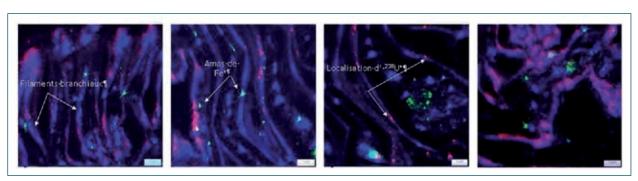


Figure 7 Superposition des images ioniques de branchies de Corbicula fluminea contaminées uranium (500 μg/l, 10 jours), ⁴⁰Ca+ (bleu), ²³⁸U+ (rose), ⁵⁶Fe+ (vert).

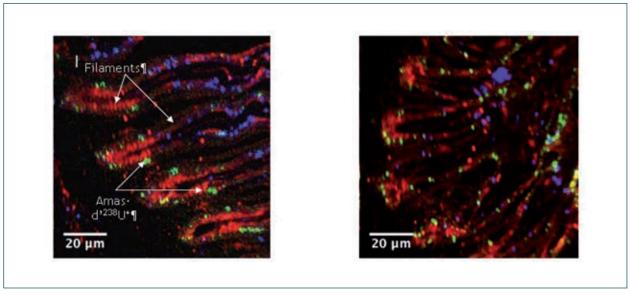


Figure 8 Superposition des images ioniques ⁴⁰Ca⁺ (rouge), ²³⁸U⁺ (vert), ⁵⁶Fe⁺ (bleu) réalisées avec un nano SIMS 50 sur branchie contaminée 500 μg/l pendant 10 jours.



Figure 9 Superposition des images électroniques présentant la distribution de l'uranium (en rouge) sur l'image structurale de la branchie (gris) et spectre EELS.

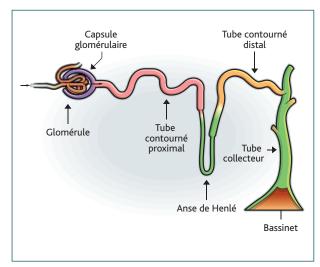


Figure 10 Représentation schématique de la structure du cortex rénal.

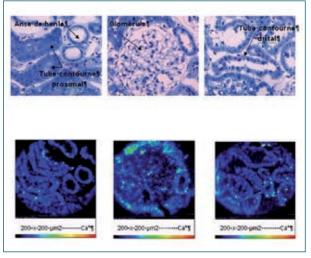


Figure 11 Images optiques et ioniques de différentes structures du cortex rénal.

Il est tout à fait possible de différencier ces diverses zones, à la fois sur les coupes observées au microscope optique et sur les images SIMS représentées par les clichés de la *figure 11*. Les images ioniques ⁴⁰Ca⁺ sont tout à fait représentatives de la structure des tissus que l'on peut observer au travers d'un microscope optique. Ce sont ces différentes plages d'intérêt qui ont été étudiées pour deux temps de contamination de neuf et dix-huit mois.

La comparaison des spectres de masse (figure 12) réalisée sur un échantillon témoin et sur un échantillon contaminé pendant dix-huit mois révèle la présence d'uranium dans les tissus suite à la contamination. Après une contamination d'une durée de neuf mois, les analyses spectrales montrent une rétention d'uranium seulement au niveau des tubes contournés proximaux. Les images ioniques superposées ⁴⁰Ca+ et ²³⁸U+ (représentées respectivement en

échelle de gris et en rouge) acquises dans cette structure mettent en évidence une répartition hétérogène d'uranium sous forme d'amas de 1 à 2 micromètres de diamètre (figure 13). Par contre, l'exploitation des spectres de masse et des images élémentaires réalisées chez les rongeurs exposés pendant dix-huit mois indique une accumulation du radioélément dans toutes les structures du cortex: glomérules, TCP, anse de Henlé, TCD et collecteurs de Bellini (figure 14). La localisation de l'uranium ne semble pas homogène en fonction des différentes structures et la quantité de cet élément retenu semble plus importante pour la contamination dix-huit mois que pour la contamination neuf mois.

Ces résultats importants suggèrent l'existence d'une cinétique de fixation de l'uranium en fonction du temps d'exposition du rat. L'accumulation dans toutes les structures du cortex rénal chez

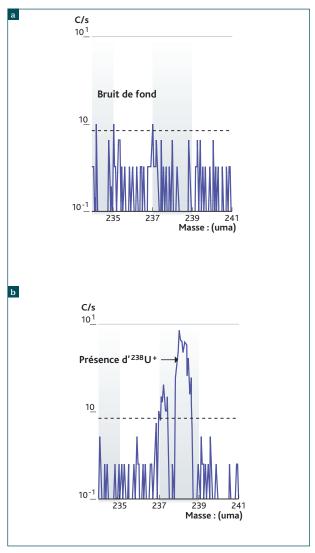
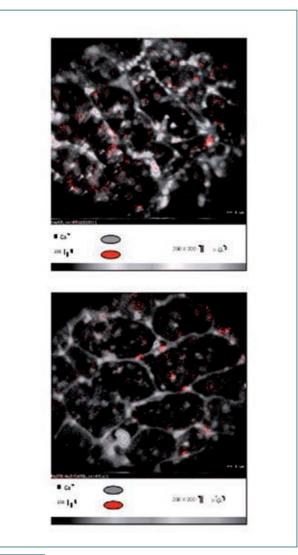


Figure 12 Spectres de masse. a) Rein témoin. b) Rein contaminé.



ure 13 Superposition des images ioniques de reins de rats ²³⁸U+ (rouge) et ⁴⁰Ca+ (gris). Contamination 9 mois.

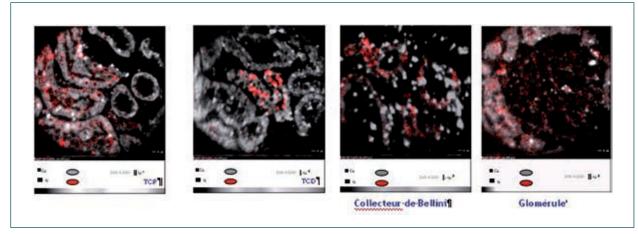


Figure 14 Superposition des images ioniques de reins de rats ²³⁸U+ (rouge) et ⁴⁰Ca+ (gris). Contamination 18 mois.

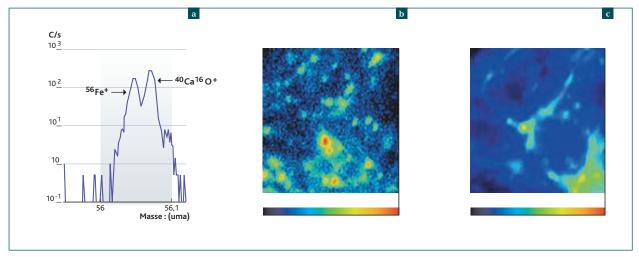


Figure 15 Rein de rat témoin. a) Spectre de masse. b) Image ionique ⁵⁶Fe⁺ (100 x 100 μm²). c) Image ionique ⁴⁰Ca⁺ (100 x 100 μm²).

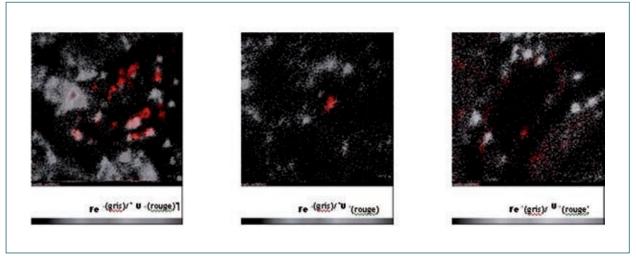


Figure 16 Superposition des images ioniques ⁵⁶Fe+ (gris) et ²³⁸U+ (rouge) de reins de rats contaminés 18 mois (100 x 100 μm²).

les animaux exposés pendant dix-huit mois est peut-être liée tout simplement à l'âge avancé du rongeur, entraînant une déficience fonctionnelle du rein. Afin de confirmer cette hypothèse, il serait souhaitable d'envisager une expérimentation animale, durant laquelle le rat serait contaminé pendant au moins neuf mois puis non exposé à l'uranium pendant quelques mois avant d'être sacrifié afin de constater si le radioélément a été éliminé après fixation au niveau des TCP.

Étude comparative des sites de fixation de l'uranium et du fer par la technique SIMS

Les données SIMS (spectres de masse et images ioniques) obtenues au niveau du cortex rénal de rats témoins indiquent une distribution de fer sous forme de gros amas en quantité importante dans toutes les structures (*figure 15*).

Les analyses réalisées dans le cas des rats contaminés sont comparables à celles effectuées sur les animaux non exposés. Les images ioniques ⁵⁶Fe+ et ²³⁸U+ superposées suggèrent, comme dans le cas des bivalves, qu'il n'y a pas d'interaction entre le fer et l'uranium (*figure 16*).

■ Conclusion et perspectives

Cette présente étude, s'intégrant dans le cadre du programme de recherche ENVIRHOM de l'IRSN, a permis de montrer que la microscopie ionique analytique, ou technique SIMS, implantée au laboratoire est tout à fait adaptée à l'étude des profils de distribution des radionucléides présents à de faibles niveaux de

concentration dans des matrices biologiques après contamination interne.

Dans le cas d'une contamination à l'uranium en mode chronique, cette technique d'analyse et d'imagerie par faisceau d'ions associée à un spectromètre de masse a mis en évidence pour la première fois des distributions hétérogènes de ce radioélément dans deux matrices biologiques. Dans le cas des branchies de bivalves *Corbicula fluminea*, les résultats expérimentaux (spectres de masse et images ioniques) montrent une accumulation de l'uranium sous forme d'amas dans la structure branchiale, dès dix jours après une exposition avec une très faible teneur de cet élément dans l'eau (20 µg/l).

Chez les rats contaminés pendant neuf et dix-huit mois avec 40 mg/l d'uranium dans l'eau de boisson, les données SIMS suggèrent une cinétique de rétention du radioélément dans le cortex rénal en fonction du temps de contamination. Pour les animaux exposés pendant neuf mois, seuls les tubes contournés proximaux (TCP) présentent une accumulation d'uranium; alors que pour les rongeurs exposés pendant dix-huit mois, toutes les structures du cortex contiennent des amas du contaminant.

Cette étude a également montré que, pour ces deux matrices biologiques, il n'y a pas de corrélation entre les sites de fixation du fer et ceux de l'uranium.

Tous ces résultats ont été confirmés et validés avec ceux obtenus par d'autres techniques d'analyse : la microscopie ionique en utilisant le nanoSIMS 50 (Caméca) et la microscopie électronique à transmission filtrée en énergie (EFTEM) utilisant les méthodes spectroscopiques de perte d'énergie des électrons (EELS) et d'imagerie des électrons (ESI).

Nous avons également montré que ces techniques pouvaient donner des informations complémentaires. Dans le cadre des études menées sur les écosystèmes, la poursuite de notre contribution expérimentale se fera sur une autre matrice biologique: le poisson *Danio*, notamment sur le système reproducteur et les larves.

En ce qui concerne les travaux menés chez le rongeur, les études SIMS se poursuivront en s'intéressant à un autre radioélément : ¹³⁷Cs. Divers organes de rat seront ainsi analysés : le foie, le rein, la thyroïde, le muscle squelettique, le cœur...

L'étude de la répartition de l'uranium à l'échelle de la cellule est également envisagée. Des analyses préliminaires réalisées sur une culture cellulaire semblent être prometteuses.

Références

- A. Benninghoven, F.G. Rüdenauer, H.W. Werner (1987). Secondary Ion Mass Spectrometry. Chemical analysis, vol. 86 (Ed. John Wiley, New York).
- C. Bordat, M. Sich, F. Réty, O. Bouet, G. Gournot, C.A. Cuénod, O. Clément (2000). Distribution of iron oxide nanoparticles in rat lymph nodes studied using electron energy loss spectroscopy (EELS) and electron spectroscopic imaging (ESI). J. Magnet. Res. Imaging 12,505-509.
- R. Castaing, G. Slodzian (1962). Microanalyse par émission ionique secondaire. J. Microscopie 1, 394-410.
- M. Donnadieu-Claraz, M. Bonnehorgue, B. Dhieux, C. Maubert, F. Cheney, F. Paquet, P. Gourmelon (2007). Chronic exposure to uranium leads to iron accumulation in rat kidney cells. Radiation Research 167, 454-464.
- E. Fournier, D. Tran, F. Denison, J.C. Massabuau, J. Garnier-Laplace (2005). Valve closure response to uranium exposure for a freshwater bivalve (Corbicula fluminea): quantification of the influence pH. Environ. Toxicol. and Chem. 23(5), 1,108-1,114.
- J.L. Guerquin-Kern, T.D. Wu, C. Quintana, A. Croisy (2005). Progress in analytical imaging of the cell dynamic secondary ion mass spectrometry (SIMS microscopy). Biochim. And Biophys. Acta 1724, 228-238.
- S. Halpern (1983). Méthodes chimiques de préparation des échantillons. Microanalyse en biologie (Ed : C. Qintana et S. Halpern), SFME, Paris, 93-104.
- P.J. Lechaire, G. Frébourg, F. Gaill, O. Gros (2008). In situ characterization of sulphur in gill-endosymbionts of the shallow water lucinid Codakia orbicularis (Linné, 1758) by high-pressure cryofixation and EFTEM microanalysis. Marine Biology, 1-8, article sous presse.
- F. Paquet, P. Houpert, E. Blanchardon, O. Delissen, C. Maubert, B. Dhieux, A.M. Moreels, S. Frelon, P. Voisin, P. Gourmelon (2006). Accumulation and distribution of uranium in rats after chronic exposure by ingestion. Health Physics 190(2), 139-147.
- O. Simon, J. Garnier-Laplace (2004). Kinetic analysis of uranium accumulation in the bivalve Corbicula fluminea: effect of PH and direct exposure levels. Aquatic toxicology 68, 95-108.
- O. Simon, J. Garnier-Laplace (2005). Laboratory and field assessment of uranium acculmulation trophic transfer efficiency in the crayfish Orconectes limosus fed the bivalve C. fluminea. Aquatic Toxicology 74, 372-383.
- G. Slodzian (1964). Étude d'une méthode d'analyse locale chimique et isotopique utilisant l'émission ionique secondaire. A. Phys. 9, 594-648.
- K. Wittmaack (1980). Aspects of quantitative secondary ion mass spectrometry. Nucl. Inst. Methods 168, 343-356.

LES ÉTUDES ÉPIDÉMIOLOGIQUES DES LEUCÉMIES

autour des installations nucléaires chez l'enfant et le jeune adulte : revue critique

Dominique LAURIER, Marie-Odile BERNIER, Sophie JACOB, Klervi LEURAUD, Camille METZ, Éric SAMSON

Laboratoire d'épidémiologie des rayonnements ionisants

Patrick LALOI

Service de radiobiologie et d'épidémiologie

Une étude épidémiologique publiée début 2008, effectuée autour de l'ensemble des centrales nucléaires allemandes, a montré un risque accru de leucémies chez les enfants de moins de cinq ans résidant à moins de 5 km des centrales nucléaires [Kaatsch et al., 2008]. De très nombreux travaux ont été conduits sur ce sujet depuis le début des années 1980 [Laurier, 1999 ; Laurier, 2002]. Afin de replacer les résultats allemands dans le contexte des connaissances épidémiologiques disponibles, le Laboratoire d'épidémiologie de l'IRSN a effectué une synthèse et une analyse critique des résultats relatifs au risque de leucémies chez les enfants et les jeunes adultes de moins de 25 ans vivant à proximité des installations nucléaires. Ce travail a abouti à la diffusion d'un rapport en avril 2008 [Bernier et al., 2008]. Il repose sur une revue la plus exhaustive possible des études épidémiologiques publiées dans la littérature internationale et décrivant la fréquence des leucémies à proximité des installations nucléaires dans différents pays du monde. Une analyse critique des résultats publiés a été effectuée. Les résultats ont été discutés, en considérant également les conclusions tirées d'études non focalisées sur les installations nucléaires et en fonction des limites méthodologiques associées aux études épidémiologiques descriptives. Les causes potentielles des leucémies infantiles et les principales hypothèses explorées pour expliquer les agrégats de cas observés localement à proximité de certains sites nucléaires sont également discutées.

Éléments de contexte et méthodes

Les leucémies sont des pathologies peu fréquentes chez l'enfant : chaque année en France surviennent de l'ordre de 470 nouveaux cas et 75 décès par leucémies infantiles pour une population d'environ 12 millions d'enfants (0 à 14 ans) [Clavel et al., 2004]. Les leucémies lymphoblastiques aiguës représentent près de 80 % des cas de leucémie de l'enfant. Ce type de leucémie présente un pic de fréquence entre 1 et 6 ans. Peu de facteurs de risque des leucémies infantiles sont reconnus : la trisomie 21 ou l'anémie de Fanconi, l'exposition externe aux rayonnements ionisants à forte dose ou la prise de médicaments alkylants utilisés dans les chimio-

thérapies. D'autres facteurs sont suspectés mais leur rôle n'est pas confirmé à ce jour : exposition à de faibles doses de rayonnements ionisants, champs électromagnétiques, pesticides, benzène, agents infectieux... Par exemple, certains auteurs ont estimé que près de 20 % des leucémies infantiles en Grande-Bretagne pourraient être dues à la radioactivité naturelle [Wakeford, 2004]. Bien que de nombreux facteurs de risque potentiels aient été avancés, aujourd'hui peu d'informations sont disponibles pour expliquer les causes des leucémies et 90 % des cas restent sans cause connue.

La méthode suivie pour la présente synthèse repose sur une recherche bibliographique effectuée sur les bases Scopus et PubMed.

Des documents complémentaires ont été obtenus à partir d'archives de l'IRSN et de contacts directs avec des chercheurs en France et à l'étranger. Au total, plusieurs centaines de documents (rapports, articles de revues scientifiques), relatifs au risque de leucémies autour des sites nucléaires chez les jeunes de moins de 25 ans, ont été publiés. Les travaux effectués sont de natures et de qualités diverses : études de cluster (ou « agrégat ») locales ou multisites, études de cas témoins ou de cohortes, études radioécologiques, travaux dosimétriques... La revue réalisée distingue deux types de travaux :

- les études descriptives, dont l'objectif est d'estimer la fréquence des leucémies et éventuellement de mettre en évidence un excès de risque au sein d'une population;
- les travaux analytiques, dont l'objectif est de rechercher les facteurs pouvant expliquer un excès de risque de leucémies au sein d'une population.

Bilan des études descriptives

Les études descriptives cherchent à répondre à la question : « La fréquence des leucémies à proximité d'un site particulier estelle plus élevée qu'ailleurs ? ». Il est important de souligner que ces études ne permettent pas de rechercher les facteurs susceptibles d'expliquer les accumulations de cas. La méthode est généralement assez simple et repose sur un comptage des cas dans des zones de voisinage déterminées le plus souvent par des cercles concentriques (figure 1).

Au total, des résultats descriptifs sont disponibles pour 198 sites nucléaires, répartis dans dix pays différents : Grande-Bretagne, Allemagne, France, Suède, Espagne, États-Unis, Canada, Japon, Suisse et Israël. Une revue de l'ensemble de ces résultats a été réalisée, en distinguant les études locales s'intéressant à un site spécifique et les études multisites s'intéressant simultanément à un ensemble de sites au sein d'un pays et portant donc sur des populations plus larges. Des critères d'évaluation ont été appliqués pour permettre d'apprécier les résultats recueillis.

Ces critères portent sur la nature des données considérées (morbidité/mortalité), les zones géographiques étudiées (pertinence de la taille et des limites des zones considérées), la puissance de l'étude (capacité à mettre en évidence un excès de risque faible) et la significativité statistique lorsqu'un excès est observé, la validité de la méthodologie statistique, la reproductibilité des résultats (mise en évidence de l'excès par différentes méthodes) et, enfin, la persistance d'un excès dans le temps (figure 2).

Sur les 198 sites recensés, trois excès répondent aux critères

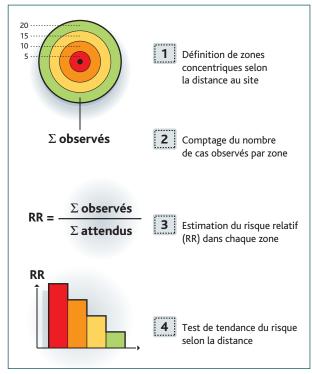


Figure 1 Principe d'une étude d'agrégat.

d'évaluation énoncés et peuvent être considérés comme des agrégats confirmés. Il s'agit des agrégats de Seascale (près de l'usine de Sellafield, en Angleterre) [Black, 1984; COMARE, 1996], de Thurso (près de l'usine de Dounreay, en Écosse) [Heasman et al., 1986; COMARE, 2005] et d'Elbmarsch (près de la centrale de Kruemmel, en Allemagne) [Grosche, 1992; Wichmann, 2004; Hoffmann, 2007]. D'autres agrégats sont bien documentés, en particulier en Grande-Bretagne, à proximité des sites d'Aldermaston et Burghfield [COMARE, 2005; Roman et al., 1987] et en France, à proximité de l'usine de retraitement de La Hague [Viel, 1995; Guizard et al., 1997], mais les éléments actuellement disponibles ne permettent pas de conclure à l'existence d'excès confirmés (fiqure 3).

Parmi les études multisites recensées (25 études dans huit pays différents), celles répondant le mieux aux critères d'évaluation énoncés sont les études récentes réalisées en Grande-Bretagne [COMARE, 2005], en Allemagne [Kaatsch, 2008] et en France [White-Koning et al., 2004] (figure 4). Ces études ne montrent pas, à l'échelle de l'ensemble des sites, d'augmentation du risque de leucémies chez l'enfant (0 à 14 ans) ou le jeune adulte (0 à 24 ans) à proximité des sites nucléaires. Peu d'études ont fourni des résultats spécifiques pour la tranche d'âge 0 à 4 ans. Néanmoins, en l'état actuel des connaissances, les résultats de l'étude allemande



Figure 2 Démarche d'analyse.

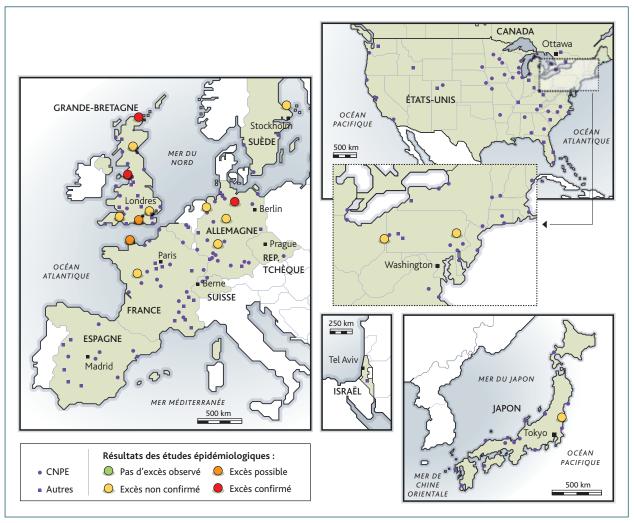


Figure 3 Résultats par site : 198 sites, 10 pays.

ne sont pas confortés par les études effectuées dans d'autres pays. En particulier, des études géographiques récentes conduites en Grande-Bretagne [Bithell, 2008] et en France [Laurier et al., 2008] ne mettent pas en évidence d'augmentation du risque de leucémies chez les enfants de 0 à 4 ans autour des centrales nucléaires.

D'autres études ont mis en évidence des excès localisés de cas de leucémies infantiles en l'absence de site nucléaire. Par ailleurs, plusieurs études indiquent un phénomène d'agrégation spatiale et temporelle de l'incidence des leucémies de l'enfant, indépendant de la présence de sources de risque potentiel [Bernier et al., 2008].

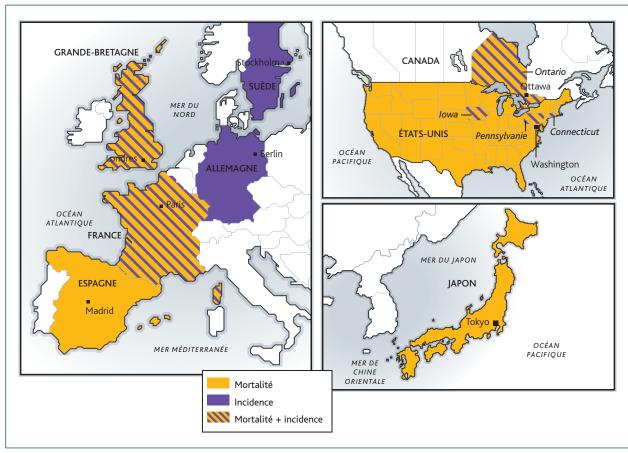


Figure 4 Études multisites : 25 études, 8 pays.

Enfin, il faut souligner les limites importantes inhérentes aux études descriptives, qui rendent difficile l'interprétation des résultats. Les travaux réalisés sur les risques de leucémies autour des sites nucléaires sont nombreux et de natures diverses, aussi il est nécessaire de replacer chaque nouveau résultat par rapport aux connaissances scientifiques disponibles.

Bilan des travaux sur les causes des excès localisés observés

Suite aux études descriptives ayant permis d'observer des agrégats de leucémies à proximité de certaines installations nucléaires, de nombreux travaux ont été lancés pour identifier des facteurs pouvant expliquer ces excès, en particulier à proximité des sites de Sellafield, de Dounreay, et d'Aldermaston et Burghfield en Grande-Bretagne, de La Hague en France et de Kruemmel en Allemagne.

Ces travaux sont de natures et de protocoles divers : études épidémiologiques (de types géographiques, cas témoins ou de cohortes),

mesures des doses reçues par la population ou évaluations radioécologiques. Trois hypothèses principales ont été avancées pour tenter d'expliquer l'observation d'un risque plus élevé à proximité de certaines installations nucléaires :

- hypothèse d'un lien avec l'exposition environnementale due aux rejets radioactifs ou chimiques des installations nucléaires ;
- hypothèse d'un lien avec l'exposition des pères aux rayonnements ionisants avant la conception des enfants ;
- hypothèse d'une cause infectieuse liée au brassage de population associé à de grands chantiers comme la construction d'une centrale nucléaire.

Des travaux ont porté sur le lien éventuel avec l'exposition environnementale due aux rejets radioactifs ou chimiques des installations nucléaires, en particulier en Grande-Bretagne [COMARE, 1988; COMARE, 1989; COMARE, 1996] ou en France dans le cadre du Groupe radioécologie Nord-Cotentin [GRNC, 1999; GRNC, 2002]. Leurs résultats indiquent que les doses dues aux rejets des installations nucléaires sont faibles et ne peuvent expliquer les excès observés localement.

L'hypothèse d'un lien avec l'exposition professionnelle des pères aux rayonnements ionisants externes avant la conception a été avancée pour le site de Sellafield [Gardner et al., 1990] mais n'a pas été confirmée par la suite et semble aujourd'hui écartée [Doll et al., 1994].

L'hypothèse infectieuse liée au brassage de population autour des sites nucléaires a été avancée par Kinlen [Kinlen, 1988] et est confortée par plusieurs résultats épidémiologiques [Kinlen, 2004]. Cette hypothèse pourrait, selon certains auteurs, expliquer une partie des excès observés à proximité de certains sites (en particulier à Sellafield et Dounreay) [Kinlen, 1988; Kinlen, 2004]. Cependant, le ou les agents infectieux impliqués n'ont pas pu être identifiés ou isolés à ce jour. De plus, cette hypothèse ne peut s'appliquer qu'à des sites spécifiques, autour desquels des mouvements de population importants ont pu avoir lieu, mais ne peut s'appliquer à l'ensemble des sites d'un pays ou d'une région.

L'implication d'autres facteurs environnementaux a été envisagée par certaines publications, tels que les champs électromagnétiques dus aux lignes à haute tension, les pesticides répandus dans les jardins ou sur les champs, la présence d'autres sites industriels ou une exposition élevée à la radioactivité d'origine naturelle. Néanmoins, ces facteurs ne sont pas spécifiques des sites dans lesquels sont implantées des installations nucléaires et, à ce jour, aucun d'entre eux ne constitue un facteur de risque reconnu de leucémies infantiles.

Encore aujourd'hui, bien que plusieurs pistes aient été avancées, l'origine des agrégats observés à proximité de certains sites nucléaires n'a pas été établie. Cependant, il faut noter que la plupart de ces études effectuées présentent des limites méthodologiques (études de type géographique ou reposant sur de faibles effectifs), rendant difficile la mise en évidence d'un lien éventuel de causalité. À cette difficulté s'ajoute le manque de connaissances des facteurs de risque associés aux leucémies infantiles. La réalisation d'études analytiques à grande échelle, telles que celles en cours en France sur la base du registre national des hémopathies malignes de l'enfant, pourrait apporter une meilleure compréhension des causes des agrégats de leucémies infantiles.

■ Conclusions

Depuis les années 1980, de très nombreuses études descriptives ont estimé la fréquence des leucémies chez les jeunes à proximité des installations nucléaires. Ces études répondent à une demande d'information de la part des populations locales et constituent un complément nécessaire dans la discussion des effets des faibles doses environnementales. La revue bibliographique réalisée montre une grande diversité des approches et des choix méthodologiques utilisés.

Des excès localisés de cas de leucémies infantiles existent en Grande-Bretagne à proximité des usines de retraitement de Sellafield et de Dounreay, et en Allemagne à proximité de la centrale de Kruemmel. Néanmoins, l'ensemble des études multisites actuellement disponibles, y compris en France, ne montre pas d'augmentation de la fréquence des leucémies globalement chez les 0 à 14 ans ou 0 à 24 ans à proximité des sites nucléaires. Une étude épidémiologique récente a décrit un excès de leucémies chez les enfants de 0 à 4 ans autour des centrales nucléaires allemandes. À ce jour, une telle observation n'est pas retrouvée dans les études effectuées dans d'autres pays, y compris en France. L'étude allemande publiée ne fournit aucune piste permettant d'expliquer l'excès observé.

Par ailleurs, de nombreux travaux ont cherché des explications aux excès de leucémies observés autour de certains sites nucléaires, en s'intéressant à de multiples facteurs de risque potentiels. Parmi les différents domaines explorés, l'hypothèse infectieuse liée au brassage de population autour des sites nucléaires semble la plus étayée. Cependant, le ou les agents infectieux impliqués n'ont pas à ce jour été mis en évidence.

La détermination des causes des excès de leucémies observés localement à proximité de certains sites nucléaires est limitée par un déficit de connaissances sur les facteurs de risque des leucémies infantiles. Ce constat rend nécessaire le développement d'études analytiques de grande ampleur, au niveau national ou international.

Références

- M.-O. Bernier, E. Gregoire, S. Jacob, P. Laloi, D. Laurier, K. Leuraud et al. (2008). Les études épidémiologiques des leucémies autour des installations nucléaires chez l'enfant et le jeune adulte : Revue critique. Fontenay-aux-Roses : IRSN ; Mars 2008. Report No.: DRPH/SRBE 2008-01.
- J. Bithell (2008). Childhood Leukemia near British nuclear installations: methodological issues and recent results. Rad Prot Dosim. 2008 Oct. 20. [Epub ahead of print]
- D. Black (1984). Investigation of the possible increased incidences of cancer in West Cumbria. London: HMSO.
- J. Clavel, A. Goubin, M.-F. Auclerc, A. Auvrignon, C. Waterkeyn, C. Patte et al. (2004). Incidence of childhood leukaemia and non-Hodgkin's lymphoma in France: National Registry of Childhood Leukaemia and Lymphoma, 1990-1999. Eur. J. Cancer Prev. 2004 Apr.; 13(2):97-103.
- COMARE (1988). Committee on Medical Aspects of Radiation in the Environment, Second Report. Investigation of the possible increased incidence of childhood cancer in young persons near the Dounreay nuclear establishment, Caithness, Scotland. United Kingdom, London: HMSO.
- COMARE (1989). Committee on Medical Aspects of Radiation in the Environment, Third Report. Report on the Incidence of Childhood Cancer in the West Berkshire and North Hampshire area, in which are situated the Atomic Weapons Research Establishment, Aldermaston and the Royal Ordnance Factory. United Kingdom, London: HMSO
- COMARE (1996). Committee on Medical Aspects of Radiation in the Environment, Fourth Report. The incidence of cancer and leukaemia in young people in the vicinity of the Sellafield site, West Cumbria: Further studies and an update of the situation since the publication of the report of the Black Advisory Group in 1984. United Kingdom, London: Department of Health.
- COMARE (2005). Committee on Medical Aspects of Radiation in the Environment, Tenth Report. The incidence of childhood cancer around nuclear installations in Great Britain. United Kingdom, London: Health Protection Agency.
- H.-O. Dickinson, L. Parker (1999). Quantifying the effect of population mixing on childhood leukaemia risk: the Seascale cluster. Br. J. Cancer. 81(1):144-51.
- R. Doll, H.-J. Evans, S.-C. Darby (1994). Paternal exposure not to blame. Nature. 367(6465):678-80.
- M.-J. Gardner, M.-P. Snee, A.-J. Hall, C.-A. Powell, S. Downes, J.-D. Terrell (1990). Results of case-control study of leukaemia and lymphoma among young people near Sellafield nuclear plant in West Cumbria. BMJ. 300(6722):423-9.
- GRNC (1999). Estimation des niveaux d'exposition aux rayonnements ionisants et des risques de leucémies associés de populations du Nord-Cotentin Rapport de synthèse. Fontenay-aux-Roses, France : Groupe radioécologie Nord-Cotentin, Institut de protection et de sûreté nucléaires.
- GRNC 2^e mission (2002). Évaluation des risques associés aux rejets chimiques des installations nucléaires du Nord-Cotentin Volume 2 : risques pour la santé. Fontenay-aux-Roses, Paris : Groupe radioécologie Nord-Cotentin, Institut de protection et de sûreté nucléaires.
- B. Grosche (1992). Leucémies infantiles dans le voisinage des centrales nucléaires en Allemagne. Symposium sur les agrégats de leucémie ; Canada, Ottawa : Atomic Energy Control Board. p.19-25.
- A.-V. Guizard, A. Spira, X. Troussard, A. Collignon, ARKM (1997). Incidence des leucémies de 0 à 24 ans dans le Nord Cotentin. Rev. Epidemiol. Santé Publ. 45:530-5.
- M.-A. Heasman, I.-W. Kemp, J.-D. Urquhart, R. Black (1986). Childhood leukaemia in northern Scotland. Lancet. 1(8475): 266.
- W. Hoffmann, C. Terschueren, D.-B. Richardson (2007). Childhood leukemia in the vicinity of the Geesthacht nuclear establishments near Hamburg, Germany. Environ Health Perspect. 2007 Jun.; 115(6):947-52.
- P. Kaatsch, C. Spix, R. Schulze-Rath, S. Schmiedel, M. Blettner (2008). Leukaemia in young children living in the vicinity of German nuclear power plants. Int. J. Cancer. 2008 Dec. 7; 122(4):721-6.
- L. Kinlen (1988). Evidence for an infective cause of childhood leukaemia: comparison of a Scottish new town with nuclear reprocessing sites in Britain. Lancet. 2(8624):1323-7.
- L.-J. Kinlen (2004). Childhood leukemia and population mixing. Pediatrics. 2004 Jul.; 114(1):330-1.
- D. Laurier (1999). Leucémies chez les moins de 25 ans autour d'installations nucléaires en France et à l'étranger : revue des études épidémiologiques descriptives. Radioprotection. 34(2):149-76.
- D. Laurier, C. Rommens, C. Drombry-Ringeard, A. Merle-Szeremeta, J.-P. Degrange (2000). Assessment of the risk of radiation-induced leukaemia in the vicinity of nuclear installations: The Nord-Cotentin radio-ecological study. Rev. Epidemiol. Santé Publ. 48:2524-36.
- D. Laurier, B. Grosche, P. Hall (2002). Risk of childhood leukaemia in the vicinity of nuclear installations Findings and recent controversies. Acta Oncol. 41(1):14-24.
- D. Laurier, D. Hémon, J. Clavel (2008). Childhood leukaemia incidence below the age of 5 years near French nuclear power plants. J. Radiol. Prot. 2008 Sep.; 28:401-3.
- E. Roman, V. Beral, L. Carpenter, A. Watson, C. Barton, H. Ryder et al. (1987). Childhood leukaemia in the West Berkshire and Basingstoke and North Hampshire District Health Authorities in relation to nuclear establishments in the vicinity. BMJ. 294(6572):597-602.
- J.-F. Viel, D. Pobel, A. Carre (1995). Incidence of leukaemia in young people around the La Hague nuclear waste reprocessing plant: a sensitivity analysis. Stat Med. 14(21-22):2459-72.
- R. Wakeford (2004). The cancer epidemiology of radiation. Oncogen ; 23: 6404-28.
- M.-L. White-Koning, D. Hemon, D. Laurier, M. Tirmarche, E. Jougla, A. Goubin et al. (2004). Incidence of childhood leukaemia in the vicinity of nuclear sites in France, 1990-1998. Br. J. Cancer. 91(5):916-22.
- H.-E. Wichmann, E. Greiser (2004). Untersuchungsprogramm Leukämie in der Samtgemeinde Elbmarsch: Fragestellungen, Ergebnisse, Beurteilungen. Hannover: Niedersächsischen Ministeriums für Soziales, Frauen, Familie und Gesundheit; Novembre 2004.

NOUVELLE APPROCHE POUR LE SUIVI ÉPIDÉMIOLOGIQUE DES TRAVAILLEURS EXPOSÉS AU RISQUE DE CONTAMINATION INTERNE: utilisation de la matrice emploi-exposition

Irina GUSEVA CANU, Éric SAMSON

Laboratoire d'épidémiologie des rayonnements ionisants

L'exposition aux rayonnements ionisants des travailleurs de l'industrie nucléaire peut résulter d'une irradiation externe, d'une irradiation interne ou d'une combinaison des deux composantes. Depuis plus de dix ans, le Laboratoire d'épidémiologie (Lepid) de l'IRSN conduit des études sur les travailleurs du nucléaire (CEA, Areva NC et EDF), afin d'estimer le risque de mortalité par cancer lié à l'exposition à l'irradiation externe [Guseva Canu et al., 2008 ; Rogel et al., 2005 ; Telle-Lamberton et al., 2004 ; Telle-Lamberton et al., 2007]. Depuis maintenant trois ans, le Lepid a lancé d'autres études, prenant également en compte le risque de l'irradiation interne : programme européen ALPHA-RISK, Programme d'intérêt commun avec Areva. Ces études ont donné lieu à deux thèses de doctorat en épidémiologie.

L'irradiation interne est consécutive à une incorporation des particules radioactives, par inhalation, ingestion ou suite à une blessure. Si les effets de l'irradiation externe (rayons X et gamma) sont désormais bien explorés grâce à des études épidémiologiques à grande échelle [Cardis et al., 2005], les effets dus à l'incorporation des particules d'uranium et d'autres éléments émetteurs alpha restent encore peu connus [Cardis et al., 2007].

La dose à l'organe due à l'irradiation interne implique la reconstitution de l'exposition aux particules. La non-exhaustivité des données disponibles sur l'historique de l'exposition des travailleurs, l'hétérogénéité des méthodes et indicateurs permettant de mesurer l'exposition, la difficulté d'interprétation des données biologiques individuelles (surveillance radiotoxicologique des travailleurs) et des nombreuses hypothèses utilisées pour estimer les doses internes font que les doses ainsi estimées peuvent présenter des incertitudes importantes [Guseva Canu et al., 2008 ; Boice et al., 2006].

Par ailleurs, très souvent, certaines sources d'exposition (produits chimiques, amiante, tabac, alcool), qui pourraient contribuer au risque de cancer, ne sont pas systématiquement prises en compte [Guseva Canu et al., 2008]. Il est donc difficile de conclure sur le lien entre la mortalité par cancer et l'exposition interne à l'uranium à partir des études épidémiologiques disponibles. Le développement d'approches alternatives à la dosimétrie interne pour reconstituer l'exposition à de multiples facteurs de risque paraît nécessaire.

La matrice emploi-exposition (MEE), qui associe à une liste d'emplois des indicateurs d'exposition [Goldberg *et al.*, 1993], est une des approches possibles.

L'objectif de cet article est de montrer comment l'approche MEE peut être utilisée pour caractériser l'exposition dans l'industrie nucléaire française, à travers l'exemple de l'étude pilote de l'établissement Areva NC de Pierrelatte.

Méthodologie de la constitution de la matrice emploi-exposition

L'établissement Areva NC (ex-Cogema) de Pierrelatte est impliqué dans plusieurs étapes du cycle du combustible nucléaire. Les activités principales de l'établissement s'articulent autour de l'enrichissement de l'uranium dans les années 1960-1990 et de la conversion chimique de l'uranium depuis les années 1980. De ce fait, les travailleurs peuvent être exposés aux particules et aérosols d'uranium ainsi qu'aux produits chimiques utilisés. La majorité des travailleurs de l'établissement a une faible mobilité professionnelle et bénéficie de ce fait d'un suivi médical régulier durant toute sa carrière. Pour ces raisons, le Lepid, en accord avec les médecins coordonnateurs du groupe Areva, a choisi l'établissement de Pierrelatte pour sa première étude épidémiologique des travailleurs à risque de contamination à l'uranium et pour l'élaboration de la MEE spécifique.

La structure de la MEE [Guseva Canu et al., 2008] permet d'intégrer trois dimensions: emploi, exposition et période, afin de considérer l'évolution temporelle des procédés et des expositions dans l'établissement.

La liste des emplois ou postes de travail au cours des différentes périodes et la liste des nuisances (produits uranifères et autres produits chimiques cancérigènes, mutagènes ou toxiques) auxquels les travailleurs pouvaient être exposés ont été définies par un comité d'experts composé, d'une part, d'une vingtaine de personnes connaissant l'historique des procédés, les produits utilisés dans l'établissement et leur effets chimio et radiotoxiques et, d'autre part, d'ingénieurs de sécurité, d'agents de radioprotection, de chimistes, de médecins du travail, de toxicologues, de dosimétristes et d'épidémiologistes.

La fréquence d'exposition et la quantité du produit en contact potentiel avec les travailleurs lors de leur carrière professionnelle ont été définies comme indices d'exposition. Leurs niveaux ont été estimés sur une échelle relative de 0 à 3 par un comité d'évaluateurs. Les évaluateurs ont été sélectionnés au sein de trois populations : « A » pour les travailleurs de l'établissement en activité, ayant une ancienneté importante et une bonne connaissance de leur environnement professionnel; « R » pour les travailleurs de l'établissement retraités; et « AR » pour les travailleurs de l'établissement retraités, membres adhérents de l'ARGCEA (Association des retraités du groupe CEA-Cogema).

Pour cette dernière population de travailleurs, un fichier informatique d'adresses actualisées était disponible, permettant un contact facilité. Néanmoins, cette population pourrait présenter des différences significatives en termes de style de vie des retraités, liées à

Détails	
UF ₆ , UF ₄ , UO ₂ (NO ₃) ₂ , (UO ₄ , nH ₂ O)	
(U ₂ O ₇)(NH ₄) ₂ , U ₃ O ₈ , UO ₂ F ₂ , UO ₃	
UO ₂	
UF ₆ , UF ₄ , UO ₂ (NO ₃) ₂ , (UO ₄ , nH ₂ O)	
(U ₂ O ₇)(NH ₄) ₂ , U ₃ O ₈ , UO ₂ F ₂ , UO ₃	
UO ₂	
Perchloroéthylène, tetrachloroéthène, trichloroéthène, dichlorométhane, polychlorobiphenyles (PCB)	
Acide fluorhydrique, hexafluorure de tungstène, fluorine, fluorure de potassium	
Ammoniac, anhydride d'ammonium, acide nitrique, vapeurs nitreuses	
Benzène, toluène, xylène, styrène	

11 - Fumées de soudage. 12 - Laines de roche et laines de verre. 13 - Amiante. 14 - Fibres céramiques réfractaires. 15 - Trioxyde de chrome. 16 - Trifluorure de chlore. 17 - Trichloréthylène. 18 - Plomb. 19 - Mercure. 20 - Silice. 21 - Hydrazine et autres carburants. 22 - Chaleur

Les composés uranifères ont été classés en 3 types (F, M et S) en fonction de leur solubilité dans les tissus biologiques (rapide, modéré et lente)[ICRP, 1994]

Tableau 1 Expositions évaluées dans la matrice emploi-exposition.

leur vie associative, c'est pourquoi l'enquête a été ouverte également à la population des retraités « R ». Le travail d'évaluation a été standardisé grâce à l'utilisation d'un cahier d'évaluation, commun aux trois populations, précisant l'objectif de l'étude, les conditions de participation (volontariat et anonymat), les instructions pour l'évaluation et la grille d'évaluation à renseigner.

Les grilles renseignées par les travailleurs actifs ont été récupérées au sein de l'établissement par les ingénieurs de sécurité, celles renseignées par les travailleurs retraités ont été renvoyées par la poste. L'ensemble des réponses des évaluateurs a été centralisé, saisi et traité statistiquement en appliquant la technique dérivée de la méthode Delphi [Dalkey et Helmer, 1963]. Cette technique permet d'examiner statistiquement les distributions des réponses des évaluateurs, afin d'obtenir une note « fréquence » et une note

Population d'évaluateurs	Nombre de cahiers distribués	Nombre de cahiers renseignés	Taux de participation (%)
A (travailleurs actifs)	182	182	100
R (travailleurs retraités)	197	85	43
AR (travailleurs retraités membres de l'association) 353		86	25
Total	732	353	56

Tableau 2 Composition du comité d'évaluateurs et taux de participation selon le type d'évaluateurs.

PTG	Période	Unat_1_Freq	Unat_1_Quant	Unat_2_Freq	Unat_2_Quant	Unat_3_Freq	Unat_3_Quant
1_CME2	1966 - 1976	2	1	0	0	0	0
1_CME2	1976 - 1986	1	1	0	0	0	0
1_CME2	1986 - 1996	1	1	0	0	0	0
1_CME2	1996 - 2006	1	1	1	1	1	1
1_CME3	1966 - 1976	0	0	0	0	0	0
1_CME3	1976 - 1986	2	1	0	0	0	0
1_CME3	1986 - 1996	2	1	0	0	0	0
1_CME3	1996 - 2006	0	0	2	2	1	1
1_CME4	1966 - 1976	3	3	1	3	0	0
1_CME4	1976 - 1986	1	1	1	1	0	0
1_CME4	1986 - 1996	2	1	0	0	0	0
1_CME4	1996 - 2006	3	3	3	3	2	1
1_CME5	1966 - 1976	3	2	3	2	3	2
1_CME5	1976 - 1986	3	2	3	2	3	2
1_CME5	1986 - 1996	3	2	3	2	3	2
1_CME5	1996 - 2006	3	3	3	3	3	3
1_CME6	1966 - 1976	3	3	0	0	0	0

Tableau 3 Matrice emploi-exposition finale (extrait de la table des indices d'exposition).

« quantité » représentatives de chaque combinaison poste-période et ceci pour chaque nuisance. La validation de la matrice finale a été effectuée par les experts à la suite d'examens de cohérence interne de la matrice ainsi que de cohérence externe, en rapport avec l'exposition dans d'autres établissements nucléaires comparables. De plus, pour un échantillon représentatif des travailleurs (1 % de la population d'étude), les résultats d'exposition issus de la matrice ont été comparés à ceux issus des dossiers médicaux, pris comme source de référence des données d'exposition. La concordance, la sensibilité et la spécificité de l'évaluation ont été estimés [Bouyer et Hémon, 1994].

Résultats

L'exposition radiologique interne a été déclinée en plusieurs nuisances en fonction de deux critères : la pureté de l'uranium, permettant de distinguer les composés issus de l'uranium naturel et ceux à base d'uranium de retraitement (URT), comportant les traces des produits d'activation et/ou de fission ; et la transférabilité dans les tissus biologiques (forte, moyenne, faible) des particules d'uranium, après incorporation. L'ensemble des agents d'exposition pour lesquels l'exposition a été évaluée est résumé dans le *tableau 1*. L'évaluation de l'exposition à chacune des

Nuisance	Concordance observée (%)	Карра (%)	Degré d'agrément	Sensibilité	Spécificité
Produits uranifères issus de l'uranium naturel	85	66	Bon	0,81	0,96
Produits uranifères issus de l'URT	92	83	Excellent	0,82	0,98
Amiante	61	9	Mauvais	1,00	0,60
Laine de verre et laine de roche	74	27	Médiocre	0,50	0,80
Produits chlorés	71	42	Modéré	0,77	0,67
Produits fluorés	58	15	Médiocre	0,57	0,60
Produits azotés	68	36	Médiocre	0,59	0,79
Total	78	56	Modéré	0,72	0,83

 Tableau 4
 Résultats de comparaison des données d'exposition à certaines nuisances issues de la matrice aux données d'exposition issues des dossiers médicaux des travailleurs, utilisées comme données de référence (URT : uranium issu de retraitement).

22 nuisances a été effectuée pour 73 postes de travail génériques (PTG). En plus, ces PTG ont été découpés en plusieurs périodes, durant lesquelles l'exposition a été considérée comme stable : 1960-1975, 1976-1983, 1984-1995, 1996-2006, mais pouvant changer d'une période à une autre.

Au total, 353 travailleurs ont été inclus dans le comité d'évaluation et ont rendu des grilles d'évaluation exploitables. La répartition des évaluateurs en fonction de leur population source est présentée dans le *tableau 2*.

Sur l'ensemble des notes attribuées par les évaluateurs lors de la procédure d'évaluation, environ 84 % des notes ont été acceptées à l'issue du premier examen statistique. Le deuxième examen et la session d'arbitrage des notes par des experts ont permis d'attribuer une note « quantité » et une note « fréquence » satisfaisantes à chaque couple PTG-période. Ces notes ont été enregistrées dans la table des indices d'exposition, présentée sur le *tableau 3*.

L'examen de la cohérence interne de la matrice finale, jugée satisfaisante par les experts internes à l'établissement Areva NC Pierrelatte (ingénieurs de sécurité, responsable de la surveillance produits chimiques et amiante et responsables de la radioprotection), a permis de valider la matrice en interne. La comparaison des données d'exposition issues de la matrice aux données issues des dossiers médicaux des travailleurs, utilisées comme données de référence, a permis une validation externe. Les résultats de cette validation sont présentés dans le *tableau 4*. Dans la comparaison des deux sources de données, le degré d'agrément est estimé par la concordance observée et le coefficient Kappa (permettant

d'estimer, en prenant en compte le hasard, l'accord entre les jugements qualitatifs sur l'exposition fournis par les dossiers médicaux). Selon les critères d'interprétation des valeurs de Kappa proposés par Landis et Koch [Landis et Koch, 1977], en ce qui concerne l'exposition aux produits uranifères, les données de la matrice présentent un très bon degré d'agrément avec les données des dossiers médicaux.

L'agrément en matière d'exposition aux produits chimiques est plus faible et même mauvais dans le cas de l'exposition à l'amiante. Les valeurs de sensibilité et de spécificité permettent d'apprécier la performance de la matrice à détecter l'exposition à une nuisance lorsque celle-ci existe ou de l'exclure lorsqu'elle n'existe pas [Last, 1995]. Les valeurs de sensibilité et de spécificité globales observées, proches de 1, indiquent la bonne performance de la matrice.

La MEE, un outil performant

La méthode matrice emploi-exposition a été utilisée pour l'évaluation rétrospective de l'exposition à l'uranium et aux produits chimiques associés, dans un contexte d'absence de données de mesure d'exposition individuelle exploitables. La méthodologie utilisée pour l'élaboration de la MEE permet de garantir la fiabilité et la reproductibilité des résultats de l'exposition obtenus à plusieurs titres.

D'une part, la méthode de MEE, formalisée dans les années 1980, a été abondamment discutée [Goldberg, 1993; Hoar, 1983] et trouve depuis une large application dans les études épidémiologiques, particulièrement dans les études en milieu professionnel.

D'autre part, dans la présente étude, les éléments suivants ont permis d'améliorer cette méthode :

- participation d'un grand nombre d'évaluateurs (n = 353) et d'experts, permettant d'assurer une bonne appréciation de l'évolution chronologique des expositions et de minimiser le biais de mémoire ;
- standardisation du recueil d'information, permettant de limiter le biais lié à l'interlocuteur et d'améliorer la reproductibilité;
- recours à la méthode Delphi, permettant de réduire la subjectivité des réponses des évaluateurs et d'obtenir une réponse statistique du groupe ;
- discrimination d'un grand nombre de postes (74 PTG), permettant d'améliorer la précision de la MEE;
- évaluation des expositions en amont des études épidémiologiques, permettant d'éviter le biais lié à l'évaluateur par rapport au statut vital et la cause de décès des sujets de l'étude.

Cependant, l'absence de données de mesure instrumentale exploitables pour caractériser l'exposition constitue une limite importante pour la MEE élaborée. En effet, seuls des niveaux relatifs de fréquence et de quantité d'exposition ont pu être établis, sans qu'ils puissent avoir une signification physique précise. Ces niveaux représentent « les niveaux moyens d'exposition pendant la période considérée ». La multiplication de la fréquence et de la quantité d'exposition par la durée de l'exposition à un poste de travail permet cependant d'obtenir un score d'exposition cumulée, une variable quantitative continue, reflétant en « dose-années » l'exposition à chacune des 22 nuisances de chaque travailleur durant sa carrière. Cette méthode est actuellement utilisée dans les études [Rice et Heineman, 2003; Ritz et al., 2006; Seidler et al., 1998] et se révèle fiable pour mettre en évidence l'association entre l'exposition et la pathologie étudiée. L'étude de cohorte des travailleurs de l'établissement Areva NC de Pierrelatte est en cours [Guseva Canu et al., in press].

L'examen de la concordance des données de la MEE avec celles issues des dossiers médicaux est satisfaisant. La concordance est particulièrement bonne pour les produits uranifères, pour lesquels la surveillance médicale était strictement réglementée. En revanche, des effets nocifs de l'amiante, des laines de verre et de certains produits chimiques ont été longtemps ignorés et l'exposition à ces produits ne faisait pas l'objet d'une surveillance régulière par la médecine du travail. Ainsi, la concordance observée pour les produits chimiques est médiocre et pour l'amiante elle est quasi nulle (Kappa = 9 %).

Cela vérifie notre hypothèse de départ selon laquelle les dossiers médicaux ne constituent pas une source de données suffisante pour estimer l'exposition aux produits chimiques. La MEE reflète mieux l'exposition chronique aux faibles doses de produits, notamment

lorsqu'elle est spécifique de l'établissement étudié. D'après les valeurs de sensibilité et de spécificité observées, la MEE élaborée constitue un outil performant.

La MEE, un outil d'avenir

La matrice emploi-exposition présentée a été élaborée afin d'estimer rétrospectivement l'exposition des travailleurs du cycle du combustible à l'uranium et aux produits chimiques associés. Cette matrice a été validée et constitue aujourd'hui une source de données de l'exposition spécifique de l'établissement Areva NC Pierrelatte.

Elle permet d'étudier l'association entre l'exposition interne à l'uranium et la mortalité par cancer chez les travailleurs de cet établissement. Conçue sous un format relativement simple (Base de données Microsoft® Access), elle constitue un outil de surveillance épidémiologique de l'exposition dans le temps, aussi bien rétrospectivement que prospectivement. La MEE constitue également un outil de gestion de risque pour l'établissement : les nuisances communes au Document unique [Rapport Areva, 2005] et à la MEE sont notifiées en temps réel par les hygiénistes et les ingénieurs de sécurité. Le caractère évolutif de la MEE permet de facilement réactualiser les niveaux d'exposition pour les produits déjà répertoriés mais également d'inclure des nuisances nouvelles. Il sera aussi possible d'intégrer de nouveaux indices d'exposition ou, mieux encore, de substituer aux niveaux actuels d'exposition les valeurs réelles. La généralisation des mesures instrumentales des différents polluants au sein de l'établissement pourra le permettre à terme.

La méthode développée pour la construction de MEE peut être utilisée comme un outil-prototype pour d'autres établissements du cycle du combustible. En effet, à l'intérieur du programme européen ALPHA-RISK [Guseva Canu et al., 2008], coordonné par le Laboratoire d'épidémiologie de l'IRSN, une étude de cohorte a été mise en place. Elle inclut les travailleurs de Comurhex et d'Areva NC (chimie de l'uranium), d'Eurodif (enrichissement de l'uranium), de FBFC (fabrication du combustible), de Socatri (assainissement et récupération d'uranium) et du CEA (recherche). Cette étude vise à quantifier le risque de mortalité en relation avec une irradiation interne des travailleurs, en tenant compte des expositions associées. Elle nécessite donc la reconstitution individuelle des expositions radiologiques (externes et internes), chimiques, ainsi que des facteurs de risque individuels comme le tabac, à partir des différentes sources (dossiers médicaux...). L'utilisation de l'approche MEE permettra de compléter les données disponibles et d'évaluer les expositions pour les périodes les plus anciennes où les données sont souvent manquantes ou non exploitables.

Références

- J.D. Boice Jr., D.E. Marano, S.S. Cohen, M.T. Mumma, W.J. Blot, A.B. Brill et al. (2006). Mortality among Rocketdyne workers who tested rocket engines, 1948-1999.

 J. Occup. Environ. Med. 48:1070-92.
- J. Bouyer, D. Hémon (1994). Les matrices emploi-exposition. Rev. épidém. Santé Publ. 42:235-245.
- E. Cardis, M. Vrijheid, M. Blettner, E. Gilbert, M. Hakama, C. Hill et al. (2005). Risk of cancer after low doses of ionising radiation: retrospective cohort study in 15 countries. Br. Med. J. 331:77-80.
- E. Cardis, M. Vrijheid, M. Blettner, E. Gilbert, M. Hakama, C. Hill et al. (2007). The 15-Country Collaborative Study of Cancer Risk Among Radiation Workers in the Nuclear Industry: Estimates of radiation Related Cancer Risk Radiat Res. 167:396-416.
- N. Dalkey, O. Helmer (1963). An experimental application of the DELPHI method to use of experts. Management Science. 9:458-67.
- M. Goldberg, H. Kromhout, P. Guenel, A.C. Fletcher, M. Gerin, D.C. Glass et al. (1993). Job exposure matrices in industry. International Journal of Epidemiology. 22:S10-5.
- I. Guseva Canu, E.D. Ellis , M. Tirmarche (2008). Cancer risk in nuclear workers occupationally exposed to uranium-emphasis on internal exposure. Health Phys. 94:1-17.
- I. Guseva Canu, A. Rogel, E. Samson, S. Benhamou, A. Laplanche, M. Tirmarche (2008). Cancer mortality risk among biology research workers in France: first results of two retrospective cohorts studies. Int. Arch. Occup. Environ. Health. 81:777-85.
- I. Guseva Canu, G. Molina, M. Goldberg, P. Collomb, J.C. David, P. Perez et al. (2008). Development of a job exposure matrix for the epidemiological follow-up of workers in the French nuclear industry. Results of a pilot study. Rev. Epidem. Santé. Publ. 56:21-29.
- I. Guseva Canu, F. Paquet, M. Goldberg, B. Auriol, P. Bérard, P. Collomb et al. Comparative assessing for radiological, chemical, and physical exposures at the French uranium conversion plant: Is uranium the only stressor? Int. J. Hygiene. Environ. Health. (in press).
- S. Hoar (1983). Job exposure matrix methodology. Journal of Toxicology Clinical Toxicology. 21:9-26.
- ICRP (1994). Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP; Ann. ICRP. Vol. 26, No. 1. Oxford: Pergamon Press 1994.
- J.R. Landis, G.G. Koch (1977). The measurement of observer agreement for categorical data. Biometrics. 33:159-174.
- J.M. Last (1995). A dictionary of epidemiology. Oxford: Oxford University Press.
- Rapport Areva (2005). Procédure d'identification des dangers de l'évaluation et de la maîtrise des risques pour la santé et la sécurité au travail. Service Sécurité du travail et Radioprotection Areva NC établissement de Pierrelatte. Rapport Q03112AB.
- C. Rice, E.F. Heineman (2003). An asbestos job exposure matrix to characterize fiber type, length, and relative exposure intensity. Appl. Occup. Environ. Hyg. 18:506-12.
- B. Ritz, Y. Zhao, A. Krishnadasan, N. Kennedy, H. Morgenstern (2006). Estimated effects of hydrazine exposure on cancer incidence and mortality in aerospace workers. Epidemiology. 17:154-61.
- A. Rogel, N. Carre, E. Amoros, M. Bonnet-Belfais, M. Goldberg, E. Imbernon et al. (2005). Mortality of workers exposed to ionizing radiation at the French National Electricity Company. Am. J. Ind. Med. 47:72-82.
- A. Seidler, H. Heiskel, R. Bickeboller, G. Elsner (1998). Association between diesel exposure at work and prostate cancer. Scand. J. Work. Environ. Health. 24:486-94.
- M. Telle-Lamberton, D. Bergot, M. Gagneau, E. Samson, J.M. Giraud, M.O. Neron et al. (2004). Cancer mortality among French Atomic Energy Commission workers. Am. J. Ind. Med. 45:34-44.
- M. Telle-Lamberton, E. Samson, S. Caer, D. Bergot, D. Bard, F. Bermann et al. (2007). External radiation exposure and mortality in a cohort of French nuclear workers. Occup. Environ. Med. 64:694-700.

3.6

DÉVELOPPEMENT D'UN FANTÔME INSTRUMENTÉpour la mesure de la dose efficace au poste de travail

Carmen VILLAGRASA, Julien DARRÉON, Isabelle CLAIRAND

Laboratoire de dosimétrie des rayonnements ionisants François QUÉINNEC Service de dosimétrie externe Le risque radiologique est évalué à l'aide de la dose efficace E, grandeur utilisée en radioprotection en particulier pour définir les limites maximales d'exposition individuelle. Sa détermination passe par la connaissance de la dose reçue aux organes, il n'est donc en principe pas possible de mesurer la dose efficace directement aux postes de travail. Des grandeurs mesurables, comme l'équivalent de dose individuel $H_p(10)$, ont ainsi été définies dans le rapport 51 de l'Icru (commission internationale des unités et mesures de rayonnements), avec comme objectif d'être de bons estimateurs de la dose efficace.

C'est cette grandeur qui est mesurée au poste de travail à l'aide des dosimètres portés à la poitrine. Or, l'équivalent de dose individuel ayant été défini pour des conditions d'exposition « standard », généralement simplifiées, et étant donné la réponse imparfaite des dosimètres, peut, dans certaines situations et selon le cas, surestimer ou sous-estimer significativement la dose efficace et donc le risque radiologique encouru par le travailleur. Disposer d'un instrument de mesure évaluant directement E permettrait d'évaluer ces écarts.

La solution retenue par le Laboratoire de dosimétrie des rayonnements ionisants de l'IRSN a consisté à élaborer un mannequin physique anthropomorphe, équipé de détecteurs pour mesurer les doses absorbées aux organes. Un tel instrument permettra d'accéder directement à la dose efficace E et de s'assurer in fine que les dosimètres

individuels sont adaptés aux expositions rencontrées par les travailleurs exposés.

Une étude de faisabilité numérique pour des champs d'irradiation photoniques $^{(1)}$ a permis de démontrer l'intérêt d'un tel instrument à partir de calculs de dose efficace et d'équivalent de dose individuel $H_p(10)$ pour différents types d'irradiation (standards et réalistes d'un poste de travail). 24 positions de détection à l'intérieur du fantôme ont ainsi été définies, permettant d'évaluer la dose efficace à moins de 30 % près pour des photons incidents d'énergie comprise entre 40 keV et 4 MeV.

La réalisation physique du fantôme anthropomorphe fait partie d'un nouveau travail de thèse débuté en novembre 2006. La première phase a porté sur la mise au point des détecteurs à intégrer dans le mannequin. Ces détecteurs doivent répondre à des exigences spécifiques : petite taille (quelques cm³), seuil de détection en débit de dose très bas (de l'ordre de 1 µSv.h-1), linéarité de la réponse en énergie (de 40 keV à 4 MeV) et possibilité d'une lecture immédiate. Le choix s'est porté sur des capteurs à fibre optique, qui permettent une lecture déportée presque instantanée. En collaboration avec le laboratoire de physique corpusculaire de Caen (CNRS - IN2P3), un prototype de détecteur a été développé (figure 1). Le détecteur est constitué d'un scintillateur plastique de 6 cm³ émettant une lumière visible proportionnelle à la dose reçue. Ces photons sont transmis à travers un toron de fibres optiques jusqu'à un tube photomultiplicateur, qui les transforme en

(1) Thèse de C. Furstoss, 2003-2006.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

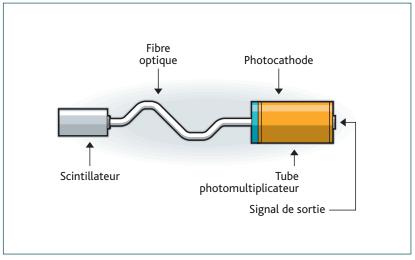


Figure 1 Schéma du prototype de système dosimétrique intégré au mannequin permettant la détermination de la dose efficace au poste de travail.

signal électrique. Un programme a été développé sous LabWindows-CVI pour la gestion du système de détection, l'enregistrement et l'analyse des données.

Un prototype a été caractérisé. La limite de détection permet une mesure de débit de dose de l'ordre de 1 µSv.h-1. La réponse du détecteur est stable avec une reproductibilité de l'ordre de 5 %, moyennant une mesure du bruit de fond préalable à chaque mesure. Une sous-réponse du détecteur pour des photons de faible énergie (inférieure à

100 keV) ayant été observée, une caractérisation sous conditions métrologiques est prévue. Des facteurs de correction selon l'énergie des photons incidents seront alors définis pour rendre la réponse du scintillateur équivalente à celle du tissu humain.

La seconde phase de ce projet, qui portera sur la construction complète du mannequin équipé de dosimètres et sur la réalisation de tests en conditions réelles, devrait être achevée fin 2009.

3.7

LES NOUVEAUX DOSIMÈTRES INDIVIDUELS pour le suivi des travailleurs

Patrice FRABOULET

Laboratoire de surveillance dosimétrique

■ La réglementation française rend obligatoire la mise en place d'une surveillance dosimétrique pour les travailleurs exposés aux rayonnements ionisants. La dosimétrie externe consiste à évaluer les doses reçues par des personnes ayant séjourné dans un champ de rayonnement (rayons X, gamma, bêta, neutrons) produit par une source radioactive extérieure. Cela peut se faire par le port d'un dosimètre individuel, qui permet de connaître la dose reçue par le corps entier ou par une partie du corps, soit en temps réel, au moyen d'instruments électroniques (on parle de dosimétrie active ou opérationnelle), soit en différé, après lecture du dosimètre dans un laboratoire spécialement équipé à cet effet, comme celui dont dispose l'IRSN. On parle alors de dosimétrie passive. Dans tous les cas, le dosimètre doit être adapté aux types de rayonnements auxquels sont exposés les person-

L'IRSN assure ainsi le suivi dosimétrique de près de 151 000 travailleurs en France, répartis chez 17 000 clients environ, tous secteurs confondus : hôpitaux, cliniques, laboratoires de recherche, établissements industriels... Le laboratoire de surveillance dosimétrique de l'IRSN fournit et exploite près de 1 500 000 dosimètres passifs par an pour assurer cette mission.

Un nouveau dosimètre RPL

Après de nombreuses années d'exploitation de la dosimétrie par film argentique et pour répondre à de nouvelles exigences techniques et réglementaires, l'IRSN a lancé en 2006 un projet visant au remplacement du film par un dosimètre plus performant. Le

choix s'est porté sur la technologie du dosimètre radio-photoluminescent (RPL), sur la base de l'étude technique menée par l'IRSN pour élaborer un cahier des charges et des propositions des plus grands fournisseurs mondiaux. Les principales raisons ayant guidé le choix de l'Institut sont les très bonnes performances métrologiques de la technique RPL, ainsi que l'éventail important des fonctionnalités du dosimètre proposé : possibilité de relecture, « image » de la dose, obtention d'informations précises sur la nature du rayonnement.

Des tests comparatifs des différentes techniques de dosimétrie disponibles ont été réalisés. Le dosimètre basé sur la technique RPL (figure 1) s'est montré le plus performant pour l'ensemble des critères définis dans les normes, à savoir la précision de la mesure, la reproductibilité des résultats ainsi que la réponse angulaire, la réponse en énergie et en dose (tableau 1).

Le dosimètre RPL présente des caractéristiques métrologiques certaines. Ainsi, il permet de mesurer des doses très faibles, de l'ordre de quelques micro sievert (µSv), ou très élevées (10 Sv et plus), qui font que ce dosimètre peut convenir tout aussi bien au suivi dosimétrique individuel qu'à celui d'ambiance d'une zone de travail ou dans l'environnement, ceci en situation normale d'exposition comme en cas d'accident. Par ailleurs, la technologie RPL offre une grande précision de mesure quel que soit l'angle du rayonnement incident, caractéristique indispensable pour prendre correctement en compte les différentes situations géométriques dans lesquelles peuvent se trou-

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

	Film	TLD (thermo- luminescence)	OSL (luminescence stimulée optiquement)	RPL (radio-photo- luminescence)
Gamme en énergies détectées	•••	••••	••••	••••
Limite de détection	•••	••••	••••	••••
Réponse angulaire	••••	••••	•••	••••
Relecture	•••	• • • (Thermogramme)	••••	••••
Image de la dose	••••	•	••	••••
Info faible énergie X et Y	•••	•••	•••	••••
Info énergie β	•	•	•	•••

^{*} Résultats de tests réalisés sur les dosimètres passifs disponibles en France.

Tableau 1 Comparaison des différents dosimètres*.

ver les sources de rayonnement par rapport aux porteurs de dosimètres. La possibilité de réaliser une véritable image numérisée de la dose permet d'obtenir des informations sur les conditions d'exposition du travailleur, notamment savoir si l'exposition est unique ou répétée, mettre en évidence une contamination externe par des éléments radioactifs ou encore des objets (pièce métallique...) pouvant être placés devant le dosimètre et fausser ainsi la mesure. Des informations sur la nature et l'énergie du rayonnement peuvent en outre être obtenues par une analyse spécifique du détecteur en cas d'exposition avérée. Toutes ces informations peuvent être relues autant de fois que nécessaire.

La production et l'exploitation de ce nouveau dosimètre ont nécessité la mise en place d'un nouveau laboratoire. Implanté au Vésinet, il compte plus de 50 personnes et dispose d'une chaîne de production bénéficiant d'un niveau élevé d'automatisation. Le nouveau dosimètre RPL de l'IRSN, déjà fourni à des millions d'exemplaires au Japon, devrait représenter un outil de choix à la disposition des acteurs de radioprotection.

La dosimétrie des neutrons

Chaque année en Europe, plusieurs dizaines de milliers de travailleurs sont exposés à un rayonnement neutronique, souvent combiné à un rayonnement gamma. Ils interviennent dans l'industrie nucléaire (centrales, fabrication, transport et retraitement du combustible), les applications militaires du nucléaire mais aussi dans la recherche, certaines activités de radiothérapie ou l'usage industriel de certaines sources radioactives.

La surveillance de l'exposition aux neutrons est techniquement difficile en raison de la spécificité des neutrons. En effet, ces particules sont neutres et ont une gamme d'énergie très étendue ; de plus, les effets biologiques qu'ils produisent dépendent de cette énergie.

Ainsi, l'amélioration des techniques de métrologie et de dosimétrie des neutrons utilisées pour assurer la radioprotection des travailleurs constitue toujours un enjeu important, tant en France qu'au plan international. De plus, l'abaissement des seuils de détection fixés par la réglementation a rendu nécessaire la mise en place d'une nouvelle génération de dosimètres neutrons.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

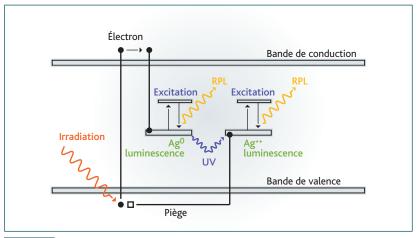


Figure 1 La luminescence qualifie tous les processus physiques émettant de la lumière de façon spontanée ou après une stimulation. Dans le cas du dosimètre la radio-photoluminescence est induite par un verre dopé à l'argent. Le rayonnement ionisant (β, γ ou X) arrache des électrons à la structure du détecteur en verre. Ces électrons sont piégés par les impuretés contenues dans le verre (ions argent). Placés sous un faisceau ultraviolet, les électrons

piégés se désexcitent en émettant une luminescence orange. L'intensité de cette luminescence est proportionnelle à la dose reçue.

Le dosimètre passif neutron de l'IRSN est fondé sur un détecteur de traces (type PN3). L'année 2008 a vu l'achèvement des travaux menés par l'Institut pour améliorer les performances de ce type de dosimètre. Ces études ont abouti à la conception d'un nouveau modèle, le « PN3+ » pour la détection des neutrons thermiques, intermédiaires et rapides, grâce à l'adjonction de filtres convertisseurs de lithium 6 et d'écrans en cadmium (figure 2).

Le résultat proposé est un dosimètre plus sensible, doté de fonctions d'expertise et bien adapté aux spectres neutroniques rencontrés habituellement dans l'industrie nucléaire ou dans le secteur médical. Tout comme le RPL, des images des traces observées à la surface du détecteur peuvent être obtenues. Elles peuvent ainsi fournir des informations sur le spectre du rayonnement neutronique incident et, dans certains cas, des indications sur l'angle d'incidence de ce rayonnement.

Le nouveau dosimètre neutron PN3+ proposé par l'IRSN intègre des fonctions innovantes qui améliorent de façon significative les performances atteintes habituellement avec cette technique de détection. Le PN3+ présente des qualités métrologiques qui répondent aux exigences de la réglementation et offre des possibilités d'expertise sur les conditions d'exposition des travailleurs. Ce nouveau dosimètre sera mis en service à partir de janvier 2009.



Le PN3+ de l'IRSN, un dosimètre plus sensible, doté de fonctions d'expertise et adapté aux spectres neutroniques rencontrés habituellement dans l'industrie nucléaire ou le secteur médical.

LES FAITS MARQUANTS

en quelques dates



SOUTENANCES DE THÈSES

27 mars 2008

■ Odile CARVAHLO a soutenu sa thèse sur l'« Exploitation des concepts de l'optique physique et des méthodes de traitement de l'image pour l'étude du syndrome cutané d'irradiation aiguë : corrélation avec les résultats des analyses biologiques et biophysiques », à l'université Paris XII.

16 mai 2008

Moubarak MOUISEDINE a soutenu sa thèse sur l'« Utilisation des cellules souches mésenchymateuses (CSM) humaines dans le traitement des atteintes tissulaires radio-induites », à Paris.

16 juin 2008

■ Céline BOURGIER a soutenu sa thèse sur l'« Étude des mécanismes impliqués dans la différenciation fibrogénique radio-induite et thérapeutiques anti-fibrosantes », à Villejuif (Val-de-Marne).

29 septembre 2008

■ Irina CANU a soutenu sa thèse sur l'« Étude épidémiologique des travailleurs exposés au risque d'incorporation d'uranium », à l'université Paris VI.

13 octobre 2008

■ Stéphanie LAMART a soutenu sa thèse sur l'« Étude de l'influence de la biocinétique des radionucléides sur la mesure anthropora-

diamétrique à l'aide de fantômes numériques voxélisés », à Saclay (Essonne).

15 octobre 2008

■ Blandine VACQUIER a soutenu sa thèse sur l'« Analyse de la mortalité dans la cohorte française des mineurs d'uranium », à l'hôpital Paul Brousse (Villejuif).

AUTRES FAITS MARQUANTS

Janvier 2008

Organisation de l'Annual Meeting AM2008 EURADOS à Paris incluant la Winter School « Retrospective dosimetry » et le Workshop « Dosimetric issues in the medical use of ionising radiation ».

Février 2008

■ Publication du 2e rapport d'expertise sur l'accident de radiochirurgie stéréotaxique au centre hospitalier universitaire de Toulouse : « Évaluation dosimétrique et clinique, analyse de risque ». Ce rapport a été remis à l'Autorité de sûreté nucléaire.

Avril 2008

■ Publication d'un rapport faisant une revue critique sur les études épidémiologiques des leucémies autour des installations nucléaires chez l'enfant et le jeune adulte.

Juin 2008

■ Le prix Laurent EXMELIN 2008 décerné à une thèse de l'IRSN: le prix scientifique Laurent EXMELIN a été remis le 20 juin 2008 à Noëlle Pierrat, pour ses travaux de thèse réalisés au sein du Laboratoire d'évaluation de la dose interne (LEDI) de l'IRSN, thèse intitulée « Application des fantômes numériques voxélisés associés au code Monte Carlo MCNP à la mesure *in vivo* réaliste des actinides dans les poumons et les plaies contaminées ». Ce prix récompense tous les ans une personnalité ayant apporté une contribution scientifique importante en radiotoxicologie.

Octobre 2008

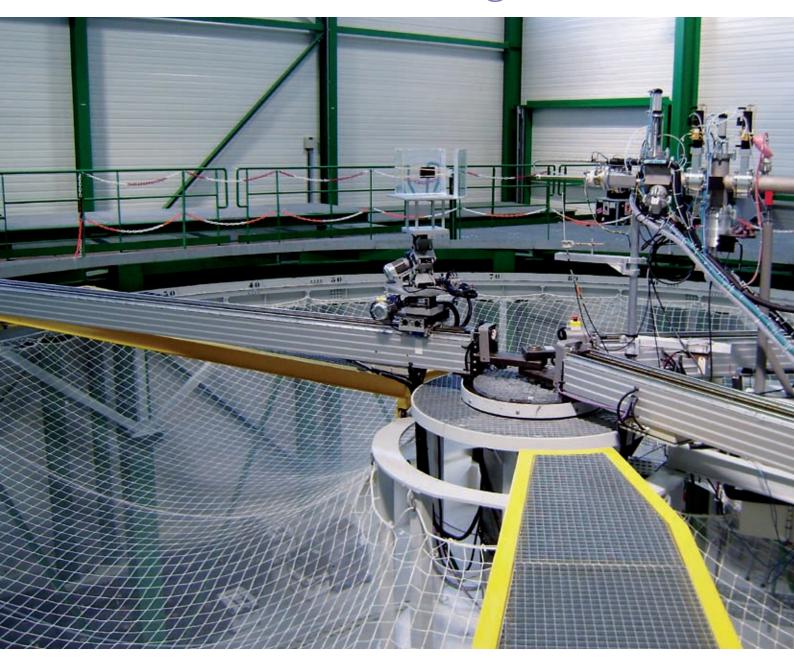
■ Mise en place d'un projet de recherche sur cinq ans entre le SDI et le FMBC de Moscou (anciennement IBPh), dont le propos général est l'amélioration de la méthodologie de gestion des blessures après contamination par le plutonium ou américium, et l'évaluation de la dose associée. Les objectifs principaux sont : la

mesure des plaies contaminées, la biocinétique et le traitement par le DTPA.

Décembre 2008

Dépôt d'un brevet sur l'utilisation d'une nano-émulsion à base de calixarènes pour la décontamination cutanée (peau saine et plaies) des actinides.

La simulation, les outils de calcul et la métrologie





4	LA SIMULATION, les outils de calcul et la métrologie					
4.1	ÉTUDE DU FLUAGE DES BÉTONS EN TRACTION : application aux enceintes de confinement des centrales nucléaires à eau sous pression	89				
4.2	DÉFAILLANCE DU FOND D'UNE CUVE REP EN SITUATION ACCIDENTELLE GRAVE et programme de recherche sur la déchirure des matériaux des cuves françaises	98				
4.3	L'EPS DE NIVEAU 2 POUR LES RÉACTEURS REP DE 900 MWE : du développement aux enseignements de l'étude 2	06				
4.4	estimation site-spécifique de l'aléa sismique					
	flashinfoflashinfoflashinfoflash					
4.5	LES DÉVELOPPEMENTS RÉCENTS du logiciel MELODIE	26				
4.6	CONTRIBUTION DE L'IRSN AU PROJET EUROPÉEN NF-PRO relatif au stockage en profondeur de déchets radioactifs 2	27				
4.7	SÛRETÉ DES STOCKAGES DE DÉCHETS RADIOACTIFS EN FORMATION GÉOLOGIQUE : l'IRSN agrandit sa station expérimentale de Tournemire et met en place un nouveau programme de recherche 2					
4.8	LA MÉTROLOGIE des neutrons 2	31				
	flashinfoflashinfoflashinfoflash	_				
4.9	IMPACT ENVIRONNEMENTAL ET SANITAIRE DES REJETS D'EFFLUENTS CHIMIQUES : utilisation du code de calcul CALIES 2	42				
4.10	LA QUESTION du radon martien 2	43				
4.11	LES FAIT MARQUANTS en quelques dates2	<u>-</u> 45				

LA SIMULATION, les outils de calcul et la métrologie

Martial JOREL
Direction de la sûreté des réacteurs

a performance actuelle du parc nucléaire en exploitation en France et le niveau de sûreté auquel il est parvenu peuvent être considérés comme très satisfaisants. Pour autant, leur maintien et *a fortiori* leur amélioration ne sauraient être garantis si une vigilance permanente n'était assurée et si l'effort de recherche n'était lui-même soutenu pour réduire les incertitudes persistantes et mieux appréhender les phénomènes en cause dans la genèse des accidents.

Les programmes de recherche développés dans ce contexte sont le plus souvent coûteux, voire très coûteux, mais c'est l'effort à consentir pour relever les défis que ne manque pas en permanence d'opposer l'énergie nucléaire, du fait du vieillissement des installations, de nouvelles formes de gestion des combustibles et de l'apparition à moyen terme de nouvelles générations de réacteurs.

Tel est l'enjeu de la recherche si l'on souhaite réduire, voire « pratiquement éliminer » l'occurrence des accidents graves ou, tout au moins, en limiter l'impact sur l'environnement, les hommes et leurs biens.

L'objectif est certes ambitieux mais vital. Et, dans ce contexte, il ne s'agit pas tant d'envisager ou de recommander l'adjonction en cascade de systèmes supplémentaires de protection que de développer une approche probabiliste de l'incident ou de l'accident, dès les premières phases de la conception d'un réacteur.

Pour être relevés et être crédibles, ces défis technologiques, sociaux et réglementaires devront en effet prendre en compte :

- l'apparition de nouvelles exigences d'exploitation (allongement de la durée de vie des tranches) et écologiques (gestion optimale des ressources, réduction des déchets, aussi par le recyclage du combustible usé);
- les contraintes externes (conditions climatiques extrêmes, actes de malveillance) aujourd'hui insuffisamment considérées ;
- l'opinion et l'acceptation du public ;
- le maintien des compétences des différents acteurs du nucléaire, en premier lieu chez les exploitants mais également au niveau des autorités et des experts;
- la formation et la nécessité d'attirer de jeunes talents, afin de garantir le transfert des connaissances et des savoir-faire entre les générations.

À cela, il faut ajouter le besoin de préparer le futur afin de permettre la progressive mise sur le marché de technologies novatrices et innovantes, comme les réacteurs de quatrième génération GEN-IV.

La recherche en sûreté reste donc essentielle à l'exploitation pacifique de l'énergie nucléaire et lui demeure indissociable, consubstantielle, tout particulièrement dans sa composante d'anticipation, qui comporte le développement et la mise en service de nouveaux schémas de calcul plus robustes, accessibles, performants, puissants et de plus en plus multiphysiques. Ces logiciels devront s'appuyer sur des bases de données expérimentales riches et adaptées pour la mise au point de leurs modèles et leur qualification. D'où le besoin impérieux de conserver les outils de simulation nécessaires,



en mutualisant les frais et les connaissances dans le cadre de collaborations internationales élargies et structurées.

Les articles de fond de ce chapitre 4, dans leurs grandes différences et variété de thèmes – du fait même de leurs différences et de leur variété – concourent tous à maintenir et, si possible, améliorer le niveau élevé de sûreté des réacteurs en exploitation, tout en préparant le futur sans heurt et dans la continuité. Ceci pourra se faire en tirant profit de la synergie entre les besoins de l'expertise et une recherche maîtrisée, bien orientée et ciblée.

Mentionnons tout d'abord l'article 3 L'EPS de niveau 2 pour les réacteurs REP de 900 MWe : du développement aux enseignements de l'étude, de E. Raimond et N. Rahni qui, après un rappel très lisible de la phénoménologie des accidents graves, énonce les objectifs et la méthode des études probabilistes de sûreté, EPS, en les classant en niveaux 1, 2 et 3 en fonction de la progression de l'accident. Il se focalise ensuite sur les séquences qui, de la fusion du cœur du réacteur, conduisent à la dispersion de produits contaminés (EPS2). Il présente enfin l'application de ces mêmes EPS2 aux études du palier des réacteurs 900 MWe français. Il est important de noter que l'IRSN possède une maîtrise de ces techniques connue et reconnue à l'international : c'est pour cela que, dans le cadre du 7e PCRD européen, il a été demandé à E. Raimond d'assurer la coordination du projet ASAMPSA-II, qui se propose d'harmoniser les pratiques EPS2 des industriels et des organisations de sûreté.

En complément et corollaire de l'article précédent, Vincent Koundy, dans la Défaillance du fond d'une cuve REP en situation accidentelle grave et programme de recherche sur la déchirure des matériaux des cuves françaises, ajoute la description phénoménologique précise et la présentation ponctuelle des besoins de recherche relatifs à certaines séquences étudiées avec les EPS2, en mettant en relation la production de matériel fondu pendant un accident grave (corium) avec le risque de rupture à haute température du fond de cuve et l'épanchement de ce corium vers l'enceinte de confinement.

Parmi les problématiques les plus importantes de l'expertise de sûreté figurent aussi les agressions (internes et externes), entre autres le séisme, d'où l'importance d'en déterminer les valeurs de référence à retenir dans les études de dimensionnement. Ce sujet est traité avec exhaustivité dans l'article de Luis Fabián Bonilla Effets de la géologie locale sur les mouvements sismiques : estimation de l'aléa sismique pour un site donné, qui expose comment les propriétés géotechniques du sol peuvent influencer l'amplification des mouvements sismiques, et quelles en sont les conséquences pour l'analyse de sûreté.

Le béton armé et précontraint est couramment utilisé pour la construction des différentes structures des installations nucléaires. Dans le cas des enceintes de confinement des bâtiments réacteurs. il remplit non seulement un rôle structurel mais aussi de confinement visant à la protection de l'environnement. Pour garantir l'étanchéité nécessaire en cas d'accident d'origine nucléaire, la paroi interne en béton des enceintes de confinement est bi-axialement précontrainte. L'article de Nanthilde Reviron, Étude du fluage des bétons en traction : application aux enceintes de confinement des centrales nucléaires à eau sous pression, se propose justement d'investiguer le comportement de ce matériau sous traction afin d'en tirer les enseignements utiles pour l'expertise.

Dans le domaine de La métrologie des neutrons, l'article exhaustif de Vincent Gressier analyse le processus permettant d'assurer l'exactitude des mesures de dosimétrie neutronique, dont la qualité requise peut être spécifiée dans des normes internationales servant de référence pour l'évaluation de la conformité d'un produit, d'un processus, d'un système, d'une personne ou d'un organisme. L'important progrès scientifique des dernières décennies se traduit par la naissance d'une multitude de technologies et de produits novateurs. L'importance de la métrologie est dès lors primordiale, garantissant par des mesures de plus en plus précises et reliées au Système international d'unités la qualité des nouveaux produits et services offerts.

Le développement de produits novateurs dans le domaine de la métrologie est également illustré dans l'article L'IRSN et le Cnes à la recherche de radon sur Mars, de Jean-Christophe Sabroux. Ce dernier, dans une thèse menée en collaboration avec le Cnes, a développé une méthode permettant de mettre en évidence les gaz radioactifs sur Mars. Le dimensionnement d'un appareil dédié à la mesure du radon sur la planète rouge, candidat bien placé à l'embarquement sur une sonde martienne, montre que les compétences acquises en outils de calcul et métrologie par l'Institut dans ses principaux champs traditionnels d'intervention lui permettent d'intervenir avec succès sur des sujets « exotiques ».

Enfin, pour compléter ce chapitre riche et varié, trois contributions courtes faisant toutes référence aux problématiques de sûreté inhérentes au stockage des matériaux irradiés, à savoir : Les développements récents du logiciel MELODIE, de Marc Bourgeois, qui relate les capacités du code dont l'IRSN s'est doté afin de pouvoir effectuer des simulations dans le domaine des stockages de surface, notamment pour l'export ; Contribution de l'IRSN au projet européen NF-PRO relatif au stockage en profondeur de déchets radioactifs, de Grégory Mathieu, qui résume les études effectuées dans le but de maîtriser le comportement d'un stockage géologique après sa fermeture ; et enfin, Sûreté des stockages de déchets radioactifs en formation géologique : l'IRSN agrandit sa station expérimentale de Tournemire et met en place un nouveau programme de recherche de Justo Cabrera, qui fournit le nécessaire support expérimental à ces études.

Variété de sujets, variété de thèmes, mais un objectif commun pour ces études et recherches : fournir à l'expertise le nécessaire et indispensable support pour son exhaustivité et son indépendance.

ÉTUDE DU FLUAGE DES BÉTONS EN TRACTION :

application aux enceintes de confinement des centrales nucléaires à eau sous pression

Nanthilde REVIRON, Georges NAHASBureau d'analyse du génie civil et des structures

Le béton, armé et précontraint, est un matériau couramment utilisé pour la construction de nombreuses structures des installations nucléaires. Dans le cas des enceintes de confinement des réacteurs, le béton armé précontraint remplit non seulement un rôle structurel mais aussi un rôle de confinement, pour la protection de l'environnement. Le travail de recherche mené dans le cadre de l'étude rapportée ici a pour objectif d'évaluer l'effet du fluage en traction du béton, d'une part, sur l'apparition de fissures pendant les épreuves décennales, d'autre part, sur la création d'une microfissuration du béton qui réduit sa capacité de confinement et sa durée de vie.

Conception des enceintes de confinement des centrales nucléaires françaises

Dans les centrales nucléaires françaises de type REP (réacteur à eau pressurisée) avec enceinte de confinement à double paroi, la paroi en béton précontraint est dimensionnée pour résister à une augmentation de pression interne en situation accidentelle – de l'ordre de 0,5 MPa en pression absolue, pour un accident de perte de réfrigérant primaire (figure 1).

EDF, exploitant des centrales électronucléaires REP actuellement en service en France, doit justifier de la capacité de leurs enceintes de confinement à assurer, en cas d'accident, un taux de fuite qui soit inférieur à 1,5 %/24 h de la masse totale de gaz (mélange air + vapeur) contenue dans l'enceinte. Pour vérifier que l'enceinte est en capacité de remplir sa fonction de confinement en cas d'accident, chaque enceinte subit périodiquement (avant la mise en exploitation de la centrale, puis tous les dix ans), un test en grandeur nature en air sec à température ambiante à sa pression de dimensionnement : c'est « l'épreuve de l'enceinte ».

Durant ces épreuves d'une durée de quelques jours — cela inclut la montée en pression par palier et le retour à la pression « normale » —, l'enceinte subit des sollicitations au cours desquelles des contraintes de traction peuvent apparaître dans des zones singulières (tampon d'accès des matériels, sas personnel...).

De plus, à très long terme (au-delà de la durée de vie prévue de l'ouvrage), de telles contraintes de traction pourraient également apparaître en zone courante de l'enceinte si les déformations différées (retrait et fluage) ont été sous-estimées lors du dimensionnement de la structure [Benboudjema, 2002]. Des déformations de fluage par traction peuvent apparaître dans ces conditions, avec apparition de fissures et/ou contribuer au développement de fissures préexistantes.

Le fluage du béton constitue un des points essentiels du comportement mécanique du béton. Les essais correspondants sont longs et les résultats obtenus sont fortement influencés par l'âge du béton au moment du chargement, le niveau de contrainte appliqué et les conditions d'environnement de l'essai (température, hygrométrie...).

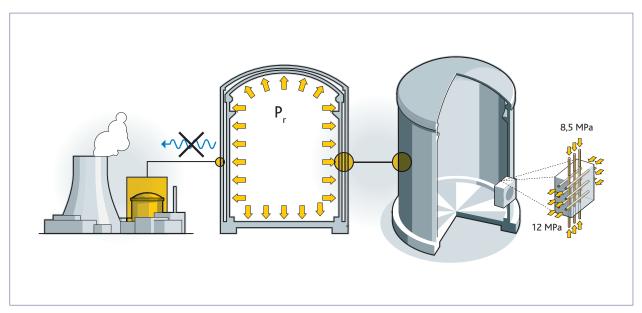


Figure 1 Enceinte de confinement : prédiction du comportement différé [Granger, 1996].

Alors que le fluage du béton en compression, en flexion ou en traction indirecte au jeune âge (dispositif de retrait empêché) a été considérablement étudié [Omar, 2004 ; Granger, 1996 ; Kovler, 1994], ce n'est pas le cas du fluage en traction directe de bétons durcis, qui est bien moins connu [Berthollet, 2003 ; Brooks et Neville, 1977 ; Morin et Maso, 1982]. En particulier, le domaine où la complaisance de fluage en traction directe est indépendante de la contrainte appliquée a été très peu étudié, de même que le risque de rupture du béton en cours de chargement.

Le fluage du béton en traction au jeune âge a été plus souvent étudié [Kovler et al., 1999]. En effet, lorsque la déformation du béton (retrait endogène, déformation thermique) est gênée ou empêchée, le développement de contraintes de traction peut conduire à une fissuration. Néanmoins, de nombreux phénomènes complexes entrent en jeu (notamment les évolutions de la réaction d'hydratation et de la température), ce qui complique l'interprétation des courbes de fluage ou de relaxation.

Pour ce qui concerne les bétons hydratés, il n'est pas tenu compte en général, lors du calcul de structures, du comportement du béton en traction. En effet, dans les structures en béton armé, les sollicitations de traction sont équilibrées par les armatures. De plus, la réalisation des dispositifs expérimentaux adaptés est délicate. Aussi, très peu de données sont disponibles à ce jour.

Malgré le nombre important d'études réalisées sur le phénomène de fluage, les mécanismes mis en jeu ne sont pas encore parfaitement connus.

Démarche scientifique suivie

Afin de répondre aux demandes d'expertise en sûreté, le comportement du béton soumis à des sollicitations mécaniques de traction uniaxiale doit être connu. Il est donc important de déterminer pour le matériau les différents couplages physiques et mécaniques entrant en jeu.

C'est pourquoi une importante étude expérimentale relative au fluage d'un béton hydraté, âgé de 90 jours au minimum et représentatif d'une paroi d'enceinte de confinement soumise à des efforts de traction, a été menée pour différents niveaux de contrainte.

Quatre types d'essais ont été réalisés en parallèle : mesures des déformations d'origine thermique, des déformations de retrait de dessiccation, des déformations de fluage propre et des déformations différées totales. Une étude expérimentale sur le séchage du matériau non sollicité mécaniquement a également eu lieu.

Les résultats obtenus seront comparés à ceux établis par EDF dans le cadre du travail de thèse de Laurent Granger [Granger, 1996] sur le fluage par compression d'un matériau de composition presque identique.

Campagne expérimentale de fluage en traction uniaxiale

Description des essais

Pour cette étude, deux bâtis ont été réalisés, de manière à pouvoir faire plusieurs essais en parallèle (*figure 2*). Ils permettent d'appli-





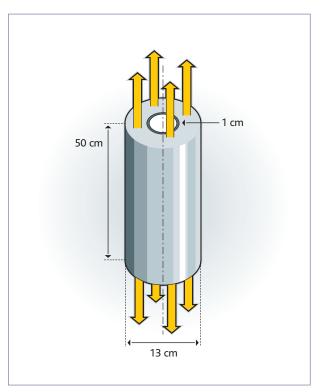


Figure 3 Schéma de l'éprouvette.

quer un effort de traction directe sur une éprouvette par l'intermédiaire d'un empilement de masses de poids unitaire de 13 kg. L'utilisation de masses permet d'assurer un chargement constant au cours de l'essai, quelles que soient la déformation du béton et les conditions environnementales, mais également de s'affranchir des contraintes associées à l'utilisation d'un asservissement hydraulique, notamment l'instabilité du système (charge appliquée moins constante dans le temps, émission de chaleur). L'éprouvette est fixée sur le bâti par l'intermédiaire de casques en aluminium vissés sur le bâti, d'une part, et collés sur l'éprouvette, d'autre part.

Les corps d'épreuve sont de forme cylindrique, d'un diamètre de 13 cm et d'une hauteur de 50 cm (*figure 3*). Dans le cadre d'un complément à l'étude (non présenté dans ce rapport), concernant la mesure de la perméabilité à l'air, ces corps d'épreuve cylindriques sont munis sur toute leur longueur d'un trou central (e.g. cylindrique) de diamètre 1 cm. La mesure de perméabilité permet notamment de quantifier l'évolution de la fissuration pendant l'essai. Le choix d'éprouvettes cylindriques permet de faciliter l'interprétation des résultats.

Pour tous ces essais, le béton a durci pendant au moins 90 jours et a été conservé dans des conditions endogènes (film alimentaire +

aluminium adhésif) dès le démoulage, dans une ambiance à 20 °C (\pm 1 °C) et 50 % (\pm 5 %) d'humidité relative.

Les expérimentations réalisées sur un matériau durci ne concernent que la phase pré-pic du comportement uniaxial du béton. Différents niveaux de chargement (50 %, 70 % et 90 % de la limite à la rupture en traction) ont été auscultés avant le pic d'effort. Les spécimens ont été chargés à ces différents niveaux pendant trois jours. Plusieurs séries d'essais ont été effectuées par niveau de chargement pour quantifier la dispersion. Les éprouvettes ont ensuite été « déchargées » totalement pendant 24 heures pour caractériser la recouvrance, puis elles ont été chargées jusqu'à la rupture par traction directe (sur le même bâti), afin d'évaluer les effets du fluage sur les propriétés mécaniques résiduelles.

Formulation choisie

Dans un but de représentativité des résultats, une formulation de béton donnée par EDF a été utilisée. Cependant, les caractéristiques rhéologiques d'un béton coulé en laboratoire (essai d'affaissement ou « slump », résistance, module de Young) sont différentes de celles d'un béton de chantier ; c'est pourquoi la formulation a dû être ajustée. Cette étape est très importante car aucun modèle ne permet de prédire avec exactitude les caractéristiques d'un béton

Ciment (Airvault) CEMII 42,5R	Sable	Granulats 5-12,5 mm	Granulats 12,5-20 mm	Eau	Plastiment HP	Slump	Air occlus
kg/m³	kg/m³	kg/m³	kg/m³	l/m³	0,35 %	cm	%
350	772	316	784	201	1,225	11	2,33

Rc	Rc	Rc	Fendage	Fendage	Module	Module
7 jours	28 jours	90 jours	28 jours	90 jours	28 jours	90 jours
MPa	MPa	MPa	MPa	MPa	GPa	GPa
39,34	46,5	49,35	3,29	3,42	31,34	33,81

Tableau 1 Formulation et résultats de caractérisation du béton (résistance à la compression, fendage, module de Young).



Figure 4 Mesure de la déformation a) différée totale ; b) de fluage propre ; c) d'origine thermique et de retrait de dessiccation.

en fonction de sa formulation. Il a donc fallu faire varier les paramètres les uns après les autres pour réussir à trouver une formulation dont les caractéristiques se rapprochent le plus possible des données rhéologiques et mécaniques fournies par EDF. La durée de cette phase expérimentale a été relativement longue. La formulation (à base de granulats secs) et les caractéristiques du béton utilisé sont présentées dans le *tableau 1*. [Granger, 1996] a travaillé avec

le même béton. Cependant, le ciment utilisé dans l'étude décrite ici est de composition légèrement différente (le ciment utilisé en 1996 ne se fabrique plus) ; de plus, le dosage en eau a été augmenté de six litres pour respecter l'affaissement au cône d'Abrahams (slump) et tenir compte de la variation de l'absorption des granulats actuels. Bien que les granulats proviennent toujours de la même carrière, l'absorption est passée de 1,3 % à 1,6 %.

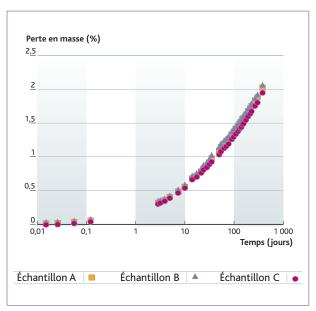


Figure 5 Évolution de la perte de masse en fonction du temps (béton âgé de 90 jours).

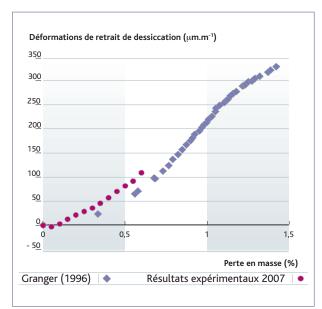


Figure 6 Évolution des déformations de retrait de dessiccation en fonction de la perte de masse.

Présentation des essais

Afin de disposer des données nécessaires à la caractérisation du comportement différé du béton en vue de sa modélisation, différents types d'essais ont été effectués pour apprécier l'influence des différents paramètres sur :

- les essais de caractérisation (éprouvettes de 16 cm de diamètre et de 32 cm de hauteur) : ces éprouvettes permettent de qualifier le niveau de chargement du fluage par traction directe. Les essais de traction par fendage (ou essais « brésiliens »), qui consistent à écraser un échantillon de béton entre les plateaux d'une presse, sont réalisés avant chaque campagne de fluage par traction ;
- la mesure de la perte de masse (éprouvettes de 13 cm de diamètre et de 10 cm de hauteur) : l'essai permet de déterminer la cinétique de séchage du béton (trois éprouvettes). Pour cet essai, les faces supérieures et inférieures sont protégées pour éviter leur dessiccation ;
- la mesure de la déformation différée totale (éprouvettes de 13 cm de diamètre et de 50 cm de hauteur) (figure 4a): les éprouvettes déballées au début de l'essai sont chargées en traction directe maintenue pendant trois jours. La recouvrance est également suivie pendant 24 heures ;
- la mesure de la déformation de fluage propre (éprouvettes de 13 cm de diamètre et de 50 cm de hauteur) (*figure 4b*) : les éprouvettes sont chargées en traction directe maintenue pendant trois jours, tout en restant protégées des échanges hydriques. La recouvrance est suivie pendant 24 heures ;
- la mesure des déformations d'origine thermique (éprouvettes de 16 cm de diamètre et de 100 cm de hauteur) (*figure 4c gauche*) :

l'essai permet de tenir compte de la part des déformations d'origine thermique inhérentes aux fluctuations de la température d'ambiance. L'éprouvette est conservée dans des conditions endogènes pendant l'essai. Une seule éprouvette est utilisée pour toute la campagne expérimentale ;

■ la mesure de la déformation de retrait de dessiccation (éprouvettes de 13 cm de diamètre et de 50 cm de hauteur) (figure 4c droite) : les éprouvettes sèchent dans les mêmes conditions que les éprouvettes de perte de masse et les éprouvettes de mesure des déformations différées totales. Trois essais sont effectués lors de la campagne expérimentale.

Instrumentation des essais

Les déplacements sont mesurés sur une base de mesure de 40 cm en zone centrale de l'éprouvette (les effets de bord sont éliminés), grâce à trois capteurs LVDT (*Linear Variable Differential Transformer*) fixés à 120 °C, permettant d'éliminer les mouvements de corps rigides sur le béton. Les inserts soutenant les barres des extensomètres ainsi que les casques d'aluminium sont collés avec une colle méthacrylate.

Exploitation des résultats

Perte de masse et retrait de dessiccation

La *figure 5* présente l'évolution de la perte de masse en fonction du temps dans les conditions des essais : 20 °C (\pm 1 °C) et 50 % (\pm 5 %) HR. La perte de masse est d'environ 0,39 % après

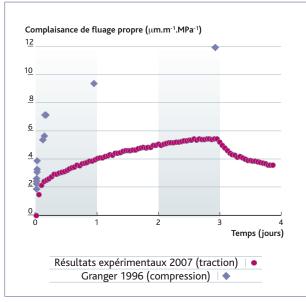


Figure 7 Évolution de la complaisance de fluage propre en fonction du temps, comparaison avec [Granger, 1996].

quatre jours (correspondant à la durée totale des essais de retrait et de fluage).

L'évolution du retrait en fonction de la perte de masse est présentée en *figure* 6. On observe une zone « dormante » au début des essais. En effet, la microfissuration de la surface des éprouvettes masque la déformation par la contraction liée au départ d'eau. Ensuite, une zone où le retrait de dessiccation est proportionnel à la perte de masse est observée. Ces observations sont conformes à celles obtenues par d'autres auteurs [Granger, 1996] pour différentes compositions de béton.

Fluage propre

La complaisance de fluage propre en traction correspond aux données brutes de l'essai, desquelles on déduit les déformations élastiques ainsi que les déformations d'origine thermique. L'évolution de la complaisance de fluage propre est comparée à celle obtenue en compression par [Granger, 1996] pour le même béton (*figure 7*). La courbe de complaisance de fluage propre en traction présentée est une moyenne de six essais. Nous n'avons pas observé d'influence du niveau de chargement sur la complaisance de fluage propre, ce qui confirme que les déformations sont bien proportionnelles à la contrainte appliquée.

Les valeurs des déformations sont environ cinq fois plus faibles que celles mesurées par Granger lors d'essais en compression (au bout de trois jours). Cette différence notable avec les essais de [Granger,

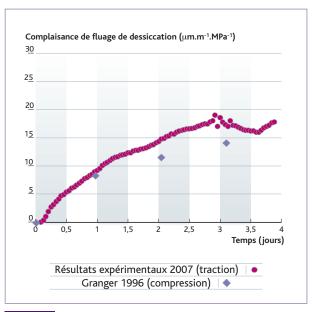


Figure 8 Évolution de la complaisance de fluage de dessiccation en fonction du temps, comparaison avec les valeurs de [Granger, 1996].

1996] peut s'expliquer par des différences concernant les matériaux utilisés ou par des mécanismes de fluage différents en compression et en traction. Il est à noter que [Brooks et Neville, 1977] ont mesuré pour un même béton une déformation de fluage propre en traction supérieure à celle en compression.

L'étude expérimentale du fluage propre en traction s'est révélée être assez difficile. D'une part, nous avons eu la rupture de deux éprouvettes d'essais : l'une, en zone utile au bout de quelques heures seulement, l'autre à l'interface avec la colle suite à un défaut de collage; les valeurs de déformation obtenues lors de ces essais n'ont pas été prises en compte pour le calcul de la complaisance de fluage. D'autre part, les valeurs relatives des déformations de fluage propre sont très faibles (du même ordre de grandeur que les déformations d'origine thermique).

Les résultats expérimentaux obtenus ne permettent pas de conclure sur le caractère réversible ou non de la déformation de fluage propre, la durée de « décharge » étant trop courte. Néanmoins, on constate qu'après un jour de « déchargement », environ 34 % de la déformation de fluage en traction s'avère réversible. Ce résultat est similaire à ce qui est observé lors d'essais en compression (voir notamment [Illston, 1965], qui a constaté qu'environ 30 % de la déformation de fluage propre était réversible). Par contre, ce résultat est en contradiction avec ceux de [Morin et Maso, 1982], qui ont observé un comportement totalement irréversible lors d'essais en traction.

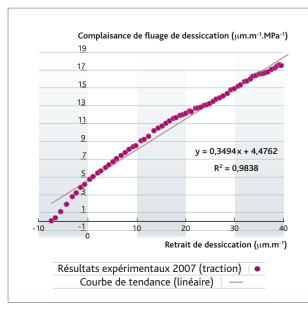


Figure 9 Complaisance de fluage de dessiccation en fonction du retrait de dessiccation.

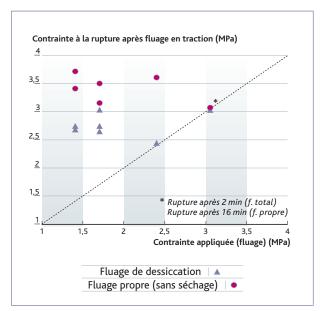


Figure 10 Contrainte à la rupture (après fluage) en fonction de la contrainte appliquée.

Fluage de dessiccation

Parallèlement aux essais de fluage propre, des essais avec mesure des déformations différées totales ont été réalisés. La complaisance de fluage de dessiccation est le résultat du traitement de tous les essais précédents. En effet, les déformations de fluage de dessiccation sont déterminées en soustrayant aux déformations différées totales les déformations élastiques, les déformations d'origine thermique, les déformations de retrait de dessiccation ainsi que de tous les essais de fluage propre (valeur moyenne de tous les essais correspondants). L'évolution de la complaisance de fluage de dessiccation en traction est reportée en *figure 8* (moyenne sur cinq essais). Comme pour le fluage propre, il n'apparaît pas d'influence du niveau de chargement sur la complaisance de fluage de dessiccation.

Les résultats obtenus par notre campagne expérimentale sont en concordance avec ceux réalisés en traction [Brooks et Neville, 1977], qui ont également observé une recouvrance d'environ 20 % à la décharge. De même que pour le fluage propre, ce résultat en traction est similaire à ce qui est observé en compression [Illston, 1965]. On note à la fin de la recouvrance une augmentation des déformations de fluage de dessiccation qui n'est pas explicable physiquement.

La *figure 9* montre que la complaisance de fluage de dessiccation en traction est proportionnelle au retrait de dessiccation (phénomène également observé en compression [Gamble et Parrott, 1978].

La partie négative au début de la courbe s'explique par la zone « dormante » observée en *figure 6*. Nous avons réalisé une décharge au bout de trois jours ; on voit que le fluage est partiellement réversible (environ 24 %).

Par ailleurs, une comparaison des résultats de cette campagne avec ceux obtenus par [Granger, 1996] en compression permet de constater que les résultats sont similaires.

Incidence du séchage et du fluage sur la résistance en traction (résiduelle)

Les évolutions de la contrainte de rupture (après fluage propre ou fluage de dessiccation en traction) en fonction de la contrainte appliquée sont reportées en *figure 10*.

On constate globalement que les éprouvettes de béton testées en condition séchante ont une contrainte de rupture (après déformation) plus faible que les éprouvettes chargées en conditions endogènes. La contrainte de rupture après les essais de fluage propre est en moyenne de 3,47 MPa, alors qu'elle est de 2,72 MPa environ pour les essais de fluage total. Au vu des résultats, il semble que la microfissuration en peau des éprouvettes est induite par le séchage différentiel. En effet, la contrainte à la rupture ne semble pas dépendre de la contrainte appliquée lors du fluage. Néanmoins, ce résultat reste à confirmer, notamment par la réalisation d'essais de traction directe sur des éprouvettes conservées en condition séchante pendant 4 jours (durée des essais) mais sans chargement mécanique.

La comparaison aux résultats de la « littérature technique » est délicate, car il existe peu de résultats concernant l'évolution des propriétés mécaniques d'un béton soumis à une traction après séchage (comparativement au cas de béton soumis à une compression).

Ainsi, [Hanson, 1968] a observé, lors d'un essai de traction par fendage, une légère augmentation (3 %) de la résistance. Lors d'un essai de flexion [Pihlajavaara, 1974; Kanna *et al.*, 1998], a été observée une diminution de la résistance jusqu'à une humidité relative de 70 % puis une augmentation progressive jusqu'à une humidité relative de 0 %. Pour les essais de traction directe d'éprouvettes conservées à 21 °C avec 55 % d'humidité relative, il semble que, lors d'une cure étanche, la résistance à la traction augmente tout d'abord du fait des effets de l'hydratation, puis décroît [Fouré, 1985; de Larrard et Bostvirronois, 1991], pour ensuite croître à nouveau [Fouré, 1985].

Il est à noter que [Morin et Maso, 1982] n'ont observé aucune modification de la résistance du béton après fluage en traction (chargement de fluage à 25 % et 50 % de la résistance à la traction).

Ces essais apportent de nouveaux résultats, utiles pour la modélisation du comportement des enceintes de confinement dans les zones où des contraintes de traction peuvent se développer.

■ Conclusion et perspectives

Les essais effectués ont permis de mieux comprendre le comportement d'un béton soumis à des sollicitations de fluage en traction et d'améliorer ainsi les connaissances sur le comportement des enceintes de confinement, qui peuvent subir ce type de chargement. L'étude est d'autant plus importante que le phénomène est mal connu et a été très peu étudié. En effet, la « littérature scientifique » présente principalement des travaux concernant le fluage en compression du béton. La comparaison effectuée ci-dessus entre les complaisances de fluage en traction et en compression trouve un débouché naturel dans la simulation numérique du fluage. L'objectif est de modéliser à la fois le fluage en compression et en traction avec une même loi rhéologique, en adaptant des modèles de fluage existants [Benboudjema, 2002; Granger, 1996] et de mettre ainsi au point un outil fiable de simulation numérique du comportement différé des ouvrages en béton armé précontraint jugés « sensibles » sur le plan de la sûreté nucléaire, tels que les enceintes de confinement des réacteurs.

Plusieurs axes de recherche permettraient de compléter encore les connaissances dans ce domaine : l'étude du fluage en traction sur une longue durée (plusieurs mois), le temps ayant une influence sur la dégradation du béton en termes de résistance et d'étanchéité. À cet égard, il convient de souligner que les bâtis utilisés ont été conçus pour pouvoir réaliser de tels essais.

D'autres sujets importants restent à étudier, comme l'aspect multiaxial du fluage (traction/traction, traction/compression). Un programme expérimental a débuté avec la presse triaxiale Astrée du Laboratoire de mécanique et technologie (LMT Cachan), avec des éprouvettes dimensionnées et optimisées par des simulations numériques aux éléments finis (Cast3M). Ce travail de R&D revêt une importance particulière car le type de sollicitation étudié correspond à celui subi *in situ* par les enceintes de confinement.

Références

- F. Benboudjema (2002). Modélisation des déformations différées du béton sous sollicitations biaxiales. Application aux enceintes de confinement de bâtiments réacteurs des centrales nucléaires, thèse de doctorat de l'université de Marne-la-Vallée.
- A. Berthollet (2003). Contribution à la modélisation du béton vis-à-vis du vieillissement et de la durabilité : interaction des déformations de fluage et du comportement non linéaire du matériau, thèse de doctorat de l'Insa Lyon.
- J.J. Brooks, A.M. Neville (1977). A comparison of creep, elasticity and strength of concrete in tension and in compression, Magazine of Concrete Research, vol. 29, no 100, p. 131-141, septembre 1977.
- B. Fouré (1985). Note sur la chute de résistance à la traction du béton léger consécutive à l'arrêt de la cure humide, Annales de l'Institut technique du bâtiment et des travaux publics, 432, p. 3-14.
- B.R. Gamble, L.J. Parrott (1978). Creep of concrete in compression during drying and wetting, Magazine of Concrete Research, 104 (30), p. 129-138.
- L. Granger (1996). Comportement différé du béton dans les enceintes de centrales nucléaires. Analyse et modélisation, thèse de doctorat de l'ENPC, avril 1996.
- J.A. Hanson (1968). Effects of curing and drying environments on splitting tensile strength of concrete, Journal of the American Concrete Institute, 65 (7), p. 535-543.
- J.M. Illston (1965). The components of strains in concrete under sustained compressive stress, Magazine of Concrete Research, vol. 17 no 50, p. 21-28.
- V. Kanna, R.A. Olson, H.M. Jennings (1998). Effect of shrinkage and moisture content on the physical characteristics of blended cement mortars, Cement and Concrete Research, 18 (10), p. 1,467-1,477.
- K. Kovler (1994). Testing system for determining the mechanical behaviour of early age concrete under restrained and free uniaxial shrinkage, Materials and Structures, vol 27, p. 324-330.
- K. Kovler, S. Igarashi, A. Bentur (1999). Tensile Creep behaviour of high strength concretes at early ages, Materials and structures, vol. 32, p. 383-387, juin 1999.
- F. de Larrard, J.L. Bostvirronois (1991). On the long term losses of silica fume high strength concretes, Magazine of Concrete Research, 43 (155).
- D. Morin, J.C. Maso (1982). Fluage en traction des bétons ordinaires et des bétons légers, Materials and Structures, vol. 15, n° 89, p. 469-473, septembre 1982.
- M. Omar (2004). Déformations différées du béton : étude expérimentale et modélisation numérique de l'interaction fluage-chargement, thèse de doctorat de l'École centrale de Nantes.
- S.E. Pihlajavaara (1974). A review of some of the main results of a research on the aging phenomena of concrete: effect of moisture conditions on strength, Shrinkage and creep of mature concrete, Cement and Concrete Research, 4 (5), p. 761-771.

DÉFAILLANCE DU FOND D'UNE CUVE REP EN SITUATION ACCIDENTELLE GRAVE

et programme de recherche sur la déchirure des matériaux des cuves françaises

Vincent KOUNDYBureau de physique des accidents graves

Dans le cas hypothétique d'un accident avec fusion du cœur d'un REP⁽¹⁾, une quantité importante de corium (mélange de métaux et d'oxydes fondus) est susceptible de s'accumuler dans le fond de cuve (figure 1). Il s'ensuit un risque de rupture à haute température du fond de la cuve et d'épanchement du corium dans l'enceinte de confinement. La connaissance de l'instant et du mode de rupture du fond de la cuve constitue un élément important pour la préparation d'un tel accident. La connaissance de la taille de la brèche permet en effet de définir les conditions d'éjection du corium ; elle est de ce fait un des paramètres primordiaux pour les prédictions des conséquences de la défaillance de la cuve et des phénomènes ultérieurs hors de la cuve du réacteur (explosion de vapeur, échauffement direct de l'enceinte, interaction corium/radier).

L'IRSN a développé des modèles de calcul bidimensionnels (2D) et tridimensionnels (3D) qui permettent d'étudier le comportement thermomécanique du fond d'une cuve de réacteur REP en cas d'accident grave et seront utilisés pour les études en support des EPS2⁽²⁾ développées par l'IRSN. Dans ce travail de modélisation, les pénétrations du fond de la cuve n'ont pas été prises en compte⁽³⁾, le principal but étant l'obtention de modèles suffisamment simples mais performants pour la prédiction du comportement global du fond de la cuve et qui pourraient être ensuite utilisés dans le code standard européen d'accident grave ASTEC⁽⁴⁾. Les modèles de calcul élaborés ont tout d'abord été utilisés pour interpréter/simuler des expérimentations (américaines et suédoises) sur des maquettes d'un fond de cuve et pour estimer les instants de défaillance ainsi que les tailles des brèches ainsi créées. Cette étape de validation des modèles de calcul est en effet essentielle avant leur application au cas d'un réacteur.

- (1) Réacteur à eau pressurisée
- (2) Études probabilistes de sûreté de niveau 2 : elles traitent le déroulement des accidents graves du découvrement du cœur jusqu'aux rejets radioactifs à l'extérieur (article L'EPS de niveau 2 pour les réacteurs REP de 900 MWE : du développement aux enseignements de l'étude).
- (3) Les cas d'un fond de cuve avec variation locale de l'épaisseur et celui d'un fond de cuve avec pénétrations sont étudiés par ailleurs respectivement par le CEA et VTT.
- (4) Accident Source Term Evaluation Code.

Exposé des questions relatives à la défaillance du fond de la cuve

Depuis l'accident de la centrale de *Three Mile Island* (1979), de nombreux travaux de recherche ont été menés concernant le comportement de la cuve d'un REP en cas d'accident grave; ces travaux comportent des programmes expérimentaux et des études théoriques.

Les programmes expérimentaux les plus importants ont été les programmes LHF⁽⁵⁾ [Chu et al., 1998], OLHF⁽⁶⁾ [Humphries et al., 2002] et FOREVER⁽⁷⁾ [Sehgal et al., 2003]. Les deux premiers programmes ont été entrepris par les laboratoires américains Sandia, sous l'égide de l'autorité de sûreté américaine (NRC) ; le deuxième a été réalisé dans le cadre d'un programme international sous les auspices de l'OCDE(8) et l'IRSN y a participé activement ; le programme FOREVER a, quant à lui, été entrepris par l'Institut royal de technologie KTH, à Stockholm.

Ces programmes ont permis, d'une part, un enrichissement des connaissances sur les phénomènes physiques conduisant à la défaillance du fond de la cuve d'un REP, d'autre part, le développement et la validation de modèles de calcul développés par l'IRSN ou ses partenaires.

La confrontation entre les résultats obtenus avec les modèles développés et les résultats expérimentaux montre que les instants de défaillance et les localisations de la brèche ont été bien estimés par les modèles. Ces derniers sont également capables de décrire correctement le comportement global de rupture avec fusion du cœur du fond de la cuve en situation accidentelle.

Cependant, la taille de la brèche reste encore difficile à évaluer, puisqu'elle est fortement liée au mode de défaillance de l'acier. Il est à noter que, pour des conditions expérimentales quasiment identiques, la taille de la brèche peut être très différente d'une expérimentation à l'autre. En effet, les études et les analyses effectuées dans le cadre des programmes LHF et OLHF ont montré que des matériaux de cuve respectant parfaitement la même spécification générale de fabrication peuvent être fragilisés par certains éléments en trace inhérents aux matériaux, même à faible taux. Le service de recherches métallurgiques appliquées du CEA a montré que la fragilité à haute température, qui induit une plus grande taille de brèche, est due principalement à la teneur en soufre du matériau.

Des essais de caractérisation menés avec les matériaux de cuve utilisés lors des programmes LHF et OLHF, et réalisés avec des éprouvettes cylindriques ont montré un comportement très différent du matériau de cuve de programme LHF dans lequel le taux de soufre est important et du matériau de cuve OLHF dans lequel le taux de soufre est 10 fois moindre, en particulier pour des températures de l'ordre de 1 000 °C (figure 2).

- (5) Lower head failure programme (1994-1999).
- (6) OECD lower head failure programme (1999-2002).
- (7) Failure of reactor vessel retention programme (1999-2002).
- (8) Organisation de coopération et de développement économiques.

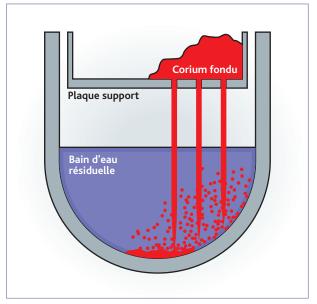


Figure 1 Accumulation de corium fondu dans le fond de cuve (représentation schématique)



Essais de caractérisation sur les matériaux de cuve LHF/OLHF

La rupture par fluage, lorsque la température est de l'ordre de 1 000 °C, est visiblement « fragile » pour le matériau de cuve de programme LHF et « ductile » pour le matériau de cuve de programme OLHF. Une forte striction est observée dans le second cas avec une zone de rupture très pointue.

Alors que ces observations concernent des matériaux de cuve de centrales américaines, il convient de noter que le même phénomène de fragilisation a été observé pour les matériaux de cuve français lors de la campagne d'essais du programme RUPTHER [Devos et al., 1999] menée par le CEA.

Il est donc nécessaire de prendre en compte cette variabilité du comportement de l'acier de la cuve pour l'élaboration de critères de défaillance utilisés dans les modèles de calcul, en vue de pouvoir estimer correctement la taille de la brèche dans le fond de la cuve. L'IRSN a donc entrepris, depuis 2003, un programme de recherches expérimentales et de modélisation numérique dont l'objectif

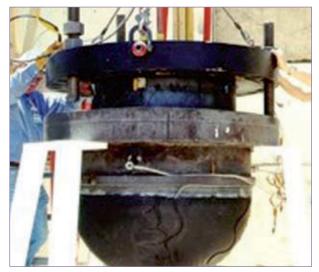


Figure 3 Maquette du fond de la cuve du programme OLHF et installation de son système de chauffage par induction et par rayonnement.



Figure 4 Photographie des maquettes après défaillance : essai 3 du programme LHF, essai 1 du programme OLHF et essai 4 du programme FOREVER.

principal est de mieux connaître le mécanisme de déchirure à haute température de l'acier des cuves françaises et d'élaborer un critère de défaillance approprié pour la modélisation.

Programmes expérimentaux relatifs à la défaillance du fond de la cuve

Les programmes LHF et OLHF ont consisté en la réalisation d'essais de « rupture » (huit essais LHF et quatre essais OLHF), menés sur des maquettes d'un fond de cuve de REP à l'échelle 1/5°. Le diamètre interne était de l'ordre de 91,4 cm. L'épaisseur des maquettes de programme LHF était d'environ 2,9 cm et celle des maquettes de programme OLHF a été choisie plus grande et égale à 7,6 cm, de manière à pouvoir apprécier l'influence du gradient de température dans l'épaisseur du matériau du fond de la cuve. La différence de température, à travers l'épaisseur totale, observée dans les essais (figure 3) LHF est inférieure à 80 °C, alors que dans le cas d'un accident avec fusion du cœur d'un réacteur, cette différence serait de l'ordre de 400 °C. La plupart des essais ont été réalisés à pression constante (entre 2 et 10 MPa) et à température interne croissante

(jusqu'à 1 250 °C) jusqu'à la défaillance de la maquette. Les pressions internes appliquées lors des essais sont identiques, compte tenu du facteur d'échelle, à la pression d'étude considérée dans la cuve du réacteur. De cette façon, l'état local de contraintes et de déformations est identique à échelle réduite et à l'échelle d'un réacteur. La température interne est obtenue grâce à un chauffage par induction et par rayonnement.

Le programme FOREVER a comporté neuf essais réalisés sur des maquettes d'un fond de cuve de REP à l'échelle 1/10e. Les dimensions des maquettes étaient de l'ordre de 39 cm pour le diamètre moyen et de 1,5 cm pour l'épaisseur. Le protocole expérimental a consisté à verser un bain fondu d'oxyde binaire simulant le corium à une température avoisinant 1 200 °C. Une résistance électrique en contact direct avec le simulant du corium permettait de maintenir sa température à la valeur désirée. La pression interne dans la cuve était supposée constante et maintenue à 2,5 MPa jusqu'à la défaillance du fond de la cuve. Deux aciers de cuve REP, français et américain, ont été utilisés pour les essais de programme FOREVER.

La *figure 4* montre un échantillon de maquette après défaillance pour chacun des programmes expérimentaux, LHF, OLHF et FOREVER

Développement et validation des modèles de calcul

Les programmes expérimentaux mentionnés précédemment ont fourni d'importantes données pour la compréhension des phénomènes de défaillance du fond d'une cuve et pour sa modélisation. Plusieurs modèles de calcul ont été développés et validés par les différents partenaires de ces programmes. Dans ce cadre, l'IRSN a développé un modèle de calcul simplifié 2D et, conjointement avec le CEA, deux modèles de calcul par éléments finis 2D et 3D en utilisant le code standard CAST3M du CEA. EDF et FZD⁽⁹⁾ ont développé chacun un modèle de calcul par éléments finis 2D, en utilisant respectivement leurs codes standards CODE_ASTER et ANSYS. Les partenaires français ont utilisé les mêmes lois de fluage (loi développée par Sandia pour l'acier de cuve américain et loi développée par le CEA pour l'acier de cuve français), tandis que FZD a utilisé sa propre loi de fluage.

Le modèle simplifié 2D, fondé sur les équations relatives au comportement de coques de révolution soumises à un chargement axisymétrique, décrit un allongement du fond de la cuve suivant

(9) Forschungszentrum Rossendorf Dresden.

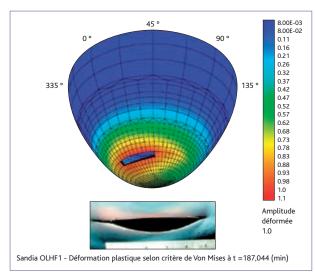


Figure 5 Vue générale de la brèche expérimentale lors de l'essai OLHF 1 (14 cm²) et de la brèche calculée (17,6 cm²).

la forme d'une coquille d'œuf [Koundy et Cormeau, 2005], représentant la déformée générale observée sur les maquettes des programmes LHF et OLHF (*figure 3*).

Par rapport aux modèles à éléments finis, le modèle simplifié 2D permet de tester très rapidement les hypothèses des calculs ; avec les équations analytiques, il est en effet plus facile de déterminer les relations entre hypothèses et résultats, ainsi que les paramètres les plus sensibles du problème. Le modèle simplifié 2D est également avantageux de par la facilité de la mise au point du maillage et des données, et par la rapidité du temps de calcul. Ce modèle est par conséquent particulièrement adapté à la réalisation de calculs paramétriques répétitifs, qui sont primordiaux pour le développement d'études probabilistes. Le modèle est bien sûr limité aux calculs de l'instant de défaillance du fond de la cuve et de localisation de la zone de défaillance : il décrit le comportement global de la structure (juste avant l'apparition de la fissure et son évolution géométrique tridimensionnelle).

La description des modèles à éléments finis 2D et 3D ainsi que la synthèse de la comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de la modélisation pour l'essai OLHF 1 du fond de la cuve sont présentées en détail dans la référence [Koundy et al., 2008a]. Il en ressort que le comportement mécanique global lors de l'essai OLHF 1 est bien représenté par les modèles 2D (modèle simplifié et modèle à éléments finis), que les déformées expérimentales et numériques sont cohérentes et que les instants et les zones de rupture estimés sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. Ces bonnes concordances ont été de même observées lors de

l'interprétation de l'essai FOREVER EC2 par le modèle simplifié 2D et par le modèle à éléments finis 2D de FZD [Koundy et Hoang, 2008].

Pour l'interprétation de l'essai OLHF 1, le modèle à éléments finis 3D (obtenu par CAST3M) a permis l'obtention de résultats de calcul plus détaillés que les autres modèles. Il a fourni les détails locaux tout à fait cohérents avec les résultats expérimentaux, en particulier les zones de réduction de l'épaisseur du fond de la cuve. Ce modèle 3D a également permis l'étude de l'amorçage de la fissure et de sa propagation. La *figure 5* représente la brèche expérimentale et la brèche calculée. Les surfaces des deux brèches sont bien du même ordre de grandeur : 14 cm² et 17,6 cm². Dans le calcul tridimensionnel, le critère de défaillance adopté correspondait à une déformation totale fixée à 100 % (ceci veut dire qu'un petit élément géométrique du maillage est supposé défaillant si sa déformation totale calculée dépasse cette valeur). Les éléments défaillants sont ensuite éliminés du maillage et induisent une évolution tridimensionnelle de la brèche.

Il convient de souligner que, si le critère de défaillance considéré dans le modèle 3D est bien approprié pour l'interprétation de l'essai OLHF 1, il n'est plus valable pour interpréter les essais du programme LHF. Aussi, lors de l'essai LHF 5, une très longue déchirure circonférentielle a été observée; l'instant de la défaillance initiale calculé par le modèle 3D, de même que la vitesse de propagation de la fissure diffèrent notablement des observations expérimentales. Ceci est dû à la forte dépendance du critère de défaillance au mode de défaillance du matériau (« ductile » pour OLHF et « fragile » pour LHF). Il est donc nécessaire de choisir un critère de rupture plus adéquat prenant en compte la variabilité du comportement à la rupture du matériau, ceci constitue l'un des objectifs du programme commun de recherche actuellement mené par l'IRSN, le CEA et l'Insa de Lyon [Koundy et al., 2008b].

Programme de recherche sur la déchirure des matériaux des cuves françaises

Ce programme de recherche de l'IRSN, mené en étroit partenariat avec le CEA et l'Insa de Lyon, a débuté en 2003, juste après la fin du programme expérimental OLHF. Les matériaux étudiés dans le cadre du programme de recherche sont les matériaux des cuves REP françaises, dans le double objectif d'enrichir la base de données existante de caractérisation de ces matériaux et d'appliquer les résultats obtenus aux études relatives aux accidents graves pour les réacteurs français.

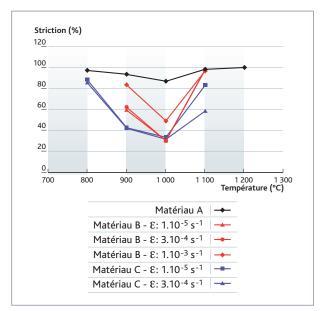


Figure 6 Valeurs de striction observées lors des essais de traction, en fonction de la température et de la vitesse de déformation, pour trois matériaux de cuve A, B et C (de teneurs en soufre croissantes).

Le programme a consisté à réaliser tout d'abord un inventaire des propriétés physiques et des compositions chimiques et métallurgiques des matériaux des cuves REP françaises, en collaboration avec Framatome. À l'issue de cette action, cinq matériaux (plus précisément cinq familles de matériaux), de propriétés mécaniques/métallurgiques suffisamment différentes tout en restant conformes à la spécification générale de fabrication de l'acier des cuves REP françaises, ont été retenus pour la réalisation d'essais.

Trois types d'essais complémentaires ont été définis et réalisés dans trois centres :

■ le centre de Grenoble du CEA a réalisé des essais de caractérisation des matériaux à haute température (900 °C − 1 100 °C), à l'aide de petites éprouvettes cylindriques ; ces essais ont été suivis par des analyses d'images. Ces essais visaient à mieux comprendre les causes (ou identifier les microstructures responsables) de la variabilité des modes de défaillance du matériau.

La *figure* 6 illustre la mise en évidence, lors des essais de traction, de creux de ductilité, définis par la chute des valeurs de striction des éprouvettes en fonction de la température et de la vitesse de déformation. Les essais correspondants ont été réalisés sur trois matériaux de cuve A, B et C, présentant des teneurs de soufre croissantes. La ductilité de chaque matériau a été mesurée à partir de ces valeurs de striction. Le matériau A, pour lequel la valeur de striction est inférieure à 90 %, est le matériau le plus ductile.

Le matériau C, le plus fragile, a une valeur de striction inférieure à 30 %; c'est le matériau ayant la plus forte teneur en soufre. C'est autour de 1 000 °C que la fragilité est la plus forte pour les matériaux B et C.

La fragilité à chaud de l'acier dépend ainsi de la température : les matériaux B et C, fragiles à 1 000 °C, peuvent être ductiles à 800 °C ou 1 100 °C. Les observations microscopiques du faciès de rupture à 1 000 °C des éprouvettes du matériau C montrent l'existence de petites quantités de précipités de nitrure d'aluminium et de grandes quantités de précipités de sulfure de manganèse (précipités absents ou présents en très faibles quantités dans le cas du matériau A).

Une courbe de striction en fonction de la teneur en soufre est en cours d'élaboration pour les cinq familles de matériaux choisies et permettra d'établir le comportement de ces matériaux en fonction de leur teneur en soufre. Il sera ainsi possible de prédire le mode de rupture (fragile ou ductile) à partir de la connaissance du matériau de cuve et de sa teneur en soufre, et d'obtenir une première quantification des probabilités d'avoir une brèche de petite ou de grande taille.

■ Le centre de Saclay du CEA a réalisé des essais de caractérisation des matériaux à haute température avec des éprouvettes CT (Compact Tension), dans le but d'apprécier en particulier leur résistance à la déchirure et la vitesse de propagation de la fissure pour ces matériaux. Ces essais sont importants pour la modélisation de la défaillance et permettront d'étudier l'influence de la composition chimique/métallurgique du matériau sur la cinétique de la déchirure. La figure 7 présente la forme d'une éprouvette CT (F représente la force de traction, δ l'ouverture et « da » l'avancée moyenne de la fissure sur toute l'épaisseur de l'éprouvette) et donne la force appliquée en fonction de l'ouverture pour les matériaux A et B (deux essais pour chaque courbe).

On note une nette différence de comportement des deux matériaux (le matériau A est plus ductile que le matériau B). À partir de ces courbes, on peut, grâce à des formules analytiques, obtenir les courbes reliant l'intégrale « $J^{(10)}$ » et l'avancée de la fissure « da ».

Chaque pente de la courbe (J, da) est un « paramètre énergétique Gfr » qui permet d'évaluer la fragilité du matériau. Cette méthode, nommée Gfr, est une méthode intéressante qui présente l'avantage de permettre des transpositions directes des éprouvettes aux structures.

⁽¹⁰⁾ L'intégrale J représente le taux de croissance de l'énergie potentielle de la structure.

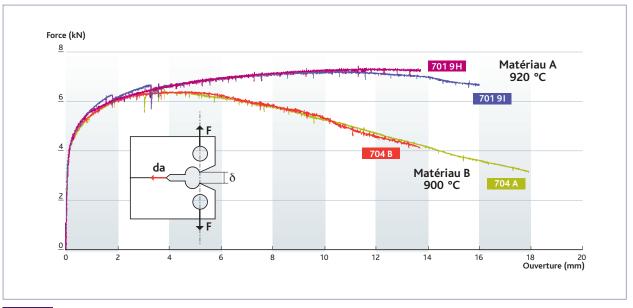


Figure 7 Courbes établissant la force F de traction en fonction de l'ouverture δ pour les matériaux A et B (essais autour de 900 °C – deux essais par courbe).

Cette étape de caractérisation de la déchirure est une étape indispensable au développement du nouveau critère de défaillance. Les paramètres Gfr obtenus lors des essais CT seront introduits dans le modèle à éléments finis 3D (obtenus sous CAST3M). Ce dernier sera ensuite validé, tout d'abord sur les mêmes essais CT, puis à nouveau sur les essais des programmes LHF et OLHF, en déterminant respectivement les longueurs des fissures et les tailles des brèches. Des interprétations par ce modèle 3D d'essais plus analytiques sur des tubes (voir ci-dessous) seront réalisées dès la disponibilité des résultats expérimentaux.

■ L'Insa de Lyon réalise des essais de déchirure sur des plaques et des tubes sous pression à haute température, dans le but de déterminer les seuils d'amorçage des fissures et leur vitesse de propagation. Le banc d'essais a été dimensionné et réalisé conjointement par l'IRSN et l'Insa de Lyon.

Les essais portant sur des plaques, considérés comme des essais préliminaires, ont déjà permis, d'une part, la mise au point des systèmes de mesures (électriques et optiques) à haute température et, d'autre part, l'étude de la déchirure de structures planes. Les essais portant sur des tubes sont en cours de réalisation ; ils permettront non seulement d'étudier la déchirure du matériau mais aussi d'établir la loi de dépressurisation nécessaire à la modélisation (baisse de la pression interne dès la première fissure traversante). Les pressions d'essais retenues pour les tubes sont des pressions équivalentes à la pression primaire imposée (définies à un facteur

près comme dans le cas des maquettes des programmes LHF et OLHF), afin d'obtenir le même état local de contraintes et de déformations dans le tube et dans les applications aux réacteurs ; ceci évitera le problème de transposition d'échelle lors des études d'applications au cas réacteur. Ces essais serviront ultérieurement à la validation dite « de type structure » des modèles numériques. Quatre essais sur des tubes ont été réalisés en 2008, quatre autres devant avoir lieu en 2009.

Dans le cadre des essais sur des plaques et des tubes, un second modèle à éléments finis 3D a été développé conjointement par l'IRSN et l'Insa de Lyon, à l'aide du code standard ABAQUS (le premier modèle étant celui qui utilise le code CAST3M). Ces deux modèles prendront en compte la variabilité du mode de défaillance du matériau à haute température et permettront une évaluation de la taille finale de la brèche par deux méthodes différentes.

Le premier modèle utilise la méthode Gfr, tandis que le second modèle est fondé sur les éléments finis « cohésifs ». Ces derniers sont des éléments de raccord qui sont placés à l'avance sur le trajet de la fissuration et dont les nœuds sont disposés de chaque côté des lèvres de la fissure. La propagation de la fissure est alors vérifiée par une loi de comportement reliant « la contrainte au sein de l'élément » aux « déplacements relatifs de ses nœuds ».

Cette loi peut traiter aussi bien un comportement avec rupture fragile et un comportement avec rupture ductile, grâce à la prise en compte de l'énergie déduite de la courbe de comportement

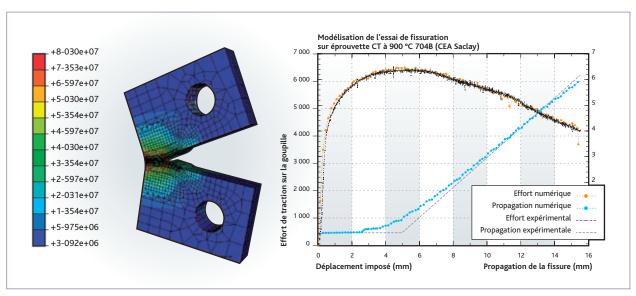


Figure 8 a) Simulation d'un essai CT. b) Comparaison des courbes force/ouverture et propagation/ouverture.

expérimentale. Ce modèle a été d'abord utilisé pour interpréter des essais CT (mentionnés ci-dessus). Il est capable de déterminer la fissuration sous forte striction.

La *figure 8a* représente l'état final de la déchirure et permet de visualiser les différentes intensités de contrainte. Cet état a été estimé grâce au second modèle de calcul pour un essai CT.

La *figure 8b* montre une bonne concordance entre les courbes de traction expérimentales et les courbes de traction calculées. On note également sur cette figure une bonne estimation par le calcul de la propagation de la fissure expérimentale en fonction de son ouverture. Sa validation se poursuit par des simulations d'essais des programmes LHF et OLHF et d'essais portant sur des tubes.

Conclusion et perspectives

Pour mieux apprécier le comportement thermomécanique du fond d'une cuve REP lors d'un accident hypothétique avec fusion du cœur et les conséquences possibles de sa défaillance, des paramètres tels que l'instant de défaillance, le mode de défaillance, et la zone de la brèche et sa taille finale sont essentiels.

Les modèles numériques (modèle simplifié ou modèle à éléments finis) développés par les différents partenaires (AVN, CEA, GRS, IRSN, SNL, UJV et VTT), dans le cadre des programmes LHF et OLHF, permettent de prédire l'instant de la défaillance du fond de la cuve et la localisation de la brèche. En raison de sa simplicité d'usage, de sa rapidité d'exécution et de ses bons résultats

numériques, le modèle simplifié 2D a été développé par l'IRSN dans le code européen d'accident grave ASTEC.

Il faut cependant noter que seul un modèle à éléments finis 3D peut permettre d'étudier la déchirure tridimensionnelle d'un matériau. À ce jour, aucun modèle à éléments finis 3D n'est en mesure d'évaluer correctement la taille finale de la brèche car cette taille est fortement liée au mode de défaillance à haute température des matériaux des cuves. Le critère de défaillance utilisé dans les modèles doit tenir compte de la variabilité du comportement à la rupture des matériaux (soit ductile, soit fragile à chaud).

Pour améliorer le critère de défaillance et mieux évaluer la taille de la brèche dans différents scénarios d'accident grave, l'IRSN a entrepris en 2003 un programme de recherche, mené en partenariat avec le CEA et l'Insa de Lyon, concernant la déchirure des différents matériaux des cuves françaises. Ce programme est à ce jour bien avancé ; il permettra *in fine* :

- de caractériser les propriétés de déchirure des matériaux à haute température ;
- de mieux comprendre l'influence de la composition chimique du matériau sur la cinétique de la déchirure ;
- d'élaborer un nouveau critère de défaillance, tenant en compte la variabilité du comportement à la rupture du matériau, pour les deux modèles à éléments finis 3D développés, en vue de l'évaluation de la taille de la brèche. Ces modèles seront d'abord validés par l'interprétation des essais de rupture de tubes avant leur application à des études relatives aux réacteurs de puissance REP.

Références

- T.Y. Chu et al. (1998). Lower Head Failure Experiments and Analyses, NUREG/CR-5582, SAND98-2047, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM, USA.
- J. Devos et al. (1999). CEA programme to model the failure of the lower head in severe accidents, Nuclear Engineering and Design, Volume 191, p. 3-15.
- B.R. Sehgal et al. (2003). Assessment of Reactor Vessel Integrity (ARVI), Nuclear Engineering and Design, volume 221, p. 23-53.
- V. Koundy, I. Cormeau (2005). Semi-analytical modelling of a PWR lower head failure under severe accident conditions using an axisymetrical shell theory, Nuclear Engineering and Design, volume 235, p. 845-853.
- ■V. Koundy et al. (2008a). Progress on PWR lower head failure predictive models, Nuclear Engineering and Design, Volume 238, p. 2,420-2,429.
- V. Koundy, N.H. Hoang (2008). Modelling of PWR lower head failure under severe accident loading using improved shells of revolution theory, Nuclear Engineering and Design, Volume 238, p. 2,400-2,410.
- ■V. Koundy et al. (2008b). Study of tearing behaviour of a PWR reactor pressure vessel lower head under severe accident loadings, Nuclear Engineering and Design, Volume 238, p. 2,411-2,419.
- L.L. Humphries et al. (2002). OECD Lower Head Failure Project Final Report, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1139, USA.

L'EPS DE NIVEAU 2 POUR LES RÉACTEURS REP DE 900 MWE :

du développement aux enseignements de l'étude

Emmanuel RAIMOND, Nadia RAHNI, Karine CHEVALIER-JABET, Thomas DURIN Bureau d'évaluation probabiliste des accidents graves

Depuis l'accident survenu le 28 mars 1979 dans le réacteur n° 2 de la centrale nucléaire américaine de Three Mile Island (TMI-2), qui a entraîné la fusion partielle du cœur du réacteur et des rejets limités de produits de fission, les organismes acteurs de la sûreté nucléaire se sont investis dans des programmes de recherche, visant à mieux comprendre ce qui pourrait survenir lors d'un accident grave, entraînant la fusion du cœur, afin d'améliorer les dispositions permettant de les prévenir ou d'en limiter les conséquences. Ces dispositions peuvent nécessiter l'installation de matériels nouveaux sur les réacteurs ou le renforcement de matériels existants ; il peut également s'agir d'améliorer les procédures de conduite en situation accidentelle ou les guides d'intervention en cas d'accident grave. Dans le cadre de ses missions, l'IRSN porte une appréciation sur les dispositions retenues par les exploitants, en tenant compte des résultats des programmes de recherche sur les accidents graves, des simulations numériques d'accidents et, aujourd'hui, d'études probabilistes de sûreté de niveau 2 (EPS2).

Dans ce contexte, l'article qui suit présente le développement par l'IRSN d'une EPS de niveau 2 pour les réacteurs à eau pressurisée de 900 MWe du palier CPY (dénommée ci-après EPS2 REP 900), son articulation avec les programmes de recherche menés dans ce domaine, les résultats obtenus et les enseignements qui peuvent en être tirés.

Avant-propos : le déroulement d'un accident grave et les trois niveaux pour les EPS

Pour les réacteurs à eau pressurisée (REP), un accident grave est défini comme un accident au cours duquel le combustible serait significativement dégradé, entraînant un risque de rejets radioactifs à l'extérieur de l'installation. Compte tenu de la conception des

installations (*figure 1*) et de leur conduite, un tel accident ne pourrait résulter que d'un enchaînement très peu probable de défaillances matérielles et humaines.

À titre d'illustration, certains phénomènes physiques susceptibles de survenir lors d'un accident grave sont présentés sur la *figure 2*. Le déroulement d'un accident grave, ainsi que les différents modes de défaillance du confinement qui peuvent en résulter sont succinctement présentés dans ce qui suit. Le rapport en référence [Rapport IRSN et CEA, 2006] présente une description plus complète des accidents graves.

En cas d'un dénoyage prolongé du cœur d'un réacteur, le combustible s'échauffe progressivement sous l'effet de la puissance résiduelle, qui n'est plus évacuée. Une réaction exothermique d'oxydation des gaines du combustible en zircaloy par la vapeur

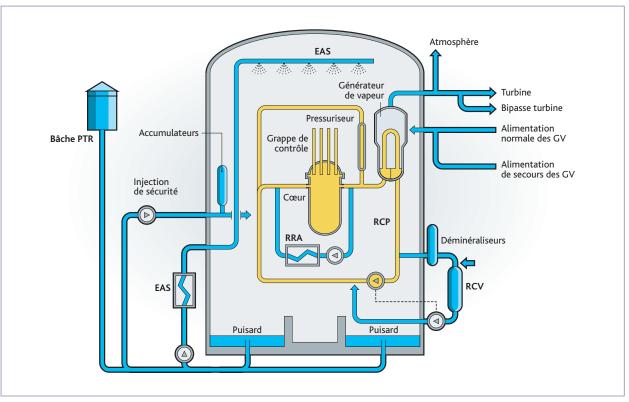


Figure 1 Systèmes de sauvegarde d'un REP (schéma de principe).

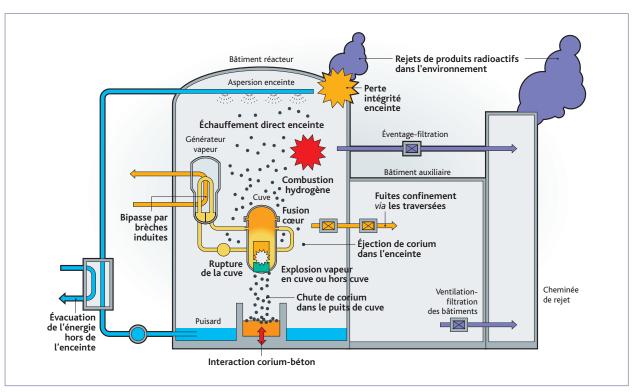


Figure 2 Phénomènes physiques pouvant se produire lors d'un accident grave.

d'eau se produit, menant à une production importante d'hydrogène et à un dégagement de chaleur important. Par ailleurs, des réactions métallurgiques entre le combustible et la gaine produisent des eutectiques à bas point de fusion, entraînant des relocalisations de matériaux dans le cœur. Sous l'effet de l'échauffement, les produits de fission les plus volatils, puis les produits de fission semi-volatils sont relâchés hors du combustible.

Progressivement, il se forme dans le cœur du réacteur un bain de matériaux fondus, appelé corium. Lorsque celui-ci vient au contact du cloisonnement du cœur, il se produit des coulées de corium entre le cloisonnement et l'enveloppe du cœur, à travers les renforts les séparant. Au contact de l'eau encore présente au fond de la cuve, se produit une fragmentation grossière du corium, qui peut éventuellement être suivie d'un phénomène plus violent appelé « explosion de vapeur » dans la cuve. Sous l'effet de cette explosion, d'une part, le fond de la cuve pourrait être défaillant, d'autre part, une fraction du corium pourrait être projetée sur le couvercle de la cuve, avec un risque d'éjection de débris pouvant affecter l'enceinte de confinement.

Au cours de la dégradation du cœur, il est éventuellement possible de mettre en œuvre des moyens ultimes d'appoint d'eau au circuit primaire ou au circuit secondaire, par l'intermédiaire de « lignages » de différents circuits. Le renoyage d'un cœur dégradé, qui conduit à des phénomènes complexes, peut permettre dans certains cas d'arrêter la progression de l'accident. Par contre, ce renoyage peut provoquer un surcroît de production d'hydrogène, avec le risque associé de déflagration dans l'enceinte, et un relâchement supplémentaire de produits de fission.

Par ailleurs, un échauffement important des parois du circuit primaire et des tubes des générateurs de vapeur pourrait se produire. Si cet échauffement se conjugue à une pression élevée du circuit primaire, une rupture de ce circuit, appelée « brèche induite », peut survenir. Cette rupture entraîne une dépressurisation du circuit primaire, ce qui est positif pour le déroulement de l'accident; néanmoins, si cette rupture se produisait dans les tubes des générateurs de vapeur, alors le cœur du circuit primaire se trouverait en liaison avec l'extérieur via les circuits primaire et secondaire du réacteur ; il s'agirait alors d'un « bipasse » de l'enceinte de confinement ; la présence d'eau dans le circuit secondaire des générateurs de vapeur permettrait de limiter très fortement les rejets vers l'extérieur.

L'hydrogène produit lors de la dégradation du cœur est relâché dans l'enceinte de confinement ; la combustion de cet hydrogène peut entraîner un pic de pression et de température dans l'enceinte de confinement, susceptible d'affecter l'étanchéité de celle-ci. Cette

combustion peut prendre des formes lentes (déflagrations lentes) ou plus rapides, voire explosives (déflagrations rapides, détonations).

Les coulées de corium s'accumulent dans le fond de la cuve et peuvent entraîner plus ou moins rapidement une défaillance du fond de la cuve. Lors de celle-ci, notamment si elle intervient à pression élevée, une partie du corium va être dispersée dans l'enceinte de confinement et peut provoquer un pic de pression dans l'enceinte par « échauffement direct de l'enceinte » (en anglais : Direct Containment Heating – DCH).

De plus, lors de la défaillance du fond de la cuve, le corium peut venir au contact d'eau présente dans le puits de cuve (notamment du fait du fonctionnement du système d'aspersion dans l'enceinte – EAS). La mise en contact du corium, échauffé à plus de 2 500 Kelvin, avec l'eau du puits de cuve, peut provoquer une vaporisation presque instantanée de l'eau présente. Cette vaporisation pourrait entraîner localement une très brusque montée de la pression, susceptible d'endommager les parois du puits de cuve, voire d'induire un ébranlement des structures internes de l'enceinte de confinement ; ce phénomène est appelé « explosion de vapeur hors cuve ».

Après la défaillance du fond de la cuve, le corium se retrouve dans le fond du puits de cuve, où il provoque une ablation thermique progressive du radier en béton, avec libération d'une quantité importante de gaz incondensables dans l'enceinte de confinement. Ces gaz provoquent une montée progressive de la pression dans l'enceinte. Afin d'éviter la défaillance de l'enceinte de confinement qui pourrait résulter de la surpression, un dispositif dit d'« éventage-filtration » a été installé sur les REP en exploitation, de façon à pouvoir éviter que la pression de dimensionnement de l'enceinte ne soit dépassée d'une manière trop importante.

Au cours du déroulement d'un accident grave, des fuites hors de l'enceinte de confinement peuvent se produire *via* les traversées ; il s'agit de fuites préexistantes ou consécutives à des défaillances lors de l'isolement de l'enceinte. De telles fuites peuvent également se produire à partir des circuits assurant la recirculation de l'eau recueillie dans le puisard de l'enceinte, notamment le système d'aspersion. Ces fuites débouchent dans des locaux des bâtiments auxiliaires, où elles sont reprises par les circuits de ventilation munis de dispositifs de filtration de différents types, avant d'être relâchées dans l'environnement.

Pour étudier de manière aussi exhaustive que possible et hiérarchiser les différentes possibilités d'évolution d'un accident grave, des études probabilistes de sûreté (EPS) sont développées; on distingue

généralement trois niveaux d'études, suivant les conséquences étudiées :

- les EPS de niveau 1 permettent d'identifier les scénarios d'accident conduisant à une dégradation du combustible du fait de l'enchaînement de défaillances matérielles et humaines, et de déterminer leur fréquence ;
- les EPS de niveau 2 permettent d'évaluer la nature, l'importance et la fréquence des rejets radioactifs dans l'environnement pour les scénarios accidentels avec fusion du cœur identifiés dans l'EPS de niveau 1 :
- les EPS de niveau 3 permettent de quantifier les conséquences économiques, sanitaires, environnementales.

L'IRSN réalise des études de niveau 1 et de niveau 2.

EPS2 REP 900 : structure de l'étude

L'interface avec l'EPS de niveau 1

La réalisation de l'interface avec l'EPS de niveau 1 (EPS1) constitue la première étape de l'étude EPS2. Elle est établie en vue de répondre aux deux objectifs principaux suivants :

- assurer la transmission des informations nécessaires sur l'état de la tranche accidentée au terme de l'EPS1 et ayant une influence significative sur le déroulement ultérieur de l'accident, notamment sur les modes possibles de défaillance de l'enceinte de confinement et l'importance des rejets ;
- permettre un regroupement des nombreux scénarios accidentels (plusieurs milliers) de l'EPS1 vers un nombre limité d'EDI (états dégradés de l'installation), lorsque ces séquences sont jugées « équivalentes » en termes de progression d'accident après l'endommagement du combustible.

En pratique, pour l'EPS2 REP 900, un peu plus de 300 EDI ont été définis pour représenter les scénarios accidentels conduisant à une fusion du combustible de l'EPS1 (pour les états en puissance et les états à l'arrêt du réacteur).

L'arbre d'événements « accident grave »

La démarche retenue par l'IRSN pour élaborer l'EPS2 REP 900 vise à représenter de manière détaillée, à l'aide d'un « arbre d'événements », les événements qui conditionnent le déroulement de l'accident grave jusqu'aux rejets : les phénomènes physiques susceptibles de se produire ainsi que leurs dépendances, les actions humaines, les défaillances de certains systèmes ou leur réparation.

L'arbre d'événements ainsi construit permet, pour chaque EDI, d'identifier les différentes possibilités de progression de l'accident, ainsi que les éventuelles pertes d'intégrité de l'enceinte de confinement, et d'évaluer les fréquences annuelles correspondantes. Des modélisations détaillées, qui reposent sur un grand nombre d'études en support, sont développées au sein de l'arbre d'événements, de manière à pouvoir déterminer les différents instants importants de l'accident (défaillance du fond de la cuve, percée du radier, défaillance de l'étanchéité de l'enceinte de confinement, etc.) ou l'état de l'installation (pression dans le circuit primaire, composition de l'atmosphère de l'enceinte de confinement...) au cours de la progression de l'accident.

Dans l'EPS2 REP 900 réalisée par l'IRSN, une centaine d'événements (phénomènes physiques, actions humaines et défaillances, ou remises en service de systèmes) se succèdent, ce qui conduit à la quantification probabiliste de plusieurs milliers de scénarios accidentels. Un algorithme de Monte Carlo est de plus utilisé pour une appréciation quantifiée des incertitudes.

Les méthodes utilisées sont décrites plus précisément dans les références [Raimond *et al.*, 2004 ; Charpin *et al.*, 2005 ; Raimond *et al.*, 2005 ; Raimond *et al.*, 2008 ; Raimond *et al.*, 2008].

Les catégories de rejets

Les séquences accidentelles sont ensuite regroupées en un certain nombre de « familles de progression de l'accident » (FPA). Ce regroupement est effectué à l'aide de variables (dénommées variables FPA) permettant de préciser l'amplitude et la cinétique des rejets radioactifs associés aux scénarios accidentels, dont les valeurs sont déterminées lors du parcours de l'arbre d'événements.

Un calcul des rejets radioactifs est ensuite effectué pour chaque famille de progression de l'accident.

Les étapes de développement de l'arbre d'événements, de quantification des scénarios accidentels, de regroupement de ces scénarios et de calcul des rejets sont réalisées à l'aide du logiciel KANT, développé par l'IRSN et couplé à un logiciel spécifique pour les calculs des rejets.

Les études physiques en support de l'EPS2 REP 900 et l'utilisation des résultats des programmes de R&D

La construction de l'EPS2 REP 900 a nécessité la réalisation d'un important programme de travail, en termes d'études de scénarios accidentels, et l'utilisation des résultats de nombreux programmes expérimentaux.

Progression de l'accident

L'EPS1 a conduit à l'identification d'un grand nombre de scénarios accidentels jusqu'à la fusion du cœur. Le nombre de scénarios à considérer s'accroît lorsqu'on envisage, après la dégradation du cœur, le succès ou l'échec des actions des opérateurs, la défaillance ou la remise en état des systèmes. L'IRSN considère que les enseignements d'une EPS de niveau 2 sont plus robustes si l'arbre d'événements s'appuie sur un nombre suffisant de scénarios accidentels calculés. Ainsi, pour l'EPS2 REP 900, une centaine de scénarios accidentels ont été calculés avec le système de code ASTEC(1) pour les états en puissance du réacteur et une quarantaine pour les états à l'arrêt du réacteur.

L'IRSN considère par ailleurs que l'introduction, dans l'arbre d'événements, de véritables modélisations des phénomènes physiques, permet d'obtenir, pour chaque scénario, une description de l'état physique de l'installation au cours de la progression de l'accident. Les dépendances entre les phénomènes sont plus facilement déterminées, de même que les incertitudes de différentes natures.

L'élaboration de telles modélisations s'appuie en grande partie sur l'utilisation de codes de calcul. Une méthode spécifique, fondée sur l'utilisation des techniques des plans d'expérience et des surfaces de réponse, est utilisée pour certains modèles de l'arbre d'événements. Les résultats des programmes de R&D internationaux sur les accidents graves sont de plus largement utilisés pour valider et compléter les résultats obtenus. Pour certains sujets, tels que la tenue mécanique du circuit primaire à haute pression et à haute température, l'IRSN a engagé des actions propres de recherche. Le *tableau 1* présente quelques exemples.

Tenue du confinement

Les enceintes de confinement des réacteurs de 900 MWe sont constituées d'une paroi en béton précontraint, doublée à l'intrados d'une peau métallique qui assure l'étanchéité. Ces enceintes sont dimensionnées à une valeur de l'ordre de 5 bars absolus. La tenue des enceintes à la pression de dimensionnement est vérifiée périodiquement par l'exploitant lors d'« épreuves périodiques » ; le taux de fuite mesuré lors de ces épreuves ne doit pas dépasser une valeur déduite d'une exigence réglementaire fixée dans le décret d'autorisation de création de l'installation concernée.

Lors d'un accident grave, une telle enceinte de confinement pourrait être soumise à des pressions dépassant la pression de dimensionnement à la suite d'un phénomène énergétique (combustion d'hydrogène ou de monoxyde de carbone, échauffement direct de l'enceinte). Pour limiter les risques liés à une telle combustion, des recombineurs d'hydrogène autocatalytiques passifs ont été installés

Phénomène	Démarche d'étude
Thermohydraulique (avant la dégradation du combustible)	Utilisation du code CATHARE 2 et du simulateur SIPA2
Dégradation du cœur dans la cuve	Utilisation du code ASTEC (CESAR-DIVA)
Évolution de la composition de l'atmosphère de l'enceinte de confinement	Utilisation du code ASTEC (CPA)
Fusion du cœur en pression et rupture induite de tubes de générateurs de vapeur	Utilisation du code ICARE- CATHARE et des résultats d'un programme de R&D sur la tenue mécanique du circuit primaire
Défaillance de la cuve	Développement et utilisation d'un modèle spécifique
Éjection de corium dans l'enceinte de confinement lors de la défaillance en pression de la cuve (DCH)	Développement et utilisation d'un modèle spécifique adapté à la géométrie des REP 900 et implanté dans ASTEC ; utilisation de programmes de R&D dédiés
Explosion de vapeur dans la cuve et dans le puits de cuve	Utilisation du code MC3D (calcul de l'explosion) couplé au code EUROPLEXUS (mécanique)
Érosion thermique du radier	Utilisation du code ASTEC (MEDICIS)
Combustion d'hydrogène ou de monoxyde de carbone lors de l'interaction entre le corium et le béton du radier	Développement d'un modèle spécifique dans l'arbre d'événe- ments basé sur les résultats obtenus avec le code ASTEC
Pressurisation lente de l'enceinte avec ou sans renoyage, lors de la phase d'interaction corium- béton	Utilisation du code ASTEC

Tableau 1 Démarche d'étude de quelques phénomènes physiques.

dans les enceintes. Par ailleurs, un dispositif d'éventage (dispositif U5), à ouverture manuelle, pourrait être utilisé en cas de montée lente de la pression dans l'enceinte de confinement, de manière à limiter la pression dans l'enceinte à une valeur comprise entre la pression de dimensionnement et la pression de tenue ultime de l'enceinte, et à limiter, grâce à une filtration, l'amplitude des rejets.

Pour la réalisation d'une EPS de niveau 2, il est nécessaire d'évaluer la tenue des enceintes de confinement au-delà de leur pression de dimensionnement, ce qui n'est possible que par l'utilisation d'outils de simulation numérique. L'IRSN a ainsi utilisé le code CAST3M, avec des modèles spécifiques, pour décrire le comportement du béton, de la peau métallique et du tampon d'accès des matériels (Tam), du ferraillage et des câbles de précontrainte. Ces modèles ont été améliorés par l'IRSN de manière à permettre le calcul 3D d'une enceinte complète [Nahas et Cirée, 2007]. La *figure 3* illustre la démarche « multi-échelle » utilisée.

Ces études ont conduit à retenir deux modes possibles de perte d'étanchéité de l'enceinte de confinement :

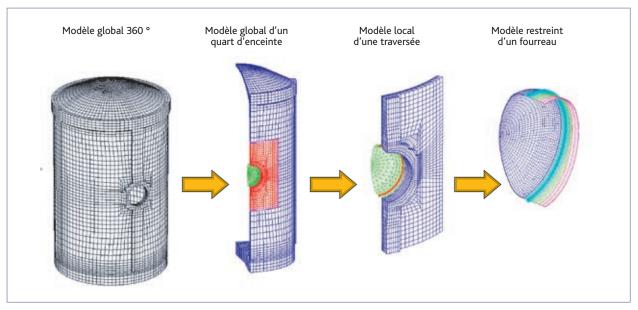


Figure 3 Modélisation « multi-échelle » d'une enceinte de confinement CPY.

- la rupture par cisaillement des boulons assurant la fermeture des brides du Tam ;
- la déchirure de la peau dans la zone courante de l'enceinte. Les valeurs « réalistes » de pression obtenues pour la rupture et la déchirure sont respectivement de 7 et de 10 bars absolus, ce qui a conduit l'IRSN à considérer que le Tam constitue le point le plus faible des enceintes de confinement (au-delà de la pression de dimensionnement). EDF, qui partage cette conclusion, a pris l'engagement de renforcer le dispositif de fermeture du Tam lors des troisièmes visites décennales des réacteurs de 900 MWe.

Dans l'EPS2 REP 900, il a été considéré qu'une déchirure de la peau d'étanchéité ou une défaillance de la fermeture du Tam conduiraient à une brèche de l'enceinte de confinement et donc à un taux de fuite très élevé de celle-ci. Des courbes de fragilité, tenant compte des incertitudes sur la capacité de résistance des enceintes, ont été élaborées pour évaluer la probabilité conditionnelle de défaillance pour chaque niveau de sollicitation (*figure 4*), selon que le Tam a été ou non renforcé (ces deux cas coexisteront pendant une dizaine d'années, compte tenu du calendrier des visites décennales) (2).

L'EPS2 REP 900 a également été quantifiée, à titre d'étude de sensibilité, en supposant certaine la rupture d'au moins une traversée (autre que celle du Tam), si la pression dans l'enceinte dépasse temporairement 6 bars. Cette valeur de 6 bars correspond à une exigence de tenue des équipements et structures nécessaires au confinement, formulée dans le projet de « référentiel accidents graves » d'EDF.

Rejets et conséquences

Comme cela a été précédemment explicité, la réalisation d'une EPS de niveau 2 conduit à calculer les rejets de substances radioactives dans l'environnement pour chaque « famille de progression d'accident ».

L'IRSN a élaboré un code de calcul dédié à cette tâche, qui permet de calculer les relâchements des substances radioactives depuis le cœur du réacteur dans l'enceinte de confinement, leur comportement dans cette enceinte et les relâchements possibles dans l'environnement. Quatre groupes de substances radioactives sont considérés (gaz rares, iode sous forme moléculaire, iode sous forme organique, aérosols). Pour chaque groupe, l'activité rejetée est évaluée à l'aide de modèles élaborés sur la base des résultats des programmes de recherche, tels les programmes PHÉBUS et VERCORS. Une mise à jour de ces modèles sera effectuée ultérieurement lorsque les résultats du programme international ISTP (International SOURCE TERM Programme), coordonné par l'IRSN, seront disponibles.

L'amplitude des conséquences radiologiques associées aux « familles de progression d'accident » étudiées dans l'EPS de niveau 2 a été évaluée moyennant des hypothèses météorologiques. Cette évaluation a été réalisée avec les outils développés par l'IRSN pour le centre de crise et permet de mieux hiérarchiser les accidents considérés.

⁽¹⁾ ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code) : code de calcul des accidents graves des réacteurs, développé par l'IRSN et son homologue allemand la GRS.

⁽²⁾ La mise en service des réacteurs de type CPY en France s'est étendue de 1980 à 1987.

Les résultats de l'EPS2 REP 900

Mode de défaillance du confinement

Compte tenu du nombre d'EDI retenu à l'entrée de l'étude EPS2 et de la finesse de l'arbre d'événements, l'EPS2 REP 900 considère plusieurs milliers de « familles de progression d'accident » (ou FPA). Pour permettre la présentation et l'analyse des résultats, les FPA obtenues sont d'abord regroupées en une vingtaine de situations, dénommées familles de progression de l'accident regroupées (FPA-R), qui se distinguent uniquement par le (ou les) mode(s) de défaillance du confinement.

La figure 5 présente les fréquences moyennes calculées de défaillance de l'enceinte de confinement (par année et par réacteur, en retenant le premier mode⁽³⁾ de défaillance du confinement) et ce pour les états en puissance et pour les états à l'arrêt du réacteur (en supposant le Tam renforcé).

Quelques précisions sur les modes de défaillance considérés sont apportées ci-après :

- les situations de type « renoyage réussi et confinement intègre » regroupent les situations pour lesquelles la progression de l'accident est arrêtée dans la cuve ou hors de la cuve mais sans percée du radier et sans aucune autre défaillance du confinement ; ces situations conduisent néanmoins à des rejets (limités) dans l'environnement du fait du taux de fuite « normal » de l'enceinte ;
- les initiateurs « RTGV initiale » et « V-LOCA » (bipasse de l'enceinte par un circuit connecté au circuit primaire) sont spécifiques aux états en puissance;
- la fréquence des initiateurs conduisant à une situation de type V-LOCA est largement supérieure à celle des autres initiateurs considérés ; cela est dû à une séquence spécifique de fusion du cœur (avec fuite de la barrière thermique d'une pompe primaire); il faut noter ici que, dans le cadre du réexamen de sûreté associé aux troisièmes visites décennales des réacteurs de ce palier, il a été recommandé par le groupe permanent chargé des réacteurs qu'EDF définisse et mette en place des dispositions permettant de diminuer la fréquence de ce scénario ;
- dans les états à l'arrêt du réacteur, les initiateurs de type « dilution hétérogène » sont caractérisés par une fréquence relativement élevée, due également à une séquence particulière ;
- les situations de type « brèche liquide » correspondent à des situations avec fuite hors de l'enceinte de confinement par des traversées connectées au circuit primaire ou par des circuits

Probabilité conditionnelle (%)

en fonction de la pression.

assurant la recirculation de l'eau des puisards de l'enceinte ; contrairement au cas des situations de type V-LOCA, ces fuites apparaissent au cours de l'accident et n'en constituent pas un initiateur ;

- les situations de type « non-refermeture du Tam » sont spécifiques aux états d'arrêt du réacteur pour intervention et regroupent des scénarios avec échec de la refermeture de traversées ouvertes pour les opérations de maintenance (tampon d'accès des matériels, sas personnel...);
- les situations de type « combustion d'hydrogène suite à un renoyage » regroupent les cas d'injection d'eau borée dans le circuit primaire, au cours de la dégradation du cœur dans la cuve, avec accroissement de la production d'hydrogène par oxydation du zircaloy, non compensée par les recombineurs, et avec défaillance du confinement à la suite d'une combustion d'hydrogène ;
- les situations de type « explosion de vapeur hors cuve » correspondent à des scénarios conduisant à une perte d'étanchéité du confinement à la suite d'une explosion de vapeur dans le puits de cuve ;
- les situations de type « défaillance des organes d'isolement » correspondent à des cas de perte d'étanchéité d'un organe d'isolement d'une traversée de l'enceinte, du fait des conditions de pression, de température et de rayonnement qui peuvent régner dans l'enceinte en cas d'accident grave.

Influence des valeurs limites retenues pour tenue de l'enceinte de confinement

Des études de sensibilité aux valeurs limites retenues pour la tenue de l'enceinte de confinement ont été réalisées (Tam non renforcé

¹⁰⁰ 90 80 70 60 50 40 30 20 10 Tam non renforcé Tam renforcé | ----Figure 4 Probabilité de défaillance de l'enceinte de confinement

⁽³⁾ De nombreux scénarios de l'EPS2 conduisent à plusieurs modes de défaillance de l'enceinte de confinement ; par exemple, un scénario de fusion du cœur avec une petite fuite d'une traversée de l'enceinte entraînant des rejets peut aussi ultérieurement prévoir l'ouverture du dispositif d'éventage-filtration, lorsque la pression peut conduire à l'ouverture du dispositif U5.

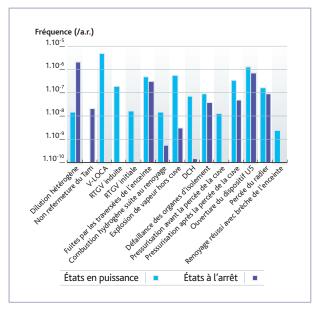


Figure 5 Fréquence moyenne des situations de perte

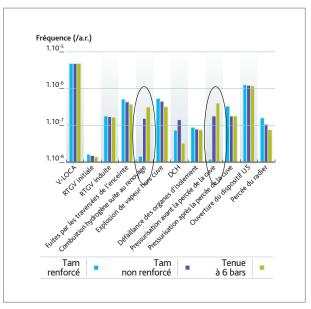


Figure 6 Sensibilité aux limites de tenue de l'enceinte de confinement.

ou hypothèse très pessimiste de défaillance d'une traversée en cas de pression dépassant 6 bars absolus) et montrent un impact sensible des hypothèses sur la fréquence des modes de rupture suivants (*figure 6*) :

- défaillance du confinement due à une combustion d'hydrogène après un renoyage d'un cœur dégradé (bien logiquement, la probabilité est d'autant plus élevée que les valeurs limites de tenue de l'enceinte de confinement sont faibles);
- pressurisation lente de l'enceinte pendant la dégradation du cœur dans la cuve et atteinte des conditions d'ouverture du dispositif de décompression-filtration (U5) moins de 24 heures après le début de la dégradation du combustible (formellement, le guide d'intervention en cas d'accident grave préconise d'attendre un délai supérieur à 24 h) ; il faut noter que les équipes de crise préconiseraient sans doute l'ouverture du dispositif plus tôt, ce qui n'est pas pris en compte dans l'étude EPS2 REP 900.

Hiérarchisation des situations accidentelles

Comme expliqué ci-dessus, l'EPS2 REP 900 inclut une évaluation des rejets et de leurs conséquences pour chaque famille de progression d'accident envisagée. Cela permet d'élaborer, au travers des couples fréquence/conséquences, une hiérarchisation des différents scénarios étudiés. Ainsi, pour l'IRSN, il convient d'examiner en détail les situations associées aux fréquences les plus élevées et aux conséquences les plus graves.

La *figure* 7 montre comment se répartissent les « familles de progression d'accident » identifiées dans l'EPS de niveau 2 dans

un diagramme fréquence/conséquences. L'échelle Ines de l'AIEA a été utilisée de manière à positionner les scénarios accidentels de manière qualitative vis-à-vis de leurs conséquences.

Les familles 1 à 5 sont caractérisées par l'émission d'une quantité importante de produits de fission sous forme d'aérosols, notamment le césium 137, qui serait responsable d'une contamination de longue durée de l'environnement. Pour ces familles d'accident, l'amplitude des conséquences dans l'environnement dépend principalement de la fraction d'aérosols déposés à l'intérieur de l'enceinte de confinement ou dans les bâtiments auxiliaires.

Pour les familles 8 et 9, la majeure partie des aérosols resterait piégée dans l'enceinte de confinement et seuls des produits de fission sous forme gazeuse seraient émis dans l'environnement (gaz rares et iodes principalement pour le scénario 8). Les scénarios 6 et 7 sont intermédiaires, avec une contribution aux conséquences de l'accident du même ordre de grandeur que les produits de fission, sous formes d'aérosols et gazeuse.

Enseignements tirés de l'étude EPS2 REP 900

L'EPS2 REP 900 constitue un outil important pour l'IRSN. Il convient de rappeler à ce sujet qu'en France, les EPS de référence sont élaborées par l'exploitant [Règle fondamentale de sûreté, ASN].

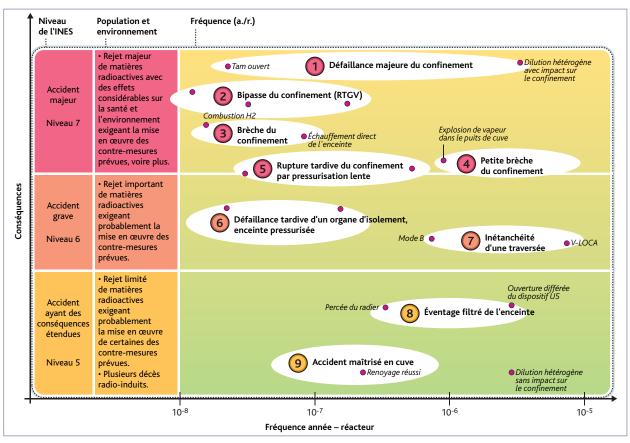


Figure 7 Diagramme fréquence-conséquences.

L'IRSN développe ses propres études, de manière à faciliter l'examen des résultats et des conclusions des études menées par l'exploitant. L'utilisation de l'EPS2 REP 900 s'inscrit d'abord dans ce cadre.

Ainsi, l'étude a vocation à être utilisée dans une démarche d'amélioration continue des installations. Les résultats obtenus permettent d'identifier des points relativement faibles des installations ou des connaissances pour lesquels des améliorations semblent pertinentes. Quelques exemples sont donnés ci-après :

- la fréquence calculée de dilution hétérogène apparaît élevée, compte tenu des conséquences possibles d'une telle situation ; cette fréquence étant due principalement à un scénario particulier identifié par l'IRSN (fuite d'un échangeur), l'étude de ce scénario doit être poursuivie activement ;
- la fréquence calculée de perte d'étanchéité du confinement à la suite d'une explosion de vapeur dans le puits de cuve apparaît également relativement élevée ; ce sujet fait l'objet de discussions techniques avec EDF ; des études complémentaires sur les chargements induits et sur la résistance de l'enceinte de confinement à ces chargements apparaissent encore nécessaires ; de plus, le rôle

bénéfique de la présence d'eau dans le puits de cuve pour refroidir le corium après la défaillance de la cuve et éviter le percement du radier doit également être considéré;

- l'étude fait apparaître un risque de défaillance du confinement par combustion d'hydrogène après une injection d'eau dans la cuve ; la fréquence calculée de ce type de scénario est faible, du fait des précautions déjà prises par l'exploitant (interdiction d'injection d'eau à faible débit au début de la dégradation du cœur) ; toutefois, l'IRSN considère qu'une optimisation des actions préconisées dans le guide d'intervention en cas d'accident grave est possible et doit être recherchée [Raimond et Laurent, 2007] ;
- certaines séquences correspondent à des situations de fusion du cœur en pression, avec risque de bipasse de l'enceinte de confinement en cas de rupture de tubes de générateurs de vapeur ; des dispositions de conduite spécifiques sont pourtant prévues pour dépressuriser le circuit primaire avant le début de la dégradation du cœur ou au plus tard à ce moment ; ces séquences seront réexaminées en détail et devront sans doute faire l'objet d'études approfondies ;
- les séquences susceptibles de conduire à une ouverture du

système d'éventage-filtration (U5) moins de 24 heures après le début de la dégradation du cœur seront réexaminées en détail;

• l'étude montre l'importance des limites de tenue ultime des enceintes de confinement (au-delà de la pression de dimensionnement initiale) et rappelle l'importance du bon état de ces enceintes ; elle a également montré l'intérêt de modifications permettant de renforcer des enceintes au-delà de leur dimensionnement initial (Tam renforcé).

De façon plus générale, l'étude EPS2 REP 900 et les études menées en support apportent de nombreuses connaissances sur ce qui pourrait survenir en cas d'accident grave dans ces réacteurs de 900 MWe. Ces connaissances sont établies sur la base de l'état de l'art en termes de R&D et de moyens de simulation numérique; elles facilitent le dialogue avec EDF sur des sujets aussi complexes.

Néanmoins, si ce type d'étude apporte des éclairages et des éléments de compréhension essentiels, il n'en demeure pas moins que les résultats numériques doivent être utilisés avec beaucoup de prudence. Une bonne compréhension des modèles mis en œuvre et de leurs limitations (en tenant compte notamment des éléments de

validation disponibles) doit en effet nécessairement accompagner l'interprétation des résultats.

■ Conclusion et perspectives

La version de l'EPS2 REP 900, sur laquelle repose cet article, a été élaborée au cours de la période 2004-2008 et les résultats obtenus traduisent la vision des ingénieurs de l'IRSN sur la base des résultats des programmes expérimentaux et des outils de simulation à leur disposition à cette période.

Certains sujets font encore l'objet de programmes de recherche (connaissance des rejets, explosion de vapeur, impact du renoyage d'un cœur dégradé, risque de combustion d'hydrogène en cas d'aspersion dans l'enceinte de confinement...); certains pourront venir modifier ultérieurement les résultats de l'étude. L'IRSN, dans ce domaine, a l'intention d'élaborer une étude du même niveau de détail pour les réacteurs de 1 300 MWe, en amont de la préparation de leurs troisièmes visites décennales (prévues à partir de 2010), puis de réaliser une étude pour le réacteur EPR.

Références

- ASN Règle fondamentale de sûreté n° 2002-01 Développement et utilisation des études probabilistes de sûreté pour les réacteurs nucléaires à eau sous pression
- F. Charpin, E. Raimond, B. Chaumont, Petten (2005). Technical basis for off-site emergency planning in France, Seminar on Emergency & Risk Zoning around Nuclear Power Plants, The Netherlands.
- G. Nahas, B. Cirée. IRSN Rapport scientifique et technique 2007 Analyse du comportement mécanique des enceintes de confinement des REP 900 MWe CPY en conditions d'accident grave.
- E. Raimond, C. Caroli, B. Chaumont (2004). Status of IRSN level 2 PSA, CSNI/WG Risk, workshop level 2 PSA and severe accident management, Koln, Germany.
- E. Raimond, R. Meignen, J. Dupas, D. Plassard, B. Laurent (2004). Advanced modelling and response surface method for physical models of level 2 PSA event tree, CSNI/WG risk, workshop level 2 PSA and severe accident management, Koln, Germany.
- E. Raimond, N. Rahni, M. Villermain (2005). Method implemented by the IRSN for the evaluation of uncertainties in level 2 PSA. Some examples, Workshop on evaluation of uncertainties in relation to severe accidents and level 2 PSA, Cadarache, France.
- E. Raimond, K. Chevalier, F. Pichereau (2006). Link between Level 2 PSA and off-site emergency preparedness, PSAM8, New Orleans, USA.
- E. Raimond, B. Laurent. IRSN Rapport scientifique et technique 2007 Application des EPS de niveau 2 et des techniques de fiabilité dynamique à la validation des guides d'intervention en cas d'accident grave.
- E. Raimond, T. Durin, B. Laurent, K. Chevalier-Jabet (2008). L2 PSA: a dynamic event tree approach to validate PWR severe accident management guidelines, PSA2008, Knoxville, USA.
- Rapport IRSN et CEA (2006). R&D relative aux accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée: bilan et perspectives (rapport IRSN 2006-73 rév. 1 − rapport CEA 2006/474). Research and development with regard to severe accidents in pressurized water reactors: Summary and outlook − Rapport IRSN-2007-83.
- M. Villermain, E. Raimond, K. Chevalier, N. Rahni, B. Laurent (Mai 2008). Method for Examination of Accidental Sequences with Multiple Containment Failure Modes in the French 900 MWe PWR Level 2 PSA, PSAM9, Hong-Kong.

EFFETS DE LA GÉOLOGIE LOCALE SUR LES **MOUVEMENTS SISMIQUES:**

estimation site-spécifique de l'aléa sismique

Luis Fabián BONILLA, Stéphane NECHTSCHEIN, Céline GELIS, Sylvette BONNEFOY-CLAUDET, David BAUMONT Bureau d'évaluation des risques sismiques pour la sûreté des installations

L'évaluation de l'aléa sismique pour un site donné consiste à estimer le mouvement du sol qui pourrait résulter d'un tremblement de terre qui affecterait le site. Un tel mouvement observé à la surface résulte de la combinaison de l'action de la source sismique qui génère des ondes sismiques, de la propagation de ces ondes entre la source et le site, et des conditions géologiques locales du site (figure 1).

La représentation mathématique du mouvement sismique i enregistré par la station j, Oii(f) correspond dans le domaine fréquentiel (spectre de Fourier) au produit suivant (équation1) :

 $O_{ii}(f) = S_{i}(f) P_{ii}(f) F_{i}(f) I_{i}(f)$

où $S_i(f)$, $P_{ii}(f)$, $F_i(f)$ et $I_i(f)$ sont les termes représentant respectivement la source sismique i, les effets de la propagation entre la source i et la station j, les conditions du site sous la station j et la réponse

instrumentale du sismomètre de la station j. Cette opération mathématique s'appelle une convolution. Le mouvement peut être évalué en termes de déplacement, de vitesse ou d'accélération du sol durant le séisme.

Le présent article illustre la nécessité de tenir compte des conditions géologiques locales pour estimer le mouvement sismique propre à un site donné (estimation propre à un site ou site-spécifique). Ce terme est également connu sous les noms d'effet de site, de réponse du site ou encore de fonction de transfert du site.

Surface du sol Couches superficielles Substratum rocheux Milieu de propagation

Figure 1 Schéma de la propagation des ondes sismiques depuis la source sismique où elles sont générées jusqu'au site considéré où elles sont observées. Les conditions locales du site sont caractérisées par la présence de couches superficielles ayant des propriétés géotechniques différentes du substratum rocheux (modifié d'après [Kramer, 1996]).

Définition d'un effet de site

Un effet de site correspond à une modification du mouvement sismique produite par la géologie locale. L'étude des effets de site est aujourd'hui l'un des objectifs les plus importants du génie parasismique. L'analyse des enregistrements sismiques met en évidence le fait que la géologie locale a une influence forte sur la variation spatiale du mouvement sismique. Les dégâts matériels et les pertes humaines provoqués par les tremblements de terre sont fréquemment le résultat direct des effets de site locaux. Par conséquent,

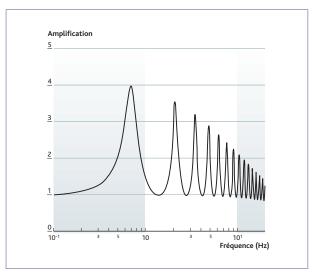


Figure 2 Amplification en fonction de la fréquence (|F(f)|) pour un modèle unidimensionnel d'une couche de sol sur un demi-espace.

toute tentative de zonage sismique doit tenir compte des effets de site de manière approfondie.

Pour un modèle unidimensionnel composé d'une couche de sol d'épaisseur H se trouvant au-dessus d'un demi-espace, le terme F(f) a une solution analytique [Kramer, 1996] :

$$F(f) = \frac{1}{\cos(\kappa_s^* H) + \zeta^* i \sin(\kappa_s^* H)}$$

où κ_s^* est le nombre d'ondes et ζ^* est le contraste d'impédance. Ces deux termes sont définis de la manière suivante :

$$\kappa^* = 2\pi f \sqrt{\frac{\rho}{G}}$$

$$\zeta^* = \frac{\kappa_s^* G_s^*}{\kappa_r^* G_r^*}$$

oú ρ est la densité, ξ est l'amortissement, G est le module de cisaillement et les indices s et r désignent respectivement la couche de sol et le demi-espace. Le module de cisaillement G est égal au produit $\rho \beta^2$, β étant la vitesse des ondes de cisaillement. Bien que le terme F(f) soit un nombre complexe, l'effet de site est généralement représenté par son module |F(f)| qui montre l'amplification en fonction de la fréquence $(figure\ 2)$.

L'analyse du terme |F(f)| indique qu'une augmentation du contraste de vitesse entre le sol et le demi-espace se traduit par une augmentation de l'amplification. Ce terme atteint sa valeur maximale à la fréquence de résonance définie par :

$$f = \frac{\beta}{4H}$$

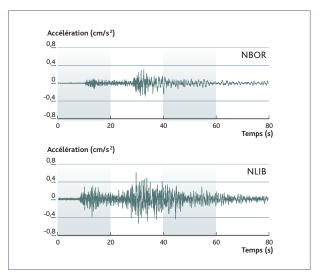


Figure 3 Accélérogrammes (composantes est-ouest) enregistrés sur les stations NBOR (rocher) et NLIB (sédiments), localisées à Nice et distantes de 2 km.

Ces enregistrements correspondent à un événement sismique du 21/08/2000 de magnitude 5, localisé à une distance épicentrale de 158 km (nord de l'Italie).

Toutefois, l'estimation de la fréquence de résonance ne suffit pas à préciser l'effet de site. En effet, comme l'illustre la *figure 2*, la réponse du site est un phénomène à large bande.

Influence de l'effet de site sur le mouvement sismique

L'effet de site est décrit par la fonction de transfert dans le domaine fréquentiel. Dans le domaine temporel, il se traduit par une augmentation de l'amplitude des signaux sismiques et de leur durée. La *figure 3* illustre l'effet des conditions géologiques locales sur le mouvement sismique en comparant l'enregistrement au niveau du rocher (station NBOR) et l'enregistrement au niveau du sédiment (station NLIB située à environ 2 km de NBOR) d'un séisme de magnitude 5, localisé à une distance épicentrale de 158 km. Il est à noter que le signal enregistré au niveau des sédiments est de plus forte amplitude et de plus longue durée que celui enregistré au niveau du rocher. Les effets de site peuvent être accentués par la présence de bassins et de reliefs (milieux hétérogènes à 2D, voire à 3D) affectant la propagation des ondes sismiques.

Quel est l'impact des effets de site sur les constructions ? Tout bâtiment présente une fréquence de résonance qui lui est propre. Il est donc primordial de déterminer si la géologie locale peut induire des effets de résonance à une fréquence proche de la fréquence de résonance d'une structure, comme cela fut le cas

lors du séisme de Michoacán, en 1985, au Mexique. En effet, bien que l'épicentre du séisme ait été localisé à environ 400 km de Mexico, un grand nombre d'immeubles comportant entre 8 et 12 étages se sont effondrés dans cette ville car leur fréquence de résonance était proche de celle du bassin de Mexico. Le remplissage sédimentaire de ce bassin a amplifié jusqu'à 40 fois le mouvement sismique à 0,5 Hz par rapport à celui enregistré au niveau du rocher environnant [Singh et al., 1988]. Cette tragédie marqua le début des études modernes des effets de site.

Estimation de l'effet de site

La solution analytique décrite dans le paragraphe précédent n'est valable que pour une géométrie unidimensionnelle composée d'une seule couche placée au-dessus d'un demi-espace, situation très rarement rencontrée dans la nature. Dans des cas réalistes plus complexes (géométrie 1D à plusieurs couches et configurations à 2D et à 3D), aucune solution analytique n'existe. Il est donc nécessaire d'avoir recours à des solutions numériques pour évaluer les effets de site. Pour ce type de solution, une modélisation de la structure géologique est indispensable. Les effets de site peuvent également être estimés de manière empirique, pour tout type de configuration géométrique, en utilisant des enregistrements de séismes.

Les travaux de [Borcherdt, 1970] et [Hartzell, 1992] montrent qu'avec un couple de stations sismiques, l'une installée sur des sédiments, l'autre sur du rocher, l'amplification produite par les couches sédimentaires est obtenue en calculant le rapport entre les spectres de Fourier des signaux enregistrés simultanément au niveau des sédiments et au niveau du rocher. Cette technique d'estimation empirique de l'effet de site repose sur l'hypothèse que le mouvement sismique au niveau du rocher provient directement de la source sans être modifié par les sédiments.

Pour cette raison, la station sismique au rocher s'appelle « station de référence ». L'équation 1 représente le spectre de Fourier d'un signal sismique. Le rapport, pour une même source sismique, du signal au niveau d'un site donné et au niveau de la station de référence permet d'éliminer le terme identifiant la source, S(f). De plus, si la distance entre la station aux sédiments et la station de référence est faible par rapport à leur distance hypocentrale, les effets de propagation entre la source sismique et chaque station représentés par le terme P(f) s'annulent également. La station au rocher étant la station de référence, son terme de site $F_r(f)$ est égal à 1. Finalement, le rapport spectral est proportionnel au terme de site $F_s(f)$ des sédiments.

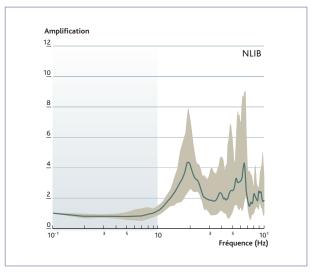


Figure 4 Fonction de transfert empirique pour la station NLIB (station de réseau accélérométrique permanent RAP à Nice). La courbe verte représente la fonction moyenne et l'aire beige représente les limites de confiance jusqu'à 68 %. La station de référence est NBOR.

Pour un site spécifique et lors de chaque séisme, les enregistrements des stations sismiques (sédiments et référence) permettent de déterminer ce rapport. Les sources sismiques étant localisées à divers azimuts et distances hypocentrales, l'effet de site de la station aux sédiments est estimé en calculant la moyenne géométrique de ces rapports. La *figure 4* est un exemple montrant la moyenne et les limites de confiance à 68 % (+/- un écart-type) d'une fonction de transfert calculée empiriquement. L'avantage de ce calcul empirique est que le résultat contient l'information des différentes sources, ainsi que la complexité 2D voire 3D du milieu de propagation.

La méthode décrite ci-dessus est une des plus fiables et la plus simple pour estimer l'effet de site [Hartzell, 1992 ; Bonilla et al., 1997]. Cependant, elle est coûteuse car elle nécessite l'installation d'un nombre important de stations sismiques, sur une longue période de temps, pour pouvoir enregistrer une quantité importante de séismes. Pour cette raison, une autre technique fondée sur l'analyse du bruit ambiant a été développée au début des années 1980 et a été couramment utilisée ces dix dernières années, surtout en Europe et au Japon [Bonnefoy-Claudet et al., 2006]. Cette technique consiste à présenter, en fonction de la fréquence, le rapport des modules des transformées de Fourier des composantes horizontale et verticale du bruit ambiant (rapports spectraux H/V).

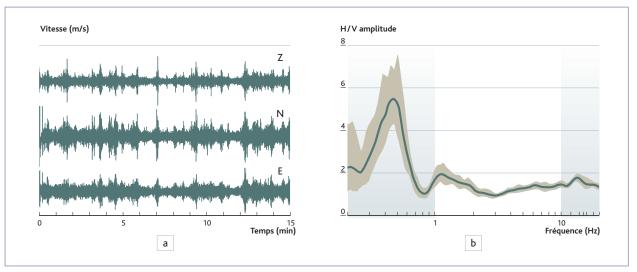


Figure 5

a) Exemple d'enregistrement des vibrations ambiantes – composantes verticale (Z), nord-sud (N) et est-ouest (E).

b) Rapport H/V calculé à partir des enregistrements montrés en (a). La courbe verte représente le rapport moyen et l'aire grise représente les limites de confiance jusqu'à 68 %. D'après [Bonnefoy-Claudet et al., 2008a].

La figure 5 présente un exemple d'enregistrement du bruit ambiant et de rapports spectraux H/V obtenus lors d'une campagne de mesures au Chili [Bonnefoy-Claudet et al., 2008a]. La fréquence du pic principal correspond en général à la fréquence de résonance du site. Bien que le principe de la méthode H/V soit simple, sa justification théorique ne fait toujours pas l'unanimité dans la communauté scientifique. Sur la base d'explications plus qualitatives que quantitatives, [Nakamura, 1989] a conclu que le pic observé sur la courbe H/V serait dû à la résonance des ondes SH piégées dans les couches sédimentaires meubles. Ces explications ont été fortement remises en cause par plusieurs études [Lachet et Bard, 1994; Kudo, 1995; Bard, 1998; Konno et Ohmachi, 1998], qui montrent que le pic observé sur la courbe H/V serait dû à la polarisation horizontale des ondes de Rayleigh, qui a lieu à une fréquence proche de la fréquence de résonance du milieu. Récemment, des travaux fondés sur une approche numérique ont permis de montrer que l'origine du pic H/V n'est pas unique et dépend de la composition physique du champ d'ondes des vibrations ambiantes [Bonnefoy-Claudet et al., 2008b].

Si la technique trouvée a connu un fort succès pour le calcul de la fréquence de résonance d'un site et pour des études de microzonage sismique, la valeur de l'amplification n'est jamais obtenue. La connaissance de la fréquence de résonance constitue une information utile mais limitée. De plus, généralement, la technique H/V ne fait pas apparaître les autres pics d'amplification (modes supérieurs) présents dans une fonction de transfert (*figure 2*). L'effet de site n'est donc pas totalement caractérisé par cette technique [Bonnefoy-Claudet *et al.*, 2008a].

Détermination des incertitudes sur l'effet de site

L'effet de site est donc caractérisé par sa fonction de transfert. Lors du calcul empirique, il est important de présenter la valeur moyenne de l'amplification en fonction de la fréquence, accompagnée des limites de confiance à 68 % qui représentent une estimation de l'incertitude (*figure 4*). Ainsi, si les intervalles de confiance sont importants, la fonction de transfert n'est pas bien caractérisée.

Dans le cas du calcul d'une fonction de transfert à partir d'un modèle numérique d'une colonne de sol, l'évaluation des incertitudes n'est pas aussi triviale. La complexité du calcul est fonction de la configuration géométrique du milieu de propagation des ondes sismiques. Par exemple, pour une configuration à 1D, la réponse du sol est rapidement calculée. Il est alors possible d'explorer plusieurs modèles numériques du milieu, de façon à déterminer une réponse moyenne et une estimation de l'incertitude associée. Par contre, dans le cas d'une géométrie à 2D, voire à 3D, la modélisation de la propagation des ondes sismiques nécessite l'obtention d'une quantité importante de données pour pouvoir décrire le milieu géologique et est très coûteuse en temps de calcul. Ceci tend à limiter le nombre de modèles explorés et reste donc limité.

La *figure 6* illustre le calcul d'une fonction de transfert à l'aide d'un modèle de sol à 1D, pour lequel la vitesse moyenne des ondes de cisaillement (ondes S) dans les 30 premiers mètres (Vs30) est de 400 m/s. Plusieurs fonctions de transfert (courbes jaunes) sont calculées par la méthode de Monte Carlo en faisant varier aléatoi-

rement la vitesse, l'épaisseur, la densité et l'amortissement de la colonne de sol. La courbe rouge en trait continu représente la réponse moyenne de toutes les fonctions de transfert obtenues et les courbes en pointillés rouges indiquent les limites de confiance à 68 %. L'incertitude augmente en fonction de la fréquence, ce qui correspond à un manque d'informations concernant les couches de sol de faible épaisseur. Ce genre de calcul pour des configurations géométriques à 2D, voire à 3D, en est encore au stade de recherche pour les raisons invoquées précédemment [Bonilla et al., 2006].

Prise en compte des effets de site dans les équations empiriques de prédiction du mouvement sismique

En génie parasismique, la mesure du mouvement sismique est généralement représentée non par un spectre de Fourier (équation 1) mais par un spectre de réponse : qui indique la réponse maximale d'un oscillateur harmonique aux mouvements sismiques pour une gamme de fréquences et un amortissement donnés [Kramer, 1996]. L'oscillateur harmonique est une approximation d'un édifice. Sur un spectre de réponse, l'accélération spectrale à fréquence infinie est assimilée à l'accélération maximale observée dans le domaine temporel (dénommée PGA, Peak Ground Acceleration).

L'équation de ce type de spectre (Sa), dénommée équation empirique de prédiction du mouvement sismique, est (*équation 2*) :

$$\log Sa_{ii}(f) = a(f) \log M_{i} - \log R_{ii} + b(f) \log R_{ii} + c_{k}(f)$$

où la source sismique $(S_i(f))$ de l'équation 1) est ici représentée par sa magnitude M_i . Les effets d'atténuation géométrique et anélastique sont fonction de la distance entre la source i et le site $j(R_{ij})$ et de l'amortissement du milieu de propagation. Les termes en R_{ij} de l'équation 2 correspondent donc au terme $P_{ij}(f)$ de l'équation 1. Enfin le coefficient $c_k(f)$ modélise les effets de site pour un type de sol k (correspondant à $F_i(f)$ dans l'équation 1).

Les termes de cette équation peuvent être plus ou moins compliqués et nombreux, mais le but est toujours de prédire le spectre de réponse avec pour seules données la magnitude, la distance source-site et les conditions de site [Bommer, 2006]. Les coefficients a(f), b(f) et $c_k(f)$ sont obtenus à l'aide d'une régression statistique sur une base de données. L'évaluation de l'aléa sismique pour les installations nucléaires en France utilise une équation de cette nature, obtenue à partir d'une base de données sismiques européennes [Berge-Thierry $et\ al.,\ 2003$].

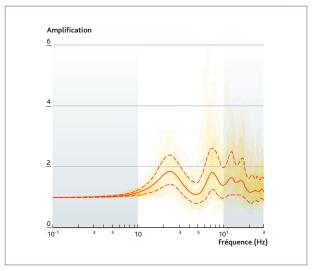


Figure 6 Illustration de l'application de la méthode de Monte Carlo permettant de faire varier les propriétés de la colonne de sol pour obtenir une fonction de transfert moyenne, ainsi qu'une estimation de l'incertitude associée. Les courbes en jaune représentent la fonction de transfert de différents modèles de sol. Les courbes en rouge correspondent à l'amplification moyenne (trait continu) et aux limites de confiance à 68 % (pointillés).

	EC8	NEHRP
Α	Vs30 > 800 m/s	Vs30 > 1 500 m/s
В	360 < Vs30 < 800 m/s	760 < Vs30 < 1 500 m/s
С	180 < Vs30 < 360 m/s	360 < Vs30 < 760 m/s
D	Vs30 < 180 m/s	180 < Vs30 < 360 m/s
E	Sol du type D ou C ayant une épaisseur de 20 m sous- jacent un sol de type A	Vs30 < 180 m/s

Tableau 1 Classification de la condition de site utilisée en Europe (EC8) et aux États-Unis (NEHRP).

Le calcul du coefficient $c_k(f)$ de l'équation 2 nécessite la classification géotechnique du type de sol. Pour la majorité des stations sismiques dans le monde, cette information sur les conditions de site est loin d'être systématique. Par exemple, les stations du réseau japonais Knet sont caractérisées jusqu'à une profondeur maximale de 20 m seulement.

Quant au réseau Kiknet, également japonais, il est constitué de stations installées en surface et en profondeur. Pour chacune d'entre elles, sont précisées les données géotechniques de la colonne de sol entre 100 m et 200 m de profondeur. La connaissance d'un tel profil géotechnique n'est pas courante pour les réseaux sismiques européens.

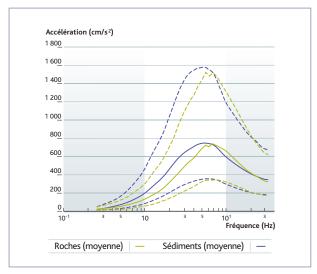
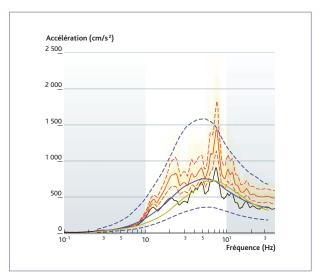


Figure 7 Spectre de réponse pour un événement de magnitude 6 localisé à 8 km (distance hypocentrale) de sites « aux sédiments » (courbe bleue) et « au rocher » (courbe verte). Les courbes en trait plein correspondent à la valeur médiane et celles en pointillés correspondent aux limites de confiance à 68 %. Les coefficients utilisés sont ceux de l'équation prédictive du mouvement de [Berge-Thierry et al., 2003].

La classification des types de sol est réalisée à partir d'informations sur la vitesse des ondes de cisaillement de la colonne de sol. En effet, la connaissance de cette vitesse permet de déterminer le module de cisaillement du matériel ($G = \rho \beta^2$). Plus la vitesse est élevée, plus le matériel est résistant. En génie parasismique, la vitesse moyenne des ondes de cisaillement dans les 30 premiers mètres de profondeur, Vs30, est utilisée pour la description des sites. Par exemple, aux États-Unis, la classification standard est définie dans le programme NEHRP [BSSC, 2000] et en Europe dans l'Eurocode 8 [EUROCODE 8, 2002]. Ces deux classifications sont présentées dans le $tableau\ 1$.

Bien entendu, l'absence d'information sur la Vs30 exclut l'utilisation des classifications du *tableau 1* lors de l'utilisation des équations de prédiction empirique du mouvement sismique. Dans ce cas de figure, des critères géologiques et géotechniques peuvent être utilisés pour différencier des conditions dites « aux sédiments » et des conditions dites « au rocher » [Berge-Thierry et al., 2003]. Récemment [Zhao et al., 2006] et [Fukushima et al., 2007] ont proposé des équations prédictives fondées sur une classification à partir de la fréquence de résonance du site.

La *figure* 7 montre deux spectres de réponse calculés pour des conditions « au rocher » (courbe verte) et « aux sédiments » (courbe bleue) à l'aide de l'équation de [Berge-Thierry et al., 2003],



Estimation des spectres de réponse propres à un site (courbes en jaune), obtenus en propageant un signal incident (courbe noire) dans un milieu stochastique 1D.

Les courbes en rouge correspondent à la valeur moyenne (trait en continu) et aux limites de confiance à 68 % (pointillés). Le spectre de réponse « au rocher » (Vs30 > 800 m/s) prédit par le modèle de [Berge et al., 2003] pour un couple magnitude-distance (6,8 km) est également représenté (courbe en vert), ainsi que le spectre de réponse « aux sédiments » (300 m/s < Vs30 < 800 m/s) (courbe en bleue) et le spectre de réponse médian « aux sédiments » +/- un écart-type (courbes en pointillés bleus).

en considérant un événement de magnitude 6 localisé à une distance hypocentrale de 8 km. L'accélération spectrale médiane est représentée par les courbes en trait continu, tandis que les limites de confiance à 68 % sont représentées par les courbes en pointillés. Cette figure illustre trois aspects importants de la représentation du mouvement sismique par un spectre de réponse. Premièrement, aux fréquences intermédiaires (de 3 à 8 Hz dans cet exemple), l'accélération spectrale est nettement supérieure à celle prédite au au PGA. Deuxièmement, pour des fréquences intermédiaires à basses (fréquences inférieures à 5 Hz sur la figure 7), l'accélération spectrale prédite pour des conditions de type « sédiments » (courbe bleue) est plus forte que celle prédite pour des conditions de type « rocher » (courbe verte), ce qui correspond à l'effet de site. Troisièmement, pour les hautes fréquences (fréquences comprises entre 8 et 20 Hz sur la figure 7), l'accélération spectrale prédite « au rocher » est supérieure à celle prédite « aux sédiments ». Cette différence à haute fréquence résulte à la fois de l'amplification des mouvements pour les sites localisés sur un rocher altéré et/ou de l'absorption de l'énergie à haute fréquence dans les sédiments. Elle peut également provenir d'une réponse non linéaire du sol. En effet, le comportement non linéaire d'un matériau implique un changement de sa résistance en fonction de la déformation. La description d'une telle rhéologie va au-delà de cet article, cependant, il faut

noter que la non-linéarité du sol se manifeste généralement par une atténuation du mouvement sismique aux hautes fréquences.

Le coefficient c_k utilisé dans les équations empiriques de prédiction du mouvement sismique représente donc un effet de site moyen pour chaque type de sol défini par une gamme large de Vs30 ($tableau\ 1$). Il ne peut pas tenir compte des spécificités d'un site donné précis. L'utilisation d'un tel coefficient peut dès lors conduire à des spectres de réponse relativement différents de ceux calculés à l'aide d'une estimation dite propre à un site, c'est-à-dire effectuée sur la base de données géotechniques et sismiques propres au site.

Estimation site-spécifique : cas d'un modèle à 1D multicouche

Pour estimer le mouvement sismique en un site particulier, pour un couple magnitude-distance donné, il est nécessaire de représenter le milieu géologique superficiel et les sollicitations sismiques incidentes à la base de ce milieu [Archuleta et al., 2003; Heuze et al., 2004]. Le modèle à 1D multicouche considéré est celui utilisé pour déterminer la fonction de transfert décrite dans la *figure 6* et le couple magnitude-distance choisi est (6,8 km). Pour représenter les sollicitations sismiques incidentes, plusieurs accélérogrammes synthétiques ont été calculés pour ce couple magnitude-distance à l'aide du modèle de [Pousse et al., 2006]. L'accélérogramme synthétique retenu est celui dont le spectre de réponse est le plus proche du spectre de réponse prédit « au rocher » par l'équation de [Berge-Thierry et al., 2003] (figure 8).

Ce signal a été modifié pour tenir compte des spécificités locales du milieu géologique superficiel. Afin de tenir compte de la méconnaissance des propriétés géotechniques de ce milieu, de nombreux modèles géologiques ont été générés par la méthode de Monte Carlo (de manière analogue à la *figure 6*). Le mouvement sismique propre à un site et le spectre de réponse associé ont été calculés pour chaque modèle géologique. Les résultats obtenus sont synthétisés sur la *figure 8* sous la forme du spectre de réponse moyen et de ses limites de confiance à 68 % (courbes en jaune et en rouge) et sont comparés au spectre de réponse prédit « aux sédiments » (courbe bleue) par l'équation prédictive de [Berge-Thierry *et al.*, 2003].

La prise en compte spécifique du milieu géologique superficiel se traduit par une augmentation de l'accélération spectrale sur une large gamme de fréquences (courbes rouges) par rapport à la prédiction « aux sédiments » (courbe bleue), en particulier aux fréquences 2 et 7 Hz. Afin de tenir compte des incertitudes sur la connaissance du

milieu, le spectre de réponse choisi pourrait correspondre au spectre médian plus un écart-type (courbe en pointillés bleus).

Estimation site-spécifique : cas de la propagation des ondes sismiques dans un milieu à 2D

Les exemples développés jusqu'à présent décrivent des effets de site produits par une configuration à 1D. Lorsque le milieu de propagation ne peut plus être considéré comme une superposition de couches planes (bassins sédimentaires et régions montagneuses), d'autres phénomènes, notamment la génération d'ondes de surface aux bords des bassins, peuvent également être responsables d'une augmentation de l'amplitude et de la durée des signaux sismiques. Les travaux de recherche sont donc consacrés à la caractérisation du milieu de propagation et à la simulation numérique de la propagation des ondes sismiques.

Actuellement, la modélisation de la propagation des ondes sismiques dans des milieux à 3D est restreinte à des domaines de fréquences inférieures de 1 à 4 Hz pour de grands bassins (plusieurs milliers de km²) comme ceux de Los Angeles aux États-Unis, Sendai au Japon et Wellington en Nouvelle-Zélande [Olsen et Archuleta, 1996; Satoh et al., 2001; Benites et Olsen, 2005]. Cependant, pour les besoins du génie parasismique, il serait nécessaire de calculer la réponse d'un bassin sédimentaire jusqu'à des fréquences proches de 10 Hz et même parfois supérieures. Cette nécessité mène à une difficulté pratique car elle exige la connaissance du milieu géologique pour des longueurs d'onde proches de la fréquence maximale des calculs. Par exemple, pour des fréquences proches de 10 Hz, la longueur d'onde associée est de l'ordre de quelques mètres ; le milieu géologique doit donc être connu à cette échelle pour réaliser des simulations à 3D. Ce degré de connaissance est aujourd'hui impossible à obtenir. De plus, il serait difficile de stocker le volume d'informations géologiques correspondant et le temps de calcul requis serait prohibitif.

Pour un bassin sédimentaire de plus faibles dimensions (quelques dizaines de km²), qui peut être traité par une configuration à 2D (en considérant que l'onde incidente peut être assimilée à une onde plane, les moyens de calcul actuels permettent de simuler la réponse du bassin à des fréquences supérieures à 4 Hz. Néanmoins, même dans ce cas plus simple, le milieu de propagation doit être caractérisé à l'échelle de la longueur d'onde (de l'ordre de la dizaine de mètres) correspondant à la fréquence maximale de calcul, ce qui n'est pas toujours le cas.

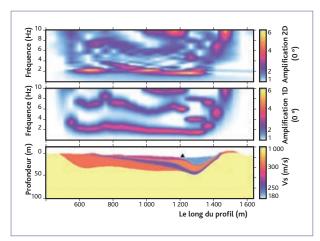


Figure 9

Exemples de fonctions de transfert calculées pour un modèle à 2D (panneau supérieur) et à partir de colonnes de sol à 1D (panneau intermédiaire), pour le cas d'une incidence verticale d'une onde plane. Le triangle noir montre la localisation de la station NLIB d'après [Gélis et al., 2008].

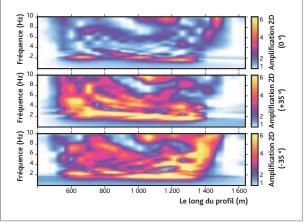


Figure 10 Fonctions de transfert calculées pour un modèle à 2D pour une onde plane d'incidence verticale (panneau supérieur), d'incidence à 35° de gauche à droite (panneau intermédiaire) et d'incidence à – 35° de droite à gauche (panneau inférieur, d'après [Gélis et al., 2008].

Il existe tout de même des bassins, comme celui de la ville de Nice, pour lesquels la géologie du sous-sol est connue avec une précision suffisante pour pouvoir simuler la propagation des ondes sismiques. Une compilation des études géotechniques et géophysiques effectuées pour ce bassin a permis l'élaboration d'un modèle de vitesses à 3D [Gemgep, 2000]. À l'aide d'une coupe est-ouest de ce modèle, des simulations à une et deux dimensions ont été réalisées le long du profil contenant la station NLIB mentionnée dans les *figures 3* et 4 [Gélis *et al.*, 2008]. La profondeur de cette coupe est de 125 m et sa largeur est de 2,2 km. Les vitesses minimale et maximale des ondes de cisaillement sont respectivement de 180 m/s et 1 000 m/s. La méthode des différences finies a été utilisée pour calculer la propagation des ondes P et SV dans cette configuration [Saenger *et al.*, 2000].

La figure 9 montre la fonction de transfert obtenue à partir de la propagation d'un accélérogramme synthétique en considérant une incidence verticale de l'onde plane incidente SV. Le panneau inférieur illustre la géométrie de la coupe est-ouest du bassin mentionnée ci-dessus. Le panneau intermédiaire représente la fonction de transfert calculée à partir des colonnes de sol (informations à 1D) sondant le modèle à 2D tous les 50 m. Le panneau supérieur représente la véritable fonction de transfert du modèle à 2D. Le calcul à 1D modélise globalement la réponse du profil 2D du bassin avec une amplification maximale de l'ordre de 4, tandis que le calcul à 2D montre des amplifications supérieures (environ 6), pour la fréquence fondamentale, ainsi qu'aux bords du petit bassin (localisé entre 1 200 et 1 400 m le long du profil).

Dans ce type de configuration, l'effet de l'angle d'incidence des ondes provenant directement de la source sismique sur la réponse du bassin est également très significatif. La *figure 10* illustre le cas de deux ondes planes se propageant, l'une de la droite vers la gauche avec un angle d'incidence de -35° (panneau inférieur) et l'autre de la gauche vers la droite avec un angle d'incidence de $+35^{\circ}$ (panneau intermédiaire).

Le panneau supérieur présente les résultats obtenus en considérant une incidence verticale. Par rapport à cette incidence, l'analyse de la *figure 10* montre que l'amplification observée pour les cas d'ondes d'incidence de +/- 35° est supérieure et s'étale sur une plus large gamme de fréquences. Ce phénomène à large bande ne peut pas être modélisé par un calcul à 1D, d'où la nécessité de réaliser, lorsque cela est possible, une estimation propre à un site pour ce genre de configuration.

■ Conclusions

Le présent article décrit l'importance de l'effet de site sur l'estimation de l'aléa sismique. L'effet de site est représenté par la fonction de transfert du site qui définit l'amplification du signal sismique en fonction de la fréquence. Plusieurs méthodes existent pour caractériser la fonction de transfert d'un site. La méthode du bruit ambiant est peu coûteuse mais n'est utilisée que pour l'obtention de la fréquence de résonance du site. Bien que cette information soit très utile, l'effet de site n'est cependant pas complètement caractérisé par cette méthode. En

revanche, bien que plus coûteuse, la méthode empirique sédiments/référence, qui repose sur le calcul de rapports spectraux de signaux enregistrés simultanément sur un site sédimentaire et un site rocheux, permet de déterminer entièrement la fonction de transfert. Cette deuxième méthode est néanmoins entachée d'une incertitude intrinsèque venant de l'effet combiné de la source sismique, de la propagation des ondes et de leur échantillonnage des couches supérieures de la croûte terrestre. Pour cette raison, toute étude sur les effets de site (empiriques et numériques) doit définir la valeur moyenne de la fonction de transfert et les limites de confiance correspondantes. En l'absence de données empiriques, l'incertitude sur la réponse du site est déterminée par des approches numériques utilisant des méthodes de Monte Carlo. Cependant, dans le cas de configurations géométriques à 2D voire à 3D, la détermination de l'incertitude reste encore très délicate.

Les effets de site sont en partie inclus dans les équations empiriques de prédiction du mouvement sismique. Les termes qui les représentent correspondent à des valeurs moyennes d'amplification, compte tenu de la large variabilité des conditions géotechniques des sites utilisés pour l'obtention des équations. Toutefois, les équations prédictives ne peuvent pas rendre compte des spécificités d'un site particulier. Dans certains cas, ces équations prédisent d'ailleurs des spectres de réponse relativement différents de ceux calculés en tenant compte des caractéristiques géotechniques propres au site (estimation sitespécifique). Par conséquent, lorsque l'information géotechnique d'un site est disponible, une estimation site-spécifique est préférable à l'application d'équations empiriques.

Référence

- R.J. Archuleta, P. Liu, J.H. Steidl, L.F. Bonilla, D. Lavallée, F. Heuze (2003). Finite-fault site-specific acceleration time histories that include non linear site response, Physics of the Earth and Planetary Interiors, 137, 153-181.
- P.Y. Bard (1998). Microtremor measurements: A tool for site effect estimation? in Proceedings of the second International Symposium on the Effects of Surface Geology Seismic Motion, December 1-3, Yokohama, Japan 3, 1251-1279.
- R. Benites, K.B. Olsen (2005). Modeling Strong Ground Motion in the Wellington Metropolitan Area, New Zealand, Bull. Seism. Soc. Am., 97, 2180-2196.
- C. Berge-Thierry, F. Cotton, O. Scotti, D.A. Griot-Pommera, Y. Fukushima (2003). New empirical response spectral attenuation laws for moderate European earthquakes, J. Earthquake Eng., 7, N° 2, 193-222.
- J.J. Bommer (2006). Empirical estimation of ground motion: Advances and issues, In: Proceedings of the Third International Symposium on the Effects of Surface Geology on Seismic Motion, 30 August-1 September, Grenoble, France, 155-135.
- L.F. Bonilla, J.H. Steidl, G.T. Lindley, A.G. Tumarkin, R.J. Archuleta (1997). Site Amplification in the San Fernando Valley, California: Variability of Site-Effect Estimation Using the S-wave, Coda, and H/V Methods, Bull. Seism. Soc. Am., 87, 710-730.
- L.F. Bonilla, J.H. Steidl, J.C. Gariel, R.J. Archuleta (2002). Borehole Response Studies at the Garner Valley Downhole Array, Southern California, Bull. Seism. Soc. Am., 92, 3165-3179.
- L.F. Bonilla, P.C. Liu, S. Nielsen (2006). 1D and 2D linear and non linear site response in the Grenoble area, in Proceedings of the Third International Symposium on the Effects of Surface Geology on Seismic Motion, 30 August-1 September, Grenoble, France.
- S. Bonnefoy-Claudet, F. Cotton, P.Y. Bard (2006). The nature of noise wavefield and its application to site effects studies. A literature review, Earth-Science Reviews, 79 N° 3-4 205-227
- S. Bonnefoy-Claudet, C. Pasten, S. Baize, L.B. Bonilla, C. Berge-Thierry, J. Campos, R. Verdugo, P. Volant (en révision) (2008a). Site effect evaluation in the basin of Santiago de Chile using ambient noise measurements, Geophys. J. Int.
- S. Bonnefoy-Claudet, A. Köhler, C. Cornou, M. Wathelet, P.Y. Bard (2008b). Effects of Love waves on microtremor H/V ratio, Bull. Seism. Soc. Am., 98, 288-300.
- R.D. Borcherdt (1970). Effects of local geology on ground motion near San Francisco Bay, Bull Seism. Soc. Am., 60, 29-61.
- Building Society Safety Council (2000). The 2000 NEHRP Recommended Provisions for New Buildings and Other Structures: Part I (Provisions) and Part II (Commentary), FEMA 368/369, Federal Emergency Management Agency, Washington, D.C.
- Eurocode 8 : Design of structures for earthquake resistance (2002). Part 1: General rules, seismic actions and rules for buildings, Revised Final Project Team Draft (preStage 49). Doc CEN/TC250/SC8/N317.
- Y. Fukushima, L.F. Bonilla, O. Scotti, J. Douglas (2007). Site classification using horizontal-to-vertical response spectral ratios and its impact when deriving empirical ground-motion prediction equations, Journal of Earthquake Engineering, 11, 712-724.
- C. Gélis, L.F. Bonilla, J. Regnier, E. Bertrand, A.M. Duval (2008). On the Saenger's finite difference stencil to model 2D P-SV nonlinear basin response: application to Nice, France, Proceedings in Seismic Risk 2008 Earthquakes in North-Western Europe, 11-12 September 2008, Liège, Belgium.
- Gemgep phase 1 (2000). Risque sismique sur Nice : étude de scénarios de gestion de crise sismique. Définition de l'aléa, de la vulnérabilité et des enjeux. CETE Méditerranée. laboratoire de Nice.
- S.H. Hartzell (1992). Site response estimation from earthquake data, Bull. Seism. Soc. Am., 82, 2308-2327.
- F. Heuze, R.J. Archuleta, L.F. Bonilla, S. Day, M. Doroudian, A. Elgamal, S. Gonzales, M. Hoehler, T. Lai, D. Lavallée, B. Lawrence, P.C. Liu, A. Martin, L. Matesic, B. Minster, R. Mellors, D. Oglesby, S. Park, M. Riemer, J.H. Steidl, F. Vernon, M. Vucetic, J. Wagoner, Z. Yang (2004). Estimating site-specific strong earthquake motions, Soil Dyn. and Earth. Eng., 24, 199-223.
- K. Konno, T. Ohmachi (1998). Ground-motion characteristics estimated from spectral ratio between horizontal and vertical components of microtremor, Bull. Seism. Soc. Am., 88, 228-241.
- S. L. Kramer (1996). Geotechnical Earthquake Engineering, Prentice Hall, New Jersey, 653 p.
- K. Kudo (1995). Practical estimates of site response. State-of-art report, in Proceedings of the fifth International Conference on Seismic Zonation, Nice, France.
- C. Lachet, P.Y. Bard (1994). Numerical and theoretical investigations on the possibilities and limitations of Nakamura's technique, J. Phys. Earth., 42, 377-397.
- Y. Nakamura (1989). A method for dynamic characteristics estimation of subsurface using microtremor on the ground surface, Quarterly Report Railway Tech. Res. Inst., 30, 25-30.
- K.B. Olsen, R.J. Archuleta (1996). 3D Simulation of Earthquakes on the Los Angeles Fault System, Bull. Seism. Soc. Am., 86, 575-596.
- G. Pousse, L.F. Bonilla, F. Cotton, L. Marguerin (2006). Non Stationary Stochastic Simulation of Strong Ground Motion Time Histories Including Natural Variability: application to the K-net Japanese Database, Bull. Seism. Soc. Am., 96, 2103-2117.
- E. Saenger, N. Gold, S. Shapiro (2000). Modeling the propagation of elastic waves using a modified finite-difference grid. Wave Motion, 31, 77-82.
- T. Satoh, H. Kawase, T. Sato, A. Pitarka (2001). Three-Dimensional Finite-Difference Waveform Modeling of Strong Motions Observed in the Sendai Basin, Japan, Bull. Seism. Soc. Am., 91, 812-825.
- S.K. Singh, E. Mena, R. Castro (1988). Some aspects of source caracteristics of the 19 September 1985 Michoacàn earthquake and ground motion amplification in and near Mexico City from strong motion data, Seism. Soc. Am., 78, 451-477.
- J.X. Zhao, K. Irikura, J. Zhang, Y. Fukushima, P. G. Somerville, A. Asano, Y. Ohno, T. Oouchi, T. Takahashi, H. Ogawa (2006). An Empirical Site-Classification Method for Strong-Motion Stations in Japan Using H/V Response Spectral Ratio, Bull. Seism. Soc. Am., 96, 914-925.

4.5

LES DÉVELOPPEMENTS RÉCENTS du logiciel MELODIE

Marc BOURGEOIS

Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des installations de stockage de déchets radioactifs ■ La nouvelle version 5.0 de MELODIE. le logiciel développé par l'IRSN pour simuler le transport de solutés dans des milieux poreux, utilisé dans le cadre de l'évaluation de sûreté à long terme d'une installation de stockage de déchets radioactifs, a été mise en « service régulier » au cours de l'année 2008. Elle comprend des évolutions numériques telles que la nouvelle méthode de discrétisation mixte des « volumes finis éléments finis », qui permet, par comparaison avec la méthode des « éléments finis », de garantir une meilleure qualité des résultats des simulations lorsque la part convective de transport ne peut être négligée par rapport au transport par diffusion. Cette nouvelle version permet également d'améliorer la compréhension des mécanismes

de transport dans la zone du sous-sol entre la surface du sol et la surface de la nappe libre (« zone non saturée »), ce qui est important pour l'évaluation du stockage de surface et de « sub-surface ».

Dans le cadre de la promotion de MELODIE, la version 5.0 du logiciel a été mise à disposition de partenaires externes (Bel-V en Belgique, BNRA en Bulgarie, SEC/NRS en Russie...), grâce une zone dédiée du réseau informatique de l'Institut permettant l'accès au logiciel. Un objectif de l'externalisation de MELODIE est d'acquérir un retour d'expérience permettant l'amélioration du logiciel et son maintien à niveau comme outil de référence dans l'expertise de sûreté des stockages de déchets radioactifs.

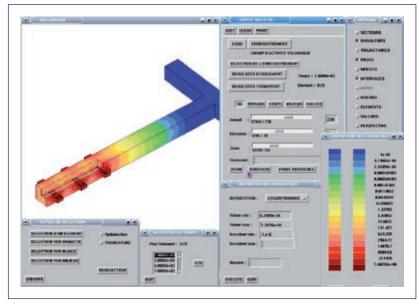


Figure 1 La nouvelle version 5.0 de MELODIE.

4.6

CONTRIBUTION DE L'IRSN AU PROJET EUROPÉEN NF-PRO

relatif au stockage en profondeur de déchets radioactifs

Grégory MATHIEU

Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des installations de stockage de déchets radioactifs

- NF-PRO⁽¹⁾ était un projet d'une durée de quatre ans (2004-2007) du 6^e programme de recherche (PCRD) de la Commission européenne (Euratom), qui a réuni plus de 40 partenaires. Son objectif principal était de faire progresser les connaissances scientifiques et techniques en vue de l'évaluation des propriétés de confinement des composants du champ proche⁽²⁾ d'un stockage de déchets radioactifs à haute activité et de combustibles usés en formation géologique (argile, granite, et sel).
- NF-PRO était composé de cinq Research and Technology Development Components (RTDC), correspondant à des travaux expérimentaux et à des travaux de modélisation relatifs à l'évolution des principaux composants du champ proche (RTDC 1 à 4), ainsi qu'à l'analyse des résultats de ces études en vue de leur utilisation éventuelle dans les évaluations de sûreté (RTDC 5). Les RTDC 1 à 4 ont abordé respectivement:
- les processus contrôlant la dissolution des déchets et les relâchements d'activité;
- les processus chimiques influençant les performances des ouvrages en argile gonflante;
- l'évolution thermo-hydromécanique du système de barrières ouvragées;
- la caractérisation et l'évolution de la zone de roche hôte endommagée par l'excavation.
- Le RTDC 5 s'intéresse à l'évolution possible des composants du champ proche ainsi qu'aux incertitudes associées. Sur cette base, il a analysé et intègre les résultats des RTDC 1 à 4, en mettant en perspective leur

importance dans des évaluations de sûreté des stockages de déchets en formation géologique.

- Les contributions de l'IRSN au RTDC 4, et plus particulièrement au *Work Package 4.2*, ont concerné l'étude de techniques de détermination de l'extension des zones endommagées (EDZ) autour des excavations et la compréhension des mécanismes à l'origine de ce phénomène. Dans ce cadre, l'IRSN a interprété une expérience de creusement instrumentée (*mine-by-test*), réalisée dans la station expérimentale de Tournemire. Les principaux enseignements de cette expérimentation sont les suivants :
- un fort couplage hydromécanique avec une élévation importante de la pression interstitielle concomitante aux avancées de creusement de la galerie a été mis en évidence;
- aucune EDZ n'a été détectée à court terme (à l'issue du creusement), ce qui est cohérent avec les calculs prédictifs réalisés mais ne permet pas d'expliquer la zone endommagée observée autour du tunnel ferroviaire centenaire;
- l'influence de la désaturation a été très nettement identifiée par l'observation d'une fissuration liée aux conditions hydriques dans l'atmosphère au contact des parois de la galerie;
- l'intégration dans les simulations numériques d'un modèle de comportement hydro-mécanique tenant compte de l'évolution de la saturation du massif a amélioré la reproduction des déplacements mesurés, un écart significatif est néanmoins observé pour les pressions de pore.

⁽¹⁾ Acronyme pour Near-Field PROcesses (processus en champ proche).

⁽²⁾ Le champ proche d'un stockage comprend les composants ouvragés (colis de déchets, ouvrages à base d'argile gonflante tels que les bouchons et les scellements de galerie...), ainsi que la partie de la roche hôte perturbée par le stockage.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

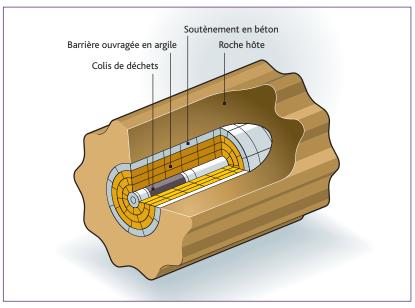


Figure 1 Illustration du champ proche et de ses composants pour un stockage de combustibles usés (figure SCK-CEN, NF-PRO consortium).

Les contributions de l'IRSN au RTDC 5, concernant un concept de stockage de déchets de haute activité et à vie longue dans une formation argileuse, ont permis de tirer les principales conclusions suivantes :

- concernant l'évolution chimique des argiles en présence de matériaux de type cimenté, l'étude a montré que l'intensité et l'extension de l'altération des argiles à 100 000 ans estimées par le calcul dépendent fortement du colmatage de la porosité, du schéma réactionnel considéré, de la vitesse de diffusion et des dimensions des composants. Globalement, les interactions entre béton et argile pourraient conduire à des perturbations minérales fortes des argiles mais localisées, de telle sorte qu'une partie des barrières ouvragées en argile des alvéoles de stockage pourrait être préservée ;
- concernant l'évolution de la phase gazeuse libre dans le champ proche et de sa pression, les simulations ont montré que la saturation en eau de la roche hôte est peu influencée par la migration des gaz. Toutefois, le maximum de pression calculé dans le cas de référence est proche de la pression lithostatique de la roche, ce qui pourrait conduire

à un endommagement. Compte tenu des incertitudes sur les données et des simplifications utilisées dans la modélisation des processus, l'évaluation de l'endommagement de la roche dû à la pression exercée par les gaz nécessitera de mieux représenter les phénomènes et de préciser les valeurs de paramètres mis en jeu dans le modèle;

■ concernant la migration des solutés dans le champ proche ainsi qu'à l'échelle du stockage, il apparaît que la majeure partie des solutés migre par diffusion au travers de la roche hôte, du fait des propriétés de confinement de l'argile et de l'architecture du stockage (scellements des galeries, alvéoles de stockage borgnes notamment), qui permettent de limiter les écoulements et donc les transferts de solutés par convection à travers les galeries de l'installation. Par ailleurs, une étude de sensibilité des flux d'activité à des paramètres tels que l'activité relâchée instantanément, la vitesse de dissolution de la matrice de combustibles usés et les propriétés chimiques des solutés a permis d'améliorer la compréhension du comportement du système de confinement dans son ensemble.

4.7

SÛRETÉ DES STOCKAGES DE DÉCHETS RADIOACTIFS EN FORMATION GÉOLOGIQUE :

l'IRSN agrandit sa station expérimentale de Tournemire et met en place un nouveau programme de recherche

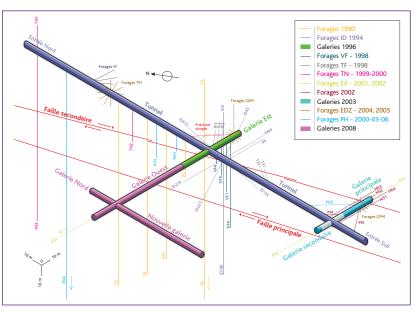


Figure 1 Répartition tridimensionnelle des forages de l'installation expérimentale.

Justo CABRERA

Laboratoire de recherche sur le stockage géologique des déchets et les transferts dans les sols

- Après plusieurs mois de travaux, la société Eiffage a achevé, en juin 2008, le creusement de 170 m de nouvelles galeries dans la station expérimentale de l'IRSN, à Tournemire. Aménagée dans un tunnel ferroviaire long de 1 885 m et vieux de plus de 120 ans, la station voit ainsi sa taille augmenter significativement, la longueur totale des galeries dépassant désormais 270 m.
- Grâce aux nouveaux ouvrages, l'IRSN dispose de l'espace nécessaire pour poursuivre ses recherches et engager dès 2009 un nouveau programme expérimental,

destiné à apprécier le comportement à long terme des scellements des alvéoles de stockage. Ce programme permettra d'étudier l'efficacité et la tenue dans le temps de divers types de « bouchons » et d'identifier les paramètres auxquels une attention particulière devra être portée, lors de l'évaluation des projets que l'Andra doit présenter à l'échéance de 2015, fixée conformément à loi de programme du 28 juin 2006. Les expériences reposeront sur des dispositifs mis en place dans des forages de 60 cm de diamètre, représentatifs de l'échelle de certaines alvéoles envi-

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

sagées pour le stockage de déchets de haute activité à vie longue.

■ Parallèlement à la mise en place de nouvelles expériences, l'extension de la station est accompagnée par le suivi de l'endommagement induit par le creusement d'ouvrages dans des roches argileuses indurées. Elle contribuera ainsi à améliorer la compréhension de ce phénomène. Les nouvelles galeries offrent pour cela un intérêt particulier : elles ont en effet été conçues de manière à atteindre une zone située à plus de 100 m du tunnel et permettent ainsi d'avoir accès à une roche argileuse non affectée par les perturbations résultant des 120 ans d'existence de l'ancien ouvrage. Leur croisement facilitera la mise en place de dispositifs expérimentaux et d'observation.

■ La réalisation des galeries a été faite selon un cahier des charges exigeant, de façon à limiter au maximum l'endommagement immédiat de la roche lors du creusement. La société Eiffage, retenue à l'issue de l'appel d'offres lancé par l'IRSN, a ainsi employé une technique dite « à attaque ponctuelle », innovante pour ce type de roche, qui a pleinement répondu aux exigences fixées par l'Institut.



Figure 2 Galeries du tunnel de Tournemire.



Figure 3 Creusement d'une galerie - Tournemire.

LA MÉTROLOGIE des neutrons

Vincent GRESSIER

Laboratoire de métrologie et de dosimétrie des neutrons

Tout pays doit disposer d'une infrastructure viable pour atteindre ses objectifs sociétaux. Bâtir une telle infrastructure dans le cadre d'un développement durable repose sur trois piliers étroitement liés : la métrologie, la normalisation et l'évaluation de la conformité [ISO, 2006].

■ En métrologie, on peut distinguer la métrologie fondamentale et la métrologie légale. La métrologie fondamentale, coordonnée par le Bureau international des poids et mesures (BIPM), s'attache aux étalons de mesure et au Système international d'unités (SI)(1). Les activités de l'IRSN faisant l'objet de l'article qui suit relèvent de cette métrologie. La métrologie légale est l'ensemble des procédures législatives, administratives et techniques permettant de spécifier et d'assurer la qualité et la crédibilité des mesures relatives aux contrôles officiels, au commerce, à la santé, à la sécurité et à l'environnement. La métrologie légale, qui s'appuie sur la métrologie fondamentale, est coordonnée par l'Organisation internationale de métrologie légale (OIML). L'OIML développe ainsi des réglementations types, des recommandations internationales qui servent à l'établissement des réglementations nationales pour diverses catégories d'instruments de mesure. Ces recommandations sont élaborées en collaboration avec les organisations internationales de normalisation.

■ Les normes internationales sont principalement le fruit de l'Organisation internationale de normalisation (ISO), de la Commission électrotechnique internationale (CEI) et de l'Union internationale des télécommunications (UIT). L'ISO traite de la normalisation dans tous les domaines, à l'exception du domaine électrotechnique qui est du ressort de la CEI, et des télécommunications qui relèvent de l'UIT. Les trois organisations collaborent étroitement pour la normalisation dans le domaine des technologies de l'information.

Ces normes internationales sont adoptées au niveau européen par le Comité européen de normalisation (CEN) et au niveau français par l'Association française de normalisation (Afnor).

Il existe trois grandes catégories de normes, selon qu'elles se rapportent à des produits, à des processus ou à des systèmes de management. Les premières concernent la qualité et la sécurité des biens et des services. Les deuxièmes portent sur les conditions de production, de conditionnement et de perfectionnement des produits et des services. Les normes relatives aux systèmes de management (comme la norme ISO 9001) visent à aider les entreprises à gérer leurs activités. Elles servent à définir un cadre qui permet à une entreprise de répondre de façon systématique aux exigences fixées dans les normes relatives aux produits et aux processus.

⁽¹⁾ Le Système international compte sept unités de base : le mètre, le kilogramme, la seconde, l'ampère, le kelvin, la mole et la candela, quantifiant des grandeurs physiques indépendantes. Chaque unité possède en outre un symbole (dans l'ordre pour les unités de base : m, kg, s, A, K, mol et cd).
De ces unités de base, on déduit des unités dérivées, par exemple l'unité de vitesse du Système international, le mètre par seconde, ou les grandeurs dosimétriques.

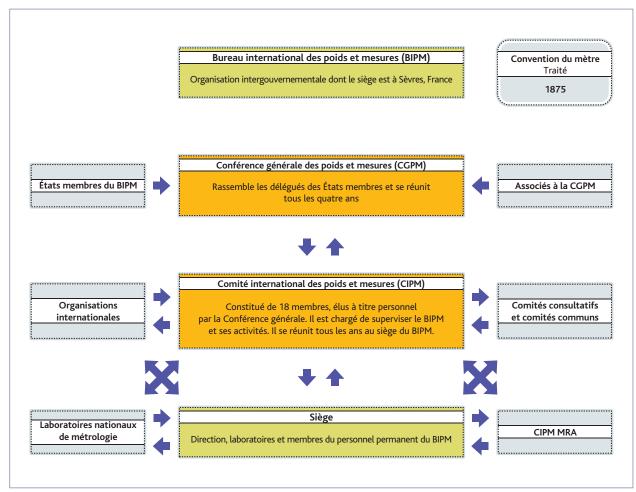


Figure 1 Chaîne des responsabilités au Bureau international des poids et mesures.

■ L'évaluation de la conformité est l'appréciation du respect des exigences spécifiées relatives à un produit, à un processus, à un système, à une personne ou un organisme. Les procédures d'évaluation de la conformité telles que les essais, l'inspection et la certification apportent l'assurance que les produits répondent aux exigences spécifiées dans les règlements et dans les normes. L'accréditation est établie par un organisme indépendant, public ou privé. Les normes et guides ISO/CEI en matière d'évaluation de la conformité sont utilisés pour l'harmonisation des pratiques dans ce domaine et pour servir de référence quant à la compétence technique des organismes d'évaluation, renforçant ainsi la crédibilité et la confiance que peuvent inspirer les résultats.

Les trois piliers décrits ci-dessus sont interdépendants. La métrologie et les étalons physiques fournissent les moyens nécessaires pour assurer l'exactitude des mesures ; la qualité d'exécution admise peut être spécifiée dans des normes internationales qui, à leur tour, peuvent servir de référence pour l'évaluation de la conformité. Utilisés par les entreprises et les gouvernements pour optimiser la production, les services de santé, la protection des consommateurs, l'environnement, la sécurité et la qualité, leur mise en œuvre efficace favorise le développement durable et contribue au progrès social, tout en facilitant le commerce.

Le progrès scientifique des dernières décennies conduit au développement durable par la naissance d'une multitude de technologies et de produits novateurs. L'importance de la métrologie est ici primordiale pour garantir, par des mesures de plus en plus précises, en relation étroite au Système international d'unités, la qualité des nouveaux produits et services offerts.

Dans le domaine de la dosimétrie des neutrons, différentes études menées à la fin des années 1990 ont montré la difficulté d'assurer de manière satisfaisante la surveillance dosimétrique des travailleurs

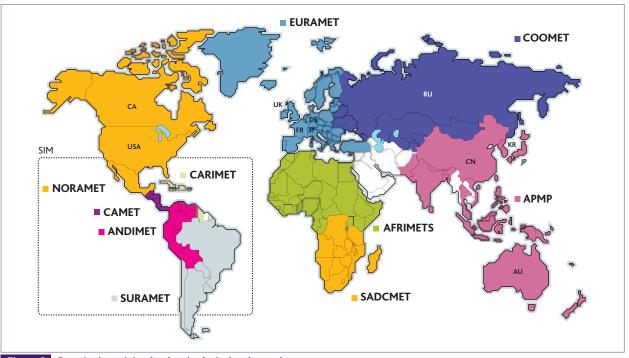


Figure 2 Organisations régionales de métrologie dans le monde.

exposés aux neutrons [Bordy *et al.*, 2000]. Cela s'est traduit, par exemple, par l'apparition de nouvelles générations de dosimètres personnels électroniques pour les neutrons.

Les installations de métrologie de l'IRSN produisant des champs neutroniques de référence permettent de « raccorder » les mesures de ces dosimètres aux unités étalons de dosimétrie. Les méthodes d'étalonnage employées respectent les recommandations des normes internationales de l'ISO et de la CEI, et l'accréditation de cette activité par l'organisme d'accréditation français [Cofrac] selon la norme ISO 17025 garantit la conformité des résultats et la compétence de l'Institut. Après une présentation générale de la métrologie et de la position des activités de métrologie relatives à la dosimétrie des neutrons à l'IRSN, les installations et les méthodes utilisées pour obtenir un champ neutronique de référence seront décrites, ainsi que les études en cours et les perspectives de développement.

La métrologie des neutrons en France

Organisation de la métrologie La métrologie au niveau mondial

La métrologie au niveau mondial est née à l'issue de la convention du mètre, signée à Paris en 1875, avec la création de trois instances.

- Le Bureau international des poids et mesures (BIPM) a pour mission d'assurer l'unification mondiale des mesures physiques et d'assurer leur traçabilité au Système international d'unités (SI). Il est en relation directe avec les Laboratoires nationaux de métrologie (LNM).
- Le Comité international des poids et mesures (CIPM) est chargé de superviser le BIPM et ses activités. Le CIPM est conseillé sur le plan scientifique et technique par différents comités consultatifs, qui rassemblent des experts internationaux.

La Conférence générale des poids et mesures (CGPM) a autorité sur le CIPM et regroupe tous les quatre ans les représentants des gouvernements des États membres. À partir du rapport du CIPM, la CGPM prend des décisions concernant la métrologie mondiale. La convention du mètre regroupe actuellement 51 États membres [BIPM].

L'arrangement de reconnaissance mutuelle (MRA)

Le 14 octobre 1999, un arrangement de reconnaissance mutuelle a été signé par 38 LNM et deux organisations internationales. Cet arrangement, coordonné par le BIPM, a pour objectif d'établir le degré d'équivalence⁽²⁾ des étalons de mesure nationaux des LNM,

⁽²⁾ Écart, avec son incertitude, entre la valeur d'un étalon et la valeur de référence d'une comparaison clé du CIPM.

de pourvoir à la reconnaissance mutuelle des certificats d'étalonnage et de mesurage émis par les LNM et de fournir ainsi, aux gouvernements et autres parties, un fondement technique solide pour d'autres accords (plus étendus) liés aux échanges commerciaux et aux activités de réglementation. Par exemple, l'étalon national pour la mesure de la longueur (le mètre étalon) français est reconnu étalon de mesure par tous les autres Laboratoires nationaux de métrologie signataires de l'arrangement MRA. Un certificat d'étalonnage d'un détecteur de neutrons émis par l'IRSN sera de la même manière reconnu par ces structures LNM.

Pour établir le degré d'équivalence des étalons de mesure, le MRA définit la mise en place de comparaisons internationales de mesurage, désignées dans l'appellation de comparaisons clés ou supplémentaires, et prévoit l'établissement par les LNM de systèmes de qualité et de démonstration de leurs compétences.

Le résultat du MRA se traduit par les déclarations des aptitudes en matière de mesure et d'étalonnage (CMCs pour *Calibration and Measurement Capabilities*) de chaque LNM. Les CMCs sont inscrites dans une base de données (KCDB) gérée par le BIPM et accessible au public par Internet.

La métrologie en Europe

Différentes organisations internationales de métrologie se sont développées à des échelles plus locales afin de renforcer les relations et les coopérations entre les instituts de métrologie. Il existe ainsi dans le monde cinq organisations régionales de métrologie (RMO), représentées sur la *figure 2*: Euramet pour l'Europe, Sim pour le continent américain, APMP pour l'Asie du Sud et le Pacifique, Coomet pour les pays de l'ex-URSS et certains pays d'Europe, et enfin SADCMET pour le sud de l'Afrique.

La plupart des Laboratoires nationaux de métrologie sont membres de ces RMO. Des instituts de métrologie, qui ne sont pas LNM, ont toutefois la possibilité de participer aux travaux des RMO.

La métrologie en Europe a été coordonnée à partir de 1988 par Euromet, the European collaboration in Measurement Standards. La nécessité d'une meilleure intégration et d'une meilleure coordination de la recherche en métrologie au niveau européen (dans le cadre d'un programme de recherche européen EMRP), a conduit à la création au 1^{er} juillet 2007 d'une nouvelle structure ayant le statut d'association, dénommée European Association of National Metrology Institutes (Euramet).

La métrologie en France

En France, le Laboratoire national de métrologie est, depuis 2005, le LNE (Laboratoire national de métrologie et d'essais). Il remplace

l'ancienne structure, dénommée Bureau national de métrologie (BNM), qui assurait cette fonction depuis 1969 [LNE]. Le LNE coordonne les activités de métrologie en France. Pour des raisons historiques, les activités d'étude et de recherche en métrologie scientifique et industrielle sont réalisées par plusieurs laboratoires de différents organismes publics. Il existe ainsi, sous l'égide du LNE, quatre Laboratoires nationaux de métrologie (LNM)⁽³⁾ qui sont les principaux laboratoires français de métrologie et sept laboratoires associés au LNE (LA), dont l'IRSN, pour des domaines spécifiques et dont les compétences sont complémentaires de celles des LNM.

Le LNE-IRSN

Présentation du laboratoire associé

Le Laboratoire national Henri Becquerel (LNE-LNHB) du Commissariat à l'énergie atomique est, parmi les Laboratoires nationaux de métrologie, celui qui est chargé du domaine des rayonnements ionisants [LNHB]. Pour les unités liées aux neutrons, le LNHB assure la métrologie associée à la radioactivité (activité, flux d'émission). Pour les unités liées à la dosimétrie des neutrons, le Laboratoire de métrologie et de dosimétrie des neutrons de l'IRSN (DRPH/SDE/LMDN) dispose de sources neutroniques, des méthodes nécessaires et d'une activité associée accréditée. Pour compléter les activités du LNHB, l'IRSN a ainsi été reconnu laboratoire associé (LNE-IRSN) pour la dosimétrie des neutrons depuis le 27/11/2001.

Ce laboratoire et les installations qu'il exploite sont implantés sur le site du CEA à Cadarache. Outre les 11 salariés permanents, il accueille un nombre croissant de doctorants (trois à partir d'octobre 2008), de salariés en post-doctorat (deux à ce jour) et de stagiaires. Cette évolution souligne, d'une part, l'importance croissante de la part de la recherche et du développement dans les activités du laboratoire, d'autre part, la montée en puissance des installations (notamment le démarrage de l'installation AMANDE en 2005, ainsi que les évolutions techniques et conceptuelles des installations et détecteurs existants). Comme spécifié dans le chapitre 3, seule une installation (l'irradiateur à sources neutroniques radioactives) est accréditée et intègre à part entière le LNE-IRSN, correspondant à deux salariés. Un objectif de l'IRSN à court et moyen termes est que les activités liées à l'ensemble des installations et à la majorité des équipements de mesure soient accréditées et que celles-ci intègrent le laboratoire associé.

Les missions du LNE-IRSN

Le statut de laboratoire associé impose au LNE-IRSN les missions suivantes :

■ mettre en œuvre les unités dérivées suivantes du Système international d'unités (SI) : le débit de fluence⁽⁴⁾ (m⁻².s⁻¹), le débit de kerma⁽⁵⁾ dans les tissus (Gy.s⁻¹) et les débits d'équivalent de dose

ambiant et individuel⁽⁶⁾ (Sv.s⁻¹). Seul le débit de fluence est mesuré. Les grandeurs dosimétriques (kerma et équivalents de dose) sont obtenues par l'application d'un coefficient de conversion (sans incertitude) dépendant de l'énergie des neutrons, tabulé dans [ICRP74, 1997]. Pour mettre en œuvre ces unités, le LNE-IRSN doit développer, maintenir, améliorer et exploiter des étalons de référence et de transfert⁽⁷⁾. Il doit également déployer des moyens et des méthodes de référence pour les différentes grandeurs dans toute la gamme d'énergie et de débits de fluence rencontrés en radioprotection :

- mener des recherches pour améliorer les définitions, les réalisations et les mises en pratique des unités citées ci-dessus;
- assurer, et éventuellement piloter, toutes les comparaisons utiles pour assurer l'équivalence internationale des étalons nationaux et des méthodes des Laboratoires nationaux de métrologie. Dans le cadre de cette mission, assurer la présence française au sein du Comité consultatif des rayonnements ionisants, section 3 (neutrons) du CIPM (CCRI(III)), au sein d'Euramet et au sein d'autres groupes de travail dans les domaines de la métrologie ;
- étudier, développer et exploiter les moyens de transfert et d'étalonnage pour « raccorder » les laboratoires français en vue d'assurer la traçabilité des étalonnages vers les utilisateurs ;
- exécuter les prestations d'étalonnage qui ne pourraient pas être assurées par des laboratoires accrédités, notamment en raison d'une rentabilité directe insuffisante ou pour des raisons scientifiques, techniques ou stratégiques;
- participer à des actions de formation.

En retour, le LNE participe au financement de certains projets de métrologie bien identifiés, avec une contribution annuelle de l'ordre de 100 k€.

Méthode générale de définition des références

Comme précisé précédemment, c'est à partir de la fluence que les grandeurs dosimétriques sont calculées.

La fluence peut être déterminée de deux manières. Dans le cas des sources radioactives, elle est obtenue à partir de la mesure du débit d'émission des sources (c'est-à-dire du nombre de neutrons émis dans tout l'espace), considéré comme étalon de référence. Pour les autres installations, la valeur de la fluence est obtenue à partir de mesures réalisées par des détecteurs, étalons de travail ou de transfert. Ces différentes méthodes sont détaillées dans le chapitre suivant.

Les coefficients de conversion de la fluence au kerma ou aux équivalents de dose varient avec l'énergie des neutrons. Définir une référence pour les grandeurs dosimétriques nécessite donc de connaître la distribution en énergie de la fluence neutronique. Dans le cas des sources neutroniques radioactives, les normes internationales recommandent, pour chaque type de source, une distribution en énergie et un coefficient de conversion moyens. Pour les

autres champs neutroniques, le LMDN possède tout un ensemble de spectromètres, c'est-à-dire de détecteurs permettant de mesurer, dans différentes gammes d'énergie, la distribution en énergie de la fluence. Ce sont des étalons de transfert raccordés aux étalons de référence d'un Laboratoire national de métrologie étranger (PTB en Allemagne ou NPL au Royaume-Uni).

Les méthodes métrologiques associées aux champs neutroniques de référence (production, étalonnage) sont décrites dans les normes ISO 8529 et 12789 [ISO 8529-1, 2001] [ISO 8529-2, 2000] [ISO 8529-3, 1998] [ISO 12789-1, 2008] [ISO 12789-2, 2008]. La traçabilité des références aux étalons nationaux impose que la méthode de définition de ces références soit décrite de la manière la plus détaillée possible, en tenant compte de tous les paramètres, avec un bilan des incertitudes justifié et une organisation se portant garante de la définition et du maintien des références.

À cette fin, un « système qualité » doit être établi en suivant les recommandations de la norme [ISO 17025, 2005]. L'évaluation de la conformité et la reconnaissance de la compétence se traduisent alors par l'obtention d'une accréditation par l'organisme d'accréditation français, le [Cofrac]. L'accréditation et le statut de laboratoire associé

- (3) Les quatre Laboratoires nationaux de métrologie sont le LNE, le LNE-LNHB (Laboratoire national Henri Becquerel, CEA), le LNE-INM (Institut national de métrologie, Cnam) et le LNE-SYRTE (laboratoire des systèmes de référence temps-espace, Observatoire de Paris).
- (4) Fluence: rapport entre le nombre de particules incidentes sur une sphère et la surface du grand cercle de cette sphère – définition souvent simplifiée en nombre de particules incidentes par unité de surface. L'unité de la fluence est le m⁻². Le débit de fluence n'est autre que la densité de flux neutronique, exprimée en m⁻².sr⁻¹.
- (5) Le kerma tissu correspond à la dose absorbée dans du tissu humain en supposant que toutes les particules secondaires générées par les réactions des neutrons dans le tissu y perdent totalement leur énergie. La dose absorbée dans une matière est le rapport entre l'énergie moyenne perdue par toutes les particules ionisantes dans un échantillon de matière et la masse de cet échantillon. Kerma et dose s'expriment en J. kg-1, c'est-à-dire en Gy.
- (6) La dose équivalente est la dose absorbée à laquelle est appliqué un facteur de pondération (sans dimension) pour tenir compte de la nocivité propre des différents rayonnements. L'unité est également le J.kg-1, mais est appelé Sievert (Sv) pour le différencier de l'unité de la dose absorbée. La dose équivalente, grandeur biologique, n'est pas directement mesurable et est approchée par des équivalents de dose. De manière simplifiée. l'équivalent de dose ambiant H*(10) utilisé pour les neutrons est l'équivalent de dose qui serait produit par un champ neutronique où tous les neutrons auraient la même direction, à 10 mm de profondeur dans une sphère, dite Icru, de 30 cm de diamètre, remplie d'un liquide de 1 g.cm⁻³ de densité, composé d'oxygène (76,2 %), de carbone (11,1 %), d'hydrogène (10,1 %) et d'azote (2,6 %) L'équivalent de dose individuel ou personnel $Hp(10,\alpha)$ est l'équivalent de dose dans le tissu mou à une profondeur de 10 mm sous la peau et dépend de la direction des neutrons. Pour un étalonnage en équivalent de dose individuel, l'appareil est placé sur un fantôme d'étalonnage (plaque de polyméthacrylate de méthyl acétique, ou d'eau, de 30 cm x 30 cm x 15 cm), qui simule la rétrodiffusion par le corps de l'individu. L'étalonnage pour les autres grandeurs se fait avec l'appareil dans l'air.
- (7) Il y a trois types d'étalon : l'étalon de référence qui a la plus haute qualité métrologique disponible en un lieu donné ou dans une organisation donnée, les étalons de transfert utilisés comme intermédiaires pour comparer entre eux des étalons et enfin les étalons de travail utilisés couramment pour étalonner ou contrôler des mesures, des appareils de mesure ou des matériaux de référence. Les étalons de travail sont raccordés à l'étalon de référence, soit directement, soit via un étalon de transfert.

au Laboratoire national de métrologie français (LNE) permettent au LNE-IRSN d'éprouver ses références en participant à des comparaisons internationales : comparaisons clés du CIPM (via le comité consultatif CCRI) ayant lieu tous les dix ans, comparaisons supplémentaires (CIPM ou Euramet) à échéance ajustable au besoin.

À l'issue des comparaisons internationales, les déclarations des aptitudes en matière de mesure et d'étalonnage (CMC) sont mises à jour dans la base de données du BIPM. Du fait de l'arrangement de reconnaissance mutuel (MRA), ces aptitudes sont de fait reconnues au niveau mondial par tous les membres signataires du MRA.

Moyens mis en œuvre à l'IRSN

Les moyens mis en œuvre à l'IRSN visent à répondre, d'une part, aux exigences de la métrologie décrites ci-dessus, d'autre part, aux recommandations formulées dans les différentes normes :

- de l'ISO (8529 et 12789 citées ci-dessus), qui définit les méthodes de production des champs neutroniques de référence et les méthodes d'étalonnage;
- de la Commission électrotechnique internationale (CEI), qui explicite les essais des instruments de radioprotection à effectuer sous rayonnement [CEI 61005, 2003] [CEI 61526, 2005] [CEI 61322, 1994]. Les différentes installations de l'IRSN dédiées à la métrologie sont décrites en détail dans [Gressier et Pochat, 2006].

Sources radioactives neutroniques Production des champs neutroniques

Les sources radioactives sont les sources de neutrons les plus répandues, du fait :

- de la relative facilité à déterminer la fluence (cm-²) et les grandeurs dosimétriques à partir de la mesure de l'activité initiale de la source lors de sa fabrication ;
- du coût modéré de l'exploitation de telles sources de neutrons. Pour l'étalonnage de routine de dispositifs de mesure des neutrons ayant déjà été soumis à l'ensemble des tests de fonctionnement sous rayonnement lors de leur conception ou de leur homologation, les sources radioactives 241 AmBe (neutrons produits par réaction (α,n)) et 252 Cf (neutrons provenant de la fission spontanée du radionucléide) sont recommandées par la norme ISO 8529-1 car l'énergie moyenne des neutrons (4,2 MeV $^{(8)}$) pour AmBe et 2,1 MeV pour 252 Cf) est du même ordre de grandeur que celle des neutrons produits par les réactions de fission dans l'industrie nucléaire. Afin de pouvoir étalonner un appareil dans un champ neutronique modéré, selon les recommandations de la norme ISO 8529-1, la source de 252 Cf peut être placée au centre d'une sphère modératrice d'eau lourde de 15 cm de rayon, comme le montre la *figure 3*.

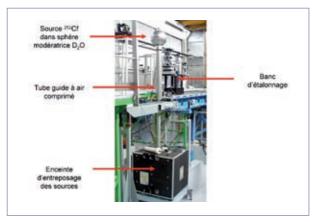


Figure 3 Irradiateur à sources neutroniques radioactives de référence de l'IRSN.

Traçabilité et références

Le débit de fluence est déterminé à partir de la mesure du débit d'émission de la source, en appliquant différentes corrections pour tenir compte de l'anisotropie de l'émission de l'atténuation dans l'air⁽⁹⁾, et des neutrons diffusés (neutrons déviés de leur trajectoire par interaction avec les éléments environnant la source et le point de mesure, tels que le support de source, le sol et les murs du bâtiment, etc.). La mesure du débit d'émission de la source ²⁵²Cf a été réalisée par la méthode du bain de manganèse⁽¹⁰⁾ au LNHB [MB]. Cette méthode permet de définir le débit d'émission d'une source comme étalon de référence pour la fluence. Un étalon de transfert (débitmètre de neutrons) a été utilisé pour « raccorder » les références de la source ²⁴¹AmBe de l'IRSN à celles de la source ²⁴¹AmBe du NPL. Le NPL et le LNHB ont participé à la comparaison clé CCRI(III)-K9 concernant la mesure du débit d'émission d'une source de ²⁴¹AmBe, permettant de s'assurer de la qualité des références primaires pour le débit d'émission.

- (8) L'électronvolt (symbole eV) est une unité de mesure d'énergie définie comme étant l'énergie cinétique d'un électron accéléré depuis le repos par une différence de potentiel d'un volt. Un électron-volt est donc égal à environ 1,6 x 10⁻¹⁹ joule. C'est une unité hors Système international (SI).
- (9) Si l'émission de la source était isotrope, la fluence Φ à une distance d (en cm) de la source serait directement liée au débit d'émission A (en s-1) par la relation:

$$\phi = \frac{A}{4\pi d^2}$$

Du fait de la géométrie, généralement cylindrique, de l'enveloppe métallique entourant la matière radioactive, de l'inhomogénéité de la matière radioactive dans le volume de la source, une correction d'anisotropie est à apporter selon l'angle d'émission des neutrons.

Une partie des neutrons parcourant la distance d entre la source et le point de mesure ont une réaction nucléaire (diffusion, capture) avec les noyaux des atomes constituant l'air. Ces neutrons n'atteignent donc pas le point de mesure. Cette réduction du nombre de neutrons est appelée atténuation dans l'air.

(10) La source radioactive est placée au centre d'une sphère (~ 1 m de diamètre) contenant une solution de sulfate de manganèse. Les noyaux de manganèse capturent les neutrons pour former l'isotope instable ⁵⁶Mn qui se désexcite par l'émission d'un rayon gamma. La mesure du rayonnement gamma permet de déterminer avec une grande précision le débit d'émission neutronique de la source.

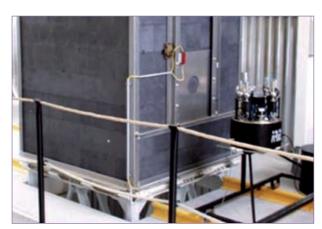


Figure 4 Calibrage du multi-détecteur ROSPEC auprès de l'empilement de graphite utilisé pour la production d'un champ de neutrons « thermiques » de référence.

L'irradiateur constitué des deux sources ²⁴¹AmBe et ²⁵²Cf est la seule installation accréditée Cofrac du LMDN à ce jour et faisant partie du LNE-IRSN. Neuf CMCs sont associées à cette activité (quatre unités dans les trois champs neutroniques décrits ci-dessus).

Une comparaison internationale sous l'égide du CCRI et d'Euramet est actuellement en cours (Euromet.RI(III)- S1). Elle concerne la détermination de l'équivalent de dose ambiant H*(10) et est entreprise par l'étalonnage d'un instrument commun (un débitmètre de neutrons), qui se déplace dans les différentes installations.

Les travaux de recherche en cours concernent notamment la diminution des incertitudes, l'amélioration de la connaissance de la distribution en énergie des neutrons [Magalotti et al., 2007; Lebreton et al., 2007] et de la contribution des neutrons diffusés, la maîtrise du champ photonique associé au champ neutronique [Langner et al., 2007] ou encore la définition de nouvelles méthodes d'étalonnage.

Champ neutronique thermique Production du champ neutronique

Les champs neutroniques « thermiques » correspondent à des champs où la quasi-totalité des neutrons a une énergie inférieure à 0,5 eV. De tels champs sont utilisés pour valider la réponse d'instruments de mesure aux très basses énergies, ainsi que le recommandent les normes internationales. Ces champs sont généralement fournis par des réacteurs nucléaires de recherche. À défaut de réacteur, l'IRSN utilise la modération d'une ou plusieurs sources radioactives dans un cube de graphite de 1,5 m d'arête. Six sources de ²⁴¹AmBe, réparties au sein du bloc de graphite, étaient utilisées jusqu'en 2006. Compte tenu de la nécessité d'évacuer ces sources (âgées de plus de dix ans), l'IRSN a choisi d'améliorer les performances de l'installation en les remplaçant par une source unique de ²⁵²Cf de forte activité, placée au centre du cube modérateur [Lacoste, 2007].

Traçabilité et références

La méthode utilisée pour établir la référence de la fluence de neutrons « thermiques » associée à cette installation est l'activation d'une pastille d'or. L'activité de cette feuille, placée durant un temps donné au point d'étalonnage, sera mesurée par le LNHB et par le NPL, et servira d'étalon de référence. La distribution en énergie de la fluence neutronique sera déterminée avec l'ensemble des spectromètres du laboratoire de l'IRSN et permettra de valider les simulations Monte Carlo du champ neutronique.

Cette méthode constituera la partie technique nécessaire à une accréditation Cofrac, qui permettra la participation de cette installation à une comparaison clé organisée par le CCRI sur la mesure de la fluence dans les champs neutroniques « thermiques ».

Champs de neutrons monoénergétiques Production des champs neutroniques

L'étude de la variation de la réponse des instruments de mesure selon l'énergie des neutrons permet de valider les réponses calculées des instruments, ou de déterminer et de vérifier l'adéquation des moyens d'étalonnage de ces instruments (notamment, de déterminer et de vérifier si l'étalonnage par une source neutronique radioactive est suffisant).

Pour réaliser une telle étude, les champs neutroniques utilisés doivent avoir une distribution en énergie limitée à une plage étroite en énergie. Pour des énergies supérieures à quelques keV, des champs monoénergétiques sont utilisés.

Ces champs sont obtenus à partir de particules chargées (protons ou deutons), accélérées sur une cible constituée d'un dépôt de scandium, de lithium, de tritium ou de deutérium sur un mince support métallique. Les interactions des particules chargées incidentes avec les noyaux de ces dépôts produisent des neutrons dans toutes les directions de l'espace. Ces réactions nucléaires ont la particularité de produire des neutrons d'une seule énergie pour une énergie donnée des particules chargées incidentes et un angle d'émission donné des neutrons [Marion et Fowler, 1960].

Du fait de la perte d'énergie par ionisation des particules chargées du faisceau dans l'épaisseur de la cible (quelques µm), la distribution en énergie de la fluence présente un pic ayant une largeur à mihauteur variant de quelques keV à quelques centaines de keV, comme le montre la *figure 5*.

Trois accélérateurs⁽¹¹⁾, présentés sur la *figure 6*, sont utilisés par l'IRSN à cette fin :

■ les accélérateurs SAMES J25 et T400, qui produisent de hauts

débits de neutrons mais dont le domaine en énergie des neutrons est limité respectivement autour de 14,8 MeV par réaction (d,T) et 3 MeV par réaction (d,D);

■ l'accélérateur AMANDE, qui permet de produire des champs neutroniques monoénergétiques, entre quelques keV et 20 MeV, à des débits moindres

Traçabilité et références

Pour les champs de neutrons monoénergétiques, deux grandeurs sont considérées comme valeurs de référence : la fluence (ou son débit) neutronique et l'énergie moyenne du pic monoénergétique.

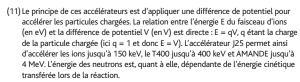
■ Accélérateurs SAMES

Pour l'accélérateur J25, la méthode de détermination de la fluence est fondée sur la détection de la particule associée : il s'agit de détecter la particule alpha créée en même temps que le neutron, lors de la réaction des deutons dans la cible [Texier, 2007]. Cette méthode peut devenir un étalon de référence, à condition de connaître précisément l'efficacité de détection (intrinsèque et géométrique) des détecteurs de particules chargées utilisés. Une autre difficulté pour établir cet étalon de référence est la contamination du faisceau incident de deutons par des deutons d'énergies deux et trois fois plus faibles que celle attendue⁽¹²⁾. La référence en énergie sera, quant à elle, déterminée via un étalon de transfert « raccordé » aux références en énergie d'AMANDE.

Pour l'accélérateur T400, le même principe est appliqué mais la particule chargée utilisée est issue d'une réaction concurrente à celle produisant les neutrons. La connaissance précise de la section efficace de chaque réaction est dès lors nécessaire. L'utilisation en parallèle d'un étalon de transfert à partir des références d'AMANDE en énergie et en fluence est en cours d'étude.

■ Installation AMANDE

Les références en fluence de l'installation AMANDE sont déterminées à partir de celles des sources radioactives, à l'aide d'un étalon de transfert (long compteur IRSN [Lacoste, 2006]). Les références en



⁽¹²⁾ Cela vient des ions polyatomiques (molécules à deux et trois atomes de deutérium), générés dans la source d'ions des accélérateurs et qui ne sont pas éliminés du fait de la géométrie purement rectiligne des accélérateurs SAMES.

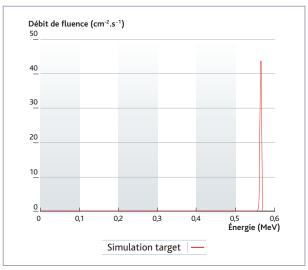


Figure 5 Simulation de la distribution en énergie de la fluence neutronique d'un champ de neutrons monoénergétiques à 565 keV produit par l'installation AMANDE.



Figure 6 Accélérateurs dédiés à la production de champs de neutrons « monoénergétiques ». Sur la photo de gauche : J25 (à gauche) et T400 (à droite). Sur la photo de droite : bout de ligne de l'accélérateur AMANDE et mesure de la fluence des neutrons diffusés avec le long compteur de l'IRSN et un cône d'ombre⁽¹³⁾.

énergie seront à court terme (à partir de 2010 ou 2011) déterminées en utilisant la méthode du temps de vol (mesure de la vitesse des neutrons), objet d'une étude en cours au sein du laboratoire LMDN de l'IRSN. Cette méthode, traçable directement aux étalons nationaux de temps et de distance, définira un étalon de référence pour l'énergie des neutrons. À ce jour, des spectromètres à protons de recul (compteurs proportionnels gazeux sphériques et scintillateur liquide), « raccordés » aux étalons de référence en champs monoénergétiques du Laboratoire national de métrologie allemand (PTB) [Pichenot et al., 2002], sont utilisés comme étalons de transfert et comparés aux valeurs théoriques de l'énergie obtenues à partir de la cinématique des réactions nucléaires. Ils seront ensuite « raccordés » à l'étalon de référence (temps de vol) d'AMANDE pour être utilisés comme étalons de transfert sur d'autres champs d'AMANDE que ceux utilisés pour leur raccordement et sur les autres installations du laboratoire.

⁽¹³⁾ Un cône d'ombre est un écran de fer et de polyéthylène placé entre la cible produisant les neutrons et le détecteur. Tous les neutrons produits dans l'angle solide masqué par le cône d'ombre sont arrêtés. C'est une des méthodes pour déterminer la contribution des neutrons diffusés par l'environnement à la mesure.

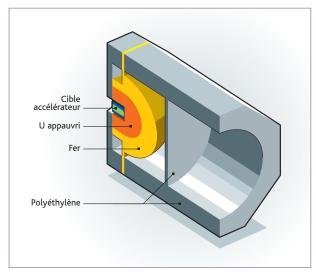


Figure 7 Schéma en coupe du dispositif CANEL.

Le dossier de demande d'accréditation Cofrac pour la détermination de la fluence (et des grandeurs dosimétriques) sur AMANDE est en cours. Cette accréditation devrait être obtenue début 2010. L'élargissement de la portée de l'accréditation à l'énergie des neutrons constituera une deuxième étape, à l'issue de l'étude sur la méthode du temps de vol.

Concernant la fluence, le long compteur développé par l'IRSN a participé mi-2008 à une comparaison internationale supplémentaire Euramet (TC-936), initiée dans le cadre de la coopération scientifique entre l'IRSN et les Laboratoires nationaux de métrologie allemand (PTB) et anglais (NPL). En 2011, une comparaison clé de la CIPM sera organisée sur AMANDE, où différents instruments de référence mesureront la fluence dans quatre champs monoénergétiques.

Les travaux de recherche à mener sont nombreux et concernent notamment la maîtrise des incertitudes, l'évolution des cibles sous irradiation, la connaissance de la contribution des neutrons diffusés, la maîtrise du champ photonique associé aux champs neutroniques, la définition de méthodes d'étalonnage, l'étude de nouvelles réactions nucléaires, le développement d'instruments de référence spécifiques (une possibilité fait actuellement l'objet d'une thèse [Allaoua, 2007]), etc.

Champs réalistes

Concept

Les dosimètres individuels et, en général, tous les appareils de mesure des neutrons ont une réponse qui dépend de l'énergie des neutrons. Il est donc impossible d'étalonner correctement un instrument qui sera utilisé dans un champ neutronique dont les distributions en énergie et en angle d'émission diffèrent significa-

tivement de celles du champ de rayonnement de référence utilisé pour l'étalonnage. C'est à cet effet que la norme ISO 12789-1, à l'élaboration de laquelle l'IRSN a fortement contribué, a introduit la notion de « champs neutroniques simulant ceux de postes de travail », également appelés « champs neutroniques réalistes ». Ces champs neutroniques, une fois précisément caractérisés, peuvent être utilisés comme champs de référence pour l'étalonnage et sont recommandés dans les nouvelles normes de la CEI.

L'objectif est de pouvoir étalonner tout appareil dans un champ neutronique le plus proche possible de celui dans lequel il sera utilisé par la suite. L'étalonnage dans de tels champs « réalistes » permet d'obtenir une dosimétrie plus fiable et plus adaptée à chaque poste de travail.

Production des champs neutroniques

La source de ²⁵²Cf modérée évoquée précédemment constitue un champ neutronique réaliste. Toutefois, l'IRSN possède un dispositif unique au monde, CANEL, capable de produire un tel champ à partir des champs monoénergétiques produits par les accélérateurs J25 et T400. CANEL est un dispositif modulaire qui vient se placer autour de la cible de ces accélérateurs et où les neutrons « monoénergétiques primaires » génèrent un spectre de neutrons « secondaires » de fission par réaction avec la coquille d'uranium de CANEL. Les neutrons de fission traversent ensuite différents écrans de fer et de polyéthylène, comme le montre la *figure* 7, afin d'obtenir un spectre dégradé représentatif de ceux rencontrés à certains postes de travail.

Traçabilité et références

La méthode de référence utilisée sera la même que pour les accélérateurs SAMES, avec en plus une mesure de la distribution en énergie de la fluence avec l'ensemble des spectromètres du laboratoire de l'IRSN. Les spectromètres transféreront à terme les références en énergie et en fluence d'AMANDE, dès lors que cette installation sera accréditée pour l'énergie.

Toutefois, une comparaison internationale de recherche Euromet (TC-670) a été réalisée auprès d'une version légèrement différente de CANEL. Un bon accord a été obtenu entre les différents systèmes de spectrométrie des laboratoires qui ont participé à cette comparaison, notamment concernant les systèmes de sphères de Bonner⁽¹⁴⁾

(14) Le système de sphères de Bonner est constitué d'un détecteur de neutrons « thermiques » (c'est-à-dire détectant principalement les neutrons de très basse énergie), placé au centre de sphères de polyéthylène de différents diamètres. La sensibilité aux neutrons d'une énergie donnée dépend alors de la taille de la sphère. En combinant les mesures réalisées avec l'ensemble des sphères, il est possible, en utilisant des codes dédiés, de déterminer la distribution en énergie de la fluence neutronique de quelques meV à 20 MeV. permettant de mesurer l'ensemble de la distribution en énergie [Gressier et al., 2004]. Si l'un des instruments ayant participé à cet exercice s'insère dans une comparaison clé ou s'y rattachant, alors la traçabilité sur les références internationales pourra être établie. Cette solution est actuellement en cours d'étude.

■ Conclusion et perspectives

Rôle et bénéfice de la métrologie des neutrons à l'IRSN

Les installations de l'IRSN pour la production de champs neutroniques de référence permettent :

- de tester, étalonner et homologuer tous types d'appareil de mesure (spectromètres, débitmètres, dosimètres passifs ou actifs, multidétecteurs, etc.) sensibles aux neutrons ;
- de garantir la traçabilité aux références internationales des laboratoires d'étalonnage français produisant des champs neutroniques.

Elles sont utilisées, à ce jour, par :

- l'industrie, pour le développement ou les tests d'instruments de mesure pour la radioprotection ;
- des instituts de recherche, pour le développement de détecteurs pour la recherche fondamentale en astrophysique, en physique nucléaire ou en physique des particules ;
- \blacksquare l'IRSN, pour la recherche et le développement en dosimétrie et en radiobiologie.

Ainsi, elles permettent à l'IRSN de disposer d'un plateau technique complet pour le maintien et le développement des outils et des compétences nécessaires pour conserver un haut niveau d'expertise en dosimétrie des neutrons.

Vers une autre métrologie ?

Fort de son expérience dans la métrologie des neutrons, l'IRSN propose à présent une autre voie de recherche et de développement associée, au moins dans un premier temps, à l'installation AMANDE.

Il est en effet possible, grâce à une démarche métrologique, de maîtriser la dose déposée dans une unique cellule par des particules chargées allant des protons aux ions plus lourds, tels que carbone ou oxygène. C'est dans cette optique qu'un projet se met en place en vue d'implanter sur AMANDE une version prototype de ligne μ-faisceau. Cette nouvelle ligne permettra de délivrer à des échantillons cellulaires, avec une précision de l'ordre du μm, des ions contrôlés un à un et accélérés sur une gamme étendue d'énergies. Au vu des premiers résultats, le développement d'une nouvelle installation dédiée ou d'une extension de l'installation AMANDE pourra être envisagé.

Ce développement ouvre la possibilité à terme d'une métrologie de la dose au niveau microscopique et cellulaire, étendant les domaines d'application de la métrologie à l'IRSN.

Référence

- A. Allaoua (2007). Définition et caractérisation d'un détecteur à noyaux de recul pour l'établissement de références de champs neutroniques mono-énergétiques pour l'installation AMANDE. États des lieux au 1^{er} septembre 2007, Rapport SDE 2007-28.
- BIPM: www.bipm.org
- J.M. Bordy, H. Stadtmann, P. Ambrosi, D.J. Bartlett, P. Christensen, H. Hyvönen (2000). Performance test of dosimetric services in the EU member states and Switzerland for the routine assessment of individual doses (photon, beta, neutron), Radiation Protection Dosimetry, 89 (1-2), p.107-154.
- CEI 61005 (2003). Instrumentation pour la radioprotection. Appareils de mesure de l'équivalent de dose ambiant neutron (ou de son débit d'équivalent de dose).
- CEI 61322 (1994). Instrumentation pour la radioprotection. Débitmètres à poste fixe, ensembles d'alarme et moniteurs pour rayonnements neutroniques compris entre l'énergie des neutrons thermiques et 15 MeV.
- CEI 61526 (2005). Instrumentation pour la radioprotection. Mesure des équivalents de dose individuels Hp(10) et Hp(0,07) pour les rayonnements X, gamma, neutron et bêta. Appareils de mesure à lecture directe et moniteurs de l'équivalent de dose individuel.
- Cofrac : www.cofrac.fr
- Euramet : www.euramet.org
- V. Gressier, V. Lacoste, L. Lebreton, H. Muller, G. Pelcot, M. Bakali, F. Fernández, M. Tómas, N.J. Roberts, D.J. Thomas, M. Reginatto, B. Wiegel, J. Wittstock (2004). Characterisation of the IRSN CANEL/T400 facility producing realistic neutron fields for calibration and test purposes, Radiation Protection Dosimetry, 110 (1-4), p.523–527.
- ■V. Gressier, J.L. Pochat (2006). Les installations de l'IRSN dédiées à la métrologie des neutrons, Radioprotection 41 vol. 1 11-32.
- International Commission on Radiological Protection Publication 74 (1997). Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation.
- ISO (2006). Métrologie, normalisation et évaluation de la conformité. Bâtir une infrastructure pour le développement durable, http://www.iso.org/iso/fr/devt_3pillars_2006-fr.pdf
- ISO 12789-1 (2008). Champs de rayonnement de référence. Champs de neutrons simulant ceux de postes de travail. Partie 1 : Caractéristiques et méthodes de production.
- ISO 12789-2 (2008). Champs de rayonnement de référence. Champs de neutrons simulant ceux de postes de travail. Partie 2 : Concepts d'étalonnage en relation avec les grandeurs fondamentales.
- ■ISO 17025 (2005). Norme NF en ISO/CEI 17025. Exigences générales concernant la compétence des laboratoires d'étalonnage et d'essais.
- ISO 8529-1 (2001). Rayonnements neutroniques de référence. Partie 1 : Caractéristiques et méthodes de production.
- ISO 8529-2 (2000). Rayonnements neutroniques de référence. Partie 2 : Concepts d'étalonnage des dispositifs de radioprotection en relation avec les grandeurs fondamentales caractérisant le champ de rayonnement.
- ISO 8529-3 (1998). Rayonnements neutroniques de référence. Partie 3 : Étalonnage des dosimètres de zone (ou d'ambiance) et individuels, et détermination de leur réponse en fonction de l'énergie et de l'angle d'incidence des neutrons.
- ■V. Lacoste (2006). Étude et modélisation d'un long compteur pour l'établissement des références neutroniques en fluence de l'installation AMANDE, Rapport SDF 2006-48
- ■V. Lacoste (2007). Design of a new IRSN thermal neutron field facility using Monte Carlo simulations, Rapport SDE 2007-14.
- F. Langner, S. Löb, R. Nolte, V. Gressier, B. Asselineau, V. Lacoste, L. Lebreton (2007). Photon contribution to ambient dose equivalent H*(10) in the wide-spectrum neutron reference fields of the IRSN, Radiation Protection Dosimetry 126(1-4),145-150.
- L. Lebreton, A. Zimbal, D. Thomas (2007). Experimental comparison of ²⁴¹Am-Be Neutron fluence energy distributions, Radiation Protection Dosimetry 126(1-4), 3-7.
- LNE: www.metrologiefrancaise.fr
- LNHB : www.nucleide.org
- N. Magalotti, V. Lacoste, L. Lebreton, V. Gressier (2007). Investigation of the neutron energy distribution of the IRSN ²⁴¹Am-Be(α,n) source, Radiation Protection Dosimetry, doi:10.1093/rpd/ncl537.
- J.B. Marion, J. L. Fowler (1960). Fast Neutron Physics, Interscience Publishers, London.
- MB. Description du bain de manganèse sur le site internet du National Physical Laboratory: http://www.npl.co.uk/server.php?show=ConWebDoc.2016
- G. Pichenot, S. Guldbakke, B. Asselineau, V. Gressier, C. Itié, H. Klein, K. Knauf, L. Lebreton, S. Löb, L. Pochon-Guérin, D. Schlegel, W. Sosaat (2002). Characterisation of spherical recoil proton proportional counters used for neutron spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 476, p. 165-169.
- E. Texier (2007). Caractérisation du champ neutronique monoénergétique de 14,8 MeV de l'accélérateur J25, Rapport SDE 2007-37.

4.9

IMPACT ENVIRONNEMENTAL ET SANITAIRE DES REJETS D'EFFLUENTS CHIMIQUES: utilisation du code de calcul

Caroline RINGEARD, Nathalie PIRES
Unité d'expertise en radioprotection
des travailleurs et de la population

■ Une nouvelle mission pour l'IRSN depuis 2001

CALIES

L'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) saisit l'IRSN depuis 2001 afin d'obtenir un avis technique concernant la production, le traitement et les rejets d'effluents chimiques, figurant dans les dossiers de Demande d'autorisation de rejets et de prélèvements d'eau (Darpe), ainsi qu'une estimation de l'impact environnemental et sanitaire de ces rejets.

Plusieurs directions de l'IRSN sont impliquées. Il s'agit pour l'Institut non seulement de s'appuyer sur les textes réglementaires et sur les guides réalisés par la Commission européenne et par des organismes tels que l'Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris) mais également d'assurer une cohérence des méthodes employées avec celles mises en œuvre pour l'évaluation des conséquences des rejets d'effluents radioactifs.

■ CALIES : un outil IRSN au service de l'expertise

L'IRSN a conçu et développé un outil dénommé CALIES (calcul d'impact environnemental et sanitaire), adapté aux situations de rejet en eau douce, en mer et dans l'atmosphère. Cet outil de calcul utilise des équations caractérisant les transferts de polluants vers les compartiments eau, air, sol, plantes, organismes aquatiques et vers l'homme. CALIES permet de répondre aux situations d'expositions chroniques, sub-chroniques et aiguës d'une population donnée, considérée selon cinq classes d'âge.

Conçue comme une plate-forme, la version 3.0 contient actuellement une banque de données (recensant les caractéristiques de plus d'une centaine de substances chimiques étudiées depuis 2001), un module de dispersion atmosphérique (COTRAM4 qui permet, à partir des quantités de substances chimiques rejetées dans l'atmosphère et des données météorologiques, de calculer les concentrations ajoutées dans l'air), enfin un module de calcul de l'impact environnemental et sanitaire.

Pour un individu exposé à une substance ayant un effet à seuil, l'impact sanitaire s'exprime sous la forme d'un indice de risque (IR). Cet IR est le résultat de la comparaison des niveaux d'exposition de l'individu calculés par CALIES aux valeurs toxicologiques de référence (VTR). Lorsque l'indice de risque est inférieur à 1, un effet toxique est peu probable. Au-delà de 1, un effet toxique ne peut pas être exclu.

Pour les substances ayant un effet sans seuil, un excès de risque individuel (Eri) est calculé. L'Eri représente la probabilité pour un individu de développer, pendant sa vie, l'effet associé à la (aux) substance(s) du fait de l'exposition considérée. En France, la valeur de référence(1) est égale à 10-5.

Chaque année, une revue bibliographique des études de toxicité est réalisée, afin de mettre à jour les monographies disponibles dans CALIES et de sélectionner, en l'état des connaissances du moment, les données d'impact à utiliser dans les calculs de risque sanitaire.

⁽¹⁾ Circulaire du 10 décembre 1999, relative aux principes de fixation des objectifs de réhabilitation des sites et sols pollués.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

L'IRSN accueille régulièrement des stagiaires de l'École des hautes études en santé publique (EHESP) et de l'École nationale supérieure de chimie de Rennes (ENSCR) pour mener des études de modélisation de transferts dans l'environnement permettant de poursuivre l'amélioration de l'outil, comme par exemple récemment pour traiter du transfert de substances organiques dans les végétaux.

Depuis 2001, une trentaine d'avis ont été transmis par l'IRSN aux autorités, essentiellement dans le cadre de l'examen des dossiers Darpe. Dernièrement, CALIES a également été utilisé pour des évaluations d'impact sanitaire lié à une exposition à des sols contaminés

4.10

LA QUESTION du radon martien

Jean-Christophe SABROUX Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement

Pierre-Yves MESLIN
Laboratoire de physique
et de métrologie des aérosols

Le radon, gaz inerte radioactif descendant de l'uranium 238, fait depuis fort longtemps partie de la panoplie des traceurs les plus appréciés des hydrogéologues. Le projet de faire du radon martien un sujet d'étude scientifique et de proposer le développement d'un instrument dédié à sa mesure à bord d'un futur lander ou rover martien procède donc d'une idée simple : il existe une forte dépendance entre l'humidité du sol et l'exhalaison de radon. Partant du slogan Follow the water !, qui a pendant longtemps guidé la Nasa dans ses programmes d'exploration de la planète Mars, il apparaissait donc naturel de proposer le radon atmosphérique martien comme sonde naturelle de l'humidité du sol superficiel de la planète rouge. La question se pose en particulier pour les basses latitudes, où le spectromètre neutron de l'orbiteur de la Nasa Mars Odyssey a mis en évidence d'importantes quantités d'hydrogène, mais sans que l'on sache encore si cette signature trahit la présence de glace ou de minéraux hydratés.

Avec un cofinancement du Centre national d'études spatiales, l'IRSN a encadré une thèse⁽¹⁾ consacrée à l'étude scientifique du

radon martien, dont l'intérêt avait jusqu'à présent échappé aux planétologues. Si la faisabilité technique de cette mesure avait été démontrée à la faveur d'un développement instrumental dit de phase A, également cofinancé par le Cnes, il restait à asseoir plus solidement l'hypothèse d'une relation entre l'eau et le radon dans les conditions de température et de pression de la surface martienne, tout en tenant compte de ses caractéristiques physico-chimiques. C'est désormais chose faite, dans ce qui apparaît comme l'une des conclusions majeures de la thèse: le sol superficiel de la planète Mars, y compris aux basses latitudes, est beaucoup moins sec que celui de la Lune (qui, depuis les missions Surveyor, a bénéficié de nombreuses mesures de radon, y compris en orbite), et la différence d'humidité est suffisante pour se traduire en termes d'exhalaison de radon.

Bien sûr, le lien entre le radon atmosphérique et l'humidité du sous-sol est loin d'être univoque, sur Mars comme sur la Terre. C'est ce que confirme le modèle de transport du radon dans les milieux poreux développé pour traduire les spécificités du sol martien, où la basse pression et la basse température

⁽¹⁾ Le radon, traceur géophysique de l'environnement martien : étude de son transport, première mise en évidence et développement d'une instrumentation pour sa mesure. Thèse soutenue en mai 2008 par Pierre-Yves Meslin (université Pierre & Marie Curie).

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo

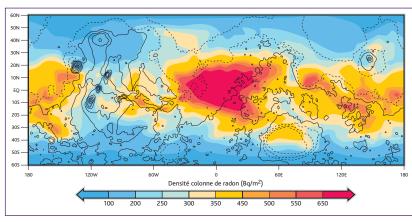


Figure 1

Carte des « densités colonne » de radon en Bq.m-² dressée à l'aide d'un modèle de circulation générale atmosphérique de la planète Mars (LMDZ du Laboratoire de météorologie dynamique) et de données d'entrée tenant compte de la teneur en eau et en thorium du sol martien (mesures spatiales du spectromètre gamma et neutrons de Mars Odyssey). L'élaboration de cette carte suppose, en première approximation, un rapport constant uranium/thorium à la surface de la planète Mars.

imposent la prise en compte de la diffusion de Knudsen (diffusion dans un milieu micro à nano poreux) et de l'adsorption (il en est de même, par exemple, dans les argiles terrestres, mais pour de toutes autres raisons). Associé à un modèle de circulation générale atmosphérique, le modèle de transport permet de remonter à la source de radon et, en particulier, à l'humidité du sol, moyennant toutefois la formulation d'un certain nombre d'hypothèses. Celles-ci sont contraintes par d'autres observables, régulièrement livrés par les orbiteurs ou rovers martiens toujours en opération. Cette démarche originale et rigoureuse conduit à une cartographie prédictive du potentiel d'exhalaison du radon martien, démarche également utilisable sur la Terre. Enfin, un examen minutieux des données du spectromètre alpha du rover Opportunity a permis la découverte de polonium-210 déposé sur

la poussière martienne. De même, l'hypothèse de la présence de bismuth-214 dans l'atmosphère de la planète, telle que formulée dans la thèse, devrait permettre de dresser une carte de l'uranium martien à partir des données du spectromètre gamma de l'orbiteur *Mars Odyssey*.

Grâce à ces deux avancées scientifiques, dues à une grande maîtrise de la métrologie des rayonnements ionisants, ainsi qu'aux nombreux liens tissés entre l'IRSN et les laboratoires spatiaux français et étrangers, un instrument dédié à la mesure du radon sur la planète Mars se trouve désormais en bien meilleure posture que quatre ans auparavant, dans la compétition pour embarquer sur une sonde martienne – par exemple MarsNEXT de l'ESA, dont le lancement est prévu en... 2018.

LES FAITS MARQUANTS

en quelques dates

SOUTENANCE DE THÈSE

20 mai 2008

■ Pierre-Yves MESLIN a soutenu sa thèse sur « Leradon, traceur géophysique de l'environnement martien : étude de son transport, première mise en évidence et développement d'une instrumentation pour sa mesure », à l'université Pierre & Marie Curie (Paris).

AUTRES FAITS MARQUANTS

Février 2008

■ Le projet ASAMPSA2 (Advanced Safety Assessment Methodologies: Level 2 PSA ou Méthodologies avancées d'évaluation de sûreté : évaluations probabilistes de sûreté de niveau 2) a été lancé le 19 février 2008 pour une durée de 36 mois, dans le cadre du 7e PCRD de la Communauté européenne. Son objectif est d'établir un guide des meilleures pratiques concernant les méthodologies des études probabilistes de sûreté de niveau 2 (EPS2), à fin d'harmonisation au niveau européen. Le guide concerne d'abord les centrales exploitées en Europe, mais la possibilité de l'appliquer aux réacteurs du futur (GEN III, GEN IV) sera également examinée. 21 organismes de 12 pays européens participent à ce projet coordonné par l'IRSN.

Décembre 2008

■ Signature d'une convention : collaboration entre l'IRSN et des organismes homologues, PTB (Allemagne), NPL (Royaume-Uni) et IRMM (centre commun de recherche de la communauté européenne situé en Belgique), dans le domaine de la métrologie des neutrons et de la dosimétrie.

Les études de sûreté et de sécurité des exploitations





5	LES ÉTUDES de sûreté et de sécurité des exploitations	. 248
5.1	ÉVALUATION DES PERFORMANCES des moniteurs de contamination atmosphérique en conditions réelles de fonctionnement	. 250
5.2	LES ACQUIS SUR LE COLMATAGE DES FILTRES À TRÈS HAUTE EFFICACITÉ par les aérosols formés lors d'un incendie	. 260
5.3	RAPPORT DE SYNTHÈSE DE L'ÉVALUATION PROBABILISTE DE SÛRETÉ relative au risque d'incendie pour les réacteurs de 900 MWe	. 267
	flashinfoflashinfoflashinfoflash	
5.4	DE SÛRETÉ relative au risque d'incendie pour les réacteurs	. 272
5.5	DÉVELOPPEMENT À L'IRSN D'UNE ÉVALUATION PROBABILISTE DE SÛRETÉ de niveau 1 relative au réacteur EPR de Flamanville 3	. 273
5.6	ÉTUDE ANALYTIQUE DU COMPORTEMENT HYDROMÉCANIQUE post-fermeture d'un ouvrage souterrain	. 274
5.7	LES FAITS MARQUANTS en quelques dates	. 283

LES ÉTUDES de sûreté et de sécurité des exploitations

Thierry CHARLES

Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets

a sûreté d'une installation nucléaire repose sur une conception adaptée aux procédés et matières mis en œuvre et aux risques induits pour les travailleurs, les personnes du public et l'environnement. Pour ce faire, il convient de disposer des connaissances scientifiques et techniques permettant notamment d'apprécier la réalité et l'importance des risques, que ce soit en fonctionnement normal ou en situations incidentelles ou accidentelles. Ces éléments sont essentiels pour permettre aux exploitants de dimensionner leurs installations (par exemple en termes de confinement et de ventilation), d'en définir les conditions d'exploitation (par exemple en termes de maîtrise des paramètres des procédés), de mettre en place des dispositions de protection du personnel (par exemple en termes de radioprotection)... et de produire les justifications de sûreté et de radioprotection à présenter dans les documents de sûreté associés.

■ L'IRSN, afin d'être en mesure d'assurer l'expertise de la sûreté et de la radioprotection des installations nucléaires, que ce soit lors de leur création, mise en exploitation, modification, réexamen de sûreté, démantèlement, doit également disposer d'éléments lui permettant de se forger sa propre opinion sur les dispositions prévues par les exploitants en matière de maîtrise des risques. Ceci passe notamment par la réalisation d'études et de recherches, généralement sur des sujets ciblés, majeurs pour l'appréciation de ces risques, qui peuvent, le cas échéant, être réalisées en cofinancement avec différents partenaires. Ces études et recherches permettent ainsi d'obtenir une compréhension des phénomènes concernés et de disposer d'éléments pour nourrir la capacité d'expertise de l'Institut, afin de

lui donner matière à porter un avis particulièrement argumenté sur les dispositions prévues par les exploitants nucléaires.

- Les articles qui suivent donnent un aperçu des thématiques traitées par l'IRSN dans le domaine de la sûreté d'installations aussi variées que les usines, les réacteurs nucléaires et les stockages de déchets radioactifs.
- Un des domaines importants visés par de telles études et recherches concerne l'appréciation des risques de dissémination de matières radioactives dans les locaux ou l'environnement, que ce soit en fonctionnement normal ou en situation accidentelle. Le premier article de ce chapitre concerne ainsi la surveillance de la contamination atmosphérique, qui est un élément important pour pouvoir notamment déceler une éventuelle perte de confinement de matières radioactives. Il expose les travaux menés par l'IRSN en vue d'évaluer les performances des moniteurs de contamination atmosphérique en conditions réelles de fonctionnement. Le deuxième article est relatif au comportement des équipements de filtration, avant rejet, de l'air provenant de locaux ventilés en cas d'incendie. Ces équipements sont en effet conçus pour limiter les rejets dans l'environnement et leur comportement en situation accidentelle, tel l'incendie, doit être évalué avec soin. L'article présente les expérimentations réalisées pour évaluer le colmatage des filtres à très haute efficacité par les aérosols formés en cas d'incendie, le colmatage étant un des phénomènes pouvant conduire à la perte de l'intégrité de ces filtres.



- Un autre grand domaine d'études concerne les évaluations probabilistes de sûreté (EPS) réalisées pour les réacteurs à eau sous pression, afin d'identifier et de quantifier les séquences accidentelles conduisant à une fusion du cœur. Les EPS se composent d'un ensemble d'analyses techniques permettant d'apprécier les risques en termes de fréquence d'événements redoutés et de leurs conséquences. À ce titre, elles apportent une aide dans la définition et la hiérarchisation des actions à mener en vue d'atteindre ou de maintenir un niveau de sûreté satisfaisant, en complément des méthodes déterministes utilisées prioritairement. Les EPS sont ainsi devenues un outil indispensable pour l'expertise de sûreté. Elles sont utilisées régulièrement dans les avis techniques de l'IRSN et notamment lors des réexamens de sûreté des réacteurs existants ou lors de la conception de nouveaux réacteurs (EPR). Les trois articles dédiés concernent ainsi les développements menés par l'IRSN en matière d'EPS relatives aux risques d'incendie pour les réacteurs de 900 MWe et de 1 300 MWe, et d'EPS de niveau 1 pour le réacteur EPR de Flamanville 3.
- Enfin, un domaine d'études et de recherches plus spécifique concerne la sûreté des stockages de déchets radioactifs en formation géologique profonde, qui nécessite notamment d'apprécier l'évolution des milieux de stockage au cours du temps. Le dernier article de ce chapitre concerne ainsi le comportement hydromécanique postfermeture d'un ouvrage souterrain, sujet particulièrement important pour évaluer la sûreté à long terme de tels stockages.

ÉVALUATION DES PERFORMANCES

des moniteurs de contamination atmosphérique en conditions réelles de fonctionnement

Céline MONSANGLANT-LOUVET, François GENSDARMES, Nadia LIATIMI, Sébastien PONTREAU Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols

Dans l'industrie nucléaire, les travailleurs peuvent être exposés à des aérosols radioactifs d'origine artificielle. Ces aérosols sont généralement composés de particules de diamètre compris entre 0,1 µm et 10 µm [Perrin, 1985]. En cas d'accident majeur, on observe également que les particules dispersées dans l'environnement ont des tailles comprises dans cette gamme granulométrique [Budyka et Ogorodnikov, 2005]. Pour assurer la protection des travailleurs dans les installations nucléaires ou évaluer les conséquences d'un rejet de contamination sous forme d'aérosols dans l'environnement, des moniteurs permettant de mesurer en continu la radioactivité de l'atmosphère sont utilisés. La fonction principale d'un tel équipement de surveillance est de fournir une mesure en temps réel de l'activité volumique dans l'installation ou la cheminée de rejet, de façon à déclencher une alarme ou à donner l'assurance que les rejets sont en conformité avec les limites autorisées.

La mesure de l'activité volumique des aérosols peut être affectée par un certain nombre de facteurs relatifs à ces aérosols (granulométrie, type de radioélément, présence d'aérosols radioactifs d'origine naturelle...) et à l'instrument (type de détecteur, traitement des données, circuit aéraulique, filtre de prélèvement...). La complexité de l'instrument de mesure fait qu'il n'est pas possible de déterminer sa réponse sur la base d'un modèle et qu'il est nécessaire de réaliser des étalonnages.

Les essais à réaliser pour étalonner les moniteurs sont décrits dans plusieurs normes de la CEI (Commission électrotechnique internationale). Ces essais sont de deux types : les essais dits « statiques », réalisés à l'aide de sources radioactives solides étalons, et les essais « dynamiques », réalisés avec des aérosols radioactifs calibrés. Les essais dynamiques permettent de déterminer les performances des instruments dans les conditions réelles de fonctionnement, notamment en présence de différents mélanges d'aérosols artificiels et naturels (descendants du radon).

Ces essais sont nécessaires pour l'homologation de type CTHIR (Centre technique d'homologation de l'instrumentation en radio-

protection), délivrée par l'IRSN pour les fabricants ou les utilisateurs industriels qui en font la demande.

La première partie de cet article présente les principes généraux de fonctionnement des moniteurs de contamination atmosphérique, les difficultés inhérentes à la mesure, ainsi que les principaux essais normalisés. La seconde partie décrit l'installation expérimentale du Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols (LPMA) de l'IRSN, qui permet de réaliser les essais dynamiques avec des aérosols radioactifs calibrés. Les résultats des essais obtenus pour deux types de moniteurs disponibles sur le marché sont présentés dans une troisième partie.

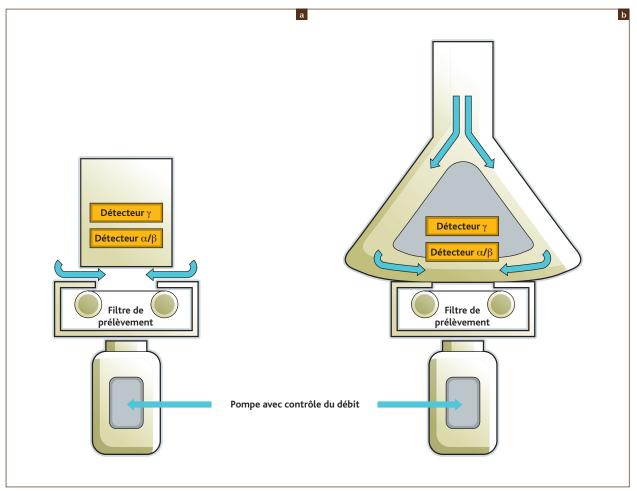


Figure 1 Schémas de principe de deux types de moniteur détenus dans l'installation ICARE. a) Un moniteur d'ambiance. b) Un moniteur pour la mesure en canalisation ou en cheminée.

Principes de fonctionnement et caractéristiques des moniteurs de contamination atmosphérique

La *figure 1* représente schématiquement les principaux éléments composant les moniteurs de contamination de l'air, à savoir un système de prélèvement (conduit aéraulique et filtre de collecte des aérosols), un détecteur de rayonnements nucléaires (α , β ou γ) et un module de mesure et de contrôle du débit de prélèvement. Le système de prélèvement doit permettre un échantillonnage représentatif de la granulométrie, de la composition chimique et de l'activité volumique des aérosols [McFarland *et al.*, 1990]. Il doit assurer également la collecte des aérosols sur un médium de rétention, en général un filtre à fibres, positionné face à un détecteur de rayonnement.

La *figure 1a* représente le schéma d'un moniteur d'ambiance où le prélèvement n'est pas canalisé et la *figure 1b* le cas d'un moniteur avec un bulbe d'échantillonnage. L'utilisation d'un bulbe d'échantillonnage.

lonnage permet d'optimiser la collecte des aérosols sur le filtre et de réaliser des mesures par prélèvement dans des conduits.

Les photographies de la *figure 2* montrent une tête de prélèvement avec bulbe appelée MONICA, conçue à l'IRSN [Charuau, 1985]. Le bulbe est un objet complexe, sa conception doit permettre le prélèvement des particules avec un minimum de dépôt dans le circuit d'échantillonnage et avec une distribution homogène des particules sur la surface du filtre. La forme du bulbe permet également, pour certains appareils, d'éliminer la composante due à la radioactivité naturelle (descendants du radon).

Le choix du filtre de collecte est primordial pour obtenir une mesure juste et précise de l'activité collectée. Dans l'industrie nucléaire, plusieurs types de filtre sont utilisés. Par exemple, pour faire des prélèvements avec des mesures nucléaires différées, les filtres de la société Bernard Dumas sont les plus utilisés : le filtre



Figure 2 Photographies d'une tête de prélèvement typique, à gauche la tête de prélèvement, à droite le bulbe contenant le détecteur nucléaire.

B132 en fibres de cellulose pure, le filtre C357 en fibres de verre ou encore le filtre C569 constitué d'un mélange de fibres de verre et de cellulose. Pour les moniteurs de contamination, la majorité des constructeurs tendent actuellement à utiliser le filtre FSLW (en téflon) de la société Millipore ou le filtre GF/A (en fibres de verre) de la société Whatman [Cohen et al., 2001]. La diversité de ces filtres complique les mesures nucléaires car chaque type de filtre présente ses propres caractéristiques en matière de collecte d'aérosols (efficacité de filtration, pénétration des aérosols en profondeur) et donc d'exploitation des résultats de mesure [Huang et al., 2002, Geryes et al., 2008].

Pendant le prélèvement, le moniteur doit déterminer l'activité volumique présente dans la pièce, dans le conduit ou la cheminée. Pour cela, il procède en temps réel à l'analyse de l'activité accumulée sur le filtre [Zhengyong et Whicker, 2008]. Certains moniteurs sont conçus pour une mesure différée du filtre; cette dernière solution est adoptée en particulier pour les mesures environnementales portant sur de très faibles quantités de radioactivité car elle permet d'utiliser des filtres de grande taille combinés à de grands volumes de prélèvement.

Pour mesurer en continu la concentration des aérosols radioactifs artificiels, les instruments utilisent généralement un algorithme qui a les fonctions suivantes :

- acquisition et traitement du taux de comptage délivré par le détecteur faisant face au médium filtrant;
- dérivation, en fonction du temps, du taux de comptage en supposant que l'activité volumique est constante dans l'intervalle de temps choisi pour l'acquisition et le traitement du taux de comptage des impulsions.

Par ailleurs, les moniteurs sont souvent pourvus d'une voie de mesure de l'activité volumique naturelle [McFarland *et al.*, 1992].

Cette double mesure permet de compenser les interactions entre les spectres d'énergie des radioéléments artificiels émetteurs α à mesurer et ceux des radioéléments d'origine naturelle collectés sur le filtre (descendants du radon) [Domnikov *et al.*, 2001]. Le radon (Rn), qui est un gaz rare et radioactif naturellement présent dans l'atmosphère, n'est pas retenu par le médium filtrant. En revanche, les descendants solides radioactifs du radon sont collectés sur le filtre et peuvent dégrader la mesure de la radioactivité d'origine artificielle [Hayes, 2003].

Généralement, les instruments mesurent l'activité volumique naturelle à l'aide d'algorithmes complexes qui nécessitent soit un « apprentissage » par le moniteur de l'environnement dans lequel il est placé, soit des mesures de longue durée pour effectuer une mesure dynamique des descendants du radon. Dans l'exposé des résultats à la fin de cet article, il sera montré la nécessité de compenser l'activité d'origine naturelle. Les moniteurs sont également pourvus d'un détecteur propre à la mesure du débit de dose γ ambiant.

Il apparaît donc qu'un moniteur est un appareil complexe qui nécessite d'être testé à l'aide de méthodes bien définies avant son utilisation dans une installation. Pour cela, des normes d'essais CEI existent : il s'agit de la série CEI 60761 Ed. 2 de 2002, qui couvre tous les essais dynamiques en conditions réelles de fonctionnement, de la norme CEI 61172 Ed. 1 de 1997 pour les essais statiques, ainsi que de la norme CEI 61578 Ed. 2 de 1997 qui traite les aspects liés au radon. L'ensemble de ces essais permet d'avoir une vision globale des performances du moniteur. Les principaux essais proposés sont :

- réponse de référence pour les aérosols radioactifs calibrés ;
- réponse avec une source de contrôle étalon ;
- réponse pour un mélange d'aérosols artificiels et de descendants du radon ;
- étude de la compensation du radon ;
- rendement de collecte de l'instrument pour plusieurs diamètres de particules ;
- linéarité de l'instrument en fonction de l'activité volumique ;
- rendement de détection en fonction du radionucléide ;
- ullet rendement de détection croisé des particules α et β ;
- fluctuations statistiques;
- stabilité de l'indication dans le temps ;
- \blacksquare augmentation du bruit de fond pour un débit de dose ambiant de 10 $\mu Gy/h$;
- temps de préchauffage ;
- fonctionnement avec des températures pouvant aller jusqu'à 35 °C et une humidité relative de 90 % ;
- débit de prélèvement en fonction de la perte de charge ;
- test des alarmes.

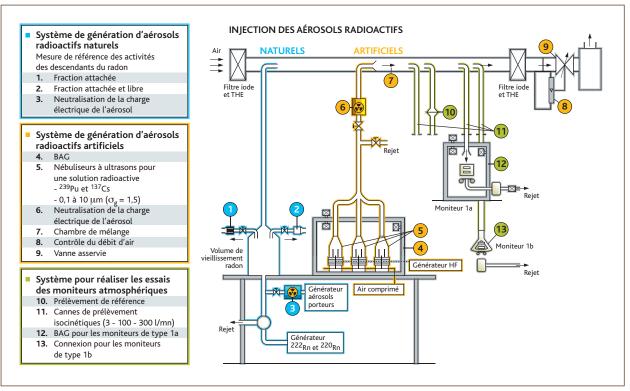


Figure 3 Schéma des voies de production des aérosols radioactifs artificiels et naturels dans ICARE.

Pour réaliser les essais des moniteurs de contamination suivant les exigences de ces normes, le banc d'essais ICARE (Installation de calibration à l'aide d'aérosols radioactifs étalons) est utilisé [Ruzer et al., 2005]. En plus des essais normalisés, ce banc expérimental permet de faire des tests de fonctionnement sur tous les types de moniteur en conditions réelles de fonctionnement.

Description du banc de test des moniteurs : l'installation ICARE

L'installation ICARE a été conçue au milieu des années 1980 [Ammerich, 1989] afin de tester les moniteurs de contamination atmosphérique dans des conditions représentatives de fonctionnement, notamment pour déterminer les réponses réelles des moniteurs et l'efficacité de la compensation radon [Grivaud et al., 1998].

L'installation ICARE est composée d'une veine aéraulique d'un diamètre de 120 mm, dans laquelle circule de l'air filtré avec un débit régulé à environ 56 m³/h. Les différentes substances radioactives pouvant être mesurées sont des aérosols artificiels et naturels, des gaz rares, du tritium et de l'iode.

La *figure 3* représente un schéma de principe de l'installation pour la partie concernant la production des aérosols radioactifs artificiels et naturels. *La figure 4* représente une vue générale de l'installation. En amont de la veine, sont disposés un point d'injection des aérosols artificiels, produits par trois générateurs qui sont confinés dans une boîte à gants, et un point d'injection pour la production des aérosols naturels. La section aval de la veine est équipée d'un point de prélèvement pour la mesure de référence et de trois autres points pour le raccordement des moniteurs à tester. Les prélèvements sont réalisés à l'aide de sondes isocinétiques, dimensionnées pour prélever à des débits compris entre 1 l/min et 1 000 l/min compte tenu du débit circulant dans la veine aéraulique.

Les moniteurs conçus pour la mesure dans des cheminées avec un bulbe de prélèvement (figure 1b) sont directement connectés aux cannes isocinétiques de l'installation par une connexion de type pneurop étanche. En revanche, les moniteurs environnementaux sans tête de prélèvement (figure 1a) sont positionnés dans une boîte à gants raccordée à la canne de prélèvement. Des mesures de dépôt de particules dans la boîte à gants sont réalisées afin de s'assurer que ce dernier est négligeable et que les concentrations dans la veine aéraulique et dans la boîte sont identiques.



Figure 4 Photographie du banc ICARE.

Voie de production des aérosols radioactifs artificiels

Les aérosols sont produits par la pulvérisation d'une solution à l'aide d'ultrasons. Le liquide est pulvérisé pour former un brouillard de microgouttelettes, qui sont séchées et entraînées par une circulation d'air sec. Ce type de générateur à ultrasons permet d'obtenir une concentration importante (plusieurs milliers de particules par cm³), stable dans le temps et facilement contrôlable en ajustant le débit d'air. De plus, la distribution en taille des particules est faiblement polydispersée, elle suit une loi lognormale d'écart-type géométrique $\sigma_{\rm g}$ compris entre 1,3 et 1,5 [Bémer et Tierce, 1996].

Le diamètre des microgouttelettes (D_g) dépend de la fréquence de résonance de la céramique du pulvérisateur, de la tension superficielle de surface et de la masse volumique du liquide. Le diamètre équivalent en volume Dev des particules sèches produites après évaporation des microgouttelettes dépend de la concentration en sel de la solution et du diamètre des microgouttelettes. Il s'exprime par :

Dev = Dg. $(Cm/\rho_m)^{1/3}$

où Cm représente la concentration massique du sel en solution (kg/m^3) et ρ_m sa masse volumique (kg/m^3) .

Le diamètre aérodynamique Da s'exprime en fonction du diamètre équivalent en volume par la relation :

$$\rho_{_{0}}$$
. $Da^{_{2}}$. $Cu(Da) = \frac{\rho_{_{m}}}{\chi}$. $Dev^{_{2}}$. $Cu(Dev)$

où ρ_0 représente la masse volumique de référence (ρ_0 = 1 000 kg/ m^3) et χ le facteur de forme dynamique de la particule. Le facteur de forme dynamique est un paramètre sans dimension, qui est défini par le rapport entre la force de traînée exercée sur la particule

et la force de traînée exercée sur une sphère ayant le même volume que la particule ; il est égal à 1 pour des particules sphériques. Cu(Dp) représente le facteur de correction de Cunningham pour une particule de diamètre Dp.

Finalement, pour des particules sèches supposées sphériques, le diamètre aérodynamique s'exprime en fonction du diamètre des microgouttelettes par :

$$\rho_0 . Da^2 . Cu(Da) = Dg^2 . Cm^{2/3} . \rho_m^{-1/3} . Cu \left[Dg . \left[\frac{Cm}{\rho_m} \right]^{1/3} \right]$$

Le coefficient de correction de Cunningham peut être négligé pour des particules de diamètre supérieur à 3 μm , il est compris entre 1 et 1,05 pour une pression égale à 1 013 hPa. Dans ce cas, on obtient une relation simplifiée entre le diamètre des gouttelettes, le diamètre aérodynamique, la concentration massique de la solution et la masse volumique du sel, qui s'exprime par :

$$\rho_0$$
. $Da^2 = Dg^2$. $Cm^{2/3}$. $\rho_m^{-1/3}$

Ces relations montrent que la technique de pulvérisation par ultrasons permet facilement d'obtenir et de maîtriser une large gamme de diamètres aérodynamiques. La fréquence propre à un générateur permet de fixer un diamètre de gouttelettes. Le banc d'essais ICARE est équipé de trois générateurs permettant d'obtenir avec de l'eau pure des diamètres de gouttes Dg \approx 25 μm pour 80 kHz, Dg \approx 5,4 μm pour 800 kHz et Dg \approx 2,6 μm pour 2 400 kHz. Pour un diamètre de goutte donné, la concentration et le type de sel permettent de faire varier le diamètre aérodynamique des particules sèches.

Pour produire des aérosols radioactifs, on utilise généralement une solution mère de chlorure de césium (CsCl), dans laquelle est ajoutée une solution contenant l'élément radioactif désiré, principalement du ²³⁹Pu ou du ¹³⁷Cs. D'autres radioéléments tels que ⁹⁰Sr ou ⁶⁰Co peuvent être mis en œuvre. Le sel de chlorure de césium a été choisi car il est faiblement hygroscopique et favorise ainsi l'évaporation rapide des microgouttelettes. De plus, c'est un composé idéal pour la production des particules marquées par du ¹³⁷Cs.

Des sources d'américium 241 sont placées en aval des générateurs afin de produire un « bain » d'ions bipolaires permettant de neutraliser l'aérosol, c'est-à-dire d'imposer un état de charge électrique des particules proche de l'équilibre de Boltzmann. Cette étape permet de minimiser les effets électrostatiques pouvant conduire à un dépôt des particules dans les conduits. Par ailleurs, les phénomènes d'autochargement pour les aérosols radioactifs émetteurs α et β produits dans le banc d'essais ICARE sont négligeables, compte tenu de la faible activité spécifique des particules produites (de l'ordre de 10-4 Bq par particule) [Gensdarmes et al., 2001].

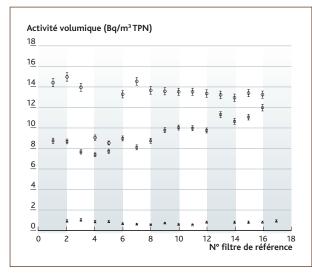


Figure 5 Activité volumique en ²³⁹Pu mesurée par les prélèvements séquentiels pour trois configurations expérimentales (TPN: conditions normales de pression et de température); la durée de chaque prélèvement est égale à environ 20 min.

Ainsi, le banc d'essais ICARE permet de produire des aérosols radioactifs faiblement polydispersés avec des diamètres aérodynamiques médians en activité (Dama) $^{(1)}$ compris entre 0,1 μ m et 10 μ m. Signalons que la norme CEI 61578 recommande de réaliser les essais sur les moniteurs avec des aérosols de diamètres aérodynamiques médians en activité situés dans les gammes de 0,15 μ m à 0,4 μ m et de 1,5 μ m à 4 μ m.

Généralement, les essais sont réalisés pour deux granulométries d'aérosols de diamètres aérodynamiques médians en activité respectifs d'environ 0,4 μm et 4 μm . Ces valeurs sont choisies car elles sont représentatives des aérosols radioactifs susceptibles d'être rencontrés dans l'environnement ou les usines. Par ailleurs, un rapport de diamètre aérodynamique égal à 10 entraîne une variation de la masse des particules égale à 1 000 et une variation de leur inertie (caractérisée par le temps de relaxation $^{(2)}$) égale à 100. Ceci engendre une grande variation des phénomènes de dépôt des particules, propice à une modification de la réponse de l'instrument avec l'évolution du diamètre médian des aérosols.

L'activité volumique et donc la concentration des aérosols produits par les pulvérisateurs à ultrasons sont stables pendant plusieurs heures. Par exemple, l'activité volumique peut être ajustée entre 1 Bq/m³ et 200 Bq/m³ pour les aérosols marqués au ¹³⁷Cs et entre 0,08 Bq/m³ et 12 Bq/m³ pour ceux contenant du ²³⁹Pu.

La mesure de référence de l'activité volumique de l'aérosol est réalisée par des prélèvements séquentiels sur un filtre FSLW en téflon de la société Millipore. Le prélèvement est réalisé dans la veine aéraulique à l'aide d'une sonde isocinétique avec un débit régulé de 30 l/min. L'activité collectée sur le filtre est mesurée par comptage avec un compteur proportionnel (MINI20, Eurisys), permettant de discriminer les rayonnements α et β . Le compteur proportionnel est étalonné par comparaison avec une mesure d'activité, effectuée par scintillation en voie liquide, sur un filtre contenant des aérosols radioactifs. Le scintillateur est étalonné à l'aide d'un étalon primaire de radioactivité fourni par le Laboratoire national Henri Becquerel.

La *figure 5* montre des exemples de la stabilité de l'activité volumique d'aérosols marqués au ²³⁹Pu. L'incertitude relative élargie (k = 2) sur l'activité volumique de chaque prélèvement de référence est d'environ 3 %. On constate, sur la *figure 5*, que l'activité volumique de l'aérosol est stable dans le temps. En effet, sur des périodes de huit heures, le coefficient de variation des mesures est compris entre 13 % et 14 % pour une activité volumique de l'ordre de 5 Bq.m-³. Pour des concentrations en activité plus importantes (jusqu'à 200 Bq.m-³) obtenues avec du ¹³⁷Cs, la dispersion sur huit heures est de seulement 5 %. Signalons que, lors des différents essais, l'activité volumique de référence est calculée sur des périodes de trois heures ; dans ce cas, le coefficient de variation de l'activité volumique est alors d'environ 7 % pour 5 Bq.m-³ et de 3 % pour 200 Bq.m-³.

Voie de production des aérosols radioactifs naturels

La voie de production des aérosols radioactifs naturels dans le banc d'essais ICARE est représentée sur la figure 3. L'installation permet de créer une atmosphère contrôlée en radioactivité d'origine naturelle, qui est composée en particulier de radon 222 (222Rn) gazeux et de ses quatre descendants à vie courte. Le radon est produit par trois sources de radium 226 (226Ra), imprégnées dans des feutres [Guélin, 1993]. Les feutres sont placés dans différents volumes fermés par des éléments en verre fritté et des filtres en fibres de verre sont placés à l'entrée et à la sortie afin d'empêcher toute contamination du banc par le ²²⁶Ra. Un débit d'air de 1 l/min circule dans le volume afin de transporter le radon qui émane de la source de radium. Un système de vannes permet de choisir la source de radium en fonction de l'activité en radon que l'on veut obtenir dans la veine aéraulique. L'air utilisé est filtré et a une humidité relative contrôlée égale à 65 %, afin d'optimiser le facteur d'émanation du radon. Un volume tampon

⁽¹⁾ Diamètre caractéristique d'un aérosol radioactif : 50 % de l'activité est contenue dans les particules de diamètre aérodynamique inférieur au Dama.

⁽²⁾ Temps caractéristique d'ajustement du vecteur vitesse des particules après un changement de direction ou de vitesse du flux d'air.

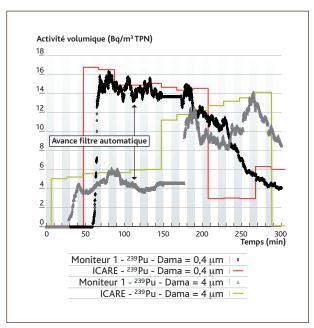


Figure 6 Comparaison des mesures, au cours du temps, du moniteur 1 et de l'activité volumique de référence dans ICARE pour deux granulométries d'aérosols marqués au ²³⁹Pu.

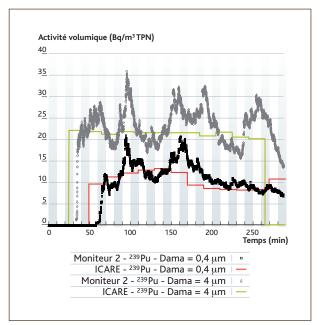


Figure 7 Comparaison des mesures, au cours du temps, du moniteur 2 et de l'activité volumique de référence dans ICARE pour deux granulométries d'aérosols marqués au ²³⁹Pu.

de 3 litres est placé en aval des sources de radium, ce qui permet d'éliminer 90 % du ²²⁰Rn produit par les impuretés de ²²⁴Ra présentes dans la source de ²²⁶Ra.

Le 222 Rn est ensuite introduit dans un volume de vieillissement de 100 litres, où il est mélangé avec un aérosol inactif afin d'obtenir les descendants à vie courte avec une fraction attachée et une fraction libre. L'aérosol inactif est composé de CsCl, il est produit par un pulvérisateur à ultrasons propre à cette voie. Les paramètres opératoires du générateur d'aérosols sont choisis de façon à produire une fraction attachée ayant un diamètre aérodynamique médian en activité égal à 0,2 μ m. Ce diamètre est considéré comme représentatif de la fraction attachée rencontrée dans l'environnement pour des conditions météorologiques stables (Dama compris entre 0,1 μ m et 0,5 μ m).

Deux systèmes de prélèvement sur filtres sont disposés à la sortie du volume de vieillissement, afin de déterminer l'activité du radon ainsi que les fractions libres et attachées des descendants. Un des systèmes de prélèvement est équipé d'une grille métallique en amont du filtre, ce qui permet d'éliminer la fraction libre dans l'échantillon (interception des particules nanométriques en raison de leur mouvement brownien important) ; les activités des différents composés sont déterminées en utilisant la méthode de Thomas⁽³⁾ (1972).

Finalement, l'aérosol est injecté dans la veine aéraulique du banc d'essais ICARE en continu avec un débit égal à 2,5 l/min. L'activité volumique des descendants du radon dans la veine aéraulique peut être ajustée entre 1 Bq.m-3 et 300 Bq.m-3.

Résultats des essais pour deux types de moniteur

La réponse de l'instrument pour des aérosols radioactifs donne la justesse de la mesure pour des conditions réelles de fonctionnement. Elle est définie par le rapport entre l'activité volumique indiquée par le moniteur et l'activité volumique de référence dans le banc ICARE.

La *figure* 6 représente les activités volumiques obtenues avec le moniteur 1 pour deux aérosols marqués au ²³⁹Pu ayant des Dama égaux à 0,4 µm et 4 µm. La *figure* 6 montre également l'activité volumique de référence mesurée dans la veine du banc d'essais ICARE. La *figure* 7 montre les mêmes types de résultat pour le moniteur 2. Ces essais ont été réalisés avec des activités volumiques en ²³⁹Pu comprises entre 2 Bq.m⁻³ et 23 Bq.m⁻³, ce qui

⁽³⁾ Interprétation de l'évolution de l'activité du filtre dans le temps en tenant compte des périodes de décroissance des différents isotopes radioactifs.

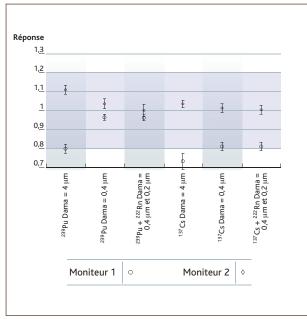


Figure 8 Synthèse des réponses obtenues pour les deux moniteurs testés avec différents types d'aérosols radioactifs artificiels et naturels. La zone bleue représente le domaine de conformité par rapport à la norme CEI 60761.

représente 20 à 300 fois l'ancienne limite dérivée de concentration dans l'air (LDCA); ils ont été effectués sans introduction d'aérosols radioactifs naturels.

Les algorithmes du moniteur sont paramétrés de façon à obtenir la réponse la plus rapide possible. Pour les deux moniteurs testés, un point de mesure est obtenu chaque seconde. Ce paramétrage influe sur le traitement des fluctuations statistiques des données primaires et engendre les oscillations visibles sur les *figures* 6 et 7. Par ailleurs, on remarque sur la *figure* 6 que, lors des avances automatiques du filtre sur le moniteur 1 (déclenchées lorsque la perte de charge du filtre devient trop importante), l'activité volumique est gardée en mémoire et le moniteur poursuit la mesure après un délai d'environ 25 minutes.

À partir de ce type d'essais, il est également possible de calculer le temps de réponse des instruments en fonction de l'activité volumique présente dans la veine. Généralement, plus l'activité volumique est faible, plus le temps de réponse s'allonge. Pour les deux moniteurs testés, le temps de réponse est d'environ 15 minutes pour des activités volumiques allant de 10 Bq.m-³ à 20 Bq.m-³; pour des valeurs plus faibles de l'ordre de 4 Bq.m-³, il augmente rapidement jusqu'à 35 minutes. Ces valeurs montrent que, lors d'un rejet faible de l'ordre de quelques LDCA pour le ²³⁹Pu sous forme d'aérosols, le temps de mise en alarme des moniteurs sera de l'ordre de l'heure.

La *figure* 8 représente la synthèse des réponses R obtenues pour les deux moniteurs pour différents essais, d'une part, avec des aérosols de Dama égaux à 0,4 µm et 4 µm marqués au ²³⁹Pu et au ¹³⁷Cs, d'autre part, avec un mélange d'aérosols radioactifs artificiels (²³⁹Pu ou ¹³⁷Cs) de Dama égal à 0,4 µm et d'aérosols radioactifs naturels (descendant du ²²²Rn) de Dama égal à 0,2 µm. Dans ces essais, l'activité volumique des descendants du radon (fraction libre et fraction attachée) étant comprise entre 35 Bq.m⁻³ et 42 Bq.m⁻³ avec un taux de fraction attachée de 75 %, les réponses sont calculées sur un intervalle de temps où l'activité de référence est stable (coefficient de variation inférieur à 7 %) ; pour cela, on utilise les valeurs moyennes des mesures de 5 à 10 prélèvements de référence, obtenus sur des durées d'environ vingt minutes.

La *figure 8* montre que le moniteur 2 répond sans ambiguïté aux exigences de la norme CEI 60761 pour les deux radionucléides (R = 1 ± 20 %). Le moniteur 1 a une réponse légèrement inférieure à 1 pour les aérosols de Dama égal à 0,4 µm marqués au 239 Pu, avec ou sans présence des descendants du radon. En revanche, la réponse du moniteur est d'environ 0,8 pour l'aérosol marqué au 239 Pu de Dama égal à 4 µm et pour tous les essais réalisés avec les aérosols marqués au 137 Cs. Le moniteur 1 se trouve donc en limite des exigences de la norme pour la voie de mesure β (137 Cs) et pour la voie de mesure α lorsque le Dama de l'aérosol est égal à 4 µm.

On remarque sur la *figure 8* que, pour les voies α et β du moniteur 1, les réponses pour les aérosols de Dama égal à 4 μ m sont inférieures à celles obtenues pour 0,4 μ m. Ce moniteur n'a pas de tête de prélèvement spécifique (*figure 1a*) et ne semble pas avoir été conçu pour l'échantillonnage des aérosols en ambiance.

En conséquence, la variation de la réponse des voies α et β en fonction du diamètre aérodynamique des particules peut être due à une évolution du rendement de collecte des aérosols. La détermination du rendement de collecte en fonction de la taille des particules, encore appelé efficacité d'échantillonnage, est donc essentielle si l'on veut utiliser l'instrument pour la mesure d'aérosols ayant des granulométries différentes de celles utilisées pour l'étalonnage.

À l'heure actuelle, on ne dispose pas de données expérimentales sur le rendement de collecte du moniteur 1, contrairement au moniteur 2. La *figure* 9 montre les résultats des mesures du rendement de collecte en fonction du Dama pour le moniteur 2 avec un bulbe de prélèvement. Le rendement de collecte est défini par le rapport entre les activités volumiques déterminées avec, d'une part, une mesure différée du filtre de collecte du moniteur effectuée

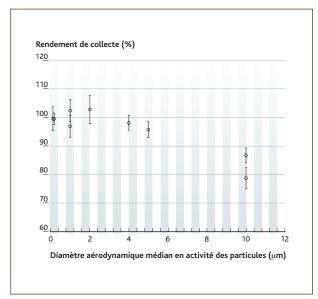


Figure 9 Évolution du rendement de collecte du moniteur 2 à bulbe



La *figure* 9 montre que, pour ce moniteur équipé d'un bulbe, le rendement de collecte est proche de 100 % pour des diamètres aérodynamiques compris entre 0,15 μ m et 4 μ m. En revanche, au-delà de 4 μ m, le rendement de collecte diminue ; il est approximativement de 80 % pour les particules de diamètre aérodynamique égal à 10 μ m. Cette diminution peut provenir du dépôt des particules par impaction et sédimentation sur les côtés du bulbe.

Les moniteurs actuels compensent pour la plupart l'activité des descendants du 222 Rn par différents types d'algorithme. La *figure 10*, qui représente un spectre en énergie α mesuré pour un mélange de 239 Pu et de descendants du 222 Rn, montre la nécessité d'effectuer cette compensation. En effet, on remarque que le pic d'énergie du 239 Pu (5,2 MeV) chevauche les pics des descendants à vie courte du 222 Rn, notamment le 218 Po (6 MeV) et, dans une moindre proportion, le 214 Po (7,7 MeV). Les algorithmes vont donc devoir déconvoluer le spectre d'énergie α afin d'obtenir l'activité réelle de 239 Pu.

Sur la *figure 8*, on ne remarque pas d'évolution significative de la réponse des voies α et β des deux moniteurs lorsque les essais sont réalisés en présence d'un aérosol radioactif naturel de Dama égal à 0,2 μ m. Ces résultats montrent la bonne efficacité de la méthode de compensation des descendants du radon sur la mesure de l'activité volumique des aérosols radioactifs artificiels.

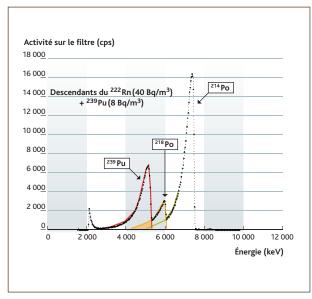


Figure 10 Spectre en énergie d'un prélèvement d'aérosols marqués au ²³⁹Pu et de descendants du ²²²Rn.

■ Conclusion

Le fonctionnement des moniteurs de contamination atmosphérique est complexe; il fait intervenir de nombreux mécanismes physiques et processus mathématiques pour l'échantillonnage et la collecte des aérosols, pour la détection spécifique des radionucléides et le calcul de l'activité volumique en temps réel. L'ensemble de ces éléments n'est pas modélisable en l'état actuel des connaissances et les performances des instruments ne peuvent pas être évaluées uniquement sur la base de tests statiques avec des sources solides. L'installation ICARE permet de produire des aérosols radioactifs artificiels et naturels, calibrés afin d'étalonner les moniteurs de contamination dans des conditions réelles de fonctionnement.

De ce fait, la réponse des instruments étalonnés sur l'installation ICARE tient compte :

- de l'efficacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement et du dépôt des aérosols sur les parois du circuit aéraulique du moniteur;
- de la pénétration des aérosols dans le filtre de collecte ;
- \blacksquare de l'auto-absorption des émissions α lors de l'encrassement du filtre par les aérosols ;
- \blacksquare de l'homogénéité de la répartition de l'aérosol sur la surface du filtre ;
- de l'influence des descendants du radon sur la mesure de l'activité d'origine artificielle ;
- de l'efficacité de l'algorithme de traitement des données.

Les méthodes de test élaborées dans l'installation ICARE ont été reconnues par la CEI en 1996 et sont mentionnées dans les normes de la série CEI 60761 et la norme CEI 61578. Par ailleurs, le Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols de l'IRSN est accrédité par la section essais du Cofrac (accréditation n° 1-1243, portée disponible sur www.cofrac.fr) pour la réalisation d'essais dynamiques sur les moniteurs de contamination.

Les résultats des essais réalisés sur deux types de moniteurs disponibles au LPMA montrent que les algorithmes de traitement des données permettent de compenser correctement la présence des descendants du radon pour la détermination de l'activité volumique d'aérosols artificiels marqués au ²³⁹Pu et

au ¹³⁷Cs. En revanche, les essais révèlent des performances différentes des moniteurs en ce qui concerne la mesure de l'activité volumique, d'une part, des aérosols artificiels marqués au ¹³⁷Cs, d'autre part, des aérosols artificiels marqués au ²³⁹Pu pour un diamètre aérodynamique de 4 µm.

Ces résultats renforcent la nécessité d'un étalonnage des moniteurs dans les conditions réelles de fonctionnement avec des aérosols représentatifs de chaque environnement. De plus, les résultats montrent que le temps de réponse des instruments peut être très long (de l'ordre de l'heure) en fonction de l'activité volumique et doit donc être connu pour évaluer au mieux les causes et les conséquences d'un déclenchement d'alarme.

Références

- M. Ammerich (1989). Réalisation d'une installation d'étalonnage de moniteurs de contamination atmosphérique à l'aide d'aérosols radioactifs calibrés (ICARE). Mémoire Cnam. Rapport CEA-R-5484.
- D. Bémer, P. Tierce (1996). Ultrasonic generation of droplets for the production of fluorescein aerosol of mass median aerodynamic diameter between 1 and 10 μm and geometric standard deviation <1,5. J. Aerosol Science 27, s393-s394.
- A.K. Budyka, B.I. Ogorodnikov (2005). Radioactive aerosols of the Chernobyl accident. In Aerosols Handbook, Measurement, Dosimetry and Health Effects. Ed. by Ruzer L.S. and Harley N.H., CRC Press.
- J. Charuau, G. Pescayre, R. Prigent (1983). Moniteur individuel de la contamination atmosphérique alpha (type Monica α). Radioprotection, Vol. 19, n° 1, 1-13.
- J. Charuau (1985). Design and assessment of a personal monitor to optimize the occupational monitoring in plutonium laboratories. First DOE workplace aerosol monitoring workshop, 28-30 octobre, Napa.
- B.S. Cohen, S.A. Maire, Heikkinen (2001). Sampling Airborne Radioactivity. In Air Sampling Instruments for evaluation of atmospheric contaminants. Ed. by Cohen B.S. and McCammon C.S. Jr, ACGIH.
- V.N. Domnikov, L. S.L. Saltykov, L.I. Slusarenko, S.V. Shevchenko (2001). About the effectiveness of spectrometry in alpha-activity monitoring of industrial air-borne particles. Applied Radiation and Isotopes, 55, 543-547.
- F. Gensdarmes, D. Boulaud, A. Renoux (2001). Electrical charging of radioactive aerosols. Comparison of the Clement-Harrison models with new experiments. J. Aerosol Science 32, 1,437-1,458.
- T. Geryes, C. Monsanglant-Louvet, E. Gehin (2008). Effects of filtration velocity on the measurements of radioactive aerosols in filters. Proceeding of the European Aerosol Conference, 24-29 août 2008, Grèce.
- L. Grivaud, S. Fauvel, M. Chemtob (1998). Measurement of performances of aerosol type radioactive contamination monitors. Radiation Protection Dosimetry, 79, 495-497.
- M. Guélin (1993). Réalisation d'un système de référence pour la génération de radon 222. Mémoire du Cnam, rapport CEA-5636.
- R. Hayes (2003). False CAM alarms from radon fluctuations. Health Physics, 85 (Suppl. 2), S81-S84.
- W.C. Hinds (1999). Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles. 2e ed, Wiley and Sons.
- S. Huang, S.D. Schery, R.E. Alcantara, J.C. Rodgers, P.T. Wasiolek (2002). Influence of dust loading on the alpha-particle energy resolution of continuous air monitors for thin deposits of radioactive aerosols. Health Physics, 83, 884-891.
- A.R. McFarland, C.A. Ortiz, J.C. Rodgers (1990). Performance evaluation of continuous air monitor (CAM) sampling heads. Health Physics, 58, 275-281.
- A.R. McFarland, J.C. Rodgers, C.A. Ortiz, M.E. Moore (1992). A continuous sampler with background suppression for monitoring alpha-emitting aerosol particles. Health Physics, 62, 400-406.
- M.L. Perrin (1985). Plutonium Size Distribution in a Reprocessing Plant and During Decommissionning Operations. First DOE workplace aerosol monitoring workshop, 28-30 octobre, Napa.
- L.S. Ruzer, Y.V. Kuznetzov, V.L. Kustova, D.E. Fertman, A.I. Rizin (2005). Radioactive aerosol standards. In Aerosols Handbook, Measurement, Dosimetry and Health Effects. Ed. by Ruzer L.S. and Harley N.H., CRC Press.
- J.W. Thomas (1972). Measurements of radon daughters in air. Health Physics, 23, 783-789.
- L. Zhengyong, J.J. Whicker (2008). Considerations for data processing by continuous air monitors based on accumulation sampling techniques. Health physics, 94 (Suppl. 1) S4-S15.

LES ACQUIS SUR LE COLMATAGE DES FILTRES À TRÈS HAUTE EFFICACITÉ

par les aérosols formés lors d'un incendie

Victor-Manuel MOCHO

Laboratoire d'expérimentations en confinement, épuration et ventilation

Francois-Xavier OUF

Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols

L'IRSN et Areva NC mènent actuellement un programme d'intérêt commun de recherche sur l'incendie, dont l'un des objectifs est d'améliorer les connaissances sur le colmatage des filtres de très haute efficacité (THE) et de développer un modèle empirique de colmatage de ces filtres par des aérosols de combustion ; le modèle recherché doit, autant que possible, être indépendant de la nature du combustible et doit pouvoir être intégré dans un code de calcul traitant les interactions entre la ventilation et l'incendie. Cet article présente l'influence de différents facteurs « directs », tels que la vitesse de filtration, la masse surfacique d'aérosols déposée, le diamètre des particules issues de la combustion, la teneur en condensats des aérosols, et de facteurs « indirects », tels que le débit d'air d'alimentation du foyer et sa teneur en oxygène, lesquels influencent l'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre colmaté.

L'analyse du risque d'incendie dans une installation nucléaire conduit en particulier à évaluer les conséquences de l'incendie sur le confinement des substances radioactives et à déterminer les quantités de matières radioactives susceptibles d'être rejetées à l'environnement. Les dispositions à prendre (sectorisation des locaux, conduite de la ventilation, par exemple) pour réduire ces conséquences doivent donc être tout particulièrement étudiées. Parmi les équipements de ventilation des installations nucléaires dédiés à la maîtrise des rejets de contamination, les dispositifs d'épuration et tout particulièrement le dernier niveau de filtration (DNF), composé de filtres THE, constituent un élément majeur.

Outre des contraintes thermiques, le développement d'un incendie dans une installation ventilée est susceptible de provoquer, sur les dispositifs d'épuration, des contraintes aérauliques et des contraintes mécaniques liées aux variations de pression lors de phases transitoires, inflammation et extinction en particulier.

Les aérosols sont également à prendre en considération car ils influencent notamment le colmatage des filtres THE présents dans les réseaux de ventilation; ces aérosols sont, soit uniquement des produits de la combustion, soit un mélange composé de produits de combustion et de produits contaminants.

Le cas étudié ici, le plus courant, correspond à celui où les aérosols sont uniquement des aérosols de combustion.

Dans une installation nucléaire, le colmatage des filtres peut avoir deux effets néfastes sur le maintien du confinement :

- il risque d'entraîner une rupture mécanique du médium filtrant et donc une perte partielle ou totale de l'efficacité du filtre ;
- il risque de provoquer une chute du débit d'air extrait du local siège de l'incendie, pouvant conduire à un passage en surpression du local et à un déséquilibre de la cascade de dépressions dans l'ensemble de l'installation.



Figure 1 Installation d'essais BANCO.

Admission 2 h⁻¹ 2 h⁻¹ 2 h⁻¹ 1 2 h⁻¹ 1

Figure 2 Installation d'essais DIVA.

Le moyen le plus réaliste d'évaluer si de tels effets peuvent intervenir est le recours à des codes de calculs qualifiés traitant de l'interaction entre la ventilation et l'incendie. Pour ce faire, il est en particulier nécessaire de disposer de modèles décrivant le colmatage des filtres THE.

À ce titre, l'IRSN et Areva NC mènent depuis plusieurs années un programme d'intérêt commun de recherche afin d'améliorer les connaissances dans les domaines de l'incendie et de l'interaction entre l'incendie et le réseau de ventilation.

Conditions opératoires relatives aux travaux sur le colmatage des filtres en cas d'incendie

Les travaux sur le colmatage des filtres THE ont pour objectif de construire un modèle de colmatage indépendant du scénario d'incendie, en ne tenant compte que des facteurs « directs » du colmatage. Pour ce faire, l'IRSN dispose du banc d'essais « BANCO » (figure 1), spécifiquement dimensionné pour permettre des expériences analytiques sur le colmatage de filtres THE par des aérosols issus de la combustion de différents matériaux [Mocho et Laborde, 2002]. Il comporte une enceinte d'environ 1 m³, dans laquelle sont placées les charges de combustible. Cette enceinte est raccordée à un conduit d'extraction dans lequel un ventilateur assure une circulation d'air. Le conduit se divise en deux voies calorifugées, dont les débits d'air varient respectivement de 50 m³/h à 100 m³/h et de 50 m³/h à 500 m³/h. Cette configuration offre la possibilité de réaliser des essais de colmatage pour différentes vitesses de filtration, tout en assurant un même débit de combustion, ceci afin de

ne pas modifier les caractéristiques des suies produites. Sur chaque voie est positionné un caisson de filtration recevant un filtre THE, dont on étudie le colmatage.

L'instrumentation du banc d'essais permet de mesurer les contraintes thermiques et aérauliques (perte de charge) au niveau du filtre THE testé, mais également de déterminer les caractéristiques de la dégradation thermique du combustible et les aérosols produits. Pour cela, le banc d'essais est équipé de thermocouples placés entre le foyer de combustion et le filtre THE testé, de capteurs électroniques de pression pour la mesure de la perte de charge aux bornes du filtre et d'une balance pour mesurer la perte de masse du combustible. La concentration massique en aérosols de combustion de l'air est déterminée, soit par des prélèvements séquentiels sur filtres, soit par l'emploi en série d'un système de dilution (DEKATI FPS 4000) et d'une microbalance (R&P TEOM) assurant une mesure en continu. La distribution granulométrique des aérosols, entre 30 nm et 10 µm, est mesurée après dilution à l'aide d'un granulomètre DEKATI ELPI basse pression.

De plus, la morphologie des particules est déterminée par l'examen de clichés de microscope électronique à transmission (MET), à partir de prélèvements spécifiques. Enfin, les teneurs en eau et en condensats des aérosols sont obtenus par la méthode Karl Fischer (par titration chimique) et par évaporation/dessiccation à l'étuve.

En parallèle, des essais réalisés dans l'installation DIVA (représentée sur la *figure 2*) permettent de déterminer l'influence du changement d'échelle sur les aérosols produits lors de la combustion de composants électriques et son incidence sur le colmatage d'un filtre THE.

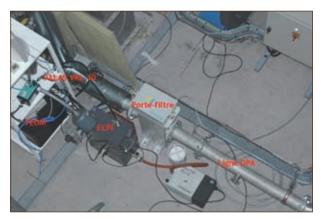


Figure 3 Déviation DPA de l'installation DIVA.

L'installation DIVA est constituée de quatre locaux adjacents et d'un réseau de ventilation modulable permettant d'étudier différents scénarios d'incendie [Saux et al., 2005]. Un conduit monté en dérivation sur le réseau d'extraction d'air du local siège du feu permet d'étudier le colmatage d'un filtre THE, à un débit de filtration de 50 m³/h. L'instrumentation mise en œuvre dans ce conduit (figure 3) est équivalente à celle du banc d'essais BANCO et permet la mesure des contraintes thermiques et des contraintes aérauliques au niveau du filtre THE testé, ainsi que la caractérisation de la dégradation thermique du combustible et des aérosols produits. De plus, des mesures supplémentaires de températures, de pressions et d'analyses de gaz sont effectuées dans le local siège du feu. Les filtres étudiés dans ces deux installations précitées sont des filtres plissés THE de la société CAMFIL-FARR utilisés dans des installations nucléaires, à base de fibre de verre, du type doubles dièdres de 6 m² de surface réelle de filtration (référence 1501.37.00) ; leur débit nominal de filtration est de 450 m³/h.

Dans l'installation BANCO, différents matériaux combustibles solides ont été étudiés: le polyméthacrylate de méthyle (PMMA), qui est d'usage courant dans certaines installations industrielles et présente une dégradation thermique aisée (absence de résidus de combustion) relativement bien connue, ainsi que le Lexan et le PVC, tous deux en association à 33 % et à 50 % (en masse) avec du PMMA, afin de favoriser leur combustion.

La caractérisation du colmatage d'un filtre consiste à déterminer l'évolution de la résistance aéraulique R du filtre en fonction de la masse M_{ae} d'aérosols déposés ; par analogie avec un filtre vierge, cette résistance est généralement définie, dans le domaine de la modélisation des réseaux de ventilation [Laborde et~al., 1994], par la relation : $R = (\mu_0.\Delta P)/(\mu.Q_v)$, où ΔP représente la perte de charge du filtre (Pa), Q_v le débit volumique de filtration (m^3/s), μ_0 et μ la viscosité dynamique du fluide (Pa.s.), respectivement à 20 °C

et à sa température dans le filtre. Au cours des essais réalisés, la vitesse de filtration a été maintenue constante durant le colmatage.

Principaux résultats expérimentaux

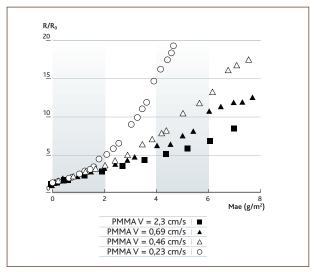
Au cours de l'ensemble des travaux menés en commun par l'IRSN et Areva NC, les principaux paramètres ayant une influence sur le colmatage des filtres ont été identifiés et il a été mis en évidence qu'ils pouvaient être classés dans deux catégories distinctes. La première regroupe les paramètres dits « directs », car ils constituent des données de base caractéristiques du filtre ou des aérosols produits par l'incendie et sont donc susceptibles, même si leur détermination peut s'avérer délicate, d'être introduits dans un modèle de colmatage.

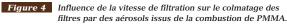
Ces paramètres sont liés aux filtres (caractéristiques du médium filtrant, de son pliage, de son éventuel précolmatage), au régime aéraulique de filtration (vitesse de filtration) et aux produits de combustion (masse surfacique déposée, granulométrie des particules élémentaires et des agrégats, morphologie des agrégats, teneur en eau et/ou en condensats). La seconde catégorie regroupe les paramètres dits « indirects » (flux thermique incident, débit de ventilation du foyer, teneur en oxygène de l'air, nature du combustible) ; ces derniers influencent essentiellement les paramètres « directs » caractérisant les aérosols de combustion et sont donc indirectement pris en compte dans le modèle.

Les *figures 4* et 5 présentent les effets de la vitesse de filtration, du débit de ventilation et de la concentration en oxygène $[O_2]$ sur le colmatage d'un filtre THE par des aérosols issus de la combustion de PMMA.

Une diminution de la vitesse de filtration (figure 4) entraîne une augmentation du rapport des résistances aérauliques R/R_0 d'un filtre plissé THE (R_0 étant la résistance aéraulique du filtre vierge), pour une masse donnée d'aérosols déposés. Ceci est principalement lié à l'hétérogénéité initiale de l'écoulement d'air dans un filtre plissé et à l'arrangement des particules le long de la hauteur des plis, qui conduit à une réduction de la surface utile de filtration d'autant plus importante que la vitesse de filtration est faible [Del Fabbro, 2001].

Par ailleurs, une augmentation de la richesse du mélange combustible (rapport débit d' O_2 stœchiométrique/débit d' O_2 disponible), caractérisée par une diminution du débit ou de la concentration en oxygène $[O_2]$ de l'air de ventilation du foyer (*figure 5*), conduit à une diminution du rapport des résistances aérauliques R/R_0 , pour une masse donnée d'aérosols déposés.





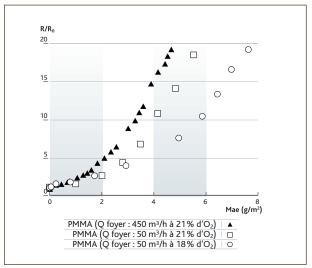


Figure 5 Influence du débit et de la concentration $[O_2]$ de l'air de ventilation du foyer de combustion sur le colmatage des filtres par des aérosols issus de la combustion de PMMA à une vitesse de filtration de 0,23 cm/s.

Combustible	Débit de ventilation (m³/h)	Taux de renouvel- lement du local feux (h ⁻¹)	Surface de combustion (m²)	Richesse globale du mélange	Dimension caractéristique (nm)	Teneur moyenne en eau (%)	Teneur totale en condensats (%)
PMMA (100 %)	50	50	0,0625	0,5	51 ± 9	≈ 2	≈ 2
	450	450	0,0625	< 0,1	40 ± 8	≈ 2	≈ 2
PMMA/LEXAN	50	50	0,0625	0,25	60 ± 12	≈ 2	≈ 2
(50 %/50 %)	450	450	0,0625	< 0,1	48 ± 10	≈ 2	≈ 2
PMMA/PVC (50 %/50 %)	50	50	0,0625	0,25	77 ±16	17	35
	450	450	0,0625	< 0,1	59 ± 13	16	25
Composants d'armoire électrique	50	50	0,16	0,8	64 ± 17	10	21
Armoire électrique (installation DIVA)	300	2,5	2,4	≈ 2	58 ± 9	non mesurée	> 25

 Tableau 1
 Caractéristiques des aérosols de combustion en fonction des conditions expérimentales.

Ceci est lié à une augmentation de la taille des particules primaires des agrégats qui composent les aérosols émis par le foyer de combustion, d'où l'importance de déterminer précisément les caractéristiques de ces agrégats [Mocho et al., 2007].

Caractéristiques des aérosols de combustion émis

Les aérosols de combustion émis par les différents types de combustibles testés (PMMA seul, mélange PMMA et Lexan, mélange PMMA et PVC ou encore mélange de composants d'une armoire électrique type) présentent des granulométries sensiblement similaires lorsque le régime de combustion correspond à un mélange pauvre (excès d'oxygène). Les aérosols émis sont composés d'agrégats de particules primaires. Ces agrégats sont très polydispersés (large spectre de diamètres) ; leur diamètre aérodynamique médian en masse est compris entre 0,7 μ m-1,0 μ m (faible ventilation du foyer de combustion) et 1,5 μ m-1,8 μ m (forte ventilation du foyer de combustion) et leur écart-type géométrique va de 3,5 à 5. Cependant, bien que la taille des agrégats et leur morphologie [Ouf *et al.*, 2008] soient sensiblement similaires, leur pouvoir colmatant est différent.

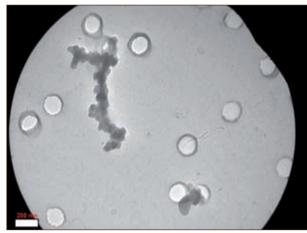


Figure 6 Agrégat de particules primaires d'environ 40 nm, issu de la combustion de PMMA pour une ventilation du foyer de 450 m³/h.

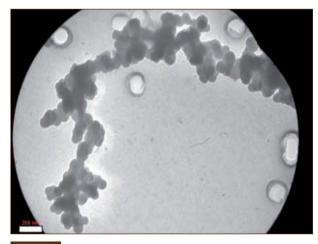


Figure 7 Agrégat de particules primaires d'environ 77 nm, issu de la combustion de PMMA/PVC pour une ventilation du foyer de 50 m³/h.

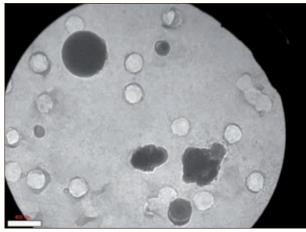


Figure 8 Particules issues de la combustion d'une armoire électrique type dans l'installation DIVA pour une ventilation du local de 300 m³/h (taux de renouvellement de 2,5 h-1).

Ceci peut s'expliquer, d'une part, par la différence de taille des particules primaires constituant les agrégats, d'autre part, par leur nature plus ou moins « solide » ou « liquide » en fonction de la teneur en eau/condensats. En effet, une structure « dendritique » (cas du PMMA) offre une résistance à l'écoulement plus importante qu'une structure « sphérique ». De même, des aérosols de nature liquide (combustible contenant du PVC par exemple) sont moins colmatants que des aérosols solides de mêmes dimensions [Pénicot, 1998]. Lorsque le régime de combustion correspond à un mélange riche (déficit d'oxygène), les aérosols de nature liquide contiennent une proportion de condensats issus de vapeur de combustible imbrûlé plus importante. Par ailleurs, si le feu a lieu dans un local dont le taux de renouvellement d'air est faible (cas de l'installation DIVA), les interactions entre particules et imbrûlés peuvent être suffisamment importantes pour modifier la morphologie des aérosols. Les agrégats initiaux peuvent alors se recouvrir d'une « gangue » et perdre totalement leur morphologie de type « agrégat » au profit d'une morphologie de type « particule compacte », pouvant être composée à la fois d'une phase solide et d'une phase liquide.

Le *tableau 1* présente les caractéristiques des aérosols émis pour différents mélanges et conditions de combustion. À titre d'illustration, les *figures 6*, 7 et 8 présentent trois photographies, prises au microscope électronique à transmission (MET), de particules issues de la combustion de PMMA et d'un mélange de PMMA/PVC (à 50 %/50 % en masse) dans l'installation BANCO, et de la combustion d'une armoire électrique type dans l'installation DIVA; ces aérosols sont constitués dans l'installation BANCO d'agrégats de particules élémentaires, respectivement d'environ 40 nm et 77 nm; dans l'installation DIVA, il s'agit de particules compactes d'environ 220 nm ne présentant pas de structure de type agrégat.

Modèle de colmatage

Compte tenu de la complexité des mécanismes et des paramètres intervenant dans le colmatage des filtres THE par des aérosols de combustion, l'état actuel des connaissances ne permet pas de décrire ce colmatage par une loi phénoménologique. L'établissement d'une relation empirique, à partir des paramètres « directs », a été préféré.

Modèle empirique de colmatage des filtres THE

Dans le modèle empirique initial [Mocho *et al.*, 2004], le paramètre « direct » caractéristique des aérosols était le diamètre aéro-

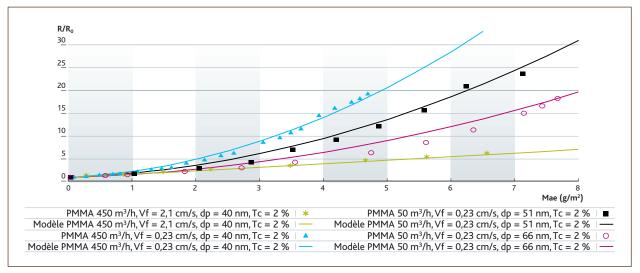


Figure 9 Comparaison entre le modèle et des résultats expérimentaux du colmatage de filtre THE par des aérosols de combustion de PMMA, pour différentes conditions d'essais.

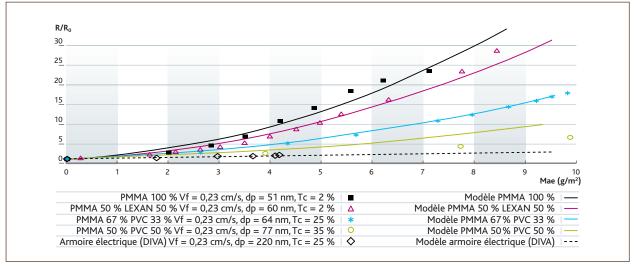


Figure 10 Comparaison entre le modèle et des résultats expérimentaux du colmatage de filtre THE par des aérosols de combustion pour différents combustibles.

dynamique médian en masse. Des travaux récents réalisés [Ouf et al., 2008] dans l'installation BANCO ont montré une corrélation entre le diamètre des particules primaires composant les agrégats et le couple de paramètres indirects « débit et concentration en oxygène $[O_2]$ de l'air de ventilation du foyer ». Le diamètre aérodynamique médian en masse a donc été remplacé par le diamètre moyen des particules primaires des agrégats (lorsque la morphologie de l'aérosol de combustion est de type « agrégat ») ou par le diamètre équivalent en volume de la particule (lorsque la morphologie n'est pas de type « agrégat »). De plus, un facteur prenant en compte la teneur en eau et en condensats des aérosols déposés sur le filtre THE a été introduit dans la relation empirique de colmatage.

Cette dernière se présente sous la forme suivante :

$$\frac{R}{R_o} = 1 + a. \left(1 - \frac{Tc}{100}\right) \frac{M_{ae}}{d_{pe}} + b. \left[\left(1 - \frac{Tc}{100}\right) \frac{M_{ae}}{v.d_{pe}} \right]^2$$

où R et R_0 représentent les résistances aérauliques du filtre colmaté et du filtre vierge (kg/s.m⁴), M_{ae} la masse surfacique d'aérosols déposés sur le filtre (g/m²), T_c la teneur en eau et en condensats des aérosols déposés (%), d_{pe} le diamètre moyen des particules élémentaires composant les agrégats ou le diamètre équivalent en volume de la particule (m), v la vitesse de filtration (m/s) et a, b des constantes expérimentales du modèle (indépendantes du combustible), $a = 2,8.10^{-8}$ m³/g et $b = 5,5.10^{-21}$ m⁸/(g².s²).

La *figure 9* montre le bon accord existant entre les résultats expérimentaux obtenus lors de la combustion de PMMA et le modèle empirique proposé lorsque la teneur en condensats est faible (Tc = 2 %).

À l'inverse, la *figure 10* souligne la surestimation du colmatage par le modèle empirique pour une teneur totale en condensats de 35 % (cas de la combustion d'un mélange PMMA/PVC 50 %/50 %); pour les teneurs plus faibles (2 % < Tc < 25 %), le modèle représente correctement les résultats expérimentaux. L'écart observé pour la plus forte teneur en condensats s'explique par le fait que le dépôt sur le filtre ne peut plus être considéré comme « solide » (*figure 8*). Le dépôt d'aérosols solides (formation de dendrites) sur le filtre étant différent de celui d'un aérosol liquide (formation de ponts liquides) [Pénicot, 1998], le modèle proposé n'est donc plus valable.

Dans le cas d'un colmatage du filtre par des aérosols dont la morphologie n'est pas de type « agrégat » (cas d'une combustion sous-ventilée avec de fortes interactions aérosols/imbrûlés, avec formation d'une gangue autour de l'agrégat initial), la taille de l'aérosol final est plus importante et son pouvoir de colmatage est bien plus faible (à masse déposée égale); si cet aérosol tend vers un aérosol de nature liquide, son pouvoir colmatant dépendra également de paramètres physiques liés à sa nature chimique (viscosité et tension superficielle entre autres); le modèle de colmatage devra donc être aménagé en conséquence.

■ Conclusion

Les résultats obtenus montrent qu'il est possible de décrire le colmatage des filtres THE par des aérosols formés lors d'un incendie impliquant des combustibles solides, au moyen d'un modèle empirique prenant en compte l'influence de paramètres qualifiés de « directs » (type de filtre, masse des aérosols déposés, taille caractéristique des aérosols émis, teneur en eau et en condensats, vitesse de filtration). Cependant, bien que ce modèle soit indépendant du combustible utilisé, il n'est valable que pour des conditions de combustion conduisant à un aérosol dont le caractère « solide » n'est pas trop modifié par d'éventuels condensats (teneur totale en condensats des aérosols déposés sur le filtre THE ≤ 25 %). À l'inverse, lorsque la teneur en eau et condensats s'avère élevée, il semble délicat d'établir une relation empirique de colmatage des filtres THE indépendante des caractéristiques physico-chimiques des aérosols, mais aussi de la nature des condensats qui est directement liée à la nature du combustible. Les perspectives d'amélioration dans ce domaine résident donc dans la détermination des caractéristiques de la phase condensable et dans la compréhension de l'interaction imbrûlés-aérosols pouvant jouer un rôle fondamental sur la nature des aérosols rejetés et par la même occasion sur le colmatage des filtres THE en situation réelle d'incendie ; de plus, il convient d'étudier l'influence d'une variation du débit de filtration durant la phase de colmatage, les travaux réalisés à ce jour l'ayant été à vitesse de filtration constante.

Références

- L. Del Fabbro (2001). Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides. Thèse de doctorat, université Paris XII.
- J.-C. Laborde, J.-L. Peirano, G. Perrin, C. Prevost, S. Raboin, J. Vendel (1994). Calculation code evaluating the confinement of a nuclear facility in case of fires. 23rd DOE/NRC Nuclear air cleaning and treatment conference, Buffalo.
- V.-M. Mocho, A. Briand, J.-C. Laborde (1998). Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage de filtres THE plissés pour différents types d'aérosols. 14e Congrès français sur les aérosols, Paris, France.
- ■V.-M. Mocho, J.-C. Laborde (2002). Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par des aérosols formés en cas d'incendie. 18e Congrès français sur les aérosols, Paris, France.
- V.-M. Mocho, L. Bouilloux, V. Renzi (2004). Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par des aérosols formés en cas de feux de différents matériaux. 20e Congrès français sur les aérosols, Paris, France.
- V.-M. Mocho, L. Bouilloux, S. Gmajner (2007). Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par des aérosols formés en cas de feux de différents matériaux. Premières journées filtration des aérosols, Nancy, France.
- F.-X. Ouf, J. Vendel, A. Coppalle, M. Weill, J. Yon (2008). Characterization of soot particles in the plumes of over-ventilated diffusion flames. Combust. Sci. and Tech., 180. 674-698.
- P. Pénicot (1998). Étude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols solides ou liquides submicroniques. Thèse de doctorat, INP de Lorraine.
- W. Saux, H. Pretrel, J.-M. Such (2005). The DIVA « multi-room » experimental facility and the DIVA-0 program. 8th International Symposium on Fire Safety Science, Pékin, Chine.

RAPPORT DE SYNTHÈSE DE L'ÉVALUATION PROBABILISTE DE SÛRETÉ relative au risque d'incendie pour les réacteurs de 900 MWe

François CORENWINDER

Bureau d'études probabilistes de sûreté

Véronique BERTRAND

Bureau d'évaluation de la conception et du fonctionnement des systèmes

L'approche probabiliste vise à évaluer la probabilité d'occurrence de situations recouvrant des événements complexes, notamment liés à la perte des systèmes redondants et à des agressions externes ou internes comme l'incendie. Elle intègre aussi bien les défaillances d'origine matérielle que d'origine humaine ou organisationnelle. L'évaluation probabiliste de sûreté relative au risque d'incendie pour les tranches REP de 900 MWe (EPS incendie 900 MWe) vise à conforter et à compléter l'analyse déterministe qui est à la base de la définition des dispositions de protection contre l'incendie.

D'éventuels points faibles dans la conception, l'exploitation ou la maintenance des installations peuvent ainsi être mis en évidence.

Une première version de l'EPS incendie 900 MWe a été achevée en 2003. Cette version a ensuite évolué jusqu'à la version actuelle, dite « de référence », qui intègre :

- les modifications décidées dans le cadre du réexamen de sûreté associé aux troisièmes visites décennales des tranches du palier 900 MWe ;
- la conduite incidentelle et accidentelle de type approche par états (APE), mise en place entre 1990 et 2003 sur le parc électronucléaire français. Par rapport à l'ancienne approche dite « événementielle », fondée sur des stratégies de conduite prédéterminées choisies en fonction du diagnostic initial, l'APE permet d'appliquer des stratégies itératives élaborées en fonction de l'état physique et thermohydraulique de la chaudière nucléaire ;
- les dispositions mises en œuvre dans le cadre du Plan d'actions incendie (PAI), déployé sur les tranches REP entre 1997 et 2007, en vue d'améliorer la protection contre l'incendie des installations (démarche déterministe).

Objectifs

L'objectif assigné à l'EPS incendie 900 MWe est double. D'une part, l'étude doit fournir une hiérarchisation des locaux de l'îlot nucléaire en termes de contribution au risque de fusion du cœur (EPS de niveau 1) en cas d'incendie. D'autre part, elle doit procurer un outil probabiliste pour tout type d'expertise lié aux risques d'incendie dans les réacteurs de 900 MWe.

Pour répondre au premier objectif, la démarche utilisée pour l'EPS incendie 900 MWe a consisté à identifier les scénarios accidentels susceptibles de se produire à la suite d'un incendie (scénarios d'endommagement des équipements et des câbles électriques qui participent à la conduite du réacteur), puis à évaluer la fréquence de fusion du cœur qui en résulte. L'IRSN a alors analysé les principales contributions à la fréquence de fusion du cœur et évalué les dispositions de conception et d'exploitation mises en œuvre par l'exploitant à l'égard du risque d'incendie.

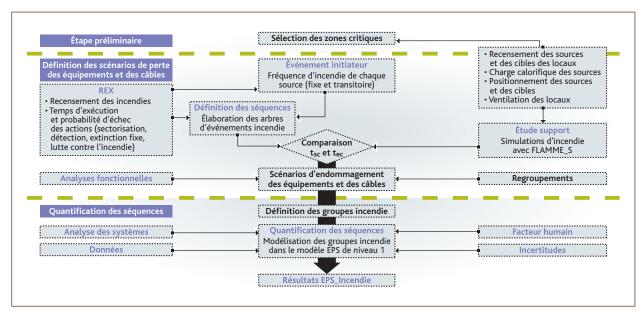


Figure 1 Démarche générale de réalisation de l'EPS incendie 900 MWe.

Pour ce qui concerne le second objectif, l'IRSN a cherché à réaliser une étude fine et exhaustive applicable à l'ensemble des locaux, afin de permettre un large panel d'évaluations de sûreté, telles que l'analyse des incidents ou les demandes de dérogations formulées par l'exploitant pour le palier 900 MWe.

Tranche nucléaire de référence et domaine de couverture

Le choix s'est porté sur la tranche n° 1 de la centrale du Blayais, qui a servi de référence à EDF pour la mise en œuvre du Plan d'action incendie. Les locaux étudiés dans le cadre de l'EPS incendie 900 MWe sont ceux abritant des composants (matériels ou câbles) importants pour la sûreté. Ainsi, 826 locaux répartis dans 10 bâtiments ont été initialement sélectionnés.

À la suite des conclusions de la version de 2003 de l'EPS incendie 900 MWe, la version actuelle de référence se limite à l'étude des états du réacteur pour lesquels le circuit de refroidissement du réacteur à l'arrêt n'est pas connecté au circuit primaire, c'est-à-dire approximativement des états de fonctionnement en puissance du réacteur, largement prépondérants en termes de fréquence de fusion du cœur. De même, le bâtiment du réacteur n'a pas été étudié car le risque d'incendie y survient essentiellement pendant les périodes de maintenance, lorsque le réacteur est à l'arrêt.

En outre, la salle de commande a fait l'objet d'une étude spécifique non intégrée à l'EPS incendie 900 MWe de référence.

Méthodes

Méthode de sélection des zones critiques

La première étape de l'EPS incendie 900 MWe consiste à sélectionner, parmi les 826 locaux étudiés, les locaux les plus sensibles vis-à-vis du risque d'incendie, afin d'en faire une analyse plus approfondie. Pour cela, les 826 locaux initialement retenus sont regroupés par zones dans lesquelles un incendie pourrait être initié et se propager (pas de protection coupe-feu entre les locaux).

Parmi ces zones, pour lesquelles une analyse simplifiée des scénarios d'incendie pouvant conduire à la fusion du cœur est effectuée, ne sont ensuite retenues pour une étude détaillée que les zones dites « zones critiques », qui répondent aux critères suivants :

- une zone critique contient des équipements importants pour la sûreté;
- la perte de l'ensemble des équipements d'une zone critique conduit à la perte partielle ou totale d'un équipement indispensable pour rallier l'état d'arrêt sûr;
- une zone critique contribue à la probabilité globale de fusion du cœur de façon non négligeable.

L'application de cette démarche de sélection a permis de retenir 34 zones critiques, soit 57 locaux appelés « locaux critiques », pour l'étude détaillée.

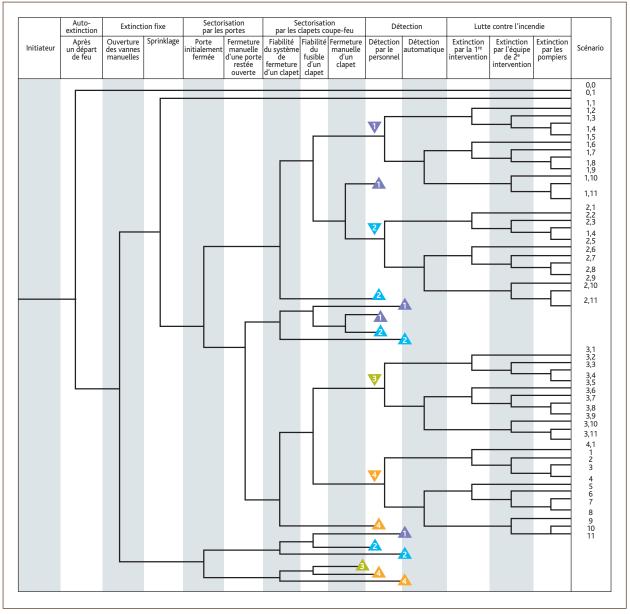


Figure 2 Arbre d'événements des scénarios d'incendie.

Étude détaillée des locaux critiques

L'évaluation probabiliste de sûreté relative à l'incendie pour les locaux identifiés comme critiques comporte deux grandes phases :

- l'évaluation des fréquences d'endommagement des équipements et des câbles électriques :
 - lacksquare évaluation des fréquences d'incendie ;
 - élaboration et quantification des scénarios d'incendie ;
 - évaluation des délais avant endommagement des équipements et des câbles électriques ;
- \blacksquare l'évaluation de la fréquence de fusion du cœur :

- analyse des conséquences fonctionnelles engendrées par la perte d'équipements et de câbles électriques;
- modélisation et quantification des séquences accidentelles consécutives à l'incendie menant à la fusion du cœur.

Un organigramme *(figure 1)* précise les différentes étapes de l'EPS incendie 900 MWe.

Évaluation des fréquences d'endommagement des équipements et des câbles électriques

■ Évaluation des fréquences d'incendie

L'évaluation des fréquences d'incendie repose sur l'analyse de l'expérience d'exploitation relative aux incendies survenus dans les réacteurs à eau sous pression (REP) français. 306 départs de feu ont été retenus pour le calcul des fréquences d'incendie. Ils sont classés suivant leur origine en cinq catégories : électrique, mécanique, hydrogène, travaux d'intervention et divers.

- Élaboration et quantification des scénarios d'incendie L'élaboration des scénarios d'incendie repose sur la construction et la quantification d'arbres d'événements. Les événements pris en compte sont les suivants :
- l'auto-extinction du feu ;
- l'extinction par les systèmes fixes d'aspersion ;
- la sectorisation :
 - par les portes ;
 - par les clapets coupe-feu;
- la détection (automatique ou humaine);
- l'extinction à l'aide de dispositifs mobiles (personnel à proximité, équipe de première intervention, équipe de deuxième intervention, pompiers).

L'évaluation probabiliste de l'échec de ces événements est fondée sur l'expérience d'exploitation française des réacteurs à eau sous pression. La durée de chaque scénario d'incendie (délai nécessaire à l'extinction de l'incendie) est également issue de l'expérience d'exploitation et dépend des configurations de la détection et de l'extinction qui le caractérisent. La *figure 2* présente l'arbre d'événements des scénarios d'incendie.

■ Évaluation des délais avant endommagement d'équipements ou de câbles électriques

Une simulation d'incendie, réalisée avec le code à zone FLAMME_S développé par l'IRSN, permet de calculer l'évolution des températures ambiantes en fonction de l'état de la sectorisation et de la ventilation dans le local siège du départ de feu et dans les locaux en communication avec celui-ci (soit par des ouvertures, soit par le réseau de ventilation). Ces calculs sont exploités pour déterminer le délai avant endommagement (dysfonctionnement) des équipements et des câbles électriques du local et des locaux adjacents en cas de propagation. Ce délai correspond à l'instant du franchissement des critères de dysfonctionnement thermique suivants :

- pour les câbles électriques, la température de dysfonctionnement retenue est de 230 °C (essai PEPSI 1 cité en référence [Rapport LEF, 1998]) :
- pour un équipement électrique, la température de dysfonction-

nement retenue est de 40 °C (température maximale de qualification spécifiée par le RCC_E).

■ Évaluation des fréquences d'endommagement des équipements et des câbles électriques

À l'issue des deux tâches précédentes, pour chaque scénario d'incendie, le délai avant endommagement (t_{ec}) est comparé à la durée du scénario d'incendie (t_{sc}) . Lorsque le premier est inférieur au second, les équipements et les câbles électriques sont considérés endommagés et la fréquence associée à leur endommagement correspond à la fréquence du scénario d'incendie.

Évaluation de la fréquence de fusion du cœur

■ Analyse fonctionnelle

Pour chacun des scénarios d'endommagement d'équipements et de câbles électriques pouvant résulter d'un incendie dans les locaux critiques de l'EPS incendie 900 MWe, des analyses fonctionnelles sont réalisées afin d'identifier si la situation rencontrée correspond à une séquence accidentelle de l'EPS de niveau 1 « initiateur interne ».

Les analyses fonctionnelles permettent d'identifier :

- les principales conséquences fonctionnelles sur la tranche résultant directement de l'endommagement des équipements et/ou des câbles électriques ;
- les équipements disponibles en redondance des équipements perdus ;
- les alarmes et informations disponibles en salle de commande ;
- la conduite envisagée ou imposée par l'application des consignes sélectionnées par l'opérateur ou des spécifications techniques d'exploitation.
- Modélisation et quantification des séquences accidentelles La modélisation des séquences accidentelles de l'EPS incendie 900 MWe conduisant à la fusion du cœur repose sur celle de l'EPS de niveau 1 effectuée pour les événements d'origine interne.

De manière générale, les hypothèses de modélisation (hypothèses fonctionnelles et hypothèses thermohydrauliques) retenues pour l'EPS de niveau 1 « initiateur interne » ont été reconduites dans l'EPS incendie. Les modifications liées à l'incendie portent sur la prise en compte :

- de l'indisponibilité des équipements nécessaires à la gestion de l'accident lorsqu'ils sont détruits par le feu ou lorsque celui-ci a entraîné leur dysfonctionnement;
- de facteurs aggravants dans la quantification des erreurs humaines afin de tenir compte des difficultés de conduite en cas d'incendie.
 Ces facteurs peuvent être :

- la difficulté à réaliser le diagnostic de la situation réelle de la tranche en cas d'absence d'informations ou d'apparition d'alarmes multiples en salle de commande;
- le stress supplémentaire lié à l'incendie ;
- la difficulté à effectuer des actions en local (notamment dans des locaux proches du local où s'est déroulé l'incendie en raison des fumées).
- de la modification du temps de fonctionnement nécessaire (appelé « temps de mission ») de certains systèmes nécessaires pour la gestion de la situation accidentelle, compte tenu du fait que les délais de remise en fonctionnement des matériels détruits par l'incendie peuvent être importants.

Résultats de l'EPS incendie 900 MWe

L'étude réalisée par l'IRSN a montré l'importance du risque lié à l'incendie. Ainsi, la fréquence totale de fusion du cœur de l'EPS incendie 900 MWe représente un tiers de la fréquence de fusion du cœur de l'EPS de niveau 1 « initiateur interne » des REP de 900 MWe. Cette contribution importante de l'incendie est toutefois à nuancer. En effet, des hypothèses et des calculs volontairement pessimistes ont été retenus en l'absence de connaissances suffisantes, notamment pour ce qui concerne la modélisation de la combustion des différents équipements électriques et l'estimation de leurs températures de dysfonctionnement.

Les principaux résultats de l'étude sont les suivants :

■ 12 locaux contribuent pour 99 % à la fréquence de fusion du cœur de l'EPS incendie 900 MWe. Il s'agit essentiellement de locaux

électriques contenant des équipements importants pour la sûreté, dont la perte est susceptible d'entraîner des situations accidentelles cumulées à une gestion difficile de la conduite de la tranche;

■ un local représente à lui seul 31 % de la fréquence de fusion du cœur de l'EPS incendie 900 MWe. Ce local est caractérisé par une fréquence d'incendie élevée du fait de la présence de nombreux tableaux électriques fournissant de nombreuses sources d'ignition. Les scénarios prépondérants conduisent à des situations de perte totale des alimentations électriques secourues.

Par ailleurs, l'étude réalisée par l'IRSN a permis de mesurer l'apport de la mise en œuvre du Plan d'actions incendie et de la conduite APE. En effet, par rapport à la première version de l'EPS incendie 900 MWe de 2003, la fréquence de fusion du cœur de la version actuelle de référence a diminué d'un facteur 7.

■ Conclusion

En définitive, malgré les modifications mises en œuvre sur les tranches REP d'EDF, la contribution du risque d'incendie à la fréquence totale de fusion du cœur reste élevée. D'ailleurs, à la suite du réexamen de sûreté associé aux troisièmes visites décennales des tranches REP de 900 MWe, EDF a reconnu l'importance du local prépondérant identifié par l'IRSN et s'est engagé à améliorer la protection des équipements de ce local. L'importance du risque d'incendie justifie la poursuite des actions de R&D à l'IRSN, tant du point des programmes expérimentaux que de la modélisation des phénomènes.

Références

Rapport LEF EF.30.15.R/98.517, intitulé « PEPSI 1 (Programme étude probabiliste de sûreté incendie, essai n° 1) — Principaux résultats expérimentaux », de juin 1998.

flashinfoflashinfoflashinfoflashinfo



DÉVELOPPEMENT À L'IRSN D'UNE ÉVALUATION PROBABILISTE DE SÛRETÉ

relative au risque d'incendie pour les réacteurs de 1 300 MWe

Véronique BERTRAND Bureau d'évaluation

Bureau d'évaluation de la conception et du fonctionnement des systèmes ■ À partir de 2010 débutera l'instruction du réexamen de sûreté associé aux troisièmes visites décennales des tranches REP de 1 300 MWe. L'IRSN développe pour cette échéance une évaluation probabiliste de sûreté (EPS) de niveau 1, relative au risque d'incendie pour les réacteurs de 1 300 MWe, afin de pouvoir apprécier de façon indépendante les hypothèses et les résultats de l'EPS incendie qui sera réalisée par EDF.

La méthode générale retenue pour l'EPS incendie 1 300 MWe de l'IRSN reprend en grande partie celle développée pour l'EPS incendie précédemment menée pour les réacteurs de 900 MWe. Toutefois, les enseignements tirés de cette dernière et les progrès des outils informatiques ont conduit à certaines évolutions.

- En particulier, l'IRSN a pour objectif d'identifier et de quantifier les séquences accidentelles prépondérantes conduisant à la fusion du cœur. Aussi, l'étude s'intéressera aux équipements puis aux locaux les plus critiques en termes de risques liés à l'incendie. Les mesures de conception et d'exploitation mises en œuvre par l'exploitant seront également évaluées.
- Le projet sera intégralement porté sous le logiciel RiskSpectrum®, ce qui permettra une cohérence globale du modèle, une meilleure convivialité dans son utilisation et la réalisation aisée d'études de sensibilité aux hypothèses les moins robustes. Concernant la modélisation de l'incendie,

l'EPS incendie 1 300 MWe s'appuiera sur SYLVIA, système de logiciels de simulation des phénomènes d'incendie, de ventilation et d'aérocontamination, récemment développé à l'IRSN.

- Les critères de dysfonctionnement des équipements électriques constituent une donnée sensible dans l'EPS incendie 900 MWe et doivent être affinés pour l'EPS incendie 1 300 MWe. C'est pourquoi un programme d'essais a été élaboré à l'IRSN sur les dysfonctionnements de composants de tableaux électriques causés par des effets thermiques (essais CATHODE en 2007 et 2008). Des essais sur les dysfonctionnements dus à des fumées sont également envisagés.
- À terme, l'étude fournira un outil probabiliste utile aux services spécialisés de l'IRSN pour mener des évaluations ciblées.

5.5

DÉVELOPPEMENT À L'IRSN D'UNE ÉVALUATION PROBABILISTE DE SÛRETÉ

de niveau 1 relative au réacteur EPR de Flamanville 3

Julien DELACHE Bureau d'études probabilistes de sûreté

- La sûreté des réacteurs nucléaires français repose, pour l'essentiel, sur des bases déterministes. Les évaluations probabilistes de sûreté (EPS) permettent de compléter les analyses déterministes classiques grâce à leur méthode particulière d'investigation. Les EPS se composent d'un ensemble d'analyses techniques permettant d'apprécier les risques liés aux installations nucléaires, en termes de fréquence d'événements redoutés et de leurs conséquences. À ce titre, elles apportent une aide dans la définition et la hiérarchisation des actions à mener en vue d'atteindre ou de maintenir un niveau de sûreté satisfaisant.
- Les EPS sont devenues un outil indispensable dans l'analyse de sûreté. Elles sont régulièrement utilisées dans les avis techniques de l'IRSN et périodiquement lors des réexamens de sûreté des réacteurs existants ou lors de la conception des nouveaux réacteurs (projet EPR). Dans ce dernier cas, elles aident à définir les dispositions matérielles ou procédurales permettant de garantir un niveau de sûreté satisfaisant.
- En vue de la future instruction technique pour la mise en service du réacteur EPR, EDF doit présenter une version mise à jour de son EPS de niveau 1 ainsi que des EPS « agressions » et de l'EPS de niveau 2. Afin de réaliser une expertise de qualité, l'IRSN développe sa propre EPS de niveau 1 pour le réacteur EPR de Flamanville 3. Elle constitue une contre-étude, qui permettra notamment d'estimer la fréquence de fusion du cœur et les principales contributions ainsi

- que de réaliser facilement des études de sensibilité relatives aux hypothèses d'étude et aux options de conception du réacteur EPR.
- Cette EPS devra également permettre le développement par l'IRSN des EPS « agressions » et d'une EPS de niveau 2.

ÉTUDE ANALYTIQUE DU COMPORTEMENT HYDROMÉCANIQUE

post-fermeture d'un ouvrage souterrain

Frédéric DELERUYELLE

Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des stockages de déchets radioactifs

Henry WONG, Nathalie DUFOUR

Département génie civil et bâtiment (CNRS)

Les galeries d'accès à l'installation de stockage de déchets radioactifs en formation géologique argileuse profonde seront remblayées à la fin de leur période d'exploitation. Les revêtements de ces galeries, qui assurent leur stabilité mécanique, ne seront alors plus entretenus et, longtemps après la fermeture de l'installation, ils devraient perdre leur intégrité mécanique. Ceci devrait se traduire par des mouvements de convergence des argilites environnantes et, après reprise des éventuels vides de construction, par un tassement des remblais jusqu'à ce qu'un nouvel état d'équilibre mécanique soit atteint.

La question des conséquences hydromécaniques de ces tassements différés sur des remblais saturés en eau s'est posée au cours de l'examen par l'IRSN du Dossier 2005 Argile [Andra, 2005], relatif à la faisabilité d'un stockage profond de déchets radioactifs dans une formation géologique argileuse. Le rapport DSU n° 106 indique notamment que « la convergence différée [devrait] aller dans le sens d'une diminution du volume libre des ouvrages remblayés. Si ceux-ci sont saturés en eau, en fonction de la cinétique de la convergence différée et de la diffusivité hydraulique environnante, [...] la possibilité de créer un gradient hydraulique supplémentaire sous l'effet du comportement différé de la roche et des ouvrages serait à étudier ». Comme tout phénomène susceptible de modifier les régimes d'écoulement d'eau ou de transfert des radionucléides autour des ouvrages, celui-ci doit être étudié pour l'évaluation de la sûreté à long terme du stockage.

La question est difficile du point de vue mécanique car elle nécessite de prendre en compte, à l'échelle d'un ouvrage, un couplage

entre les comportements différé et hydromécanique des géomatériaux. Elle se pose également en dehors du contexte du stockage des déchets radioactifs lorsque l'impact hydrogéologique du comportement post-fermeture d'une installation souterraine doit être évalué. Des études relatives à l'hydrogéologie post-fermeture existent dans la littérature [Vermeulen et Usher, 2006, Oliver et al., 2006, Van Biljon et al., 2006)] mais il en existe assez peu sur les interactions hydromécaniques provoquées par la fermeture d'une cavité profonde [Xu et Genin, 1994].

Avant de se lancer dans des modélisations numériques complexes, l'IRSN s'est intéressé à la recherche de solutions analytiques, afin de mieux comprendre les différents mécanismes mis en jeu, de voir la meilleure façon de les aborder, d'apprécier l'influence des différents paramètres et de se doter d'un cas-test qui permettra de conforter des modélisations numériques ultérieures plus sophistiquées. Ce travail a été réalisé en collaboration avec le département génie civil et bâtiment (URA 1652) de l'ENTPE et a abouti à des

solutions analytiques originales récemment publiées [Wong et al., 2008a et 2008b]. D'autres développements, théoriques et numériques, sont encore en cours.

Cet article présente brièvement la démarche mathématique adoptée et les solutions analytiques obtenues. Il présente ensuite les résultats d'une étude paramétrique obtenus grâce à cette approche analytique. Il sera également l'occasion de mentionner d'autres axes de recherche poursuivis par l'IRSN dans le domaine de la géomécanique et d'en préciser les liens avec la question du comportement hydromécanique post-fermeture d'ouvrages souterrains.

Mise en équation analytique dans le cas d'une cavité sphérique

Le problème général décrit précédemment est simplifié en considérant une cavité sphérique (1) de rayon 'a' située à grande profondeur dans un milieu poreux saturé en eau. On utilise les coordonnées sphériques où 'r' représente la distance au centre de la cavité et 't' le temps. Les inconnues sont les champs de déplacement radial u(r, t), de pression de pore p(r, t) et le tenseur de contraintes $\sigma(r, t)$. Les vecteurs et tenseurs sont notés en gras.

Le comportement du milieu environnant est supposé poro-visco-élastique, c'est-à-dire représentatif d'un matériau poreux dont la réponse aux sollicitations mécaniques n'est pas instantanée. À l'instant initial 't₀', la cavité est supposée remblayée et en équilibre hydraulique avec le milieu environnant. Un revêtement, intègre à cet instant, s'oppose à la convergence de la roche. L'état de contrainte environnant est supposé hydrostatique, de la forme $-\Sigma_0.1$ où ' Σ_0 ' est une contrainte totale (i.e. la somme d'une contrainte effective et d'une pression d'eau) et '1' le tenseur unité d'ordre 2. C'est à partir de cet instant qu'on considère que le revêtement se dégrade.

Le comportement du remblai est supposé poro-élastique, avec un module de compressibilité ${}'K_R{}'$. Il est fait l'hypothèse d'un remblai beaucoup plus perméable que le milieu environnant et sa pression de pore est donc supposée uniforme. À l'instant initial, le remblai est saturé en eau et en équilibre hydraulique avec le milieu environnant. Les contraintes effectives $(\sigma+p.1)$ à l'intérieur du remblai sont supposées nulles, ce qui correspond à un tassement initial nul, hypothèse pessimiste en termes d'amplitude du transi-

toire hydromécanique attendu lors de la dégradation du revêtement. La différence de contraintes effectives entre le remblai et le milieu environnant est reprise par le revêtement qui, à l'instant initial, assure l'équilibre mécanique de la paroi.

Le revêtement lui-même n'est pas modélisé. Seule la pression de soutènement ' $p_s(t)$ ' qu'il exerce sur la paroi est prise en compte. Celle-ci décroît au cours du temps et, à ce stade de l'étude, cette décroissance a été prise de la forme $p_s(t)=(\Sigma_0-p_0).e^{-\kappa.t}$ où ' κ ' représente une cinétique de dégradation. Cette forme exponentielle a été choisie pour sa simplicité et pour les multiples possibilités qu'elle offre en matière de cinétiques de dégradation, allant du revêtement pérenne ($\kappa=0$) à la rupture instantanée ($\kappa=\infty$). Ultérieurement, des travaux relatifs au couplage entre la lixiviation et le comportement mécanique du béton [Nguyen, 2005 ; Torrenti et al., 2008], réalisés au sein de collaborations IRSN-ENPC et IRSN-LCPC/ENS-Cachan, permettront d'améliorer cette représentation dans des modélisations numériques plus sophistiquées.

La modélisation du comportement visqueux du milieu environnant repose sur les travaux de [Coussy, 2004]. Deux approches, directe et fonctionnelle, ont été considérées.

Dans l'approche directe, le comportement du matériau est décrit par les relations suivantes :

$$(\sigma - \sigma_0) + (p - p_0) = K_0 (\epsilon - \epsilon^v); s - s^0 = 2\mu_0 (e - e^v)$$

 $(\sigma - \sigma_0) + (p - p_0) = \xi \epsilon^v + \xi \dot{\epsilon}^v; s - s^0 = 2\chi e^v + 2\eta \dot{e}^v$

où ' σ ' est la contrainte moyenne, ' ρ ' la pression de pore, ' ϵ ' la déformation volumique, ' ν ' un indice haut signifiant une contribution visco-élastique, ' σ ' le déviateur du tenseur de contrainte, ' σ ' le déviateur du tenseur de déformation et σ 0, σ 0, σ 1, σ 2, σ 3, σ 4 et σ 9 des constantes.

Dans l'approche fonctionnelle, le comportement du matériau fait intervenir le produit de convolution de Stieltjes et les fonctions de relevation suivantes :

$$K(t) = \left[K_{\infty} - \left(K_{\infty} - K_{0}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{r}}\right)\right] H(t) ; \mu(t) = \left[\mu_{\infty} - \left(\mu_{\infty} - \mu_{0}\right) \exp\left(-\frac{t}{\theta_{r}}\right)\right] H(t)$$

où ' K_0 ' et ' K_∞ ' sont des modules de compressibilité du squelette solide respectivement instantané et à long terme, ' τ_r ' et ' θ_r ' des temps caractéristiques de relaxation en compression volumique et en cisaillement, ' μ_0 ' et ' μ_∞ ' des modules de cisaillement respectivement instantané et à long terme et 'H(t)' la fonction de Heaviside ($H(t \ge 0) = 1$; H(t < 0) = 0).

[Wong et al., 2008b] a montré que ces deux approches étaient équivalentes pour le problème considéré ici. Dans les applications numériques qui seront présentées au paragraphe 4 du présent

La géométrie d'un cylindre de longueur infinie serait plus représentative de celle d'un tunnel mais conduit à des solutions plus difficiles faisant appel aux fonctions de Bessel; ce cas a néanmoins été résolu et sa publication est en cours.

article, ce sont les notations de l'approche fonctionnelle qui seront principalement utilisées. Les temps caractéristiques de fluage en compression volumique et en cisaillement ' τ_c ' et ' θ_c ' sont liés aux paramètres précédents de la manière suivante :

$$\frac{\tau_r}{\tau_c} = \frac{K_{\infty}}{K_0} ; \frac{\theta_r}{\theta_c} = \frac{\mu_{\infty}}{\mu_0}$$

À ce stade de l'étude, cette représentation du comportement visqueux a l'avantage d'être suffisamment simple pour se prêter au calcul analytique tout en étant une référence de la littérature. À un stade ultérieur, dans une modélisation numérique plus sophistiquée, d'autres lois telles que celle proposée par [Pellet et al., 2005] pourront être envisagées. L'implémentation de cette dernière dans le code de calcul CAST3M est en cours dans le cadre d'une collaboration IRSN-CEA.

Résolution dans l'espace des transformées de Laplace

Ce chapitre présente les grandes lignes de la méthode de résolution et les solutions obtenues. Une présentation plus détaillée se trouve dans [Wong *et al.*, 2008a et 2008b].

On utilisera la méthode des transformées de Laplace, méthode bien connue pour transformer des équations différentielles en équations algébriques. La transformée de Laplace $\bar{f}(r,s)$ d'une fonction f(r,t) est définie par :

$$\bar{f}(r,s) = L\{f(r,t)\} = \int_0^\infty f(r,t)e^{-st}dt$$

où 's' est le paramètre de la transformation.

Le problème considéré sur le domaine $r \ge a$ (*i.e.* le milieu environnant) est un problème à deux champs : celui de déplacement radial u(r,t) et celui de pression de pore p(r,t). La première équation générale du problème provient de l'équation d'équilibre mécanique du milieu environnant, $div\sigma + \rho g = 0$, qui peut ici se simplifier en $div(\sigma - \sigma^0) = 0$. Finalement, après quelques manipulations, celle-ci peut se mettre sous la forme :

$$div \left[2\mu_0 (\mathbf{e} - \mathbf{e}^v) + \left\{ K_0 (\in -\in v) - (p - p_0) \right\} \mathbf{1} \right] = 0$$

En considérant la transformée de Laplace de cette équation et en tenant compte de l'hypothèse de comportement visco-élastique du milieu environnant, $(e^{\overline{v}}, \overline{\in^{v}})$ peuvent être substitués à $(e^{\overline{v}}, \overline{\in^{v}})$ et on obtient :

$$\overline{\in} = \frac{\partial \overline{u}}{\partial r} + 2\frac{\overline{u}}{r} = \frac{\overline{p - p_0}}{\omega(s)}$$
 (EG-1)

avec
$$\omega(s) = K_0 \alpha(s) + \frac{4\mu_0}{3}\beta(s)$$
, $\alpha(s) = \frac{(1/\tau_c) + s}{(1/\tau_r) + s}$ et $\beta(s) = \frac{(1/\theta_c) + s}{(1/\theta_r) + s}$

La seconde équation générale provient de la diffusion hydraulique

de la pression de pore. Elle s'obtient de la façon suivante : l'équation de conservation de la masse de fluide et la loi de Darcy sont écrites en tenant compte de la condition initiale d'équilibre hydraulique. On obtient :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \lambda_h \Delta (p - p_0)$$

où ϕ est la porosité et λ_h la conductivité hydraulique du milieu environnant. Les hypothèses usuelles de petites déformations et d'incompressibilité de la matrice solide conduisent ensuite à :

$$\in = \phi - \phi_0$$
, et donc : $\frac{\partial \in}{\partial t} = \lambda_h \Delta(p - p_0)$

Enfin, la transformée de Laplace de l'équation précédente est reportée dans l'équation générale (EG-1) et donne :

$$\frac{\partial^{2}(\overline{p-p_{0}})}{\partial r^{2}} + \frac{2}{r} \frac{\partial(\overline{p-p_{0}})}{\partial r} - q^{2}(\overline{p-p_{0}}) = 0 \quad \text{(EG-2)}$$
avec $q = \sqrt{\frac{s}{\lambda_{r} \omega(s)}}$

Les conditions aux limites doivent également être écrites dans l'espace des transformées de Laplace. En supposant que l'eau est incompressible, la première condition à la limite exprime que la convergence de la cavité s'accompagne de l'expulsion d'un volume d'eau égal à la diminution de volume de la cavité. Elle est présentée ci-dessous sous ses deux formes, réelle et transformée :

$$\lambda_{\scriptscriptstyle h} \frac{\partial (p-p_{\scriptscriptstyle 0})}{\partial r}(a,t) = \frac{\partial u}{\partial t}(a,t) \; ; \; \lambda_{\scriptscriptstyle h} \frac{\partial (\overline{p-p_{\scriptscriptstyle 0}})}{\partial r}(a,s) = s \; \overline{u}(a,s) \quad \text{(CL-1)}$$

La seconde exprime l'équilibre de la paroi de l'excavation sous l'effet des contraintes appliquées par le remblai, le revêtement et le milieu extérieur :

$$-\sigma_{rr}(a^{-}, t) + p_{s}(t) = -\sigma_{rr}(a^{+}, t); -\overline{\sigma}_{rr}(a^{-}, s) + \frac{\Sigma_{0} - p_{0}}{s + \kappa} = -\overline{\sigma}_{rr}(a^{+}, s)$$
 (CL-2)

Le signe négatif de σ_{rr} provient de la convention de signe pour l'état « en compression ». Le terme $\sigma_{rr}(a^-,t)$ représente la contribution du remblai et peut s'exprimer en fonction des inconnues 'u' et 'p' à la paroi de la façon suivante :

$$\sigma_{rr}(a^{-},t) = 3K_R \frac{u(a,t)}{a} - p(a,t)$$

où ' K_R ' est le module de compressibilité du remblai. Le terme $\sigma_{rr}(a^+,t)$ représente la contribution du milieu environnant et peut également s'exprimer en fonction des inconnues à la paroi d'une manière un peu plus compliquée détaillée par [Wong et al., 2008b].

Les deux équations générales EG-1 et EG-2, complétées des conditions aux limites CL-1 et CL-2 et des conditions initiales définissent complètement le problème mathématique pour $r \geq a$. Bien que la pression paraisse découplée dans EG-2, le couplage intervient

fortement dans les conditions aux limites. Ce système peut être complètement résolu dans l'espace des transformées de Laplace. La solution s'écrit :

$$\overline{p - p_0} = \overline{p} - \frac{p_0}{s} = \frac{\kappa(\Sigma_0 - p_0)}{\lambda_h} \frac{a^3}{r} \frac{e^{-q(r-a)}}{(1 + qa)(s + \kappa)\Omega(s)}$$

$$\overline{u}(r,s) = \frac{a^3}{r^2} \frac{(\Sigma_0 - p_0)}{\Omega(s)} \left(\frac{1}{s + \kappa} - \frac{1}{s} \right) \left(\frac{1 + qr}{1 + qa} \right) e^{-q(r-a)}$$
 (S-1)

$$\overline{\sigma}_{rr} = -\frac{\Sigma_0}{s} - 4\mu_0 \beta(s) \frac{\overline{u}}{r} \; ; \; \overline{\sigma}_{\theta\theta} = -\frac{\Sigma_0}{s} + 2\mu_0 \beta(s) \left(\frac{\overline{u}}{r} - \frac{\overline{p-p_0}}{\omega(s)} \right)$$

où
$$\Omega(s) = 3K_R + 4\mu_0\beta(s) + \frac{a^2s}{\lambda_h(1+qa)}$$

La solution S-1 peut également être mise sous une forme adimensionnelle. Les variables adimensionnelles (ou « normalisées ») choisies sont notées avec une apostrophe et rassemblées dans le tableau suivant :

$$\begin{split} r' &= \frac{r}{a} \; ; \; u' = \frac{u}{a} \; ; \; t' = \frac{t}{\tau_h} \; ; \; \kappa' = \kappa \tau_h \; ; \; p' = \frac{p}{\Sigma_0} \; ; \; p'_0 = \frac{p_0}{\Sigma_0} \; ; \; K'_{\infty} = \frac{K_{\infty}}{\Sigma_0} \\ K'_0 &= \frac{K_0}{\Sigma_0} \; ; \; \mu'_0 = \frac{\mu_0}{\Sigma_0} \; ; \; \mu'_{\infty} = \frac{\mu_{\infty}}{\Sigma_0} \; ; \; K'_R = \frac{K_R}{\Sigma_0} \; ; \; s' = s\tau_h \; ; \; \omega'(s') = \frac{\omega(s)}{\Sigma_0} \\ \omega'_c &= \frac{\omega_c}{\Sigma_0} \; ; \; \Omega'(s') = \frac{\Omega(s)}{\Sigma_0} \; ; \; \tau'_c = \frac{\tau_c}{\tau_h} \; ; \; \tau'_r = \frac{\tau_r}{\tau_h} \; ; \; \theta'_c = \frac{\theta_c}{\tau_h} \; ; \; \theta'_r = \frac{\theta_r}{\tau_h} \; ; \\ q' &= \sqrt{\frac{\omega'_c \; s'}{\omega'(s')}} \end{split}$$

Tableau 1 Définition des variables normalisées.

Le temps caractéristique ' τ_h ' est choisi de sorte que $\tau_h = \frac{a^2}{\lambda_h \omega_e}$ où $\omega_e = K_0 + \frac{4}{3} \mu_0$.

En particulier, ω' (s') et Ω' (s') s'écrivent :

$$\omega'(s') = K'_{0}\alpha'(s') + \frac{4\mu'_{0}}{3}\beta'(s') \quad ;$$

$$\alpha'(s') = \frac{(1/\tau'_{c}) + s'}{(1/\tau'_{c}) + s'} \quad ; \quad \beta'(s') = \frac{(1/\theta'_{c}) + s'}{(1/\theta'_{c}) + s'}$$

$$\Omega'(s') = 3K'_R + 4\mu'_0 \beta'(s') + \omega'_e \frac{s'}{1+q'}$$

La solution analytique adimensionnelle dans l'espace des transformées de Laplace s'écrit alors :

$$\overline{p' - p'_0}(r', s') = \kappa' \omega'_e \frac{1 - p'_0}{r'} \frac{e^{-q'(r'-1)}}{\Omega'(s')(1 + q')(s' + \kappa')}$$

$$\overline{u}'(r',s') = \frac{1 - p'_0}{r'^2} \frac{(1 + q'r')e^{-q'(r'-1)}}{\Omega'(s')(1 + q')} \left(\frac{1}{s' + \kappa'} - \frac{1}{s'} \right) \quad (S-2)$$

$$\overline{\sigma}'_{rr} = -\frac{1}{s'} - 4\mu'_0 \left(\frac{1/\theta'_c + s'}{1/\theta'_c + s'} \right) \frac{\overline{u'}}{r'_c}$$
;

$$\overline{\sigma}'_{\theta\theta} = -\frac{1}{s'} + 2\mu'_0 \left(\frac{1/\theta'_c + s'}{1/\theta'_r + s'} \right) \left(\frac{\overline{u}'}{r'} - \frac{\overline{p' - p'_0}}{\omega'(s')} \right)$$

Le retour de l'espace des transformées de Laplace à l'espace « habituel » n'est pas trivial. La définition générale de l'inverse d'une transformée de Laplace s'écrit :

$$f(r,t) = L^{-1}\{\bar{f}(r,s)\} = \int_{\Gamma-i\infty}^{\Gamma+i\infty} \bar{f}(r,s)e^{st}ds$$

et nécessite le calcul d'une intégrale dans le plan complexe. Lorsque ce calcul n'est pas possible analytiquement, on a recours à des algorithmes numériques tels que ceux de [Stehfest, 1970] ou de [Talbot, 1979]. C'est de cette manière qu'a été réalisée l'étude paramétrique du paragraphe ci-après.

Néanmoins, dans le cas de la cavité sphérique présenté dans cet article, deux cas particuliers existent où la solution (S-2) peut être inversée analytiquement. Il s'agit :

• du cas où le comportement du milieu environnant est simplement poro-élastique, *i.e.* sans viscosité. Ce cas est étudié en détail par [Wong *et al.*, 2008a]. On le retrouve ici en faisant tendre vers l'infini les temps caractéristiques de fluage et de relaxation $(\tau_c, \tau_r, \theta_c, \theta_r)$. Le champ de déplacement dans l'espace « habituel » prend alors la forme :

$$u'(r',t') = \frac{(p_0'-1)}{\alpha v'^2} \left[g(r',t',\Omega_1) - g(r',t',\Omega_2) - A\phi(r',t',\Omega_1) \right]$$

$$-B\phi(r',t',\Omega_2) - C\phi(r',t',-i\sqrt{\kappa'}) - D\phi(r',t',i\sqrt{\kappa'})$$

où les fonctions $g(r', t', \Omega_i)$ et $\phi(r', t', \Omega_i)$ et les constantes (A, B, C, D) sont données par [Wong *et al.*, 2008a];

■ du cas « général » poro-visco-élastique mais avec les hypothèses supplémentaires suivantes : $\tau_c = \theta_c$ et $\tau_r = \theta_r$. Ces hypothèses sont inspirées des résultats de l'étude paramétrique présentée au paragraphe 4. Le champ de déplacement obtenu est alors de la forme :

$$\frac{r'^2}{1 - p'_0} u'(r', t') = \Lambda(r', t', \kappa') - \Lambda(r', t', 0)$$

où la fonction $\Lambda(r', t', \kappa')$ est donnée par [Wong et al., 2008b]

Exemples d'applications – étude paramétrique

Cet article a pour but de montrer l'applicabilité de la solution analytique obtenue dans le cas général d'un comportement porovisco-élastique du milieu environnant, de visualiser les mécanismes en jeu et d'apprécier l'influence de différents paramètres. La solution analytique (S-2), écrite dans l'espace des transformées de Laplace, est inversée numériquement à l'aide de l'algorithme de Stehfest. Les valeurs de référence des différents paramètres sont les suivantes :

```
\begin{split} &\Sigma_0 = 10 \text{ MPa} \ ; \rho_0 = 5 \text{ MPa} \ ; K_0 = 1 \ 680 \text{ MPa} \ ; \mu_0 = 1 \ 890 \text{ MPa} \ ; \\ &K_R = K_0/30 = 56 \text{ MPa} \ ; \\ &k_h = 10^{-7} \ m^2 s^{-1} \ ; \lambda_h = 2,4.10^{-17} \ m^4 N^{-1} s^{-1} \ ; K' = 2 \ ; \tau'_c = 12 \ ; \tau'_r = 4 \\ &(\textit{i.e.} \ K_\infty = 560 \text{ MPa}) \\ &\theta'_c = 6 \ ; \theta'_r = 2 \ (\textit{i.e.} \ \mu_\infty = 630 \text{ MPa}) \\ &\text{ce qui conduit aux paramètres adimensionnels suivants} \ : \\ &P'_0 = 0.5 \ ; K'_0 = 168 \ ; \mu'_0 = 189 \ ; K'_R = 5,6 \end{split}
```

Tableau 2 Valeurs de référence des paramètres utilisées pour l'étude paramétrique.

Ces valeurs ne sont que des ordres de grandeur possibles des différents paramètres et ne doivent pas être considérées comme « établies » pour réaliser d'éventuelles études de sûreté relatives au site de Meuse/Haute-Marne.

Les résultats sont présentés sous leur forme adimensionnelle. La *figure 1* montre l'évolution de la pression de pore, du déplacement en paroi et des contraintes effectives en cinq rayons (r' = r/a = 1; 1,1; 1,3; 1,6 et 2,5). L'évolution de la pression de pore présente un pic puis un retour à sa valeur initiale. La valeur du pic est d'autant plus élevée et le temps nécessaire à l'atteindre d'autant plus court que l'on est proche de la cavité. Les déplacements présentés sur la *figure 1b* sont rapportés au déplacement asymptotique de la paroi de l'excavation afin de varier dans l'intervalle [0, 1]. Les contraintes se stabilisent beaucoup plus vite que les déplacements, ce qui explique une échelle de temps limitée à [0, 3] sur les figures 1c et 1d. Ce point mérite d'être souligné car il montre que, pour des temps élevés, le fluage se produit pratiquement à contrainte constante. Pour ce qui concerne les contraintes effectives, la compression radiale diminue tandis que la compression circonférentielle augmente du fait de la dégradation du revêtement. Le comportement asymptotique dépend beaucoup de la compressibilité du remblai. Dans le cas présent, cette compressibilité explique la contrainte effective radiale faible mais non nulle sur la paroi de l'excavation aux temps élevés.

La *figure* 2 montre l'effet de la cinétique de dégradation du revêtement κ' sur les pressions et contraintes circonférentielles. Elle confirme le rôle essentiel de ce paramètre dans cette étude. Pour les grandes valeurs de κ' , ce qui représente une rupture quasi instantanée du revêtement, la pression de pore à la paroi de l'excavation passe instantanément à la valeur de la contrainte hydrostatique initiale Σ_0 (soit p' = 1) puis retourne lentement à sa valeur initiale. Contrairement à la contrainte effective radiale, l'évolution de la contrainte effective circonférentielle n'est pas monotone et présente un maximum très localisé qui apparaît pour des temps

très courts, avec un pic d'autant plus pointu et élevé que la valeur de κ' est grande. Les effets visqueux sont complètement définis par la donnée des quatre temps caractéristiques $(\tau'_c, \theta'_c, \tau'_r, \theta'_r)$, la lettre ' τ' étant relative à la compression volumique, ' θ' au cisaillement et les indices c et r respectivement au fluage (creep) et à la relaxation. Pour simplifier l'étude, ces paramètres ont été groupés par deux : (τ'_c, τ'_r) et (θ'_c, θ'_r) . Pour chaque couple, les deux composantes ont été multipliées ensemble et successivement par un facteur $k=1,2,5,\infty$, les autres paramètres restant à leur valeur de référence indiquée au $tableau\ 2$.

La *figure 3* montre l'évolution de la pression de pore normalisée en un point fixe situé près de la paroi ($\mathbf{r}' = 1,1$). La *figure 3a* montre plus particulièrement l'influence du couple ($\mathbf{\tau}'_{c}$, $\mathbf{\tau}'_{r}$) et la *figure 3b* celle du couple ($\mathbf{\theta}'_{c}$, $\mathbf{\theta}'_{r}$). On voit que les variations du couple ($\mathbf{\tau}'_{c}$, $\mathbf{\tau}'_{r}$) (*i.e.* les temps caractéristiques de fluage et relaxation en compression volumique) ont peu d'effet sur le champ de pression. On a vérifié qu'il en était de même sur les champs de contraintes et de déplacements.

Ceci peut s'expliquer par le fait que les contraintes induites dans le milieu environnant par une pression appliquée sur la paroi d'une excavation sont essentiellement déviatoriques, comme le montre la *figure 4*. Les variations de contrainte moyenne, totale ou effective sont inférieures à 5 % de la contrainte hydrostatique initiale Σ_0 alors que celles de la contrainte déviatorique (σ'_{rr} - $\sigma'_{\theta\theta}$) peuvent atteindre 70 % (*figure 1*). Cette observation justifie l'hypothèse $\tau'_c = \theta'_c$ et $\tau'_r = \theta'_r$ mentionnée au chapitre 3 pour simplifier l'inversion analytique de la transformée de Laplace.

La dernière étude paramétrique concerne les effets de la compressibilité du remblai ' K_R ' et de la cinétique de dégradation du revêtement ' κ '. La *figure 5* montre l'évolution en fonction du temps de la pression de pore en un point (r'=r/a=1,1) pour différents modules de compressibilité normalisés du remblai $K'_R=0,50,168$ et 504. La première valeur (0) correspond à l'absence de remblai (cavité uniquement remplie d'eau) et la dernière correspond à un remblai trois fois plus raide que le milieu environnant. La cinétique de dégradation du revêtement est $\kappa'=2$ sur la *figure 5a* et $\kappa'=\infty$ (rupture instantanée) sur la *figure 5b*.

L'influence de ces deux paramètres est clairement significative, ce que confirme la *figure* 6 qui montre l'évolution en fonction du temps de la contrainte déviatorique (σ'_{rr} - $\sigma'_{\theta\theta}$) en r' = 1,1 pour les mêmes valeurs de K' $_R$ et de κ' . On constate que la valeur maximale de la contrainte déviatorique peut apparaître pendant la phase transitoire, ce que ne pourraient pas voir des approches simplifiées basées sur seulement deux calculs élastiques réalisés avec des paramètres court et long termes.

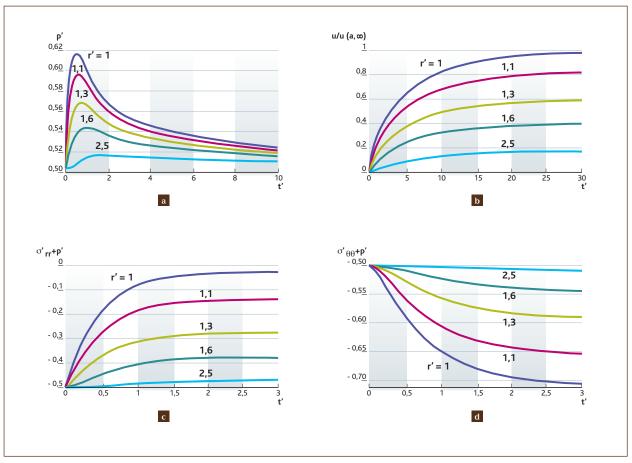


Figure 1 Évolution en fonction du temps et en différents rayons (r' = r/a = 1 ; 1,1 ; 1,3 ; 1,6 et 2,5) de : a) le champ de pression normalisé $p/Σ_0$; b) le champ de déplacement normalisé u/u_∞ ; c) la contrainte effective radiale normalisée $(σ_{τr}+p)/Σ_0$; d) la contrainte effective circonférentielle $(σ_{θθ}+p)/Σ_0$ normalisée.

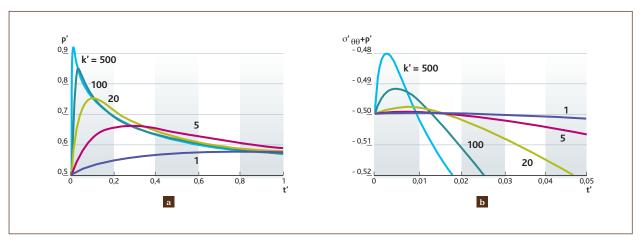


Figure 2 Évolution en fonction du temps, à la paroi de l'excavation (r' = 1) et pour différentes cinétiques de dégradation du revêtement ($\kappa' = 1.5$; 20; 100 et 500) de : a) le champ de pression normalisé p/Σ_0 ; b) la contrainte effective circonférentielle $(\sigma_{\theta\theta}+p)/\Sigma_0$. Les autres paramètres sont fixés à leur valeur de référence indiquée au tableau 2.

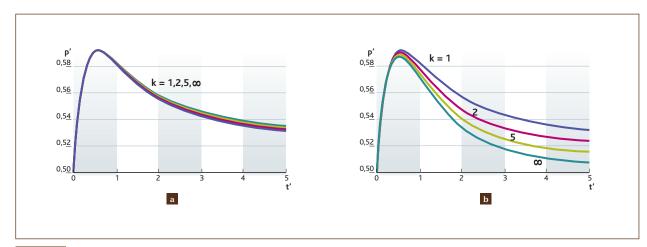


Figure 3 Évolution de la pression de pore en fonction du temps en $\mathbf{r}' = 1,1:\mathbf{a}$) les temps de fluage et de relaxation en compression volumique $(\mathbf{r}'_{\mathcal{O}} \ \mathbf{r}'_{\mathcal{T}})$ sont successivement multipliés par un facteur $\mathbf{k} = 1,2,5,\infty$; \mathbf{b}) idem pour les temps de fluage et de relaxation en cisaillement $(\mathbf{\theta}'_{\mathcal{O}} \ \mathbf{\theta}'_{\mathcal{T}})$.

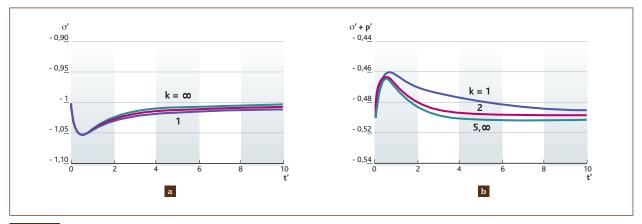


Figure 4 Évolution en fonction du temps en $\mathbf{r}' = 1,1$ de : a) la contrainte totale moyenne normalisée ; b) la contrainte effective moyenne normalisée ($\sigma' + \mathbf{p}'$). Les différentes courbes correspondent à des valeurs croissantes des temps de fluage et de relaxation (θ'_C , θ'_T) définies comme sur la figure 3b à l'aide du paramètre k.

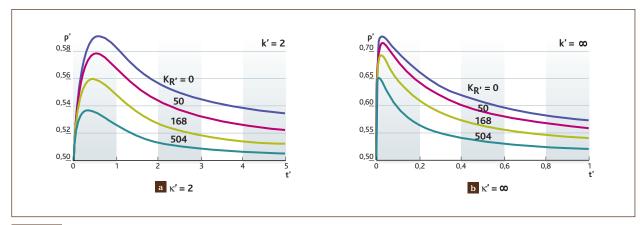


Figure 5 Évolution en fonction du temps en r' = 1,1 de la pression de pore pour différents modules de remblai normalisés $K'_R = 0, 50, 168$ et 504 avec : a) $\kappa' = 2$ et b) $\kappa' = \infty$ (rupture instantanée du revêtement).

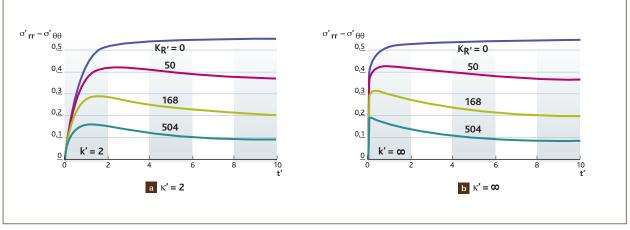


Figure 6 Évolution en fonction du temps en r' = 1,1 de la contrainte déviatorique $(\sigma'_{rr} - \sigma'_{\theta\theta})$ pour différents modules normalisés du remblai $K'_R = 0$, 50, 168 et 504 avec : a) $\kappa' = 2$ et b) $\kappa' = \infty$ (rupture instantanée du revêtement).

■ Conclusions

Au cours de l'examen du Dossier 2005 Argile s'est posée la question du comportement hydromécanique post-fermeture d'ouvrages souterrains. Une collaboration IRSN-CNRS/ENTPE a été engagée sur ce sujet et des solutions analytiques originales ont été obtenues.

L'ouvrage souterrain considéré est une cavité sphérique profonde supposée fermée et remblayée, dont le revêtement se dégrade au cours du temps. Dans le cas d'un comportement poro-élastique du milieu environnant, la solution analytique peut être complètement explicitée. Dans le cas plus difficile d'un comportement poro-visco-élastique du milieu environnant, la solution est totalement explicitée dans l'espace des transformées de Laplace et peut être ramenée dans l'espace « habituel », sous réserve d'hypothèses supplémentaires dont la validité est évaluée. La solution obtenue dans l'espace des transformées de Laplace peut également être exploitée directement, dans toute sa généralité, à l'aide d'algorithmes d'inversion numérique.

Cette approche analytique améliore notre compréhension des mécanismes mis en jeu et fournit un cas-test très utile pour conforter des calculs plus sophistiqués qui pourraient être réalisés avec des codes de calcul. Elle confirme la possibilité de créer un gradient hydraulique supplémentaire sous l'effet du comportement différé de la roche et des ouvrages dont les conséquences, en termes de régime d'écoulement d'eau ou de transfert de radionucléides autour des ouvrages, restent à évaluer. Enfin, elle permet la réalisation d'études paramétriques dont un exemple est présenté.

L'étude paramétrique présentée montre que, pour la géométrie considérée, les temps caractéristiques de fluage et de relaxation en compression volumique du milieu environnant ont peu d'effet sur les résultats. Elle indique également que les *extrema* des évolutions de pression de pore et de contraintes peuvent être atteints pendant le transitoire hydromécanique, ce que ne pourrait pas déceler une analyse simplifiée basée sur seulement deux calculs élastiques avec des paramètres court et long termes. Elle montre enfin que les transitoires les plus importants sont généralement obtenus avec des cinétiques de dégradation de revêtement élevées et des remblais souples, ce qui confirme le rôle « clé » de ces deux paramètres et permet d'apprécier leur importance relative.

Remerciements

La contribution du Pr Chin Jian LEO, de *University of Western Sydney* (Australie), aux travaux présentés dans cet article mérite d'être soulignée.

Références

- Andra (2005). Dossier 2005 Argile Tome architecture et gestion du stockage géologique.
- O. Coussy (2004). Poromechanics. John Wiley & Sons Ltd.
- ■V.-H. Nguyen (2005). Couplage dégradation chimique comportement en compression du béton. Thèse ENPC, 4 octobre 2005.
- L.-J. Oliver, A.-H. Swart, C.-O. Brawner (2006). In-service monitoring of water barrier project at South Deep Gold Mine. Journal of the South African Institute of Mining and Metallurgy, 106(5), p.351-354.
- F. Pellet, A. Hajdu, F. Deleruyelle, F. Besnus (2005). A viscoplastic model including anisotropic damage for the time dependent behaviour of rock. International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanic.
- H. Stehfest (1970). Algorithm 368, Commun. Assoc. Comput. Mach, 13(1), p.47-49.
- A. Talbot (1979). The accurate inversion of Laplace transforms. J. Inst. Maths. Applics. 23, p.97-120.
- J.-M. Torrenti, V.-H. Nguyen, H. Colina, F. Le Maou, F. Benboudjema, F. Deleruyelle (2008). Coupling between leaching and creep of concrete. Cement and Concrete Research 38, p.816-821.
- M. Van Biljon, A.-H. Swart, C.-O. Brawner (2006). Geology, hydrogeology and structural competency of the boundary pillar at South Deep Gold Mine. Journal of the South African Institute of Mining and Metallurgy, 106(5), p. 317-329.
- P.-D. Vermeulen, B.-H. Usher (2006). An investigation into recharge in South African underground collieries. Journal of South African Institute of Mining and Metallurgy, 106(11), p.771-778.
- H. Wong, M. Morvan, F. Deleruyelle, C.-J. Leo (2008a). Analytical study of mine closure behaviour in a poro-elastic medium. Computers and Geotechnics 35 (2008), p.645-654.
- H. Wong, M. Morvan, F. Deleruyelle, C.-J. Leo (2008b). Analytical study of mine closure behaviour in a poro-visco-elastic medium. Int. J. for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics 32, p.1,737-1,761.
- W. Xu et J. Genin (1994). Closure of a nuclear waste repository deeply imbedded in a stratified salt bed. Journal of Engineering Materials and Technology, Transactions of the ASME, 116(4), p.567-573.

LES FAITS MARQUANTS

en quelques dates

SOUTENANCES DE THÈSES

21 mars 2008

■ Cynthia COLLEMERE a soutenu sa thèse intitulée « Quand les concepteurs anticipent l'organisation pour maîtriser les risques : deux projets de modification d'installation sur deux sites classés SEVESO 2 », à Paris.

20 mai 2008

■ Pierre-Yves MESLIN a soutenu sa thèse sur « Le radon, traceur géophysique de l'environnement martien : étude de son transport, première mise en évidence et développement d'une instrumentation pour sa mesure », à Paris.

30 mai 2008

■ Denis MARCHAND a soutenu sa thèse sur l'« Étude du rabattement des produits de fission sous forme aérosol par une pulvérisation de gouttelettes d'eau générée par un système d'aspersion de REP », à Saclay (Essonne).

2 octobre 2008

Roger ABOU-KHALIL a soutenu sa thèse sur la « Caractéristique de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel », à Strasbourg.

3 décembre 2008

■ Sébastien BAU a soutenu sa thèse sur l'« Étude des moyens de caractérisation des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle », à Nancy.

AUTRES FAITS MARQUANTS

Janvier 2008

■ Lancement de la phase 2 du programme SERENA

La 2e phase du programme SERENA (Steam Explosion REsolution for Nuclear Applications) de l'OCDE a été lancée les 15 et 16 janvier 2008 à l'Agence pour l'énergie nucléaire (AEN) à Paris, lors de réunions des instances de suivi de ce programme. SERENA est destiné à évaluer la compréhension des phénomènes d'explosion de vapeur dans un réacteur nucléaire à eau sous pression et les possibilités de calcul apportées par les outils numériques en la matière. La seconde phase du programme, qui se déroulera jusqu'en 2011, étudiera plus particulièrement le phénomène de l'interaction combustible-réfrigérant lorsqu'il se produit hors de la cuve.

Les réunions de lancement ont confirmé le programme de travail et précisé les conditions de réalisation des premiers essais prévus en 2008. Une nouvelle entité, l'AWG (Analytical Working Group), complémentaire du groupe de revue du programme et du comité de gestion, a été constituée afin de réaliser les calculs préparatoires aux essais puis d'en interpréter les résultats et de les transposer aux cas de réacteurs nucléaires. Les prochaines réunions se tiendront chez KAERI, en République de Corée, les 15 et 16 octobre 2008 et seront l'occasion de débattre des résultats des premiers essais et de leur interprétation.

■ Charles Motzkus a reçu le prix Jean Bricard Charles Motzkus, ancien doctorant à l'IRSN, a reçu le prix Jean Bricard le mercredi 16 janvier 2008 pour son travail de thèse sur l'étude de la mise en suspension de particules lors de l'impact de gouttes. Cette thèse, effectuée entre 2004 et 2007 au Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols (LPMA), a été soutenue le 14 décembre 2007 à l'université Paris XII. Ce prix récompense de jeunes chercheurs pour leur contribution importante et originale dans le domaine de la science des aérosols.

Juin 2008

■ L'IRSN s'investit dans le Pôle national des risques industriels

Une convention de partenariat de recherche a été signée fin avril dernier entre huit organismes scientifiques, dont l'IRSN, ayant des compétences complémentaires dans le domaine de la maîtrise des risques industriels. L'objectif de cette convention est de structurer les actions de recherche et de transferts de technologie au sein du Pôle national des risques industriels (PNRI), créé en 1998 à Bourges par l'État. Le pilotage des actions de recherche et de transferts de technologie a été confié à l'École nationale supérieure d'ingénieurs de Bourges (Ensib).

La convention permettra un renforcement du pôle technologique dédié à la maîtrise du risque technologique en faisant émerger des projets communs aux différents partenaires. Elle permettra aussi une mutualisation des connaissances, au profit des entreprises, dans les domaines des explosions, de l'hydrogène, de la surveillance des systèmes et de la sûreté de fonctionnement, et enfin de la gestion de crise. L'IRSN s'impliquera plus spécifiquement dans le domaine des phénomènes physiques associés à la propagation d'ondes consécutives à une explosion et leur interaction avec des infrastructures.

SITUATION DES AUTEURS dans l'organigramme de l'IRSN

Article page	1 Radioactivité et environnement
16	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI).
19	 Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie (LRE). Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de modélisation environnementale (LME).
27	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie (LRE).
29	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC).
37	 Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin (LERCM). Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service de traitement des échantillons et de métrologie pour l'environnement (STEME) ; Laboratoire de mesure de la radioactivité de l'environnement (LMRE).
45	 Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC). Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin (LERCM).
47	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire de veille radiologique de l'environnement (LVRE).

Article page	1 Radioactivité et environnement
49	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Bureau d'évaluation des risques liés à la radioactivité naturelle (BRN).
60	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin (LERCM).
62	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de modélisation environnementale (LME).
64	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire de recherche sur le stockage géologique des déchets et les transferts dans les sols (LR2S).
66	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie (LRE).
68	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC).
70	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin (LERCM).

Article page	2 Les accidents dans les installations nucléaires
76	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM).
78	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et modélisation de l'incendie, du corium et du confinement (SEMIC) ; Laboratoire d'étude de l'incendie et de développement de méthodes pour la simulation et les incertitudes (LIMSI).
	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement (SERCI) ; Laboratoire d'expérimentation des feux (LEF).
89	 Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM); Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement (SERCI); Laboratoire d'expérimentation des feux (LEF).
91	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement (SERCI) ; Laboratoire d'expérimentation des feux (LEF).
102	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et modélisation de l'incendie, du corium et du confinement (SEMIC) ; Laboratoire d'études du corium et du transfert des radioéléments (LETR).
114	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'analyse des matériels et des structures (SAMS) ; Bureau d'analyse du génie civil et des structures (BAGCS).
116	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement (SERCI).
	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM).
	■ Direction de la stratégie, du développement et des relations extérieures (DSDRE) ; Division des programmes de recherche.
129	 Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM); Service d'études et de recherches expérimentales sur les matériaux (SERCI); Laboratoire de réalisation d'équipements expérimentaux (LR2E).
	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur l'incendie et le confinement (SERCI) ; Laboratoire d'expérimentation environnement et chimie (L2EC).
131	 Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM); Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA); Laboratoire d'études et de simulation des accidents graves (LESAG).
	 Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM); Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA); Laboratoire d'études et de simulation des accidents majeurs (LESAM).
	 Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM); Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA).
	■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur les matériaux (SEREA) ; Laboratoire d'expérimentation en mécanique et matériaux (LEA).

Article page	3 L'homme et les rayonnemens ionisants
142	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH).
144	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de radiopathologie et thérapie expérimentale (LRTE).
151	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE).
154	 Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie interne (SDI) ; Laboratoire de radiochimie (LRC). Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH).
165	 Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH); Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE); Laboratoire d'épidémiologie des rayonnements ionisants (LEPID). Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH); Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE).
171	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire d'épidémiologie des rayonnements ionisants (LEPID).
177	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE) ; Laboratoire de dosimétrie des rayonnements ionisants (LDRI).
	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE).
179	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Laboratoire de surveillance dosimétrique (LSDOS).

Article page	4 La simulation, les outils de calcul et la métrologie
186	■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR).
189	■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'analyse des matériels et des structures (SAMS) ; Bureau d'analyse du génie civil et des structures (BAGCS).
198	■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des accidents graves et des rejets radioactifs (SAGR) ; Bureau de physique des accidents graves (BPhAG).
206	■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des accidents graves et des rejets radioactifs (SAGR) ; Bureau d'évaluation probabiliste des accidents graves (BEPAG).
216	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Bureau d'évaluation des risques sismiques pour la sûreté des installations (BERSSIN).
226	■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service de sûreté des irradiateurs, des accélérateurs et de la gestion des déchets (SSIAD) ; Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des installations de stockage de déchets radioactifs (BERIS).
227	■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service de sûreté des irradiateurs, des accélérateurs et de la gestion des déchets (SSIAD) ; Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des installations de stockage de déchets radioactifs (BERIS).
229	■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire de recherche sur le stockage géologique des déchets et les transferts dans les sols (LR2S).
231	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE) ; Laboratoire de métrologie et de dosimétrie des neutrons (LMDN).
242	■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service d'étude et d'expertise en radioprotection (SER) ; Unité d'expertise en radioprotection des travailleurs et de la population (UETP).
243	■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement (SERAC).
	 Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU); Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement (SERAC); Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols (LPMA).

5 Les études de sûreté et de sécurité des exploitations
■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU).
■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement (SERAC) ; Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols (LPMA).
■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement (SERAC) ; Laboratoire d'expérimentations en confinement, épuration et ventilation (LECEV).
■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'études et de recherches en aérodispersion des polluants et en confinement (SERAC) ; Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols (LPMA).
■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des systèmes et de la protection contre les risques (SESPRI) ; Bureau d'études probabilistes de sûreté (BEPS).
■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des systèmes et de la protection contre les risques (SESPRI) ; Bureau d'évaluation de la conception et du fonctionnement des systèmes (BECS).
■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des systèmes et de la protection contre les risques (SESPRI) ; Bureau d'évaluation de la conception et du fonctionnement des systèmes (BECS).
■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des systèmes et de la protection contre les risques (SESPRI) ; Bureau d'études probabilistes de sûreté (BEPS).
■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service de sûreté des irradiateurs, des accélérateurs et de la gestion des déchets (SSIAD) ; Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des stockages de déchets radioactifs (BERIS).

LES ARTICLES parus dans le RST (2005-2008)

1 L'homme et les rayonnements ionisants	RST	Page	Fascicule
■ Radiopathologie et radioprotection.	2005	18	Fascicule 1
Avancées en dosimétrie biologique.	2005	22	Fascicule 1
■ L'accident d'irradiation : apport de l'IRSN dans les recherches et l'évolution des techniques pour la prise en charge des victimes.	2006	134	
■ Des recherches à visée clinique pour améliorer le pronostic et le traitement des brûlures radiologiques.	2007	118	
■ Le tri de populations exposées.	2007	136	
■ Le retour d'expérience de l'expertise des accidents de radiothérapie et la recherche sur les complications des radiothérapies.	2008	144	
 Microlocalisation des radionucléides à l'échelle tissulaire par l'utilisation de la microscopie ionique analytique. 	2008	154	
■ Programme ENVIRHOM — Influence de la chronicité d'une exposition sur le comportement et la toxicité des radionucléides.	2005	4	Fascicule 1
■ Le programme ENVIRHOM : de nouveaux acquis dans le domaine de la radioprotection de l'homme.	2007	129	
■ ŒDIPE : un outil de simulation de la mesure anthroporadiamétrique.	2005	10	Fascicule 1
■ Participation de l'IRSN aux projets en dosimétrie du 5e PCRD.	2006	147	
■ Études de postes de travail.	2005	25	Fascicule 1
■ La radioprotection au poste de travail.	2007	142	
■ Épidémiologie du risque de cancer du poumon associé à l'exposition au radon.	2005	13	Fascicule 1
■ Risque de leucémie infantile autour des installations nucléaires.	2007	123	
■ Les études épidémiologiques des leucémies autour des installations nucléaires chez l'enfant et le jeune adulte : revue critique.	2008	165	
■ Nouvelle approche pour le suivi épidémiologique des travailleurs exposés au risque de contamination interne : utilisation de la matrice emploi-exposition.	2008	171	

2 Radioactivité et environnement	RST	Page	Fascicule
 Les avancées dans le développement des outils d'évaluation de la dispersion atmosphérique et des conséquences radiologiques. 	2006	26	
■ Étude de dépôt sec des aérosols dans l'environnement : expérimentation et modélisation mécaniste.	2006	35	
■ Étude du dépôt sec des aérosols en milieu urbain : le projet SaliFa PRIMEQUAL.	2008	29	
■ Les apports de la surveillance des radionucléides artificiels dans l'air pour l'étude des processus de transfert et la caractérisation des situations postaccidentelles.	2008	37	
■ Le radon dans les bâtiments : étude phénoménologique.	2005	18	Fascicule 2
■ Méthodologie de cartographie des zones prioritaires pour la gestion du risque lié au radon.	2008	49	
■ Les apports scientifiques du projet CAROL Camargue-Rhône-Languedoc.	2005	12	Fascicule 2
■ La station d'Arles sur le Rhône : une plate-forme technique pluridisciplinaire et multipartenaire pour l'observation du milieu aquatique.	2006	42	
■ Le césium 137 dans l'environnement terrestre français au cours des quinze dernières années.	2006	48	
■ Migration en milieu insaturé et dans les nappes superficielles.	2007	29	
■ Le comportement du plutonium dans les sédiments marins en mer d'Irlande et en Manche.	2005	4	Fascicule 2
 Avancées récentes dans le domaine de la métrologie des radionucléides dans l'environnement. 	2007	23	
■ ICAR : outil d'intercomparaison d'actions de réhabilitation en phase postaccidentelle.	2007	41	
■ Évaluer la sensibilité radioécologique des territoires à une pollution radioactive : le projet SENSIB.	2007	46	
■ Vers la mise en place d'une méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux radionucléides.	2006	53	
3 Sûreté du stockage géologique de déchets radioactifs	RST	Page	Fascicule
■ Perturbations induites par le creusement en 2003 d'une galerie dans le site de Tournemire.	2005	4	Fascicule 3
 Stockage profond de déchets radioactifs – Évaluation des performances de confinement des barrières par expérimentation et modélisation numérique. 	2005	16	Fascicule 3
■ L'analyse des traceurs naturels dans les formations argileuses : un outil de compréhension et d'interprétation des transferts de fluides.	2006	227	
■ Étude expérimentale et modélisation des intercations béton/argile au sein d'un stockage géologique de déchets radioactifs.	2006	235	
Modélisation des écoulements et du transfert d'éléments radioactifs en milieu géologique. Application au site de Meuse – Haute-Marne.	2006	246	
■ Étude analytique du comportement hydromécanique post-fermeture d'un ouvrage souterrain.	2008	274	

4 Les accidents dans les installations nucléaires	RST	Page	Fascicule
SARNET : réalisations majeures et perspectives.	2008	116	
Étude des phénomènes physiques et des conséquences associés aux accidents de criticité.	2007	89	
Caractérisation de la géométrie d'un cœur dégradé par analyse statistique des tomographies issues des essais PHÉBUS PF.	2006	72	
Les enseignements tirés du programme PHÉBUS PF.	2006	84	
Les premiers résultats de l'essai PHÉBUS FPT3.	2007	66	
Synthèse des résultats de l'essai FPT2 du programme PHÉBUS PF.	2008	91	
Bains de corium au fond de la cuve d'un réacteur à eau sous pression (REP) lors d'un accident grave.	2005	4	Fascicule 5
Étalement du corium – Modélisation et études de sûreté relatives au récupérateur de corium du réacteur EPR.	2005	9	Fascicule 5
Élaboration et application en sûreté nucléaire de la base de données thermodynamiques MEPHISTA relative au combustible.	2008	102	
Les produits de fission dans l'enceinte de confinement. Comportement des iodures organiques.	2005	13	Fascicule 5
Le risque hydrogène lors d'un accident grave de REP.	2005	18	Fascicule 5
La recherche et développement sur le risque d'explosion d'hydrogène.	2006	96	
ASTRID – Évaluer en temps réel un accident de réacteur à eau légère.	2005	22	Fascicule 5
Étude de la chimie du ruthénium dans l'enceinte de confinement en cas d'accident grave.	2007	73	
Comportement de l'UF ₆ en cas de rejet accidentel. Études et expérimentations pour quantifier les rejets accidentels d'UF ₆ dans les installations du cycle amont du combustible.	2007	81	
Physique et métrologie des agrégats : application à l'aérosol de combustion.	2006	111	
Modélisation de la dispersion d'un gaz lourd dans un local ventilé.	2006	116	
Risque de colmatage des filtres des puisards de l'enceinte. Étude des effets chimiques au sein du lit fibreux déposé sur les grilles filtrantes.	2006	104	
Analyse du comportement mécanique des enceintes de confinement des REP 900 MWe CPY en conditions d'accident grave.	2007	98	
Étude expérimentale du comportement de matériaux de boîtes à gants soumis à un rayonnement thermique.	2006	79	
Modélisation et études numériques des incendies en milieu confiné et ventilé : le logiciel ISIS.	2007	173	
Effet du confinement sur un feu de nappe dans un local ventilé mécaniquement.	2008	78	
Les acquis sur le colmatage des filtres à très haute efficacité par les aérosols formés lors d'un incendie.	2008	260	
Rapport de synthèse de l'évaluation probabiliste de sûreté relative au risque d'incendie pour les réacteurs de 900 MWe.	2008	267	

5 Les études de sûreté et de sécurité des installations	RST	Page	Fascicule
■ Comportement thermomécanique de la gaine du combustible.	2005	4	Fascicule 4
■ Fatigue thermique des zones de mélange.	2005	10	Fascicule 4
■ Réexamen de sûreté lors des 3 ^{es} visites décennales des réacteurs de 900 MWe.	2005	20	Fascicule 4
■ Comportement aéraulique et mécanique - Équipements de sectorisation et de confinement soumis à des contraintes de pression sévères.	2005	30	Fascicule 4
■ Étude comparative d'une rupture de tube GV en France et en Finlande sur le réacteur EPR.	2007	226	
■ Étude du fluage des bétons en traction : application aux enceintes de confinement des centrales nucléaires à eau sous pression.	2008	189	
■ Le vieillissement sous irradiation des cuves de réacteurs nucléaires à eau sous pression.	2006	184	
■ Tenue de la cuve des réacteurs de 900 MWe - Étude thermohydraulique des transitoires de choc froid.	2005	14	Fascicule 4
■ Défaillance du fond d'une cuve REP en situation accidentelle grave et programme de recherche sur la déchirure des matériaux des cuves françaises.	2008	198	
■ Étude probabiliste de sûreté d'une installation industrielle.	2005	24	Fascicule 4
■ Application des EPS de niveau 2 et des techniques de fiabilité dynamique à la validation des guides d'intervention en accident grave.	2007	217	
■ L'EPS de niveau 2 pour les réacteurs REP de 900 MWe : du développement aux enseignements de l'étude.	2008	206	
■ Le GPS pour la connaissance de l'aléa sismique.	2005	39	Fascicule 4
■ Étude du potentiel sismique et de l'enracinement de la faille de la Moyenne Durance.	2007	206	
■ Effets de la géologie locale sur les mouvements sismiques : estimation de l'aléa sismique pour un site donné.	2008	216	

6 La simulation, les outils du calcul et la métrologie	RST	Page	Fascicule
■ La prise en compte du <i>credit burnup</i> dans les études de criticité.	2005	34	Fascicule 4
 Processus de qualification des formulaires de criticité et exemple d'utilisation dans le domaine de l'expertise de criticité. 		202	
■ La simulation Monte Carlo de la propagation des neutrons appliquée à la criticité.	2007	158	
■ La chaîne de calcul couplée HEMERA pour l'analyse des accidents de réactivité.	2007	165	
■ Les logiciels critiques, quels enjeux pour l'évaluation ?	2006	177	
■ Expertise des méthodes d'évaluation des incertitudes du code CATHARE dans le programme international OCDE BEMUSE.	2006	195	
 Influence de la représentation mathématique des connaissances imparfaites dans le traitement des incertitudes. 	2006	214	
■ De nouvelles approches pour la métrologie et la caractérisation des nanoparticules sous forme d'aérosols.	2007	181	
 Détermination de l'enrichissement de produits uranifères par mesures de spectométrie gamma : exploitation statistique d'un plan d'expériences pour maîtriser les incertitudes des mesures. 	2007	188	
 Évaluation des performances des moniteurs de contamination atmosphérique en conditions réelles de fonctionnement. 	2008	250	
■ La métrologie des neutrons.	2008	231	

LES IMPLANTATIONS de l'IRSN



Fontenay-aux-Roses Siège social

92262 Fontenay-aux-Roses Cedex Tél : + 33 (0)1 58 35 88 88

47002 Agen Tél : + 33 (0)5 53 48 01 60

Cadarache

13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex Tél: + 33 (0)4 42 19 91 00

Cherbourg-Octeville Rue Max-Paul Fouchet

50130 Cherbourg-Octeville Tél: + 33 (0)2 33 01 41 00

La Seyne-sur-Mer

Centre Ifremer de Méditerranée 83507 La Seyne-sur-Mer Cedex Tél : + 33 (0)4 94 30 48 29

Le Vésinet

31, rue de l'Écluse B.P. 35 78116 Le Vésinet Tél: + 33 (0)1 30 15 52 00

Les Angles – Avignon 550, rue de la Tramontane –

B.P. 70295 30402 Villeneuve-lez-Avignon Cedex Tél: + 33 (0)4 90 26 11 00

Mahina – Tahiti

B.P. 519 Tahiti Papeete, Polynésie française Tél : + 689 54 00 25

Orsay Bois-des-Rames (bât. 501) 91400 Orsay Tél : + 33 (0)1 69 85 58 40

Pierrelatte

26702 Pierrelatte Cedex Tél: + 33 (0)4 75 50 40 00

Saclay

Centre CEA de Saclay 91191 Gif-sur-Yvette Cedex Tél: + 33 (0)1 69 08 60 00

■ Coordination éditoriale

Direction scientifique – Gauzelin BARBIER

■ Comité de pilotage

DEI : Denis BOULAUD

DSU : Jean-Michel FRISON

DPAM : Bernard GOUDAL

DSR : Giovanni BRUNA

DRPH : Pascale MONTI

DIrection : Jean-Luc PASQUIER

DSDRE : Teresa BOLOGNESE

DCOM : Marie-Line de HEAULME

DS : Gauzelin BARBIER
Françoise BRETHEAU
Dominique GOBIN
Dominique THIERRY

■ Rédaction

IRSN

■ Coordination à la réalisation

Direction de la communication – Marie-Line de Heaulme, Anne-Marie Girardin (TroisCube)

■ Conception graphique

TroisCube

■ Impression

Idéale Prod

■ Crédits photos

Olivier Seignette, Mickael Lafontan, Xavier Bellanger, Huma Rosentalski - p. 69: ©EDF Médiathèque/D. Marc - p. 70: ©Ifremer - P.M. Sarradin - ©Noak/le Bar Floréal/IRSN.

■ Illustrations

Stéphane Jungers, Laurent Stéfano

■ Le comité de rédaction remercie les rapporteurs et les lecteurs ayant apporté leur concours à l'évaluation des articles :

Marc AMMERICH - CEA; Denis BARD - École des hautes études en santé publique; Magalie BAUDRIMONT - Université de Bordeaux; Pierre BEREST - École

Polytechnique; Roland BORGHI - Université d'Aix-Marseille; Bertrand CHEYNET - Thermodata; Fabrice COTTON - Université de Grenoble; Michel CUNEY - Université

de Nancy; Abdel DEHBI - Paul Scherrer Institut; Serge DESPIAU-PUJO - Université de Toulon et du Var; Bernd GROSCHE - Bundesamt für Strahlenschut;

Jean-Luc GUERQUIN-KERN - Institut Curie; Qi-chang HE - Université Paris-Est Marne-La-Vallée; Valérie LANNEAU - Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE);

Jeanne-Marie LANORE - IRSN; Denis LETEINTURIER - IRSN; Ahmed LOUKILI - École centrale de Nantes; Michèle PIJOLAT - École des mines de Saint-Étienne;

Myriam RABARDY - Andra; Véronique RUBAN - Laboratoire central des ponts et chaussées; Dominique THOMAS - École nationale supérieure des industries

chimiques; George YADIGAROGLU - École polytechnique fédérale de Zurich

© Communication IRSN

N° ISSN en cours

Imprimé sur papier 100 % recyclé avec des encres végétales



Système de management de la qualité IRSN certifié



Siège social 31, avenue de la Division Leclerc 92260 Fontenay-aux-Roses RCS Nanterre B 440 546 018

Téléphone +33 (0)1 58 35 88 88

Courrier

B.P. 17 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

Site Internet

www.irsn.org