

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Rapport scientifique
et technique

2006



Le rapport scientifique et technique



Recherche, expertise,
transmission des savoirs
01



Radioactivité et
environnement
20



Recherche
sur les accidents
68



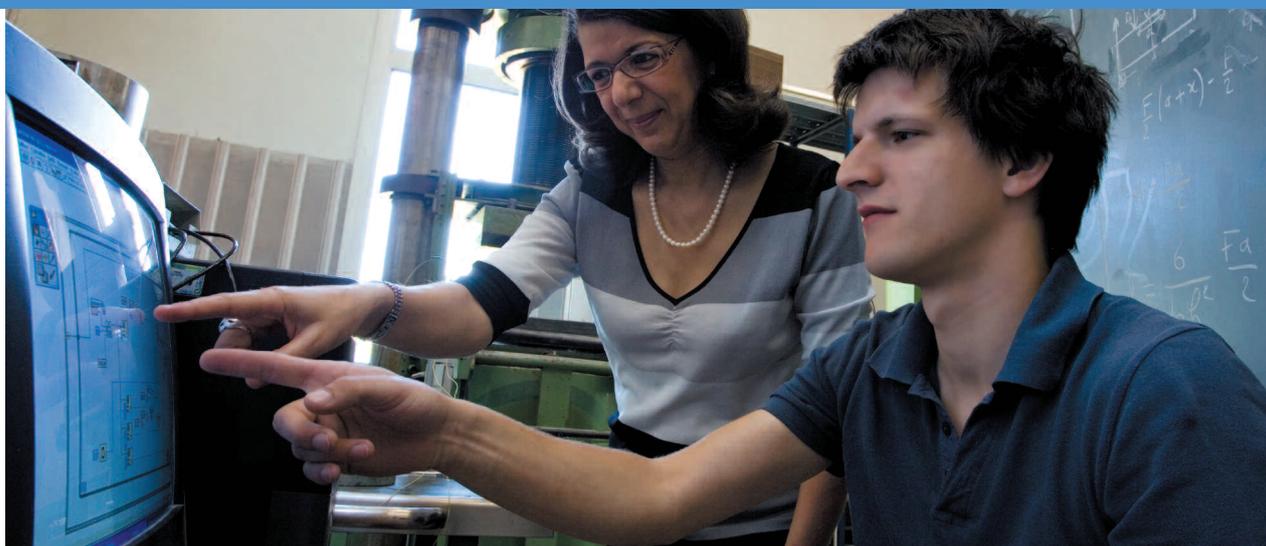
L'homme et les
rayonnements ionisants
130



Développement des méthodes,
études sur la sûreté et
la sécurité des exploitations
172



Déchets
radioactifs
222



Recherche, expertise, transmission des savoirs

Avant-propos	2
Le mot du Président du conseil scientifique	4
Le mot de la DESTQ	7
Le collègue des experts	9
Une évaluation du conseil scientifique : les études menées par l'IRSN sur les retombées en France de l'accident de Tchernobyl	10
Les évaluations menées par la Direction de l'évaluation scientifique et technique et de la qualité	13
Formation à et par la recherche à l'IRSN la promotion des doctorants 2006	17
Du nouveau dans la collection des « livres IRSN »	19

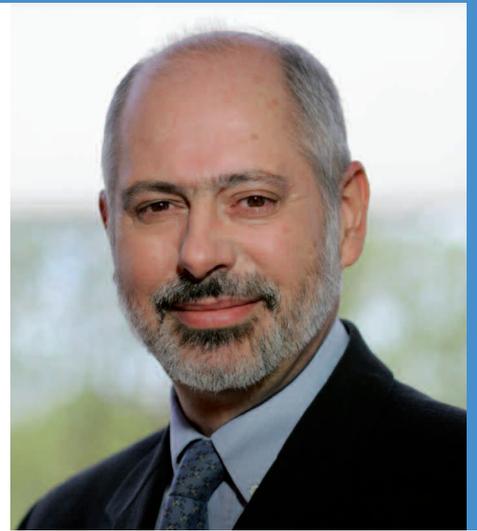
Avant-propos

La recherche et l'expertise de l'IRSN s'organisent autour des grands enjeux scientifiques propres à nos missions opérationnelles.

Voici maintenant cinq ans que l'IRSN a été créé, dans le cadre du décret n° 2002-254 du 22 février 2002. L'Institut rassemble une vaste palette de compétences scientifiques et de moyens techniques, et intervient en appui à l'ensemble des politiques publiques en matière de sécurité nucléaire au sens large, depuis la sûreté et la sécurité des installations industrielles ou de défense, jusqu'aux préoccupations de sécurité sanitaire et environnementale, en passant par la protection des matières nucléaires sensibles. De nombreux acteurs publics ou privés, et au-delà, l'ensemble de la communauté nationale bénéficient des résultats de ses recherches et de ses expertises.

En 2005, l'Institut a publié pour la première fois un Rapport scientifique et technique, destiné à illustrer le savoir-faire de ses chercheurs et de ses experts, et à faire mieux connaître les avancées scientifiques résultant de leur travail. Diffusé sous forme imprimée (4 500 exemplaires) ou de CD-Rom (1 500 exemplaires), cette première édition a fait l'objet en quelques mois de plus de 10 000 téléchargements sur le site Internet scientifique de l'IRSN (www.irsn.org/net-science), justifiant ainsi pleinement l'effort consacré à son élaboration.

La recherche et l'expertise de l'IRSN ne s'organisent pas autour de disciplines fondamentales, mais autour des grands enjeux scientifiques propres à ses missions opérationnelles évoquées plus haut.



Cela ne constitue pas, bien au contraire, un obstacle au développement de partenariats toujours plus nombreux et fructueux avec des laboratoires universitaires ou des organismes de recherche (CEA, Inserm, CNRS, grandes écoles, instituts européens, japonais, américains, etc.).

Plus d'une centaine de doctorants et post-doctorants sont accueillis dans les équipes de recherche de l'IRSN et font vivre au quotidien un lien étroit avec les écoles doctorales.

Cependant, cette grande transversalité rend indispensable un effort permanent, d'une part pour montrer l'originalité et la qualité des démarches scientifiques entreprises, d'autre part pour valoriser les résultats au-delà du cercle des utilisateurs principaux.

Ce Rapport scientifique et technique participe pleinement à ces objectifs. Je vous en souhaite une agréable lecture.

A stylized, handwritten signature in black ink, consisting of several overlapping loops and lines.

Jacques REPUSSARD,
Directeur général

Le mot du Président du conseil scientifique

Au cours de l'année 2006, le conseil a tenu deux sessions plénières (mai et novembre) et a été ainsi appelé, conformément à son mandat, à donner son avis sur le Rapport annuel d'activité et sur le Rapport scientifique et technique de l'IRSN. Mais d'autres sujets ont été abordés, à son initiative ou à celle de la direction de l'Institut, qui souhaitait qu'une appréciation indépendante soit portée sur certains aspects de sa stratégie scientifique ou de sa politique d'excellence, ou qui désirait informer le conseil de l'état d'avancement d'un dossier.

À ce titre, le contrat d'objectifs de l'IRSN avec l'État a été présenté au conseil, en particulier sous l'angle des sept grands défis scientifiques auxquels l'Institut entend se confronter au cours de la période 2006-2009. C'est dans ce contexte que le conseil a été informé des orientations budgétaires 2007 et que lui ont été fournies des informations sur l'élaboration du Plan à moyen et long terme (PMLT) de l'Institut. Parmi les sujets importants liés à la stratégie scientifique, abordés par le conseil au cours de 2006, figurent :

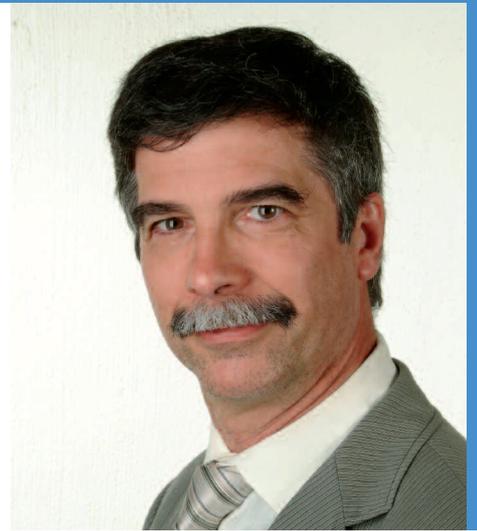
- **la question de la cartographie de la recherche au sein de l'Institut**, dont la connaissance fournira des éléments quantitatifs précis pour les évaluations futures ;
- **l'état d'avancement du système d'évaluations internes**, dont le conseil estime qu'il s'agit d'un des éléments clés pour assurer la crédibilité scientifique externe de la recherche et de l'expertise de l'IRSN ;
- **la mise en place et l'organisation de la filière « experts »**, dont la vocation, hors filière hiérarchique, est de promouvoir la qualité des travaux de l'Institut, d'en être le référent et la vitrine mais aussi d'être le garant de la créativité.

Le conseil s'est par ailleurs déclaré très intéressé par la volonté exprimée par l'Institut de mieux gérer, pour le valoriser, son patrimoine scientifique et technique, au travers notamment du projet dit de « capitalisation des connaissances ». De même, il s'est déclaré favorable à la dynamique impulsée par la direction de l'Institut du fait de sa politique d'excellence scientifique et technique, dont les orientations sont régulièrement évaluées au cours de séminaires internes, comme ce fut le cas en 2006.

Le conseil a souhaité entendre une présentation du comité d'éthique IRSN pour l'expérimentation animale et a rencontré les personnes en charge de cette question : il a jugé excellentes les dispositions adoptées.

Voulant davantage s'impliquer dans la vie de l'Institut, le conseil a mandaté certains de ses membres pour participer – *ès qualités* – à diverses manifestations organisées par l'IRSN comme les « Journées des thèses » ou à une table ronde sur la question des retombées de l'accident de Tchernobyl.

Enfin, le conseil a procédé au cours de 2006 à trois évaluations particulières, qui ont nécessité la création de commissions *ad hoc* comprenant plusieurs de ses membres et des personnalités extérieures. Chacune de ces évaluations a fait l'objet d'un rapport validé par l'ensemble du conseil. Ces trois évaluations, qui portent sur des thèmes de nature différente, illustrent la gamme presque complète de l'apport possible du conseil scientifique aux activités de l'Institut.



Ces trois évaluations sont les suivantes :

- **avis sur les travaux de l'IRSN** visant à reconstituer les retombées en France de l'accident de Tchernobyl ;
- **évaluation de la compétence et des outils de l'IRSN** pour l'expertise du stockage des déchets en couche géologique profonde ;
- **avis sur la cohérence du projet scientifique** conçu par l'IRSN dans le cadre de la création d'un nouveau site.

S'agissant dans les trois cas de sujets sensibles, voire potentiellement conflictuels, bien que pour des motifs différents, ces évaluations – en particulier celles concernant Tchernobyl et les déchets – ont permis au conseil non seulement d'affiner sa méthode de travail en fonction des circonstances mais aussi d'attester sa contribution effective et critique au travail de l'Institut. Du bilan qui a été dressé, il ressort que le conseil trouve avantage à constituer systématiquement des commissions *ad hoc* pour conduire une évaluation et, lorsque c'est possible, de les ouvrir à des personnalités extérieures y compris étrangères.

Un cas exemplaire : l'évaluation Tchernobyl

L'évaluation Tchernobyl résultait en fait d'une demande ministérielle motivée par l'actualité du 20^e anniversaire de l'accident de Tchernobyl et par le besoin de clarifier certaines discussions survenues lors des contacts entre la mission ministérielle confiée au professeur Aurengo et les chercheurs de l'IRSN impliqués. Le mandat du conseil était d'évaluer la pertinence et l'adéquation des différentes approches adoptées par l'IRSN pour estimer les retombées atmosphériques en France consécutives à l'accident de Tchernobyl, ainsi que leurs impacts sanitaires et environnementaux.

S'agissant d'un sujet controversé, le conseil a estimé que, pour le traiter, il fallait adopter une démarche spécifique qui soit scientifiquement indiscutable et présente toutes les garanties d'impartialité. C'est ainsi que fut créée une commission mixte composée de cinq membres du conseil – dont son président – et de cinq personnalités scientifiques extérieures dont trois étrangers (belge, suisse et anglais). Cette commission a instruit le dossier en auditant les différents protagonistes, chercheurs de l'Institut, mais aussi le professeur Aurengo, responsable de la mission ministérielle précitée. Ce travail d'instruction a abouti à la rédaction d'un rapport validé en séance plénière, puis remis aux autorités et rendu public.

Tirer, de cette évaluation, un enseignement du point de vue méthodologique

Face à des situations délicates où peuvent interférer d'autres considérations que scientifiques ou techniques, le conseil scientifique joue bien le rôle d'expert que lui confère sa mission mais également celui

de médiateur et de modérateur. Cela suppose qu'en de telles circonstances, il sache s'organiser en conséquence et, en particulier, que sous sa responsabilité, il fasse appel à des personnalités extérieures qui apportent des compétences supplémentaires et de la sérénité dans les débats.

Cette méthode a d'ailleurs été partiellement reprise pour l'évaluation « déchets », qui portait sur la pertinence des recherches conduites en matière de stockage profond afin d'asseoir l'expertise de l'Institut. Outre la constitution d'une commission *ad hoc* comprenant des experts extérieurs, la conduite de cette évaluation a nécessité de rassembler une importante documentation par les services concernés de l'Institut ainsi que la visite du laboratoire souterrain de Tournemire et des laboratoires concernés.

Pour l'avenir, compte tenu de l'expérience 2006 et de l'investissement important que suppose chaque évaluation, le conseil a jugé préférable de ne pas lancer plus de deux évaluations ciblées simultanément.

Conclusion

Après la période de rodage propre à toute institution nouvelle, l'année 2006 offre aujourd'hui un tableau de ce qui pourrait être considéré comme l'activité normale du conseil scientifique. Globalement, il apparaît que, progressivement, le conseil scientifique s'approprie l'ensemble de ses missions, qui consistent à porter un regard extérieur autonome sur les activités et les programmes scientifiques et techniques de l'IRSN, à apprécier la qualité et la pertinence des résultats obtenus et enfin à prodiguer les avis qu'on attend de lui.

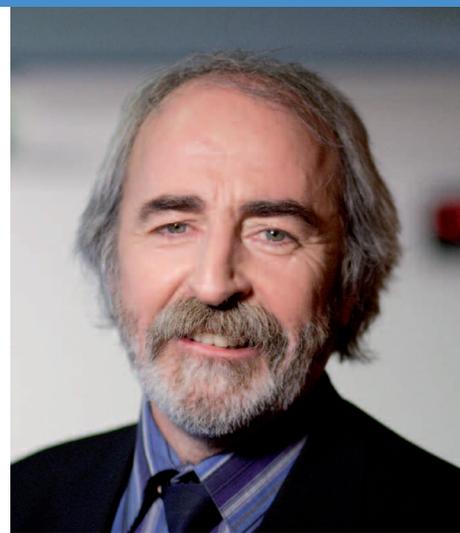
Ce bilan satisfaisant repose sur la qualité du dialogue et les rapports de confiance qui se sont instaurés entre le conseil et ses interlocuteurs, chercheurs ou ingénieurs de l'Institut.

Michel QUINTARD,
Directeur de recherche CNRS à l'Institut
de mécanique des fluides de Toulouse



La signature du contrat d'objectifs avec les ministères de tutelle de l'IRSN.

Le mot de la DESTQ



Le Rapport scientifique et technique de l'IRSN a d'abord pour objectif d'offrir à la communauté scientifique un panorama représentatif des activités de recherche conduites au sein de l'Institut, en matière de sûreté ou de sécurité nucléaires ainsi que de radioprotection. Il s'agit ensuite de mettre à la disposition de cette communauté certains de ses résultats les plus prometteurs. Il s'agit enfin de montrer que cette recherche, parce qu'elle est finalisée, confère du sens à toutes les activités de l'Institut.

Si sa vocation première est de conforter le niveau des expertises pratiquées par l'Institut sur les installations radiologiques ou nucléaires, elle est aussi de contribuer à révéler des « lois » ou des « règles » de sécurité ou de prévention, à propos des situations rencontrées dans toutes les applications nucléaires et radiologiques.

Et dans ce contexte, tout se passe comme si ces situations ne pouvaient être totalement décrites à partir des seules propriétés des phénomènes élémentaires qui en sont pourtant à l'origine, ni réduites à leur seule simple combinaison.

Cette caractéristique de la recherche à l'IRSN se retrouve aussi bien dans les travaux ayant trait à la sûreté des réacteurs en fonctionnement ou à leur vieillissement que dans ceux dont l'objet est de mieux comprendre la dynamique des épisodes accidentels et l'évaluation de la dispersion de polluants dans l'environnement.

Mais c'est vrai aussi pour tous les travaux visant à mettre en évidence d'éventuels effets des faibles doses de rayonnement sur les organismes vivants. Cette dialectique constante entre la nécessité d'appréhender analytiquement les composantes élémentaires des situations étudiées et d'en rendre compte globalement nécessite non seulement de faire appel à de nombreuses compétences sur un éventail très large de disciplines qualifiées parfois de fondamentales, mais surtout de savoir les surpasser.

Par nature donc, parce que la mission de l'Institut est de s'atteler à la question complexe et multidimensionnelle de la sécurité nucléaire, la démarche de l'IRSN en matière de recherche s'apparente – toutes proportions gardées – à l'idée développée depuis quelques années par le prix Nobel de physique américain, Robert Laughlin, sur l'émergence des lois de la nature, selon laquelle chaque niveau d'organisation posséderait ses propres lois et règles sans qu'il y ait lieu de qualifier les unes de plus fondamentales que les autres. Comparaison n'est pas raison, et l'IRSN ne prétend pas que sa recherche permet de conforter l'abandon du vieux paradigme réductionniste de la compréhension du monde. Lequel constitue le socle épistémologique de toutes les avancées scientifiques depuis plusieurs siècles. Mais, à bien des égards, les recherches conduites à l'IRSN mettent en lumière certaines de ces « lois émergentes » appliquées au domaine spécifique de la gestion du risque nucléaire et radiologique.

Cependant, si ces règles de sûreté ou de radioprotection n'apparaissent pas toujours immédiatement dérivables de celles de la physique, de la mécanique, de la chimie ou de la biologie, elles ne sauraient non plus s'en affranchir. Elles ne sauraient d'ailleurs être mises en évidence sans qu'en amont de leur énoncé, l'ensemble des phénomènes élémentaires concourant au diagnostic d'ensemble de la sûreté et de la radioprotection ou à la réduction des incertitudes associées n'aient été eux-mêmes élucidés, alors qu'on ne sait pas toujours si les paramètres étudiés sont liés ou indépendants. Cette relative et apparente autonomie des règles fondamentales de sûreté et de radioprotection par rapport aux disciplines de base n'est peut-être en fait que l'expression de l'imperfection actuelle des outils de calcul.

En tout état de cause, un des enjeux de l'IRSN en matière de recherche est d'être capable de comprendre l'influence de facteurs élémentaires sur l'enchaînement d'événements qui peuvent conduire à un accident nucléaire, d'en apprécier les parts respectives et enfin de se doter des moyens d'en calculer l'occurrence. Un autre enjeu est de faire en sorte, si l'irréversible se produit, d'en limiter les conséquences sur les populations et plus généralement sur l'environnement. Certains de ces facteurs, parfois insuffisamment pris en compte lors de la conception des installations, ne se révèlent qu'au travers d'un retour d'expérience d'exploitation systématiquement analysé et interprété. C'est à ce stade que réside une autre des caractéristiques importantes de la recherche à l'IRSN, celle de s'alimenter pour partie des résultats de l'expertise et des carences de connaissances qu'elle révèle.

Le dernier moteur de la recherche – et non des moindres – résulte de l'exigence de sécurité toujours croissante de la société et du souci d'inscrire les activités nucléaires dans une logique de développement durable : plusieurs des travaux de recherche rapportés dans ce Rapport – en particulier tous ceux concernant la migration des radioéléments dans les différents compartiments de l'environnement – s'efforcent de répondre à cette préoccupation.

Cet effort de recherche qui ne doit pas se démentir ne saurait être soutenu sans une forte exigence de qualité : c'est l'objet de la politique d'excellence scientifique et technique développée depuis 2004, dont un premier bilan a été dressé en 2006. Cet état des lieux a permis de mesurer le chemin parcouru et de vérifier que cet objectif d'excellence était partagé par les chercheurs. Il a également conduit à renforcer la portée de cette politique en intensifiant l'évaluation des travaux de l'Institut par ses pairs de la communauté scientifique, en encourageant la confrontation des chercheurs avec leurs collègues des autres grands organismes scientifiques ou des universités, et surtout en valorisant l'esprit créatif par la reconnaissance de recherches effectuées à titre exploratoire sur des thèmes non encore explicitement explorés. L'objectif d'excellence scientifique est le meilleur garant de la pertinence et de la qualité de la recherche à l'IRSN. Il permet également de surmonter les obstacles épistémologiques identifiés en son temps par Gaston Bachelard comme « la tentation de l'empirisme » ou celle de la généralisation abusive. À ceux qui liront ce rapport d'en juger.

Espérons que chaque lecteur trouvera, dans les travaux et résultats qui y sont présentés, matière à satisfaire sa curiosité intellectuelle et scientifique, et à alimenter sa propre réflexion.

Jean-Luc PASQUIER,
Direction de l'évaluation scientifique
et technique et de la qualité

Le collège des experts



La création de la filière « experts » en 2005 s'inscrit dans la politique d'excellence scientifique et technique de l'IRSN. Elle se veut un moyen de reconnaissance des compétences les plus remarquables et de valorisation des parcours professionnels marqués par des prises de responsabilité à caractère scientifique et technique. Cette démarche est adoptée dans la plupart des organismes dont les activités requièrent un personnel de haut niveau scientifique et technique.

La filière « experts » compte aujourd'hui 27 personnes. Sa composition reflète la diversité des métiers de l'Institut. À titre individuel, les experts assurent une mission de soutien interne aux opérationnels et aux fonctionnels, en tant que référence scientifique ou technique de leur domaine de compétence. Les experts sont aussi appelés à exercer une fonction de conseiller pour l'Institut dans le cadre de missions d'intérêt général. À cet égard, ils contribuent à divers aspects de la vie de l'Institut, comme la réflexion sur les programmes stratégiques ou l'apport de leurs concours pour la conduite d'évaluations scientifiques et techniques.

Le premier séminaire des membres de la filière « experts » de l'IRSN s'est tenu les 29 et 30 août à Pertuis (Vaucluse). Son objectif premier était de permettre aux experts de se connaître, puis de jeter les bases de la légitimité collective d'un collège d'experts à l'IRSN. Son deuxième objectif était de définir les missions du collège et de lancer une réflexion sur l'organisation de son fonctionnement.

Le collège s'est proposé d'avoir essentiellement pour vocation de traiter de sujets transverses à caractère scientifique et technique. Sauf exception, le traitement de ces sujets par le collège ne doit pas entrer en concurrence avec l'exercice des missions spécifiques à l'une des unités de l'Institut.

Avalisant cette proposition, la lettre de mission envoyée par le Directeur général à chaque expert de la filière contient un paragraphe relatif à son appartenance au collège, qui précise les activités collectives auxquelles il doit contribuer à ce titre. Le collège est représenté dans les différents comités scientifiques et techniques de l'Institut. Les thèmes sur lesquels le collège est amené à travailler sont très divers : il peut s'agir de son implication dans l'élaboration du PMLT, des relations internationales, de l'évaluation de la recherche exploratoire, de réflexions sur la politique de publication, de formation, de thèmes à traiter dans le cadre de l'animation scientifique transverse, de réponses à la société civile, des aspects juridiques et déontologiques de la fonction d'expert telle que définie dans la lettre de mission, qu'elle s'exerce à titre individuel, ou collectivement dans le cadre du collège. Chacun des thèmes sera traité par un groupe du collège afin d'émettre des recommandations, qui seront ensuite validées par l'ensemble de ses membres.

Sabine CHARMASSON,
Laboratoire d'études radioécologiques
en milieux continental et marin

Une évaluation du conseil scientifique : les études menées par l'IRSN sur les retombées en France de l'accident de Tchernobyl

À

la fin de l'année 2005, le conseil scientifique a été mandaté pour « évaluer globalement la pertinence et l'adéquation des différentes approches adoptées par l'IRSN pour estimer les retombées atmosphériques en France consécutives à l'accident de Tchernobyl, au regard des buts poursuivis (estimer les doses reçues par la population, expliquer les activités mesurées dans les sols) et des données disponibles ». Il était précisé en outre : « Le conseil scientifique examinera plus particulièrement l'approche fondée sur une relation empirique pluie-dépôt ayant conduit à la carte de France publiée par l'IRSN en 2003, et éclairée par les travaux complémentaires d'interprétation évoqués ci-dessus. Le cas échéant, le conseil scientifique pourra se prononcer sur la pertinence de poursuivre ou non les actions relatives à la carte reconstituée des dépôts surfaciques de ^{137}Cs en France ».

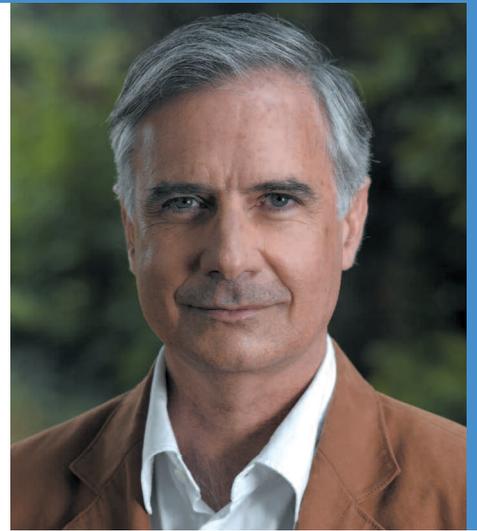
Cette saisine a été exprimée par le Directeur général de l'Institut, en concertation avec les cabinets des ministres de la Santé et de l'Écologie, dans le contexte particulier du 20^e anniversaire de l'accident de Tchernobyl en avril 2006, sachant que les résultats obtenus par l'IRSN dans ce domaine donnaient encore lieu à critiques (mission confiée en 2002 au professeur A. Aurengo par les ministres de la Santé et de l'Environnement).

Préparation et cadrage

La préparation de cette évaluation a été mise en œuvre sous la forme d'un cadrage entrepris afin de clarifier les modalités précises de sa conduite : **nomination d'une commission d'experts, élaboration d'un dossier d'évaluation et d'un calendrier.**

Le conseil scientifique s'est appuyé sur une commission d'experts comprenant plusieurs spécialistes étrangers reconnus et pour lesquels aucun conflit d'intérêt ne pouvait être invoqué : Mme J. Simmonds (HPA, Royaume-Uni, radioprotection, évaluation du risque), Mme N. Chaumerliac (université de Clermont-Ferrand, physique des aérosols), M. Y. Thiry (Centre d'études nucléaires de Mol, Belgique, système sol-plante), M. C. Murith (Office fédéral de santé publique, Suisse, évaluation du risque radiologique environnemental) et M. M. Feinberg (INRA, statistiques). Quatre membres du conseil scientifique se sont adjoints à cette commission : MM. M. Quintard (Président), B. Sevestre, R. Amalberti et L.E. Holm.

Un dossier d'évaluation complet relatif aux travaux de l'IRSN sur ce sujet a été mis à la disposition de la commission et du conseil, comprenant une quinzaine de documents, dont un signé par le professeur A. Aurengo, et deux rédigés spécifiquement par l'IRSN à la demande expresse de la commission et du conseil. Enfin, conscients des enjeux politiques de ce 20^e anniversaire, la commission et le conseil ont exercé une forte pression afin d'aboutir avant cette date et ont élaboré un planning de la phase d'évaluation, de telle sorte qu'un avis finalisé puisse être obtenu avant la fin du mois de mars 2006.

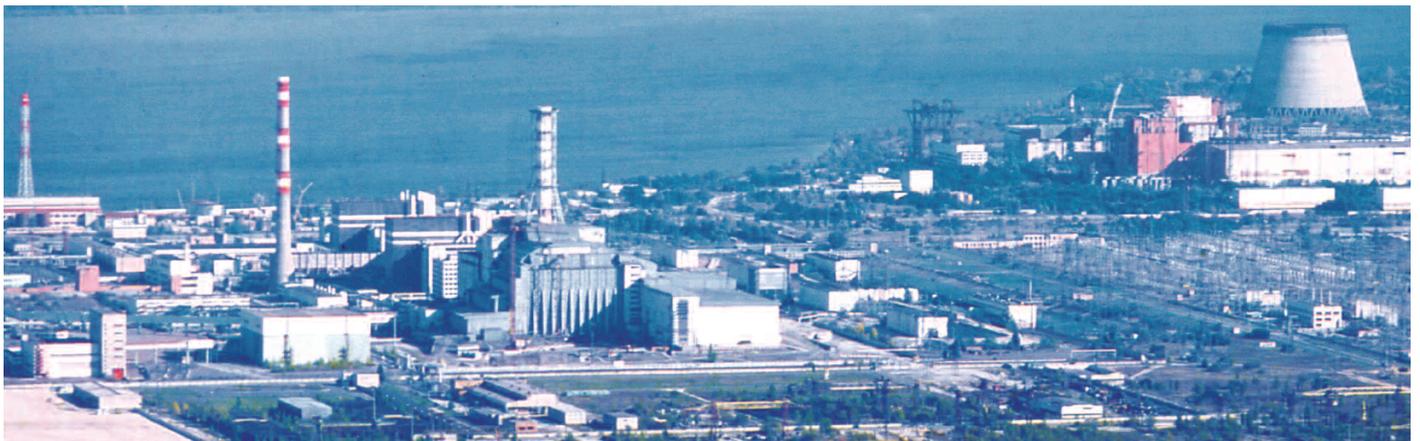


Évaluation et élaboration de l'avis

L'analyse des travaux de l'IRSN s'est construite à partir de l'examen du dossier d'évaluation et d'auditions, tant des chercheurs de l'IRSN que du professeur A. Aurengo. Ce dernier a été étroitement associé aux travaux de la commission et du conseil. Cependant, en raison de la mission dont il avait par ailleurs été chargé par les ministères, il n'a pas pris part à la délibération finale sur le projet d'avis (bien que membre du conseil). Le professeur A. Aurengo a présenté de manière détaillée ses réflexions sur le travail de l'Institut, et les questions qu'il a posées ont été prises en considération.

Au cours de son travail, la commission a demandé à l'IRSN que lui soient remis : **une note de commentaires** sur le document fourni par le professeur A. Aurengo (« Le modèle IRSN 2003 des retombées de l'accident de Tchernobyl en France – 18 décembre 2005 »), ainsi **qu'un rapport présentant une analyse de cohérence des différentes approches utilisées.**

La commission s'est réunie le 23 janvier 2006 pour une audition approfondie des chercheurs de l'IRSN et du professeur A. Aurengo. Une dizaine d'observateurs de l'IRSN ont été invités pendant l'audition afin de pouvoir, le cas échéant, apporter la meilleure réponse à des questions particulières de la part de la commission. Cette réunion s'est poursuivie par un huis clos, au cours duquel la commission a élaboré ses propositions préliminaires d'avis et son organisation interne pour en conduire le développement ultérieur. Après s'être réunie à nouveau le 16 février 2006, la commission a présenté son projet d'avis aux membres du conseil le 13 mars, pour qu'il puisse être discuté, amendé et validé par le conseil scientifique lors d'une réunion plénière extraordinaire convoquée à cette fin. L'ordre du jour de cette réunion du conseil avait prévu une audition succincte des chercheurs de l'IRSN et du professeur A. Aurengo, qui ont pu faire une présentation synthétique de leurs travaux devant l'ensemble du conseil. Les amendements demandés par le conseil ont été intégrés au cours d'un ultime huis clos, et l'avis définitif finalement rendu par M. Quintard, son Président, le 30 mars 2006.



Avis et recommandations du conseil scientifique

Fort de l'analyse des documents mis à sa disposition et des auditions qu'il a conduites, le conseil scientifique a émis les avis et recommandations dont un résumé est donné ci-après :

L'IRSN a effectué depuis vingt ans un important travail d'analyse des données disponibles suite aux retombées de radionucléides dues à l'accident de Tchernobyl. Les modèles interprétatifs développés dans ce cadre sont cohérents avec les tentatives d'interprétation faites dans d'autres pays également touchés par cette contamination.

Compte tenu de la faiblesse des données de 1986 et des incertitudes des modèles utilisés avec les données ultérieures, la reconstitution – vingt ans après – de la contamination due à l'accident de Tchernobyl a atteint ses limites, rendant injustifiée la poursuite d'efforts tournés vers la reconstitution du passé. Cela n'exclut pas d'utiliser l'accident de Tchernobyl comme élément de référence pour le développement de meilleurs outils pour l'analyse de risque et une meilleure maîtrise des modes de communication en situation de crise.

Cette insuffisance, couplée à la physique mise en jeu lors du transport et du dépôt du panache de contamination, justifie clairement l'utilisation par l'IRSN d'une démarche de modélisation, exploitant notamment une relation empirique pluie-dépôt, pour mieux estimer la contamination du territoire, même s'il doit être reconnu que celle-ci n'a pas complètement exploité la conception d'outils d'analyse plus statistiques.

Ainsi, tout en regrettant que n'aient pas été soulignées autant que nécessaire les incertitudes sur les résultats obtenus, le conseil confirme la validité des démarches mises en œuvre par l'IRSN pour aborder cette question et émet les recommandations suivantes :

- **ne pas poursuivre d'études destinées à produire de nouvelles reconstitutions** des retombées de l'accident de Tchernobyl en France ;
- **conclure, cependant, le très volumineux travail réalisé par une synthèse donnant les résultats des études de reconstitution des dépôts de césium à une échelle (zone ou département), avec leurs incertitudes. Ceci afin de permettre éventuellement une comparaison avec les études antérieures (1997 et carte européenne) et d'évaluer les conséquences sur l'exposition des personnes, en s'intéressant aux valeurs moyennes et aux groupes ou individus critiques ;**
- **exploiter le retour d'expérience sur l'interprétation des retombées de l'accident de Tchernobyl pour améliorer l'adaptation du réseau d'observation à ce type de crise (privilégier les mesures directes, valider et améliorer les protocoles de mesure, définir et mettre en place un réseau adapté et coordonné à l'échelle européenne, développer des mesures directes par spectrogammatétrie, et réaliser un état des lieux périodique de la contamination des sols en césium), en soulignant aussi à cet égard le grand intérêt de la modélisation pour l'analyse de risque ;**
- **développer des modèles adaptés à l'analyse et à la gestion du risque, malgré la difficulté inhérente à la complexité des mécanismes en jeu, à savoir : adapter les modèles à leur usage en gestion de crise, approfondir leur dimension statistique, réaliser un meilleur couplage opérationnel avec les données météorologiques, utiliser le cas Tchernobyl pour le test et la validation des outils, ainsi que pour la réflexion prospective.**

François BRÉCHIGNAC,
Direction de l'évaluation scientifique
et technique et de la qualité

Les évaluations menées par la Direction de l'évaluation scientifique et technique et de la qualité

Dès sa création, l'IRSN a conduit une réflexion destinée à concevoir, mettre en place et développer une démarche d'amélioration de l'excellence de ses activités scientifiques et techniques couvrant aussi bien la recherche que l'expertise, et qui soit fondée sur la pratique de l'évaluation par des experts externes. Cette réflexion a débouché sur la définition des fondements et des grands principes de l'évaluation à l'IRSN, et de sa justification, avec l'identification des trois axes sur lesquels repose son développement.

Le dispositif d'évaluation de l'IRSN

Le dispositif d'évaluation des activités de l'IRSN comprend trois types d'évaluation, qui déclinent des modalités pratiques de mise en œuvre pouvant varier à la marge, mais dont la méthodologie générale et les objectifs sous-jacents demeurent cohérents et largement identiques. Il s'agit des évaluations dites ciblées, des évaluations conduites par le conseil scientifique et des évaluations continues menées par des conseils scientifiques thématiques (CST) attachés à certains thèmes ou projets définis dans le Programme à moyen et long terme (PMLT). Il convient en outre de rappeler qu'une procédure particulière, mais fondée sur les mêmes principes, a également été mise en place pour évaluer les sujets de thèse et de post-doctorat, ainsi que les candidats qui se présentent pour l'obtention de ces bourses de recherche.

Les évaluations ciblées ont fait l'objet d'une première phase, dite pilote [1], afin de valider avec un souci pédagogique la démarche méthodologique conçue [2]. Un programme pluriannuel glissant d'évaluations ciblées a ensuite été mis en place pour exécution à partir de 2007 [3].

Les évaluations conduites par le conseil scientifique sont exécutées selon la même démarche méthodologique (deux évaluations conduites en 2006) avec l'implication, en sus, des membres du conseil et, chaque fois que nécessaire, de commissions *ad hoc* constituées d'experts extérieurs.

Les évaluations continues menées par des CST sont encore dans une phase préliminaire de mise en place. Un premier CST est actuellement en fonctionnement depuis cinq ans sur le programme de recherche ENVIRHOM⁽¹⁾. Un deuxième, concernant la problématique des déchets et qui fait suite à la prise en compte d'une recommandation du conseil scientifique, sera installé en 2007.

Enfin, les évaluations concernant les thèses et les post-doctorats, mises en place dès la création de l'Institut, ont fait l'objet d'une procédure particulière. Elles sont opérationnelles depuis lors et conduites au fil des besoins.

Lorsque l'ensemble de ce dispositif sera complètement déployé, il devrait permettre d'évaluer raisonnablement l'ensemble des activités de recherche et d'expertise de l'Institut sur un laps de temps de l'ordre de cinq ans.

(1) ENVIRHOM : programme de recherche qui vise à étudier les processus d'accumulation des radionucléides et les effets biologiques induits par cette accumulation chez les organismes vivants du monde végétal, animal et chez l'homme en situation d'exposition chronique.

Les principaux éléments de la démarche d'évaluation

Les principes de base de l'évaluation qui ont été développés pour l'Institut sont rappelés de façon synthétique dans le **Tableau 1** en termes d'enjeux et d'objectifs, de déontologie et de méthodologie.

Tableau 1

Les principes de base de l'évaluation, en termes...

... d'enjeux et d'objectifs

- Améliorer le niveau d'excellence de nos activités pour :
 - rendre notre activité plus performante ;
 - mieux remplir les missions qui nous sont confiées ;
 - acquérir les éléments de la reconnaissance.
- Apporter des éléments objectifs d'aide à la gouvernance.
- Soutenir la comparaison avec le reste du monde, sur la base de critères unanimes.

... de déontologie

- S'exposer à un regard extérieur compétent et indépendant.
- Ménager un huis clos dans le processus pour favoriser l'émergence d'avis et recommandations impartiaux.
- Assurer la conduite du processus sur la méthode en toute transparence.
- Tenir les responsables des activités examinées informés de tous les avis et recommandations élaborés par les experts extérieurs.
- Tenir les experts extérieurs informés des suites données à leurs avis et recommandations.

... de méthodologie

- Formaliser un cadrage précis avec l'ensemble des partenaires concernés.
- Identifier les éléments générateurs d'amélioration (rapport d'évaluation).
- Implémenter de façon volontariste ces éléments dans nos fonctionnements (propositions de prise en compte des recommandations, plan d'actions).
- Établir une concertation permanente entre tous les partenaires concernés, à tous les stades de l'évaluation.
- S'interroger régulièrement sur l'efficacité de la méthode pour la faire évoluer si nécessaire.
- S'inscrire dans une culture de travail incluant l'évaluation.

La démarche d'évaluation des activités scientifiques et techniques mise en place à l'IRSN reprend les trois critères qui forment les standards internationaux reconnus en la matière. Il s'agit d'examiner ces activités à l'aune :

- **de leur qualité scientifique et technique** (méthode d'obtention des résultats, raisonnement, interprétation, esprit critique, publication, valorisation, etc.) ;
- **de leur pertinence vis-à-vis des missions de l'Institut** ;
- **de leur efficacité** en termes organisationnels et de ressources à mobiliser, etc.

Une méthodologie en trois phases a été développée (**figure 1**). Elle prend en compte le caractère spécifique des recherches et des expertises développées par l'Institut.

Une première phase de préparation procède d'un dialogue entre l'entité évaluée et le directeur d'évaluation et d'animation scientifique, afin de fixer le cadrage de l'évaluation, c'est-à-dire son questionnement, son périmètre, le contenu de son dossier d'évaluation, son calendrier, et l'identification consensuelle des experts externes à solliciter. Ces éléments sont définis dans une note de cadrage agréée par l'entité évaluée : c'est un préalable indispensable à l'engagement de la phase suivante.

Une **deuxième phase, ou phase d'évaluation**, est réalisée par des experts extérieurs. Ceux-ci procèdent d'abord à une analyse du dossier d'évaluation, complétée ensuite par une ou plusieurs réunions d'évaluation incluant éventuellement des visites des laboratoires concernés. Ces réunions constituent l'occasion d'une rencontre directe des experts extérieurs avec les évalués et doivent déboucher sur l'expression formelle de leurs avis et de leurs recommandations.

Enfin, une **troisième phase d'exploitation** consiste à préciser les propositions de prise en compte des recommandations pour l'entité évaluée et à formaliser l'ensemble de la démarche et ses résultats dans un rapport de synthèse réalisé par le directeur d'évaluation et d'animation scientifique.

La validité des recommandations obtenues autant que la crédibilité de la démarche reposent sur la révélation juste et non biaisée des activités soumises à évaluation, sur l'excellence reconnue des experts extérieurs, mais aussi sur l'assurance scrupuleuse de leur indépendance de jugement. C'est pourquoi l'absence de conflit d'intérêts et l'engagement des experts extérieurs au respect de la confidentialité sont chaque fois vérifiés.

Au final, les produits d'une évaluation sont formalisés par l'entremise de deux documents clés. Il s'agit d'abord du **rapport d'évaluation** rédigé par les experts extérieurs, dans lequel ceux-ci expriment, à l'issue de l'exercice, leurs avis ainsi que leurs recommandations. Le second document est un **rapport de synthèse** rédigé par le directeur d'évaluation et d'animation scientifique. Il retrace les principales étapes de l'évaluation et son déroulement, puis fournit ses produits ainsi que, le cas échéant, l'avis du directeur de l'évaluation scientifique et technique et de la qualité.

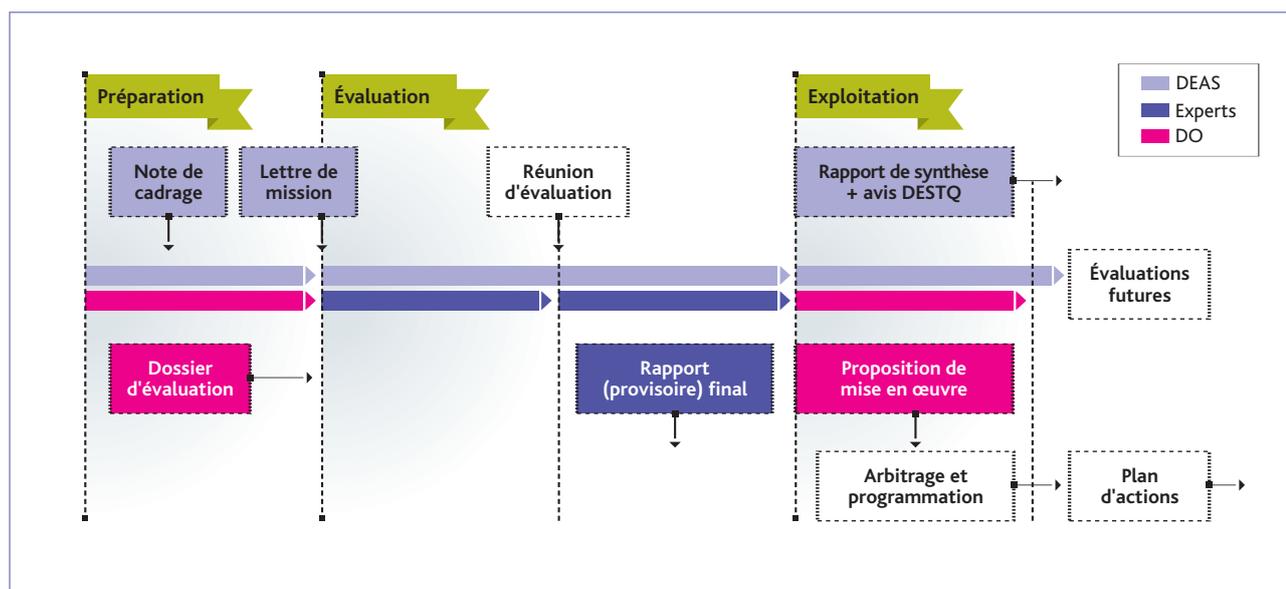


Figure 1 : Schéma général de la démarche d'évaluation ciblée et de prise en compte des recommandations (DEAS : Directeur d'évaluation et d'animation scientifique ; DO : Direction opérationnelle).

Le programme d'évaluation conçu en 2006

L'année 2006 a vu aboutir le premier programme d'évaluation développé sous une forme pilote à partir de 2004. Ce programme avait pour finalité de tester par l'expérience la procédure brièvement décrite ci-dessus, mais surtout de faire en sorte que les personnels de l'Institut acceptent la démarche générale d'évaluation, en mesurent bien l'intérêt et se l'approprient.

Cette phase pilote a porté sur cinq sujets d'évaluation représentant les différentes facettes des activités de recherche et d'expertise conduites à l'Institut :

- **la collaboration avec les pays de l'Est**, sur trois thèmes : radioécologie IFA⁽¹⁾, codes de calcul en thermohydraulique et relâchement des produits de fission ;
- **le programme VERCORS** sur le relâchement accidentel et le transport des produits de fission (programme achevé) ;
- **le programme CHIP** sur la chimie de l'iode ;
- **l'expertise faite par l'IRSN** sur l'analyse de sûreté concernant le laboratoire Atalante du CEA ;
- **le laboratoire de dosimétrie biologique.**

(1) IFA : Initiative franco-allemande. L'objectif essentiel de l'Initiative franco-allemande est d'aider à collecter et valider des données existantes, afin de constituer une base d'informations utile à la planification de contre-mesures, à l'information du public et aux travaux scientifiques ultérieurs. Trois thèmes d'étude ont été retenus : la sûreté du sarcophage, l'impact de l'accident sur l'environnement (projet radioécologie) et la santé des populations affectées (projet santé).

Les résultats de ce premier programme pilote ont été présentés et discutés lors d'un séminaire sur l'excellence scientifique et technique organisé en avril 2006. Deux décisions relatives aux évaluations ciblées ont été prises à l'issue de ce séminaire :

- **la validation officielle de la démarche d'évaluation ciblée** à déployer dans l'Institut,
- **la définition et l'engagement d'un programme « pluriannuel glissant »** comprenant 12 sujets devant être traités pendant l'année 2007. Ces 12 sujets programmés en priorité, ainsi qu'une dizaine d'autres d'ores et déjà identifiés, résultent d'un inventaire classé par ordre de priorité des demandes d'évaluations formulées par les directions opérationnelles, par les directions fonctionnelles et par la direction générale.

L'année 2006 a aussi vu se mettre en place l'Agence de l'évaluation de la recherche et de l'enseignement supérieur (AERES), dispositif national d'évaluation de la recherche et de l'enseignement supérieur. Attentif à la mise en place de cette agence et de ses missions opérationnelles, l'Institut s'est attaché à développer une stratégie de mise en cohérence de son dispositif interne d'évaluation, afin d'obtenir à terme, et le cas échéant, son accréditation.

François BRÉCHIGNAC,
Direction de l'évaluation scientifique
et technique et de la qualité

Références

- [1] Bréchnignac F. (2006), « Analyse et enseignements tirés des évaluations pilotes menées à l'IRSN », in Actes du 2^e Séminaire sur l'excellence scientifique et technique, Annexe 8.
- [2] Bréchnignac F. (2006), « Démarche d'évaluations ciblées et de prise en compte des recommandations », Rapport DESTQ/DIR n° 06-001.
- [3] « Programme d'évaluations scientifiques et techniques ciblées » (2006) Rapport DESTQ/DIR n° 06-005.

Formation à et par la recherche à l'IRSN – la promotion des doctorants 2006



La politique de formation à et par la recherche a été débattue en 2006 dans un Séminaire sur l'excellence scientifique et technique qui s'est tenu les 6 et 7 avril. Cette politique a été officialisée par une note du Directeur général qui précise des orientations qui, pour la plupart, avaient déjà été prises précédemment et évoquées dans l'édition 2005 de ce Rapport : confirmation de l'objectif de 30 nouveaux doctorants par an, d'un effectif permanent de 30 post-doctorants et d'une incitation forte des directions opérationnelles à pousser les chercheurs en ayant le profil à obtenir leur habilitation à diriger des recherches (HDR).

Cette incitation des chercheurs à obtenir une HDR est essentielle, car il y a actuellement au sein de l'Institut une certaine pénurie en ce domaine. Concrètement, l'IRSN se trouve dans l'obligation d'avoir recours pour les thèses à un encadrement à deux niveaux : un directeur de thèse habilité, la plupart du temps extérieur à l'IRSN, et un tuteur IRSN, plus proche du doctorant, mais ne disposant pas de cette habilitation. Sans remettre en cause la nécessaire ouverture de l'IRSN vers l'enseignement supérieur, la présence d'un plus grand nombre de chercheurs habilités permettra un meilleur équilibre des responsabilités d'encadrement des doctorants (possibilité de direction partagée par exemple). C'est la raison pour laquelle, bien que le nombre d'HDR soutenues en 2006 soit modeste, l'objectif d'une augmentation significative demeure une priorité.

Le Rapport 2005 rendait compte de l'effectif des doctorants ayant commencé leur thèse en octobre 2005 : il atteignait 27, en nette augmentation par rapport à celui des années précédentes, ce qui laissait espérer une atteinte rapide de l'objectif assigné. L'année 2006 présente un paysage plus contrasté. Par rapport à l'année précédente, si on s'en tient au seul aspect des effectifs, c'est une régression, puisque 22 doctorants seulement ont commencé une thèse à l'automne 2006, alors que 34 sujets avaient été proposés. Les causes génériques de ce déficit sont sans doute à rechercher dans la désaffection générale observée pour les études scientifiques de haut niveau, mais ce ne sont certainement pas les seules. D'autres doivent sûrement être invoquées, liées au processus même de sélection des candidats. Il est à cet égard nécessaire de rappeler la procédure en trois étapes, adoptée par l'Institut : évaluation des sujets proposés par les laboratoires d'accueil, évaluation du dossier du candidat proposé et audition de celui-ci devant une commission mixte IRSN-enseignement supérieur. L'expérience a conforté l'Institut dans sa pratique d'organiser deux sessions d'audition, l'une en juin, l'autre en septembre. La première permet de « fixer » les étudiants dont le dossier est prêt dans les délais, la seconde de ne pas laisser échapper les bons étudiants dont le dossier n'était pas prêt en juin. Parmi les causes du déficit numérique observé, il faut mentionner en premier lieu le fait que certains laboratoires n'ont pas trouvé parmi ceux qui se sont présentés de candidat d'un niveau correspondant aux critères requis. La mise en œuvre de cette sélectivité doit être considérée comme un indice positif de la perception par les responsables de ces laboratoires de l'exigence d'excellence de l'Institut. Une autre cause importante de déficit vient de ce que plusieurs des candidats convoqués à l'audition de septembre ont craint d'affronter l'aléa de l'audition et ont préféré répondre aux offres concurrentes « sans condition » qui leur sont parvenues entre-temps.

Le remède à cet état de choses est simple dans son principe, moins aisé peut-être à mettre en œuvre. Certes, il ne saurait être question de transiger sur le niveau exigé. À ce titre, l'audition est une pièce essentielle de la procédure : menée par une commission indépendante des unités de recherche, elle constitue un garde-fou contre la tentation de laxisme. Il ne reste plus qu'à faire en sorte que le nombre maximum de candidats puisse se présenter à l'audition de juin. La meilleure façon d'y parvenir est de prendre des contacts précoces, dès l'entrée en master de recherche si possible, avec les candidats présentés. Il faut évidemment disposer pour cela de liens étroits avec le monde universitaire, qui ne peuvent s'acquérir que par le biais de collaborations ou de participations à des enseignements. En contrepartie de ce « creux de la vague », il est agréable de commencer à récolter les fruits de la politique menée depuis la réorganisation de 2003. La prise de conscience par les unités des exigences de la sélection se traduit par le souci déjà mentionné du niveau des candidats, la préférence accordée à la qualité sur la quantité, la prise au sérieux de la procédure de sélection et notamment de l'audition. Ce nouvel état d'esprit a, par exemple, conduit à proposer précocement un changement d'orientation à des candidats engagés dans la préparation d'une thèse et qui n'avaient pas satisfait les attentes des encadrants. Si de tels événements sont et doivent rester exceptionnels, le seul fait qu'ils se soient produits a certainement un impact sur la perception par les autres de l'exigence posée par l'Institut. Dans le même ordre d'idées, les présentations faites par les doctorants de l'avancement de leurs travaux lors des journées annuelles des thèses (voir Rapport scientifique et technique 2005) voient leur qualité s'améliorer d'année en année. Ces journées, qui se tiennent en séminaire résidentiel au début de l'automne, sont très appréciées de l'ensemble des participants. Elles constituent un moment privilégié de la vie scientifique de l'Institut en permettant de resserrer de manière tangible les liens tissés entre l'IRSN et l'enseignement supérieur, notamment par la participation de certains de ses représentants comme présidents de session. Il y a peu à dire sur les contrats post-doctoraux, qui bénéficient eux aussi d'une procédure comportant une évaluation externe du dossier (mais pas d'audition). Les critères d'acceptabilité des dossiers proposés par les unités ainsi que l'état d'esprit qui préside à leur évaluation ont pour but de s'assurer que ces contrats servent bien le but annoncé, à savoir fournir à un docteur récemment diplômé un complément de formation valorisable sur le marché du travail, en lui confiant un sujet de recherche qu'il soit capable de mener d'une façon autonome. Compte tenu de ce but, la gestion des flux entrants et sortants fait preuve d'une certaine souplesse. Il est en effet hors de question de faire pression pour le retenir sur un post-doctorant qui aurait trouvé un emploi scientifique en CDI en cours de contrat. Les difficultés de gestion ainsi induites sont largement compensées par le fait que ces « post-docs » constituent pour l'Institut un vivier important et apprécié de renouvellement de son potentiel de chercheurs. Le nombre de post-doctorants actuellement en poste est de 25, pour un effectif objectif de 30.

Michel COLIN,
Division de l'ingénierie de la connaissance
scientifique et technique

Du nouveau dans la collection des « livres IRSN »



Un nouvel ouvrage est venu compléter en 2006 la collection « Lignes directrices » des livres scientifiques de l'IRSN : la publication numéro 85 [1] de la Commission internationale de protection radiologique (CIPR), intitulée : *Comment éviter les lésions induites par les rayonnements utilisés dans les procédures interventionnelles médicales*. La radiologie interventionnelle a en effet bouleversé la pratique médicale, mais cette technique présente des risques liés à l'exposition aux rayonnements ionisants des praticiens, mais également des patients. L'IRSN poursuit le même objectif en publiant cet opuscule traduit de la CIPR qu'avec les précédentes traductions publiées (CIPR numéros 84 et 86, guide *Vos patients et les rayons*) : une meilleure utilisation des rayonnements pour une meilleure maîtrise des risques, donc une meilleure protection.

Sandrine MARANO,
Division de l'ingénierie de la connaissance
scientifique et technique



Références

- [1] Lavoisier, Éditions Tec et Doc, 80 p.

1 Radioactivité et environnement

1	Mieux évaluer les risques pour l'homme et les écosystèmes : de la connaissance aux outils opérationnels	22
1.1	Les avancées dans le développement des outils d'évaluation de la dispersion atmosphérique et des conséquences radiologiques	26
1.2	Étude du dépôt sec des aérosols dans l'environnement : expérimentation et modélisation mécaniste	35
1.3	La station d'Arles sur le Rhône : une plate-forme technique pluridisciplinaire et multipartenaire pour l'observation du milieu aquatique	42
1.4	Le césium 137 dans l'environnement terrestre français au cours des quinze dernières années	48
1.5	Vers la mise en place d'une méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux radionucléides	53
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
1.6	La migration dans les sols d'un élément mobile : évolution du panache de strontium 90 dans l'environnement de Tchernobyl	64
1.7	CARMA : conséquences des apports rhodaniens sur le milieu littoral associé. Cas des événements extrêmes	64
1.8	Le Réseau national de mesure de la radioactivité de l'environnement	65
1.9	Présence de radiopharmaceutiques dans les effluents urbains	66
1.10	En quelques dates / Soutenances de thèses et autres faits marquants	67

Mieux évaluer les risques pour l'homme et les écosystèmes : de la connaissance aux outils opérationnels

Les sujets présentés cette année montrent la variété des milieux, des approches et des cibles étudiés par l'IRSN dans le domaine de la radioécologie. Ils ont tous pour objectif de faire progresser l'Institut dans sa capacité à répondre aux questions, récurrentes ou nouvelles, touchant à l'évaluation des risques liés à la présence ou aux rejets de substances radioactives dans l'environnement. Ils ont aussi en commun de concourir très directement à trois des sept défis

portés par le contrat d'objectifs signé en 2006 entre l'IRSN et ses tutelles :

- mieux connaître et surveiller l'exposition des personnes dans leur environnement ;
- renforcer la capacité d'expertise de l'Institut en situation d'urgence radiologique ou postaccidentelle ;
- mieux connaître les effets des expositions chroniques aux radionucléides, en l'occurrence ici sur les écosystèmes.

Je vous propose maintenant une brève revue des thématiques que nous avons choisi de présenter cette année et qui sont développées dans les articles de fond de ce chapitre.

■ Comprendre et modéliser la dispersion des polluants radioactifs dans l'atmosphère

Ce sujet présente un intérêt majeur pour l'IRSN, car l'air est le premier milieu affecté en cas de rejet atmosphérique accidentel ou de routine. En particulier, les particules radioactives en suspension dans l'air, appelées aérosols, peuvent être inhalées et constituer une source de contamination interne critique en cas d'accident nucléaire, notamment dans les tout premiers stades de la crise. De plus, ces aérosols finissent par retomber au sol selon des processus complexes et entraînent alors une contamination des lieux de vie et des végétaux, notamment de la chaîne alimentaire.

En termes de contexte général, l'année 2006 a été marquée par l'évaluation par le conseil scientifique des travaux visant à reconstituer les retombées en France de l'accident de Tchernobyl et par une action croissante des pouvoirs publics en faveur de l'évaluation et de la gestion des situations postaccidentelles. Dans un tel contexte, les travaux présentés ici sont particulièrement pertinents et porteurs pour l'avenir.



Tout d'abord, l'IRSN s'est engagé dans le développement d'une nouvelle génération d'outils de modélisation de la dispersion atmosphérique, sous la forme d'une plate-forme de calcul couvrant l'échelle locale à continentale et prenant mieux en compte le réalisme des phénomènes et des situations. Ces nouveaux outils, qui permettront à terme l'assimilation des données environnementales acquises en situation opérationnelle, renforceront ainsi la capacité d'expertise de l'IRSN en cas d'accident nucléaire survenant en France ou à l'étranger. Ces développements donnent lieu à des partenariats scientifiques permanents (École centrale de Lyon, École nationale des ponts et chaussées, EDF) et suscitent l'intérêt des industriels.

Le développement de la modélisation ne peut pas être découplé des nouvelles connaissances sur les phénomènes gouvernant la dispersion des substances radioactives et, *in fine*, leur retombée au sol. Ainsi, le second article traite de l'étude du dépôt sec des aérosols dans l'environnement, selon une approche expérimentale de terrain. Si ce phénomène paraît discret au regard des dépôts qui seraient générés par les pluies, il a néanmoins une influence très sensible sur la contamination des végétaux et de l'ensemble de la chaîne alimentaire, comme

l'a montré l'étude des conséquences de l'accident de Tchernobyl. Ainsi, il est judicieux de bien comprendre les facteurs qui contrôlent l'intensité du dépôt sec dans un contexte environnemental lui-même très variable, et donc d'affiner le pouvoir prédictif des modèles en ne se reposant pas uniquement sur des considérations théoriques ou mécanistiques.

L'IRSN poursuit d'autres études et développements concernant la caractérisation et le comportement des aérosols dans l'environnement, qui donneront lieu à de nouvelles présentations dans les prochaines éditions du Rapport scientifique et technique de l'IRSN.

■ Comprendre et quantifier le transport des matières dans les fleuves

Grâce à sa plate-forme d'observation du Rhône, implantée en Arles depuis plusieurs années dans le cadre du réseau OPERA, l'IRSN dispose d'un outil de connaissance et de quantification des flux de matières, dont les substances radioactives, transportées par le Rhône sous forme dissoute ou en suspension.

Le choix du Rhône est naturel pour l'Institut :

- il s'agit du fleuve doté de la plus forte densité d'installations nucléaires touchant à l'ensemble du cycle du combustible, dont les rejets historiques ont laissé localement un marquage radioactif dans les sédiments ;
- le Rhône draine également un vaste bassin versant, particulièrement affecté par les retombées de césium 137 dues à l'accident de Tchernobyl et aux tirs nucléaires atmosphériques ;
- il débouche sur la Méditerranée, mer semi-fermée et sensible, en formant un prodelta sédimentaire accumulant les matières venant du bassin versant.

Au-delà du besoin de comprendre et de quantifier le devenir des substances radioactives, cet outil rassemble de nombreux partenaires scientifiques ou gestionnaires du milieu aquatique, comme en témoigne l'article 1.3.

En particulier, un des centres d'intérêt de cette plate-forme d'observation est la compréhension des phénomènes associés aux crues extrêmes du Rhône qui, en raison des débits en jeu, oblige à s'intéresser à des substances à l'état de trace pour mieux connaître les flux réels et leur répartition sous différentes formes physico-chimiques.

De par sa nature, l'intérêt scientifique de cette station d'observation est appelé à s'accroître au fil du temps, grâce à l'enregistrement de longues séries temporelles de données et à la caractérisation des événements rares et extrêmes que représentent les crues majeures.

■ Le devenir à long terme du césium dans les sols : observation et enseignements sur les mécanismes en jeu

En milieu terrestre, le sol peut devenir un lieu de stockage durable de substances radioactives rejetées par les activités nucléaires et entretenir ainsi en permanence une contamination résiduelle des

végétaux et plus généralement de la chaîne alimentaire, entraînant une exposition chronique à bas niveau des personnes. Il en va ainsi du césium 137, hérité des retombées des tirs nucléaires et de l'accident de Tchernobyl. Sa présence dans les sols français n'entraîne aucune situation critique d'exposition, mais les nombreuses données recueillies depuis plus de quinze ans par l'IRSN, dans le cadre de son réseau d'observation permanent (OPERA) et du suivi radioécologique des sites EDF, constituent une riche source de connaissances, que l'IRSN a entrepris d'exploiter.

L'article présenté ici montre les principaux enseignements retirés de ce travail : l'activité massique dans les sols tend à décroître selon une période effective plus courte que la période radioactive du césium 137 ; la décroissance de l'activité dans les végétaux poussant sur ces sols est encore plus accentuée, montrant la perte de biodisponibilité de césium 137 résiduel au fil du temps.

Le recul des années qu'offrent les longues séries d'observation recueillies par l'IRSN permet de préciser les grandeurs caractéristiques des phénomènes en jeu, mais confirme également l'inadéquation des modèles empiriques de migration-rétention habituellement utilisés pour décrire le comportement des polluants radioactifs dans la partie insaturée des sols.

Ainsi, cette étude apporte une contribution significative à la compréhension du devenir des substances radioactives qui pourraient être déposées sur les sols à la suite d'un accident nucléaire et pousse à s'intéresser davantage aux facteurs sensibles sur le comportement de ces substances. Cette étude permet également d'actualiser la connaissance de l'état radiologique de l'environnement terrestre en France, connaissance nécessaire pour évaluer les conséquences environnementales en situation postaccidentelle.

(1) CIPR : Commission internationale de protection radiologique.

(2) FASSET : Framework for Assessment of Environmental Impact.

(3) ERICA : Comité scientifique des Nations unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants.

(4) UNSCEAR : Programme de recherche de l'IRSN environnement-santé, sur les conséquences des expositions chroniques aux radionucléides présents à faible dose.

(5) ENVIRHOM : Environmental Risk for Ionising Contaminants : Assessment and Management

■ Fonder les bases d'une méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux radionucléides

Au cours des dernières années, des politiques intégrées de protection des milieux sensibles, notamment les milieux marins (convention OSPAR) et aquatiques (directive cadre sur l'eau), ont été initiées, le plus souvent dans un cadre international. La mise en œuvre de ces politiques suppose que l'on puisse évaluer et comparer la part respective des différentes substances rejetées par les activités humaines contribuant à l'impact global sur ces milieux. Afin d'anticiper les besoins futurs concernant spécifiquement les substances radioactives, l'IRSN s'est engagé dans un travail de synthèse critique de l'état de l'art et de développement de sa capacité d'expertise dans ce domaine, dans un cadre largement international. Le dernier article présenté fait le point sur ce travail et en situe les perspectives.

Un premier constat s'impose : le système de protection radiologique actuellement en vigueur, tel que défini par la CIPR⁽¹⁾, n'apporte pas de réponse opérationnelle à ce besoin, ce qui a conduit les différentes instances internationales concernées (dont la CIPR) à s'orienter vers une approche d'évaluation similaire à celle adoptée classiquement pour les substances chimiques. L'IRSN a été historiquement associé à ces nouvelles réflexions, notamment dans le cadre des programmes européens FASSET⁽²⁾ et ERICA⁽³⁾ (respectivement 5^e et 6^e PCRD) et, plus récemment dans celui du nouveau comité 5 de la CIPR et de l'UNSCEAR⁽⁴⁾.

Le second constat révèle que des lacunes importantes subsistent sur la connaissance des effets des radionucléides sur les organismes vivants dans un contexte d'exposition interne chronique à faible dose, même si la méthodologie d'éva-

luation du risque environnemental, ainsi que les données scientifiques permettant sa mise en œuvre, sont globalement admises et donnent lieu à un consensus technique.

L'IRSN s'attache à éclairer cette facette du problème dans le cadre du volet « environnement » du programme ENVIRHOM⁽⁵⁾. L'objectif est de mieux documenter les relations doses-effets dans des contextes variés d'exposition, pouvant être rencontrés au sein des écosystèmes.

Enfin, l'évaluation des effets liés aux substances chimiques ou radioactives peut en principe porter sur plusieurs niveaux d'organisation biologique : effets cellulaires, sur les individus, sur les populations, sur les communautés de populations, voire sur les écosystèmes.

En pratique, le lien entre ces différents niveaux n'est pas facile à interpréter, obligeant à simplifier la méthode d'évaluation par un choix de compartiments et d'organismes de référence. Cette simplification peut être jugée acceptable pour des raisons pratiques ; les connaissances futures apportées par les recherches de l'IRSN et des autres équipes scientifiques en toxicologie environnementale devraient permettre d'aménager cette méthodologie en faveur d'un plus grand réalisme des évaluations.

Didier CHAMPION
Direction de l'environnement
et de l'intervention

1.1

Les avancées dans le développement des outils d'évaluation de la dispersion atmosphérique et des conséquences radiologiques

L'IRSN développe et adapte des modèles de dispersion atmosphérique de polluants radioactifs dans le cadre des missions qui lui sont confiées, concernant l'évaluation des conséquences radiologiques pour l'homme et l'environnement des rejets de produits radioactifs.

Une nouvelle génération d'outils est en cours de mise au point afin d'améliorer le réalisme de la modélisation de la dispersion atmosphérique en cas d'accident, tant à l'échelle dite locale (500 m à 30 km) qu'à l'échelle continentale (30 km à quelques milliers de km). Ces travaux contribuent aux expertises ou aux études réalisées par l'Institut, ainsi qu'aux réponses à apporter en situation de crise dans le cadre de la plate-forme opérationnelle de calcul de conséquences radiologiques et de cartographie C³X [1].

L'IRSN élabore, en complément de ces travaux, des techniques d'assimilation de données et d'inversion, afin notamment d'interpréter les résultats des mesures effectuées dans l'environnement. Les travaux menés sur la modélisation inverse à l'échelle locale, ainsi que sur l'application à l'accident de Tchernobyl du modèle à l'échelle continentale sont présentés après une rapide description des modèles de dispersion à ces échelles.

Dispersion à l'échelle locale

Présentation du modèle

Le modèle de l'IRSN d'évaluation de la dispersion à l'échelle locale, dénommé pX, est en cours de développement. Il est basé sur un noyau d'advection-diffusion auquel sont ajoutés différents modèles physiques. Le noyau d'advection-diffusion comprendra trois modèles distincts, en fonction de la séparation imposée entre les phénomènes de dispersion moyens et turbulents. Les trois modèles visés sont un modèle à bouffées gaussiennes [2 ; 3], un modèle lagrangien [4] et un modèle mixte bouffées-Lagrange [5 ; 6].

Les modélisations physiques progressivement ajoutées au noyau permettront notamment de prendre en compte les phénomènes suivants :

- présence de nombreux bâtiments (site accidenté, village voisin, etc.) ;
- sur hauteur et caractéristiques géométriques des rejets ;
- comportement des aérosols (évolution de la granulométrie, coagulation...);
- présence de relief et utilisation de champs météorologiques inhomogènes ;
- mécanismes de dépôts (sec et humide) ;
- changement de phase des rejets ;
- mécanismes d'interaction avec la couche limite atmosphérique.

Le modèle physique actuellement développé est un modèle classique à bouffées gaussiennes [3 ; 7]. La formulation de l'activité volumique d'un radionucléide rejeté à l'atmosphère par la cheminée s'écrit alors :

$$A(x, y, z, t) = \sum_{i=1}^{i=N_p} Q_i F_{di}(z_{ref}, t) \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3 \sigma_{yi}^2(t) \sigma_{zi}^2(t)}} \times \exp\left(-\frac{(x-x_i(t))^2}{2\sigma_{xi}^2(t)}\right) \times \exp\left(-\frac{(y-y_i(t))^2}{2\sigma_{yi}^2(t)}\right) \times \left(\exp\left(-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_{zi}^2(t)}\right) + \exp\left(-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_{zi}^2(t)}\right)\right) \quad (1)$$

h étant la hauteur effective du rejet, N_p le nombre de bouffées, Q_i l'activité initiale de la bouffée numéro i , $\sigma_{yi}(t)$ et $\sigma_{zi}(t)$ étant les écarts types de cette bouffée.

Le terme d'appauvrissement $F_{di}(z,t)$ représente les phénomènes de dépôts sec et humide ainsi que le terme de décroissance radioactive (F_{rad}).

En utilisant un modèle d'appauvrissement à la source [7], qui appauvrit chaque bouffée uniformément selon la verticale, $F_{di}(z,t)$ s'écrit :

$$F_{di}(z_{ref}, t) = \exp\left(-v_d \int_{t_1}^t \frac{1}{z\sigma_{zi}(t)} \left(\exp\left(-\frac{(z_{ref}-h)^2}{\sigma_{zi}^2(t)}\right) + \exp\left(-\frac{(z_{ref}+h)^2}{\sigma_{zi}^2(t)}\right)\right) dt\right) \times \exp\left(-\int_{t_1}^t \Lambda(t) dt\right) \times F_{rad} \quad (2)$$

L'altitude, où le flux de dépôt est évalué, est notée z_{ref} et v_d est la vitesse apparente de dépôt sec. Λ représente la constante de lessivage par la pluie.

Le rejet à l'atmosphère peut généralement être décomposé en deux : un rejet dit filtré, passant par la cheminée de l'installation accidentée, de débit Q_f , et un rejet dit non filtré (ou direct), sortant directement à l'atmosphère sans filtration par la surface de confinement, de débit Q_d . Le rejet non filtré, bien que de débit moins important que le rejet filtré, est souvent plus important que ce dernier en termes d'activité. Dans le modèle, ce rejet surfacique est représenté par une source ponctuelle virtuelle placée en amont de la cheminée par rapport à la direction d'où vient le vent.

La formulation utilisée pour représenter la dispersion de radionucléides par la source non filtrée est identique à l'équation (1), appliquée à une abscisse $x = d$, d représentant la distance entre la source virtuelle et la cheminée. L'activité totale du rejet est la somme des activités calculées pour la source filtrée et la source directe.

Les premiers éléments de validation du modèle de dispersion ont été notamment établis sur la base d'une expérience de dispersion en soufflerie de diffusion [8].

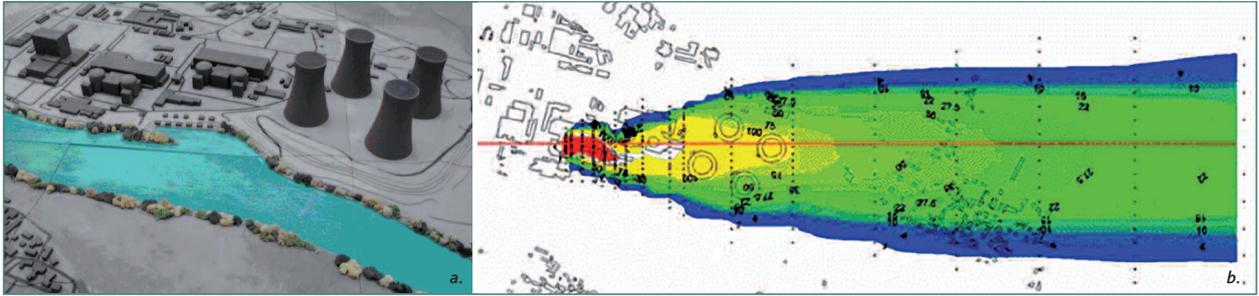


Figure 1 : Expérimentation en soufflerie – a : modèle physique de la centrale ; b : champ d'activité mesuré au sol.

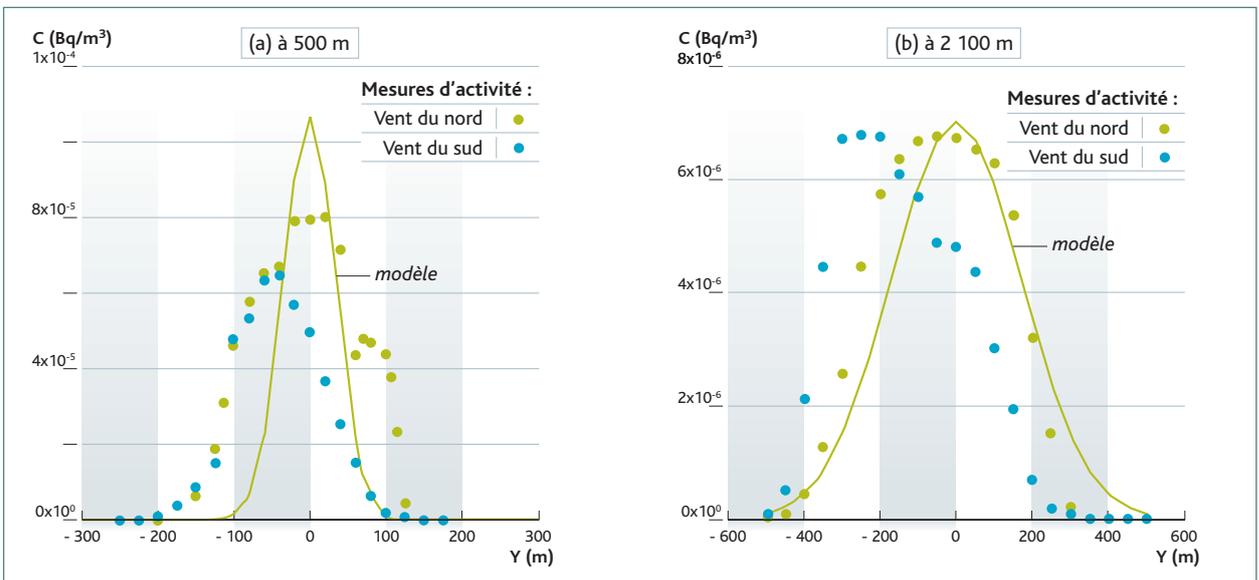


Figure 2 : Profils d'activité au sol – a : à 500 m ; b : à 2 100 m de la source.

Cette expérience utilise un modèle physique de la centrale du Bugey à l'échelle 1:500 (figure 1a) et deux mesures du champ d'activité, une pour un écoulement qui provient du sud, l'autre du nord. La figure 1b illustre le champ d'activité au sol mesuré dans la soufflerie. Les figures 2a et 2b présentent les profils au sol mesurés en soufflerie, et calculés pour les deux directions du vent et des distances de 500 m et 2 100 m. Ces figures montrent que l'activité maximale pour chacune des distances est relativement bien reproduite par le modèle. Par contre, les activités hors de l'axe du vent sont mal simulées et ne peuvent pas être directement comparées aux mesures. La modélisation inverse est donc dans ce cas un moyen d'améliorer les prévisions, plus particulièrement dans le cadre d'une stratégie d'interprétation des mesures en situation accidentelle.

Modélisation inverse, assimilation de données à petite échelle

L'un des objectifs du modèle pX est d'aider à évaluer les conséquences d'un rejet accidentel. Si le rejet a effectivement lieu, des mesures radio-

logiques seront alors disponibles, soit par des réseaux de mesure automatique, soit par des équipes spécialisées de mesure. La qualité de l'évaluation des conséquences est liée à la qualité des données d'entrée du modèle de dispersion.

L'un des paramètres les plus sensibles est le rejet qui, dans une situation d'urgence, est souvent connu avec peu de précision. Des travaux ont été initiés pour utiliser les techniques d'assimilation de données et de modélisations inverses.

Ces techniques, basées sur l'exploitation des observations, permettent d'obtenir la meilleure prévision des conséquences étant donné les incertitudes liées à la situation accidentelle et les imperfections du modèle. L'assimilation de données, ou plus généralement la modélisation inverse [9], est un outil puissant qui permet de réduire les incertitudes en couplant les observations, ici les mesures de radioactivité, avec les prévisions numériques [1].

Cette méthode prend de plus en plus d'importance dans des domaines variés de la prévision numérique comme les simulations météorolo-

Tableau 1

Résultats de l'inversion							
Vent	Paramètres	Initial		Final		« Vraie valeur »	
		Réseau 1	Réseau 2	Réseau 1	Réseau 2	Réseau 1	Réseau 2
Sud	Q _p	0,5		1,128	1,154	1,0	
	U	4,0		2,813	2,833	3,0	
	V	- 0,2		- 0,104	- 6,10 ⁻²	0	
	A ¹ _{xy}	0,405		0,574	0,747		
	A ² _{xy}	0,135		0,106	0,100		
Nord	Q _p	0,5		1,006	0,978	1,0	
	U	4,0		2,34	2,324	3,0	
	V	- 0,2		- 0,215	- 0,249	0	
	A ¹ _{xy}	0,405		0,502	0,678		
	A ² _{xy}	0,135		0,108	0,103		

giques [11], les simulations océanographiques [12] ou encore les simulations de la pollution atmosphérique [13]. Des travaux sur l'assimilation de données appliquée à la dispersion de radionucléides en champ proche ont également été publiés [14 ; 15]. La méthode d'inversion mise en œuvre ici consiste à minimiser une fonctionnelle qui mesure l'écart global entre les mesures et les prévisions d'activité du modèle décrit par l'équation (1).

Cette minimisation s'effectue en adaptant de manière itérative les paramètres du modèle.

Cas d'application avec une expérience en soufflerie

La mise en œuvre de cette méthode d'inversion est testée avec l'expérience de dispersion en soufflerie de diffusion [8]. Deux réseaux de mesure ont été choisis pour conduire l'expérience d'inversion. Le premier réseau consiste à prendre 10 mesures au sol à plus de 500 mètres du point de rejet et le deuxième consiste à prendre l'ensemble des mesures faites au sol, soit 300 mesures.

L'application est faite ici avec les paramètres (Q, U, V, A¹_{xy}, A²_{xy}) où Q est le débit de rejet de la cheminée, U et V sont les composantes de la vitesse de l'écoulement, et A¹_{xy} et A²_{xy} sont deux paramètres qui contrôlent la paramétrisation des écarts types de diffusion. D'autres tests d'inversion ont été réalisés par Krysta [16].

Le **tableau 1** présente les résultats de l'inversion. Dans ce tableau, les valeurs initiales correspondent aux paramètres utilisés pour la première estimation de dispersion. Les valeurs finales sont celles obtenues après application de la méthode d'assimilation et les « vraies valeurs » sont celles de l'expérimentation en soufflerie.

À titre d'exemple, **les figures 3a et 3b** présentent les profils d'activité au sol obtenus après l'inversion sur les paramètres à 850 mètres du rejet. Il convient de noter sur ces figures que l'optimisation a permis d'adapter le débit de rejet relativement correctement et que la diffusion horizontale du panache est correctement représentée, alors que le modèle à bouffées ne tient pas compte de la présence des bâtiments.

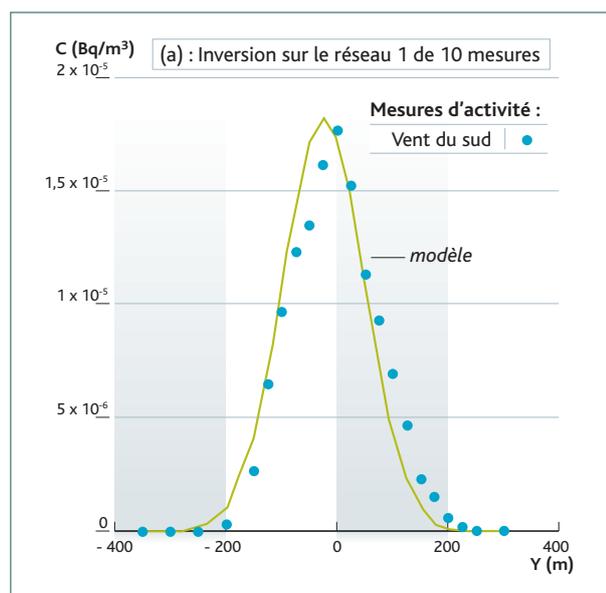


Figure 3a : Profils d'activité au sol à 850 m de la source – inversion sur le réseau 1 de 10 mesures.

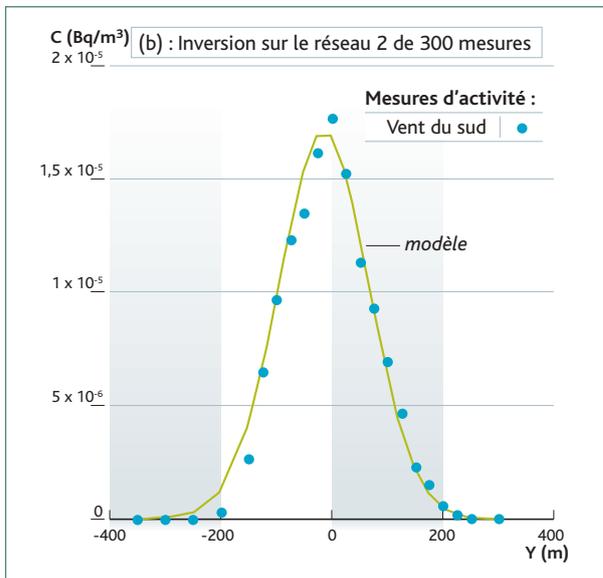


Figure 3b : Profils d'activité au sol à 850 m de la source – inversion sur le réseau 2 de 300 mesures.

Dispersion à l'échelle régionale-continentale

Modèle eulérien de dispersion

Le modèle IdX mis en œuvre par l'IRSN est une adaptation au contexte radiologique accidentel d'un modèle eulérien de transport d'espèces chimiquement réactives : POLAIR3D [17], développé par le Centre d'enseignement et de recherche atmosphérique (CEREA) de l'École nationale des ponts et chaussées et par EDF-R&D.

Ce modèle traite la dispersion de pollutions atmosphériques en résolvant l'équation d'advection-diffusion d'espèces gazeuses selon une approche eulérienne [2]. Le domaine de calcul est fermé. Des données météorologiques sont nécessaires en entrée du modèle.

Les adaptations du modèle IdX (issu de POLAIR3D) à des rejets accidentels à l'atmosphère de produits radioactifs ont été réalisées. Elles concernent principalement la prise en compte des caractéristiques nucléaires des radionucléides rejetés (décroissance et filiation). L'intégration du modèle au sein d'une plate-forme opérationnelle est également en cours de développement pour que celui-ci puisse être utilisé notamment en situation de crise.

Première application au cas de Tchernobyl

La reconstitution de la dispersion du nuage radioactif généré par l'accident au-dessus de l'Europe est mise en œuvre avec une première version de l'adaptation de IdX aux rejets radiologiques accidentels.

L'objectif est de reproduire un champ d'activité volumique au niveau du sol français qui soit le plus réaliste possible par rapport aux mesures radiologiques disponibles.

Éléments du calcul

Quelques radionucléides seulement ont été considérés parmi ceux qui ont été rejetés lors de l'accident. En effet, l'objectif de comparaison des calculs numériques avec les mesures faites en Europe porte sur les trois radionucléides qui ont été réellement mesurés : l'I-131, le Cs-134 et le Cs-137. Le rejet de l'accident n'est pas connu avec précision : la quantité totale de radioactivité relâchée dans l'atmosphère est entachée d'une incertitude de 50 % ; il existe également une grande incertitude sur la distribution verticale de cette radioactivité en fonction du temps. Le rejet utilisé pour cette étude provient de l'OCDE/AEN et de Devell [18 ; 19]. La hauteur effective du rejet en fonction du temps ainsi que la distribution verticale sont issues de Brandt [20 ; 21].

L'activité totale émise dans l'atmosphère pendant l'accident est estimée à $1,2 \cdot 10^{19}$ Bq. Des études paramétriques sur les données de rejet sont effectuées. Ces variations ont été évaluées sur :

- la quantité totale rejetée ;
 - la répartition quotidienne du rejet ;
 - la répartition verticale du rejet.
- Au total, 14 rejets sont étudiés.

Les données météorologiques utilisées proviennent du CEPMMT (Centre européen de prévision météorologique à moyen terme). Elles sont disponibles à une résolution spatiale de $1^{\circ}125'$ (environ 125 km aux latitudes de la France) et une fréquence temporelle de six heures. Des calculs météorologiques complémentaires sont mis en œuvre avec le modèle MM5 [22] afin d'obtenir des résultats de contamination sur une résolution spatiale plus petite et directement utilisables dans une comparaison calcul/mesure. Les résultats correspondants sont utilisés pour effectuer les calculs de dispersion atmosphérique. Le modèle MM5, guidé par les données ERA-40, permet de simuler les conditions météorologiques selon une résolution spatiale de 15 km sur la France et de 45 km sur l'Europe. Une étude paramétrique est faite afin de reproduire un comportement réaliste de la contamination en Europe et plus particulièrement en France. Elle porte sur :

- la sensibilité des conditions météorologiques liée au choix des paramétrisations, notamment celles portant sur la représentation du comportement des nuages, du rôle de l'humidité dans le déclenchement de la pluie et des processus de la couche limite ;
- le rejet (étude de sensibilité basée sur les incertitudes sur les quantités rejetées en fonction du temps et sur la distribution verticale de ces quantités) ;
- le calcul de dispersion en fonction de plusieurs paramétrisations physiques : les dépôts sec et humide et la turbulence de l'atmosphère.

Au total, 87 calculs météorologiques ont été réalisés sur la base des différents modèles qui contrôlent le comportement de la pluie.

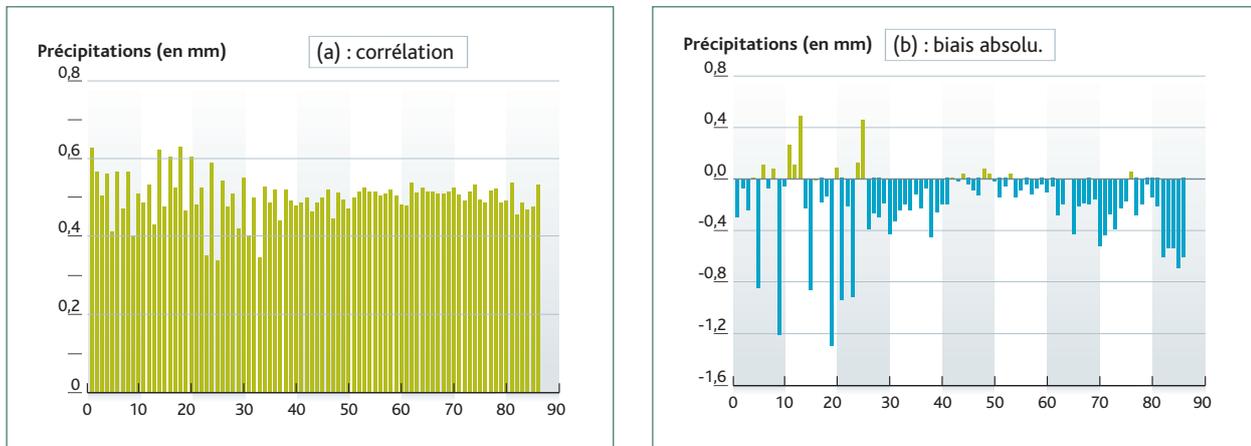


Figure 4 : Statistiques des précipitations en France du 1^{er} au 5 mai 1986 - a : corrélation, b : biais absolu.

La qualité de chaque simulation est comparée sur la France aux observations de précipitations faites sur le réseau de mesures de Météo France. La **figure 4** présente la corrélation et le biais de l'ensemble des calculs météorologiques avec les observations quotidiennes de précipitations pour la période du 1^{er} au 5 mai 1986. Cette corrélation est comprise entre 0,4 et 0,6 dans la majorité des cas.

Le biais est globalement négatif, c'est-à-dire que l'intensité de la pluie sur les cinq jours étudiés est dans l'ensemble sous-estimée par les modèles. Le choix a été fait de retenir les 15 meilleures simulations sur la base des statistiques présentées sur la **figure 4**.

Il est généralement admis que le césium est majoritairement rejeté sous forme particulaire (aérosols), et que l'iode existe sous trois formes distinctes : particulaire (coagulée par exemple à des aérosols atmosphériques ou au césium), gazeuse (forme élémentaire) et organique (par oxydation). Plusieurs publications [23 ; 24] présentent des mesures sur les différentes formes de l'iode en Europe, laissant apparaître que la forme gazeuse est deux à cinq fois plus représentée que la forme particulaire.

La répartition organique/non organique de l'iode semble par ailleurs évoluer dans le temps en raison d'une augmentation de l'oxydation de l'iode avec le temps.

La connaissance des distributions granulométriques de l'iode et du césium est essentielle pour la paramétrisation des processus décrivant le comportement des aérosols ainsi que le dépôt (lessivage et dépôt sec). Les incertitudes sur ces distributions sont très importantes. La littérature [20 ; 24] indique néanmoins que les particules émises étaient dans une large majorité microniques avec un rayon moyen de 1 à 2 μm .

Les modélisations numériques du comportement du rejet de l'accident de Tchernobyl [20 ; 21 ; 25] montrent également que le dépôt sec représente

une fraction très faible du dépôt total, à l'exception de certaines régions où les précipitations ont été très faibles lors du passage du nuage.

Paramétrisation du dépôt sec

Le dépôt sec correspond dans le code à une condition de flux à imposer en condition limite au niveau du sol. Cette condition s'écrit :

$$k_z \nabla c \cdot \mathbf{n} = -v_d c \quad (3)$$

Où k_z représente le flux turbulent, c la concentration ou l'activité volumique au niveau du sol, \mathbf{n} le vecteur normal au sol orienté vers le haut, et enfin v_d la vitesse apparente de dépôt sec. La paramétrisation du dépôt sec s'effectue à partir de la modélisation du flux turbulent k_z et de celle de la vitesse v_d . Le code dispose de deux paramétrisations de la couche limite avec des représentations différentes de k_z : le modèle de Louis [26] et le modèle de Troën-Mahrt [27]. Ces schémas sont tous deux des schémas diffusifs assurant le mélange non local par l'intermédiaire d'un terme de contregradient constant dans le cas du schéma de Louis, et variant avec la hauteur de la couche limite dans le cas de Troën-Mahrt.

Les vitesses de dépôt sec sont choisies comme suit :

- vitesse de dépôt prise constante et égale à 0,2 cm/s pour le césium et l'iode ;
- vitesse de dépôt prise constante et égale à 0,1 cm/s pour le césium et 0,2 cm/s pour l'iode afin de conduire un test de sensibilité.

Paramétrisation du lessivage humide

Le lessivage humide est donné par l'équation suivante :

$$\frac{dc}{dt} = -\Lambda c \quad (4)$$

où Λ est le coefficient de lessivage. On distingue deux types de lessivage : le lessivage dans le nuage (*in-cloud scavenging*), correspondant entre autres à l'activation des aérosols, et le lessivage par la pluie (*washout* ou *below-cloud scavenging*), correspondant à la capture par les gouttelettes de pluie des produits radioactifs.

La modélisation du lessivage par la pluie est souvent considérée comme

une fonction de l'intensité de la pluie. La loi utilisée est $\Lambda = A p^B$. A et B sont des constantes résultant d'hypothèses sur les granulométries de la pluie et des aérosols, p est la précipitation par unité de temps exprimée en mm/h.

De nombreuses études donnent $A = 8 \cdot 10^{-5}$ et $B = 0,8$. Brandt [20] préconise d'utiliser une modélisation basée sur l'humidité relative de l'air. Cette approche permet notamment de ne pas avoir à estimer l'intensité de la pluie et de modéliser le lessivage par la pluie et par le nuage.

La formulation adoptée est la suivante :

$$\Lambda = A \frac{RH - RH_t}{RH_s - RH_t} \quad (5)$$

RH représente l'humidité relative, RH_t une valeur seuil (fixée ici à 80 %), RH_s la valeur à saturation (100 %). A est fixé à $3,5 \cdot 10^{-5}$. Cette paramétrisation a été implémentée spécifiquement dans le code pour effectuer les calculs de dispersion.

Résultats

1 680 simulations de dispersion ont été réalisées à partir de ces différentes paramétrisations physiques de la dispersion, des différents rejets et des simulations météorologiques retenues.

Les activités volumiques calculées sont ensuite comparées aux mesures faites en Europe et plus particulièrement en France. Deux bases de données sont utilisées pour les comparaisons : la base REM (*Radioactive Environmental Monitoring*) des activités volumiques en Europe, et la base de données IRSN. Les comparaisons à l'échelle européenne donnent une corrélation moyenne pour l'ensemble des simulations de 0,2, la meilleure corrélation obtenue étant de 0,46. De plus, le biais est systématiquement négatif (les simulations présentent des concentrations plus faibles que les mesures) avec une valeur moyenne de $-0,60 \text{ Bq/m}^3$, relativement faible au regard des valeurs de concentration observées sur l'ensemble de l'Europe.

Les comparaisons sur la France sont faites sur la base des mesures collectées sur les filtres du SCPRI et mesurées de nouveau par l'OPRI en 2002, complétées par les mesures des stations voisines des frontières provenant de la base de données REM. Cette base de mesures de concentration contient 33 stations françaises et 30 stations frontalières. La majorité des mesures correspondantes sont intégrées par jour pendant le passage de la contamination sur la France.

Pour ce réseau d'observation, la corrélation maximale vaut 0,57 pour un biais absolu de $-0,04 \text{ Bq/m}^3$. La **figure 5** illustre la cinétique de l'activité volumique mesurée et calculée en Cs-137 pour quelques stations en France pour cette simulation. Cette figure montre que, dans l'ensemble, la dynamique du passage du panache radioactif est relativement bien reproduite par le modèle de dispersion.

On remarque également que la simulation numérique est en avance par rapport aux mesures, c'est-à-dire que la contamination calculée arrive globalement plus tôt que celle mesurée. L'avance du calcul sur la mesure est de l'ordre de 18 à 21 heures. Ce décalage temporel provient des simulations météorologiques, qui n'ont vraisemblablement pas tout à fait la bonne dynamique, des incertitudes sur le rejet et de la modélisation de la dispersion qui introduit une diffusion numérique.

En retardant de manière artificielle le temps d'arrivée du panache en France de 21 heures, la corrélation moyenne sur l'ensemble des stations précédemment citées s'établit à 0,76 avec un biais égal à $-0,06 \text{ Bq/m}^3$.

Conclusion

L'IRSN a entrepris de faire évoluer de manière importante ses outils de dispersion atmosphérique de polluants radioactifs, permettant d'améliorer le réalisme de ses évaluations.

Le développement des modèles pX et IdX se poursuivra au cours des années à venir afin d'intégrer progressivement de nouvelles modélisations. En complément, les travaux engagés sur les méthodes d'inversion et d'assimilation de données permettront d'améliorer les évaluations et contribueront aux travaux engagés sur les stratégies de mesure (positionnement de réseaux de mesure ou mesures sur le terrain).

Un certain nombre de domaines demandent des développements complémentaires. Il s'agit notamment de la modélisation à très courte distance (inférieure à 500 mètres) et d'une façon générale du comportement des aérosols radioactifs dans l'atmosphère.

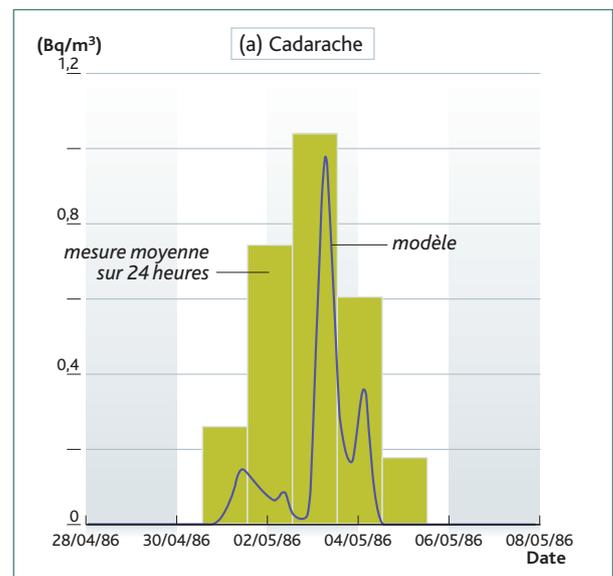


Figure 5a

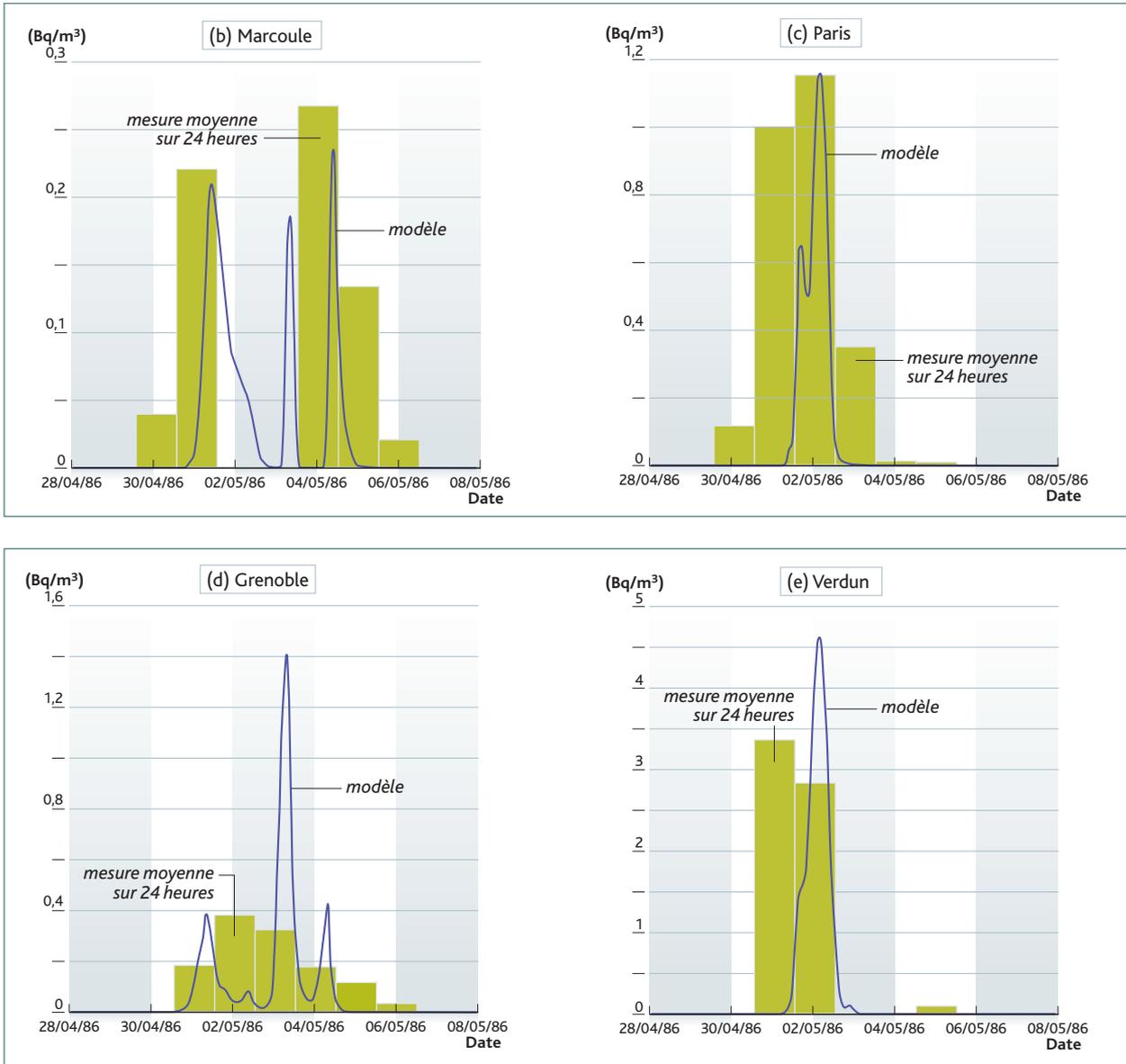


Figure 5a, b, c, d, e : Dynamique temporelle des activités volumiques en Bq/m³ (ordonnée) sur cinq stations en France – comparaison mesures/calculs – moyenne sur 24 heures.

Références

- [1] ISNARD, O., « C³X une nouvelle plateforme d'évaluation des conséquences d'un rejet atmosphérique », IRSN, Note technique DEI/SESUC/06-41, 2006.
- [2] SEINFELD, J. H., PANDIS, S. N., « Atmospheric Chemistry and Physics », from *Air Pollution to Climate Change*, John Wiley & Sons, 1998.
- [3] HANNA, S., BRIGGS, G., HOSKER, R. *Handbook on Atmospheric Diffusion*, US Department of Energy, Oak Ridge, TN, 1982.
- [4] REYNOLDS, A. M., « Representation on internal Plume Structure in Gifford's Meandering Plume Model », *Atmospheric Environment* 34, pp 2539-2545, 2000.
- [5] DE JAAN, P., ROTACH, M. W., « A Novel Approach to Atmospheric Dispersion Modelling: The Puff-Particle Model (PPM) », *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.* 124, pp 2771-2792, 1998.
- [6] LUHAR, A. K., HIBBERD, M. F., BORGAS, M. S., « A Skewed Meandering Plume Model for the Concentration Statistics in the Convective Boundary Layer », *Atmospheric Environment* 34, pp 3599-3616, 2000.
- [7] TURNER, D., *Workbook of Atmospheric Diffusion Estimates*, Second Ed., Lewis, Pub, CRC Press, 1994.
- [8] MÉJEAN, P., « Dispersion atmosphérique sur le site de la centrale EdF du Bugey – Essais en soufflerie », Rapport LMFA, Lyon, 2008.
- [9] TARANTOLA, A., *Inverse Problem Theory*, Elsevier, 1987.
- [10] ISNARD, O., KRZYSTA, M., BOCQUET, M., DUBIAU, P., SPORTISSE, B., « Data Assimilation of Radionuclides Atmospheric Dispersion at Small Scale: A Tool to Assess the Consequences of Radiological Emergencies. Monitoring, Assessments and Uncertainties for Nuclear and Radiological Emergency Response », Rio de Janeiro, Brazil, 2005.
- [11] DALEY, R., *Atmospheric Data Analysis*, Cambridge University Press, 1991.
- [12] THACKER, W. C., LONG, R. B., « Fitting Dynamics to Data », *Journal of Geophysical Research (C2)*, pp 1227-1240, 1988.
- [13] SPORTISSE, B., QUÉLO, D., « Data Assimilation and Inverse Modelling of Atmospheric Chemistry », *Journal of Indian National Science Academy* (special issue on « Advances in Atmospheric and Oceanic Sciences »), 69, 661-668, 2003.
- [14] ROBERTSON, L., PERRSON, L., « Attempts to Apply Four Dimension Data Assimilation of Radiological Data Using Adjoint Technique », *Radiation Protection Dosimetry*, 50(2-3): pp 333-337, 1993.
- [15] ROJAS-PALMA, C., MADSEN, H., GERING, F., PUCH, R., TURCANU, C., ASTRUP, P., MULLER, H., RICHTER, K., ZHELEZNYAK, M., TREEBUSHNY, D., KOLOMEEV, M., WYNN, H., « Data Assimilation in the Decision Support System RODOS », *Radiation Protection Dosimetry*, 104(1): pp 31-40, 2003.
- [16] KRZYSTA, M., BOCQUET, M., SPORTISSE, B., ISNARD, O., « Data Assimilation for Short-Range Dispersion of Radionuclides: An Application to Wind Tunnel Data », soumis à *Atmospheric Environment*, 2006.
- [17] BOUTAHAR, J., LACOUR, S., MALLET, V., QUÉLO, D., ROUSTANT, Y., SPORTISSE, B., « Development and Validation of a Fully Modular Platform for Numerical Modelling of Air Pollution: POLAIR », *Int. J. Environment and Pollution*, 22(1/2): pp 17-28, 2004.
- [18] WAIGHT, P., MÉTIVIER, H., JACOB, P., SOULCHKEVITCH, G., VIKTORSSON, C., BENNETT, B., HANCE, R., KUMAZAWA, S., KUSUMI, S., BOUVILLE, A., SINNAEVE, J., ILARI, O., LAZO, E., « Chernobyl Ten Years On. Radiological and Health Impact. An Assessment by the NEA Committee on Radiation Protection and Public Health », OECD Nuclear Agency, 1995.
- [19] DEVELL, L., GÜNTAY, S., POWERS, D. A., « The Chernobyl Reactor Accident Source Term: Development of a Consensus View », CSNI Report, OECD/NEA, 1995.
- [20] BRANDT, J., CHRISTENSEN, J. H., FROHN, M., « Modelling Transport and Deposition of Caesium and Iodine from Chernobyl Accident Using the DREAM model », *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2: pp 825-874, 2002.
- [21] HASS, H., MEMMESHEIMER, M., GEISS, H., JACOBS, H. J., LAUBE, M., EBEL, A., « Simulation of the Chernobyl Radioactive Cloud over Europe using the EURAD Model », *Atmospheric Environment*, 24A: pp 673-692, 1990.
- [22] GRELL, G., DUDHIA, J., STAUFFER, D., « A Description of the Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5) », Technical Note NCAR/TN-398+STR: p. 117, 1994.
- [23] CLARK, M. J., SMITH, F. B., « Wet and Dry Deposition of Chernobyl Releases », *Nature*, 332(17), 1988.
- [24] CHAMBERLAIN, A. C., *Radioactive Aerosols*, Cambridge University Press, 1991.
- [25] KLUG, W., GRAZIANI, G., GRIPPA, G., PIERCE, D., TASSONE, C., « Evaluation of Long Range Atmospheric Transport Models Using Environmental Radioactivity Data from the Chernobyl Accident », *The ATMES Report*, London and New York, Elsevier Applied Science, 1992.
- [26] LOUIS, J. F., « A Parametric Model of Vertical Eddy Fluxes in the Atmosphere », *Boundary Layer Meteorology*, 17: pp 187-202, 1979.
- [27] TROEN, I., MAHRT, L., « A Simple Model of the Atmospheric Boundary Layer; Sensitivity to Surface Evaporation », *Boundary Layer Meteorology*, 37: pp 129-148, 1986.

1.2

Étude du dépôt sec des aérosols dans l'environnement : expérimentation et modélisation mécaniste

Denis MARO,
Olivier CONNAN,
Pierre GERMAIN,
Didier HÉBERT,
Marianne ROZET
Laboratoire de radioécologie
Marc-André GONZE
Laboratoire de modélisation
environnementale

L'atmosphère est une importante voie de transfert des éléments polluants chimiques, radioactifs et bactériologiques rejetés depuis une industrie à l'état gazeux ou particulaire, vers l'environnement et vers l'homme. La dispersion atmosphérique des polluants met en jeu des phénomènes physiques comme le transport et la diffusion, auxquels viennent s'ajouter les mécanismes de dépôts sec ou humide sur les couverts terrestres.

L'étude des dépôts sec et humide des aérosols reste un domaine de recherche encore ouvert et qui implique une approche expérimentale *in situ* afin d'améliorer la prévision du flux de dépôt sur les couverts végétaux par les modèles.

Le dépôt sec d'aérosols est caractérisé par une grandeur appelée « vitesse de dépôt sec », ayant comme son nom l'indique la dimension d'une vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$). Il s'agit du rapport de la densité de flux de dépôt sec ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) à la concentration atmosphérique au voisinage du substrat ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). La vitesse de dépôt sec est fonction de nombreux paramètres, comme la taille des aérosols, les conditions micro-météorologiques ou les caractéristiques morphologiques du couvert. La gamme de tailles des aérosols s'étend sur quatre ordres de grandeur, depuis les aérosols submicroniques jusqu'aux particules biotiques de l'ordre de 100 μm .

À ce jour, il existe différents modèles de dépôt sec qui prennent en compte des effets liés à la turbulence, à la nature du couvert végétal et à la dimension des particules, et ce pour une large gamme de diamètres compris entre 10 nm et 100 μm [1 ; 2 ; 3 ; 4 ; 5].

Dans le cas de particules de diamètres supérieurs à 0,1 μm , les prédictions de ces modèles peuvent être comparés avec des résultats expérimentaux. Néanmoins, cette comparaison n'est pas toujours aisée du fait de la dispersion sur plusieurs ordres de grandeur des résultats existants et du manque d'information sur certaines conditions expérimentales. Dans le cas de particules de diamètres inférieurs à 0,1 μm , il existe très peu de données expérimentales utilisables pour la validation [6 ; 7], en raison notamment du caractère polydispersé des aérosols. Ces incertitudes importantes, jusqu'à deux décades, se retrouvent également dans les prévisions fournies par les différents modèles (*figure 1*).

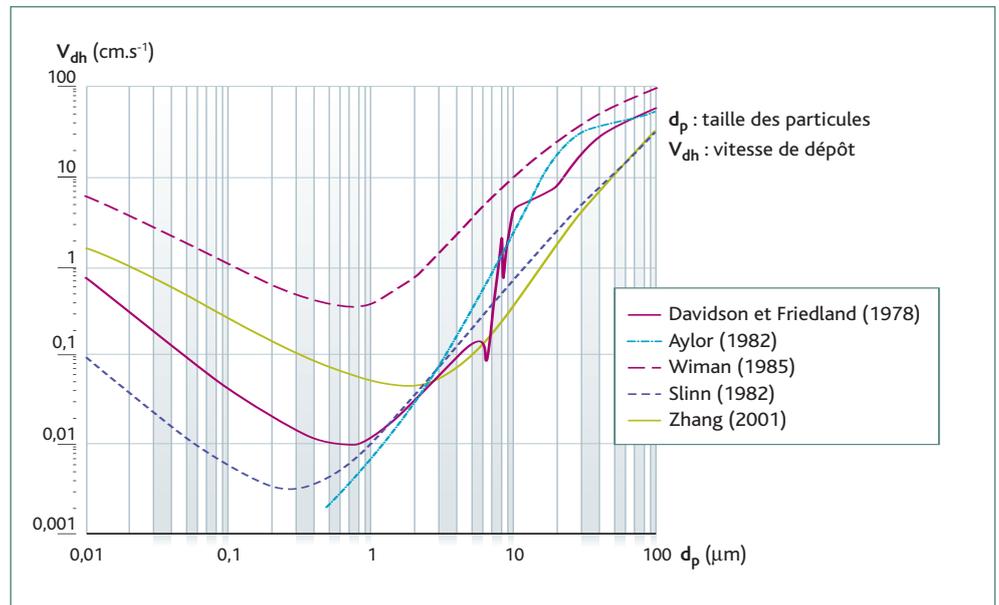


Figure 1 : Comparaison des résultats de cinq modèles de dépôt sec pour un champ d'avoine [7].

L'objectif final des travaux menés par l'IRSN est d'approfondir la connaissance des mécanismes impliqués dans le dépôt sec, mais aussi de développer un modèle prédictif utilisable pour des rejets de routine ou en situation accidentelle, validé pour une large gamme granulométrique (10 nanomètres à 100 micromètres), pour différents types de surfaces continentales – tels prairie, cultures, couverts arbustifs et forestiers – et différentes conditions micro-météorologiques, comme la vitesse de frottement ou la stabilité atmosphérique.

Dans un premier temps, deux actions ont été engagées : l'une concerne le domaine expérimental, avec l'étude du dépôt sec des aérosols sur une prairie, l'autre le domaine de la modélisation mécaniste.

Étude expérimentale des vitesses de dépôt sec des aérosols sur une prairie

Contexte – objectif

Les travaux expérimentaux menés ont pour objectif de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols sur une prairie en fonction de leur granulométrie et des conditions micro-météorologiques. Pour cela, des séries d'expériences sont réalisées en utilisant des aérosols de fluorescéine (sel de sodium) comme traceur du dépôt. Cette première partie de l'étude propose des mesures expérimentales pour accéder aux vitesses de dépôt sec d'aérosols fins monodispersés, d'une granulométrie de 0,2 μm. Cette valeur granulométrique a été choisie pour une première approche car elle est représentative des aérosols atmosphériques, mais aussi parce qu'elle correspond au minimum d'efficacité pour de nombreux filtres utilisés dans l'industrie [8].

De plus, comme il est établi que les vitesses de dépôt sont minimales pour les aérosols de tailles comprises entre 0,1 et 1 μm, les résultats obtenus donneront les valeurs « basses » à prendre en compte dans les modèles opérationnels. Dans ce type de modèle, une valeur unique de vitesse de dépôt sec de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ est souvent utilisée.

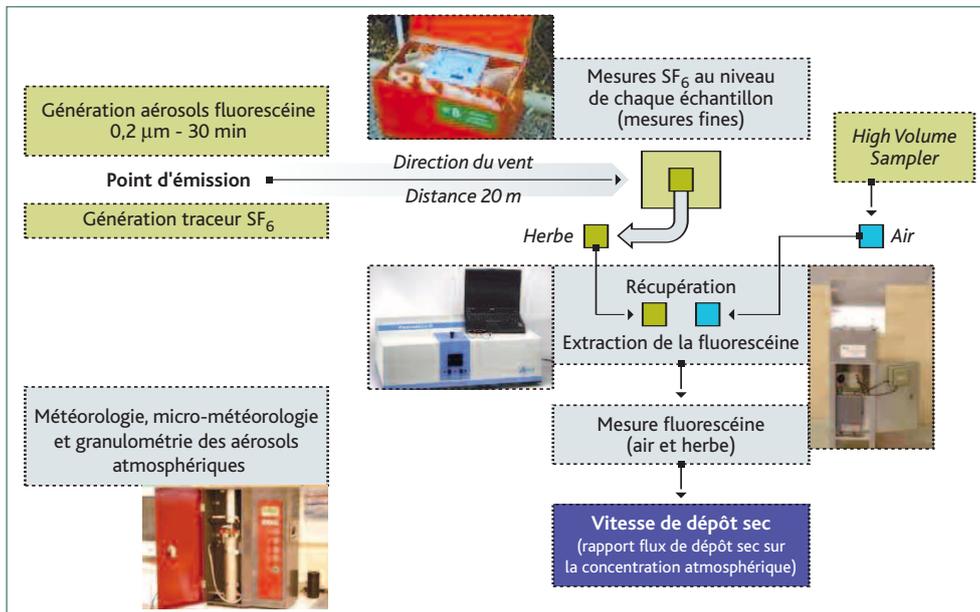


Figure 2 : Schéma de principe des campagnes de mesure des vitesses de dépôt sec à l'aide d'aérosols de fluorescéine.

Technique mise au point

Principe

La technique mise au point permet de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols à partir de fluorescéine (uranine) émise sous forme d'aérosols secs. Sa concentration est mesurée dans l'air et sur l'herbe. Les aérosols sont générés pour une granulométrie donnée, et un gaz traceur, le SF₆, est émis simultanément afin d'acquies les paramètres de la dispersion d'un panache à chaque endroit où la fluorescéine est mesurée sur l'herbe. Cette méthode permet de pallier le manque de prélèvements, donc de mesures systématiques d'aérosols de fluorescéine dans l'air, où seulement deux mesures sont effectuées par expérience. Des mesures micro-météorologiques sont effectuées à l'endroit même de la fabrication de l'aérosol. Le schéma de la *figure 2* illustre le protocole.

Émission des aérosols et du gaz traceur SF₆

Les aérosols sont émis en utilisant un générateur de fluorescéine. Les différents modules de pulvérisation d'air, de dilution et de séchage sont réglés afin d'obtenir un diamètre aérodynamique médian en masse des particules produites proche de 0,20 µm. Les aérosols de fluorescéine sont produits sur une période de 60 minutes. L'appareil a été étalonné (Afnor NFX 44-011) et le diamètre aérodynamique médian en masse des particules obtenu est de 0,24 µm (écart type géométrique 1,7). Simultanément à l'émission de fluorescéine (30 mg.h⁻¹), du SF₆ est émis comme gaz traceur. Ce gaz est exclusivement d'origine anthropogénique et n'est donc pas présent dans l'atmosphère. Le système utilisé est composé d'une bouteille de SF₆ (Messer, France) connectée à un débitmètre massique (Sierra 820). L'aérosol de fluo-

rescéine et le SF₆ sont émis conjointement dans une canne prévue à cet effet. Le débit de génération du SF₆ est fixé à 0,4 g.s⁻¹.

Prélèvements et mesures des aérosols de fluorescéine

Les aérosols de fluorescéine sont prélevés de part et d'autre de l'axe du vent selon deux radiales R1 et R2, à des distances de 10 à 30 m (*figure 3*). Ces aérosols présents dans l'air sont collectés *via* des HVS (*High Volume Sampler*), avec un débit de 30 m³.h⁻¹. Des carrés d'herbe de 2 500 cm² sont utilisés comme substrats afin de déterminer la concentration des aérosols déposés.

Ces carrés d'herbe sont découpés la veille sur le site et maintenus dans un endroit sec jusqu'au début de l'expérience afin d'éviter la rétention d'aérosols par l'eau susceptible d'être présente sur les brins d'herbe. À l'issue de l'expérience, l'herbe est coupée, puis stockée à l'abri de la lumière et à température ambiante, avant d'être analysée par fluorescence dans les heures suivantes.

Le dosage de la fluorescéine est effectué à l'aide d'un spectrophotomètre 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. Pour la mesure de la concentration de fluorescéine dans l'air, les filtres sont coupés et immergés dans une solution d'eau ammoniacuée à pH=9 sous agitation mécanique durant 20 minutes. Pour l'herbe, le même protocole est utilisé avec une agitation manuelle afin de ne pas détruire les fragments d'herbe. Avant la mesure, les solutions sont filtrées à 0,2 µm.

Prélèvements et mesures du gaz traceur SF₆

Les prélèvements d'air sont effectués dans des sacs en Tedlar® à l'aide de systèmes spécifiques (DIAPEG) qui permettent un prélèvement

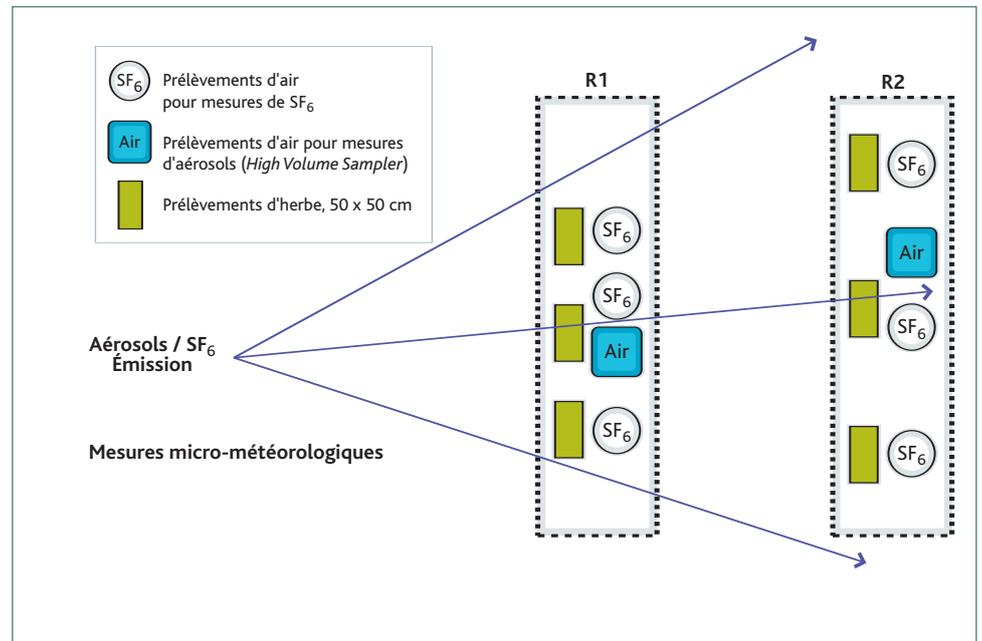


Figure 3 : Schéma de principe du positionnement des prélèvements d'herbe, d'aérosols et d'air.

intégré dans le temps durant la production des aérosols de fluorescéine. Les analyses de SF₆ sont ensuite effectuées par chromatographie en phase gazeuse (AUTOTRAC, Lagus Applied Technology, Inc.).

Acquisition de données météorologiques

Les données micro-météorologiques sont obtenues à partir de deux anémomètres ultrasoniques (Gill Research et YOUNG 81000) placés sur le site d'expérimentation. L'un est installé à proximité immédiate du générateur de fluorescéine et le second est fixé à un mât télescopique de 10 m. À partir des données mesurées, plusieurs paramètres sont calculés afin de caractériser le site, principalement la vitesse de friction U* (m.s⁻¹), la longueur de Monin-Obukhov (m) et la longueur de rugosité Z₀ (cm).

Résultats et discussion

La technique mise au point a été appliquée pendant l'année 2005 (figure 4) lors de campagnes de terrain sur une prairie près de l'usine de retraitement des combustibles usés Areva NC La Hague (Nord-Ouest de la France).

Les vitesses de dépôt sec ont été déterminées sur de l'herbe pour diverses conditions micro-météorologiques. Les vitesses horizontales du vent varient entre 1,3 et 1,5 m.s⁻¹. La condition de stabilité atmosphérique rencontrée est le neutre (classe D de Pasquill) (tableau 1).

Les vitesses moyennes de dépôt sec sur cette première série d'expériences varient de 9 . 10⁻⁴ à 2 . 10⁻³ m.s⁻¹ (tableau 2) pour un substrat de type prairie. La comparaison avec les modèles de Slinn [3], Zhang

et al. [5] et Wesely et al. [9] indique que le modèle de Slinn sous-estime les vitesses de dépôt d'un facteur 5 à 20, les modèles de Zhang et Wesely représentant mieux les mesures expérimentales, avec des écarts mesures/modèles généralement inférieurs à 2 (tableau 3).

À l'avenir, il est prévu de compléter l'étude pour d'autres conditions micro-météorologiques et d'autres granulométries.



Figure 4 : Campagne expérimentale menée autour de l'usine de retraitement des combustibles usés Areva NC La Hague.

Tableau 1

Conditions micro-météorologiques rencontrées lors des premières campagnes					
Date	Vitesse horizontale du vent (m.s ⁻¹)	Inverse de la longueur de Monin-Obukhov (m ⁻¹)	Longueur de rugosité (cm)	Vitesse frottement (m.s ⁻¹)	Classe de stabilité selon Pasquill
09/09/05	1,5	- 0,002	5,7	0,21	D
28/09/05	1,3	- 0,003	27,0	0,40	D
11/10/05	1,3	- 0,003	17,5	0,30	D
11/10/05	1,4	- 0,003	30,8	0,48	D

Tableau 2

Résultats des mesures de vitesse de dépôt sec obtenus lors des premières campagnes (R : radiale)	
Date : n° expérience	Vitesse de dépôt sec (V _d) (m.s ⁻¹)
09/09/05 : 1 (R1)	2 . 10 ⁻³ ± 3 . 10 ⁻⁴
09/09/05 : 1 (R2)	1 . 10 ⁻³ ± 7 . 10 ⁻⁴
28/09/05 : 2 (R1)	1 . 10 ⁻³ ± 9 . 10 ⁻⁵
28/09/05 : 2 (R2)	2 . 10 ⁻³ ± 1 . 10 ⁻⁴
11/10/05 : 3 (R1)	1 . 10 ⁻³ ± 2 . 10 ⁻⁴
11/10/05 : 3 (R2)	9 . 10 ⁻⁴ ± 3 . 10 ⁻⁵
11/10/05 : 4 (R1)	1 . 10 ⁻³ ± 2 . 10 ⁻⁴
11/10/05 : 4 (R2)	1 . 10 ⁻³ ± 6 . 10 ⁻⁴

Tableau 3

Comparaison entre les résultats obtenus lors des campagnes expérimentales avec les modèles couramment utilisés dans la littérature pour les vitesses de dépôt sec (V _d) (Les rapports mesures sur modèles sont entre parenthèses)				
Date	V _d (m.s ⁻¹)	V _d Slinn (m.s ⁻¹)	V _d Zhang et al. (m.s ⁻¹)	V _d Wesely et al. (m.s ⁻¹)
09/09/05	1 . 10 ⁻³ – 2 . 10 ⁻³	9 . 10 ⁻⁵ (11 – 22)	1 . 10 ⁻³ (1 – 2)	4 . 10 ⁻⁴ (2,5 – 5)
28/09/05	1 . 10 ⁻³ – 2 . 10 ⁻³	2 . 10 ⁻⁴ (5 – 10)	3 . 10 ⁻³ (0,3 – 0,6)	8 . 10 ⁻⁴ (1,3 – 2,5)
11/10/05	9 . 10 ⁻⁴ – 1 . 10 ⁻³	1 . 10 ⁻⁴ (9 – 10)	2 . 10 ⁻³ (0,5)	6 . 10 ⁻⁴ (1,5 – 1,7)
11/10/05	1 . 10 ⁻³	2 . 10 ⁻⁴ (5)	3 . 10 ⁻³ (0,3)	9 . 10 ⁻⁴ (1,1)

Étude mécaniste du dépôt sec d'aérosols sur couverts végétaux

Contexte – objectif

L'étude mécaniste du dépôt sec des aérosols sur les couverts végétaux qui a été engagée dans le cadre d'un travail de thèse [7] vise à promouvoir une meilleure compréhension des différents mécanismes impliqués dans le dépôt sec d'aérosols atmosphériques, radioactifs notamment, sur des couverts végétaux.

L'objectif final est d'améliorer la prévision de la vitesse de dépôt en tenant compte des caractéristiques morphologiques du couvert végétal, des caractéristiques de l'écoulement atmosphérique porteur et des caractéristiques de l'aérosol. Une attention soutenue est donnée à la gamme dite d'accumulation (0,08-2 µm), sur laquelle les radionucléides se fixent préférentiellement et peuvent être ainsi transportés sur de longues distances, comme cela a été le cas pour l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl.

Analyse bibliographique sur les résultats existants

Une analyse bibliographique de la détermination des vitesses de dépôt sec à l'échelle du couvert végétal (*in situ*) ou à l'échelle du rameau (en soufflerie) montre la cohérence d'ensemble des résultats malgré leur inévitable variabilité, plus particulièrement prononcée pour les couverts forestiers ou dans la gamme d'accumulation.

Il ressort en effet que l'évolution de la vitesse de dépôt sec est étroitement liée à l'inertie des particules, à la vitesse de friction de l'écoulement porteur turbulent et aux caractéristiques des éléments foliaires. Par ailleurs, une revue critique des modèles mécanistes existants met en évidence une très grande variété des expressions proposées pour la captation à l'échelle du couvert, notamment en ce qui concerne les mécanismes de diffusion et d'impaction inertielle. Une intercomparaison sur deux cas de figure tranchés (culture basse et forêt de conifères) illustre de façon frappante les grands écarts observés entre ces modèles, pouvant atteindre jusqu'à deux ordres de grandeur pour certaines classes de diamètre.

Développement d'une approche mécaniste

Cette approche s'attache tout d'abord à la description d'un modèle de couvert végétal générique qui tient compte à la fois de la forme des éléments foliaires et de leur orientation dans l'espace (feuilles et aiguilles). Ce type de méthode, qui repose sur la construction d'une statistique foliaire en nombre par rapport aux paramètres de taille et d'orientation, est couramment utilisé pour la modélisation des transferts radiatifs. Les principales caractéristiques de l'écoulement atmosphérique turbulent, au voisinage et au sein d'un couvert végétal et mesurées *in situ* ou déduites par approximation des équations simplifiées de la mécanique de fluides (avec une fermeture du premier ordre), sont ensuite analysées.

1.2

À partir de cette analyse, il est proposé un modèle d'écoulement simplifié prenant en compte la variation verticale de la vitesse du vent et de la diffusivité turbulente.

L'équation de transport pour une population d'aérosols dans un couvert végétal est établie en considérant d'une part la présence des obstacles végétaux, d'autre part l'inertie des particules. Cette équation, qui introduit de façon explicite les termes d'interaction entre les surfaces végétales et les aérosols, permet de prévoir, moyennant la paramétrisation mathématique de ces interactions, l'évolution spatio-temporelle des concentrations d'aérosols à l'échelle macroscopique d'un volume représentatif. L'approche proposée pour modéliser ces

interactions repose sur une méthode d'*upscaling* (changement d'échelle), où on déduit un taux de captation macroscopique à partir (i) du taux de captation élémentaire sur les éléments végétaux pris individuellement et (ii) des caractéristiques statistiques de la structure du couvert végétal. Chacun des processus de captation – diffusion brownienne, impaction inertielle, sédimentation, impaction turbulente et interception – fait ensuite l'objet d'une paramétrisation dans laquelle interviennent les nombres adimensionnels caractéristiques du problème (Reynolds, Schmidt turbulent, Stokes, Sherwood, etc.). Cette approche originale nécessite des hypothèses classiques généralement acceptées, comme l'indépendance des différents mécanismes de captation qui

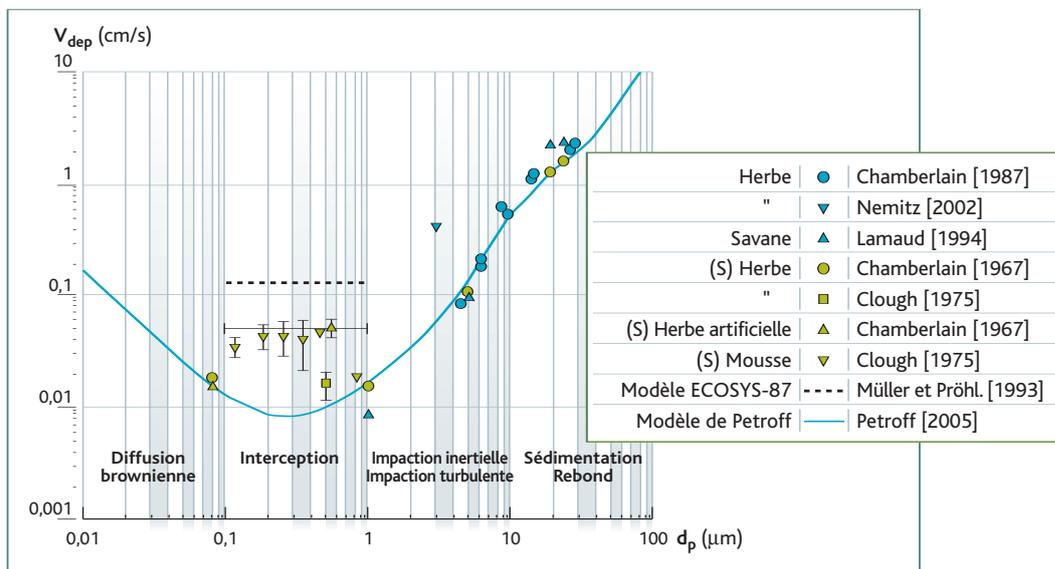


Figure 5 : Comparaison modèles-mesures des vitesses de dépôt sec sur prairie en fonction de la taille des particules d'aérosols.

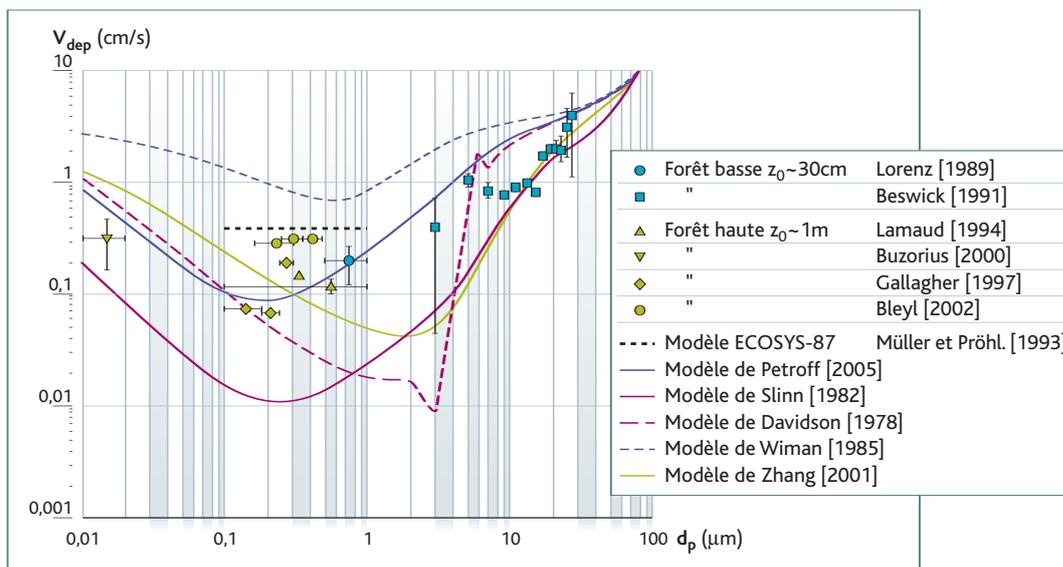


Figure 6 : Comparaison modèles-mesures des vitesses de dépôt sec sur couvert forestier de type épineux en fonction de la taille des particules d'aérosols.

permet leur addition, le repeuplement quasi-instantané du milieu fluide par les aérosols entre les éléments végétaux et/ou l'absence de perturbations induites par les sillages aérodynamiques des éléments végétaux.

Éléments de validation

La qualité des prévisions, les limites du modèle ainsi que sa sensibilité aux paramètres fondamentaux, sont enfin déterminées. Les tests effectués dans la situation simple de rameaux exposés à un flux d'aérosols dans une soufflerie démontrent que le modèle prend correctement en compte l'ensemble des processus, à l'exception de l'interception qui est surestimée. Dans les conditions plus globales d'un couvert entier (trois campagnes expérimentales), le modèle – indiqué « modèle de Petroff » sur les **figures 5 et 6** – restitue correctement les vitesses de dépôt obtenues expérimentalement par différents auteurs, dès lors que les informations concernant le couvert et la granulométrie des aérosols sont accessibles et caractérisées de manière suffisamment précise. Par ailleurs, ce modèle devrait à terme être confronté aux résultats expérimentaux obtenus dans une prairie (voir paragraphe « Étude expérimentale des vitesses de dépôt sec des aérosols sur une prairie »).

Conclusion

Les études engagées par l'IRSN au niveau expérimental, ainsi qu'à celui de la modélisation mécaniste, visent à améliorer les connais-

sances sur les processus de dépôt sec de l'échelle de la feuille à celle du couvert végétal (prairie, forêt, etc.). La complémentarité des deux approches conduites pour l'étude de ces processus doit permettre de mieux cibler les paramètres fondamentaux à prendre en compte (stabilité atmosphérique, longueur de rugosité, etc.) dans les modèles opérationnels qui peuvent être, par exemple, utilisables en cas de crise. En effet, il serait souhaitable de reconsidérer la valeur unique de vitesse de dépôt sec qui est souvent utilisée dans ce type de modèle. Car en situation de crise, selon le type d'accident, les granulométries des aérosols susceptibles d'être émis dans l'environnement seront soit de grosses particules (explosion), soit des particules ultrafines (conversion gaz-particule). Qui plus est, ces dernières pourront être transportées sur de longues distances suite à des phénomènes de coagulation sur les aérosols atmosphériques dont la granulométrie est proche de 0,2 µm, comme cela a été le cas pour les explosions nucléaires atmosphériques ou l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl.

De plus, les expérimentations menées *in situ* permettront une validation globale de ces modèles. Compte tenu des incertitudes de deux ordres de grandeur sur la quantification du dépôt sec par les principaux modèles utilisés à travers le monde, les premiers résultats présentés ci-dessus ont montré qu'il était nécessaire d'établir des vitesses de dépôt sec de référence sur différents couverts en fonction de la granulométrie des aérosols et des conditions micro-météorologiques. Les travaux à venir devront nous permettre de relever ce défi.

Références

- [1] AYLOR, D., « Modeling Spore Liberated in a Barley Crop », *Agricultural Meteorology*, 26, 215-219, 1982.
- [2] DAVIDSON, C., FRIEDLANDER, S., « A Filtration Model for Aerosol Dry Deposition: Application to Trace Metal Deposition from the Atmosphere », *Journal of Geophysical Research*, 83, 2343-2352, 1998.
- [3] SLINN, W. G. N., « Predictions for Particle Deposition to Vegetative Canopies », *Atmospheric Environment*, 16, 1785-1794, 1982.
- [4] WIMAN, B., AGREN, G., « Aerosol Depletion and Deposition in Forests: A Model Analysis », *Atmospheric Environment*, 19, 335-347, 1985.
- [5] ZHANG, L., GONG, S., PADRO, J., BARRIE, L., « A Size-Segregated Particle Dry Deposition Scheme for an Atmospheric Aerosol Module », *Atmospheric Environment*, 35, 549-560, 2001.
- [6] PAL ARYA, S., *Air pollution meteorology and dispersion*, Oxford University Press, New York, 233-234, 310p., 1999.
- [7] PETROFF, A., « Étude mécaniste du dépôt sec d'aérosols sur les couverts végétaux », thèse présentée pour obtenir le titre de docteur de l'Université Aix-Marseille II, 229p., 2005.
- [8] BOULAUD, D., RENOUX, A., *Les aérosols, physique et métrologie*, Lavoisier TEC DOC, Paris, 291p., 1998.
- [9] WESELY, M. L., COOK, D. R., HART, R. L., SPEER, R. E., « Measurements and Parametrization of Particle Sulfur Deposition over Grass », *Journal of Geophysical Research*, 90, 2131-2143, 1985.
- CHAMBERLAIN, A., « Transport of Lycopodium Spores and Other Small Particles to Rough Surfaces », *Proceeding of the Royal Society London*, 296A, 4570, 1967.
- NEMITZ, E., GALLAGHER, M., DUYZER, J., FOWLER, D., « Micrometeorological Measurements of Particle Deposition Velocities to Moorland Vegetation », *Quarterly Journal of the Royal Meteorological*, 2002.
- LAMAUD, E., « Mesure et paramétrisation des flux verticaux de l'aérosol atmosphérique », thèse de doctorat, Toulouse, 1994.
- CLOUGH, W., « The Deposit of Particles on Moss and Grass Surfaces », *Atmospheric Environment*, 9, 1113-1119, 1975.
- MULLER, H., PROHL, G., « Ecosys-87: A Dynamical Model Assessing Radiological Consequences of Nuclear Accidents », *Health Physic*, 64(3), 232-249, 1993.
- LORENZ, R., MURPHY, J., « Dry Deposition of Particles to a Pine Plantation », *Boundary Layer Meteorology*, 46, 355-366, 1989.
- BESWICK, K., HARGREAVES, K., GALLAGHER, M., CHOULARTON, T., FOWLER, D., « Size-Resolved Measurements of Clouds Droplet Deposition Velocity to a Canopy Using an Eddy Correlation Technique », *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 117, 623-645, 1991.
- BUZORIOUS, G., RANNIK, U., MAKELA, J., VESALA, T., KULMALA, M., « Vertical Aerosol Fluxes Measured by Eddy Covariance Method and Deposition of Nucleation Mode Particles Above a Scots Pine Forest in Southern Finland », *Journal of Geophysical Research*, 105, 19905-19916, 2000.
- GALLAGHER, M., BESWICK, K., DUYZER, J., WESTRATE, H., CHOULARTON, T., HUMMELSHO, P., « Measurements of Aerosol Fluxes to Spedler Forest Using a Micrometeorological Technique », *Atmospheric Environment*, 31, 359-373, 1997.
- BLEYL, M., « Experimentelle Bestimmung der Depositionsgeschwindigkeit Luftgetragener Partikel mit Hilfe der Eddy-Kovarianzmethode über einem Fichtenaltbestand im Solling », thèse de doctorat, Georg-August-Universität, Göttingen, 2001.

1.3

La station d'Arles sur le Rhône : une plate-forme technique pluridisciplinaire et multipartenaire pour l'observation du milieu aquatique

Le Rhône est le plus puissant des fleuves français et de l'Europe occidentale, avec un volume moyen annuel drainé de 54 milliards de m³ d'eau charriant huit millions de tonnes de matières en suspension. Le Rhône est également l'un des fleuves les plus « nucléarisés » au monde. Il reçoit les effluents radioactifs issus de plusieurs centres de recherche, de 14 réacteurs de puissance actuellement en fonctionnement et intègre jusqu'à ces dernières années l'ensemble des activités liées au cycle du combustible nucléaire [1]. Le Rhône draine également les eaux de ruissellement et de lessivage des sols d'un bassin versant de près de 100 000 km², sur lesquels se sont déposées des retombées radioactives des essais nucléaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl.

Un suivi des niveaux d'activité y a été réalisé dès 1964 à l'occasion de campagnes ponctuelles [2]. La décision d'équiper le Rhône d'une station pérenne remonte à la fin des années 1990. Un site présentant le meilleur compromis entre les contraintes hydrodynamiques et logistiques a été retenu au niveau de la ville d'Arles [3]. Une convention avec Voies navigables de France a permis l'aménagement de locaux et d'une prise d'eau à quelques kilomètres en aval de la diffluence entre le grand Rhône et le petit Rhône. La station se situe ainsi à la frontière entre le domaine fluvial et le domaine pouvant être influencé par des intrusions d'eau salée en provenance de la Méditerranée selon les conditions de vent et de débit.

(1) Observatoire permanent de la radioactivité de l'environnement.

(2) Le seuil de coupure entre particulaire et dissous est arbitrairement fixé à 0,5 µm.



Figure 1 : Prise d'eau de la station OPERA d'Arles – a : à l'étiage ; b : en situation de crue centennale ; c : en situation de crue exceptionnelle.



Figure 2 : Banc de filtration pour la discrétisation des épisodes de crue.

La mission de cette installation s'inscrit dans le cadre de l'observation des variations spatiales et temporelles des concentrations des différents éléments chimiques et radionucléides véhiculés par le fleuve sous formes solide, matières en suspension, sédiments de fond, et liquide. L'observation réalisée en Arles permet d'intégrer les apports diffus en radionucléides provenant de l'ensemble du bassin versant et d'établir un état radioécologique de référence propre au compartiment fluvial avant introduction dans le milieu marin. La mesure réactualisée selon une fréquence variable (de mensuelle à événementielle) permet la caractérisation radiologique détaillée des diverses situations hydrologiques rencontrées, l'évaluation des flux, de leur cinétique et de la répartition des radionucléides entre les fractions particulaire et dissoute.

En concertation et avec les concours financiers de l'Agence de l'eau Rhône-Méditerranée et/ou Corse et de la région PACA, cette station a d'emblée intégré une instrumentation parallèle à celle nécessaire à l'IRSN, dédiée à des prélèvements en vue de la détermination des polluants chimiques comme les nitrates, les phosphates, l'azote, les silicates, l'aluminium, les micropolluants organiques, etc.

Des solutions techniques performantes et originales

Cette station d'observation, rattachée au réseau OPERA⁽¹⁾ de l'IRSN, est opérationnelle depuis mars 2003. La station d'Arles constitue un outil original compte tenu des particularités de ses équipements et de ses méthodes de prélèvements. Entièrement automatisée et pilotable à distance depuis le site de Cadarache, elle réalise le pompage, l'échantillonnage, la filtration et la concentration de plusieurs centai-

nes de litres d'eau chaque mois. Sa prise d'eau articulée et flottante permet un pompage sous la surface indépendamment de la cote du Rhône, qui varie de plus de 6,5 m entre l'étiage et la crue. Comme le montrent les photos de la **figure 1**, l'ouvrage a résisté à la crue historique de décembre 2003, supérieure à 10 000 m³.s⁻¹ en Arles [4].

Deux locaux ont été aménagés : l'un pour répondre aux objectifs de l'IRSN et l'autre dédié aux travaux réalisés par le Centre d'Océanologie de Marseille, partenaire de l'IRSN en charge de l'étude des composés chimiques.

Différents piquages alimentent des postes de filtration et d'évaporation dédiés aux échantillons, qu'ils soient dissous⁽²⁾ ou particulaires. Deux cuves de stockage de 1 000 litres permettent la constitution de prélèvements supplémentaires.

Les études sur les flux de polluants particuliers indiquent que les flux journaliers lors des crues sont 100 à 10 000 fois plus élevés qu'en étiage et qu'à l'échelle d'une année hydrologique moyenne, jusqu'à 90 % du flux particulaire transite pendant les épisodes de crue représentant 2 à 20 % du temps [5 ; 6 ; 7].

Une ligne de prélèvements complémentaires à la ligne de prélèvements de routine a été réalisée pour permettre l'estimation précise du flux de radionucléides pendant ces événements extrêmes. L'activation de cette ligne « crue » intervient automatiquement en cas de dépassement d'un niveau donné du Rhône. Cette ligne comporte un banc de filtration en série équipé de cinq cartouches filtrantes à 0,5 µm, d'une autonomie totale de 40 heures, soit huit heures par cartouche (**figure 2**).

Ce dispositif permet de discrétiser l'évolution temporelle de la charge et, *a posteriori*, des niveaux d'activité associés aux particules (**figure 3**).

1.3

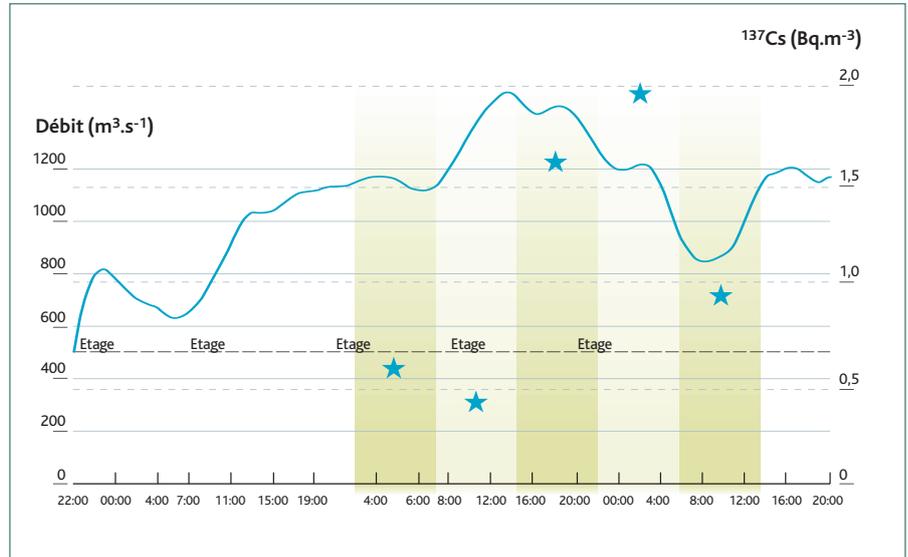


Figure 3 : Évolution du débit et discrétisation du niveau d'activité en ^{137}Cs durant l'épisode de crue des affluents de la rive droite du Rhône à l'aval de Valence, les 7 et 8 septembre 2005.

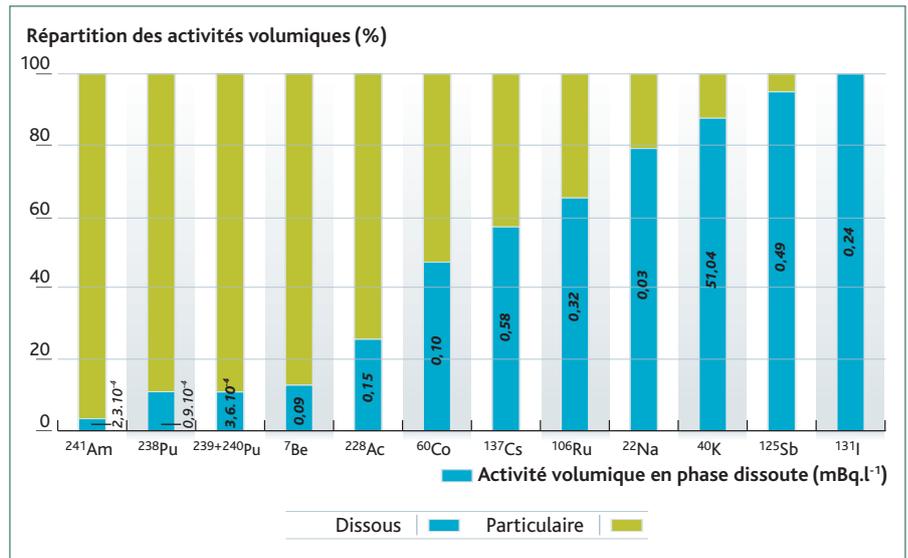


Figure 4 : Répartition des radionucléides entre les phases particulaire et dissoute à l'étiage, Rhône en Arles (d'après Masson O., 2004 ; [9]).

Une attention particulière est portée à la montée de crue, phase pendant laquelle les possibilités de remise en suspension des matériaux sédimentés sont maximales. Le banc peut être réarmé à la demande afin de poursuivre l'étude des crues d'une durée supérieure à 40 heures.

Pour les matières dissoutes, les flux journaliers lors des crues sont 10 à 100 fois plus élevés qu'en étiage. Néanmoins les conditions d'étiage représentent jusqu'à 30 % du temps d'une année et il importe donc de connaître les niveaux véhiculés en phase dissoute et en phase particulaire, même si la charge en MES⁽²⁾ est alors au plus bas. Afin d'améliorer encore sa capacité de suivi des radionucléides, la station est sur

le point d'être équipée d'un évaporateur sous vide permettant la concentration d'environ 15 m³ d'eau filtrée pour la constitution d'un échantillon concentré d'un volume réduit à environ un litre [8].

Cette capacité de concentration permettra la quantification des radionucléides artificiels sous forme dissoute, rarement voire jamais mesurés à l'heure actuelle compte tenu de leur présence à l'état de traces ou d'ultra-traces.

En effet, la capacité actuelle, de l'ordre du mètre cube, ne permet pas systématiquement, par exemple, la détermination du ^{137}Cs et, *a fortiori*, celle d'autres radionucléides artificiels comme ^{241}Am , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{131}I .

Cet état de fait conduit habituellement à conclure à leur absence du milieu. Un test préliminaire mettant en œuvre un prélèvement intégré de 7,5 m³ a été réalisé en situation d'étiage. Les très faibles charges de particules rencontrées pour ces situations mettent en exergue les niveaux de concentration des substances dissoutes. Les résultats obtenus ont permis de quantifier significativement les radionucléides précédemment cités et de connaître leur répartition entre les différentes phases (*figure 4* ; [9]).

Ces informations ont permis de reconsidérer les notions classiquement admises sur le partage des radionucléides entre phases, notamment dans le cas du ⁶⁰Co et du ¹³⁷Cs [7], pour lesquels les niveaux se répartissent globalement pour moitié dans la fraction dissoute et pour moitié dans la fraction particulaire. Les actinides (²⁴¹Am, ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) ont été quantifiés à moins d'un microbecquerel par litre.

Le ⁷Be, traditionnellement considéré comme un traceur des sédiments [10 ; 11], est également quantifié en phase dissoute à un niveau très bas : 0,09 mBq.l⁻¹ soit 13 % de son activité totale dans l'eau. Les spectrométries gamma sont réalisées à l'aide de détecteurs germanium à bas bruit de fond d'efficacité relative supérieure à 50 % et pour des temps de comptage de 1 à 2 jours.

Ces détecteurs sont installés au deuxième sous-sol du Laboratoire de mesure de la radioactivité de l'environnement (LMRE) à Orsay, sous une dalle de béton boré de 3 m d'épaisseur et blindée par une couche de 10 cm de plomb de faible activité, recouverte elle-même de 2 cm de cuivre électrolytique afin de neutraliser la fluorescence X du plomb. Les locaux sont ventilés par de l'air filtré afin de réduire et de maintenir stable le taux de radon autour des détecteurs [12]. La mesure des actinides est réalisée également au LMRE par spectrométrie alpha et complétée par ICP-MS⁽³⁾ après traitement radiochimique [13].

La capacité de concentration d'un facteur 10 000 offerte par le futur évaporateur sous vide nous permettra de fabriquer des échantillons présentant des niveaux d'activité mesurables, et de tirer ainsi le meilleur parti des performances métrologiques disponibles au sein de notre Institut tout en fournissant nos partenaires pour leurs analyses.

Une plate-forme multidisciplinaire et multipartenariale

Les prélèvements réalisés en routine comme en situation exceptionnelle (crue, étiage) à la station d'Arles complètent les informations obtenues à partir d'autres stations de surveillance et d'alerte gérées par l'IRSN [14]. Les résultats obtenus sur ces prélèvements alimentent de nombreuses études scientifiques. La station est résolument ouverte au multipartenariat depuis 2005. Cette station constitue un outil stratégique pour de nombreux programmes scientifiques en cours de réalisation ou de définition auxquels participe l'IRSN (ORME⁽²⁾, RESYT⁽³⁾, CHACCRA⁽⁴⁾) de par sa position à la frontière des domaines fluvial et maritime, et grâce aux possibilités de suivi de polluants qu'elle offre. L'arrivée des eaux du Rhône dans les eaux marines du golfe du Lion est un événement écologique significatif non seulement pour les eaux côtières au voisinage de son delta, mais plus généralement pour l'ensemble du golfe du Lion.

Ces études permettent de mutualiser les moyens et les données. Tous les programmes sont réalisés dans le cadre d'approches pluridisciplinaires.

L'IRSN s'associe pleinement à ces partenaires universitaires ou institutionnels et entend étendre son rôle pilote auprès des acteurs scientifiques en mettant à disposition la station OPERA d'Arles en tant que plate-forme technique pérenne pour l'étude des eaux du Rhône.

(1) Opera : Observatoire PERmanent de la RADioactivité de l'environnement

(2) MES : matières en suspension.

(3) ICP-MS (*inductively coupled plasma mass spectrometry*) : spectrométrie de masse couplée à un plasma inductif.

(4) Observatoire régional méditerranéen sur l'environnement.

(5) Réponse d'un système deltaïque aux forçages externes.

(6) *Climate and Human-induced Alterations in Carbon Cycling at the River-Sea connection.*

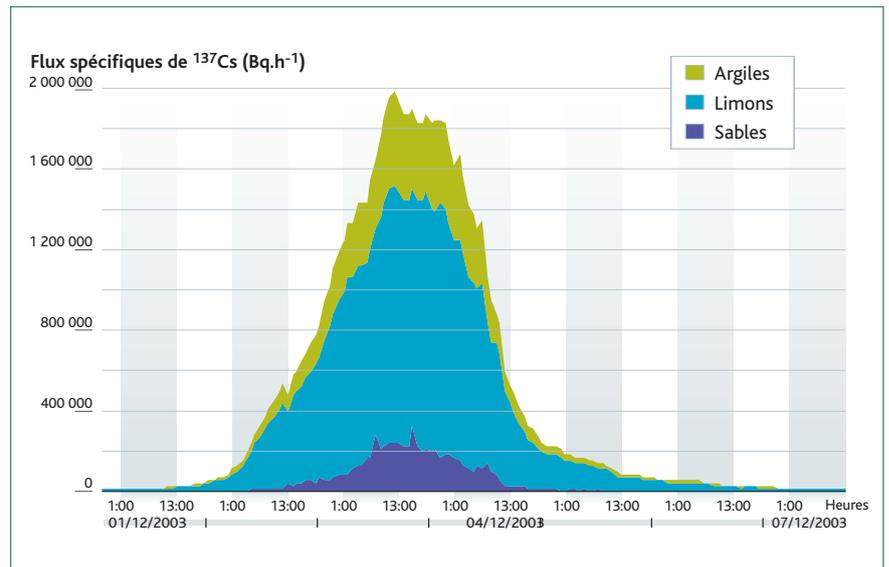


Figure 5 : Flux de ¹³⁷Cs porté par les différentes fractions particulaires, Rhône en crue au palier d'Arles (d'après Antonelli, C., Eyrolle, F., 2005 - [15]).

Les principaux partenaires et programmes scientifiques concernent :

- Le Centre d'océanologie de Marseille (COM) pour l'étude des apports nutritifs du Rhône et leur influence sur la fertilisation du milieu marin. Le COM est rattaché à l'Observatoire des sciences de l'univers de l'INSU-CNRS. C'est le partenaire privilégié de l'IRSN dans cette installation puisqu'il y dispose d'un local dédié, équipé de trois préleveurs réfrigérés et d'une centrifugeuse pour des prélèvements en vue de la détermination journalière des matières en suspension (MES), nitrate et nitrite, phosphates, azote total, phosphore total, et de la détermination bimensuelle de l'azote particulaire, du phosphore particulaire, des silicates et de la silice. Les données du COM sur les MES complètent celles obtenues par l'IRSN à partir des déterminations moyennes mensuelles et permettent une meilleure estimation du flux particulaire.

- Le Centre de formation et de recherches sur l'environnement marin (CEFREM – université de Perpignan) coordonne l'Observatoire régional méditerranéen de l'environnement (ORME/CNRS – programme environnement, vie et sociétés). Cet observatoire s'intéresse au suivi à long terme des apports des fleuves qui se déversent dans le golfe du Lion : l'Hérault, l'Orb, l'Aude, l'Agly et la Têt. Les équipements disponibles à la station d'Arles permettent d'ajouter le Rhône à cette liste. Cet observatoire regroupe des spécialistes du fonctionnement physique, géochimique et biologique des hydrosystèmes, ainsi que des aspects sociétaux, sociologiques, économiques et juridiques de leur utilisation et leur modification par l'homme.

- Le Centre européen de recherche et d'enseignement des géosciences de l'environnement (CEREGE – université Aix-Marseille) pilote l'Observatoire de recherche en environnement RESYST, dont la problématique est centrée sur le delta de la Camargue. Cet observatoire s'intéresse à la réponse du système hydrosédimentaire d'une zone deltaïque soumise aux forçages externes actuels : variations climatiques, montée du niveau marin, modifications des apports sédimentaires, pressions anthropiques.

La collaboration IRSN/CEREGE a permis de mettre en évidence une contribution à hauteur de 10 % du flux de ¹³⁷Cs véhiculé par le sable en situation de crue (figure 5, [15]). La fraction sableuse correspondant

à la charge de fond est généralement considérée comme inerte vis-à-vis des radionucléides et de ce fait n'est pas considérée dans les bilans de radionucléides apportés par le Rhône à la mer.

L'importance de la prise en compte de cette fraction reste à étudier pour d'autres situations hydrologiques. L'IRSN et le CEREGE travaillent actuellement sur un projet de création d'un observatoire des sédiments du Rhône en collaboration avec la Zone atelier bassin du Rhône (ZABR), groupement d'intérêt scientifique labellisé en 2001.

■ Le Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement (CEA/CNRS) : ce laboratoire pilote la participation française au projet CHACCRA. Cette action internationale vise à étudier le lien continent-océan dans une approche holistique depuis les bassins-versants jusqu'au milieu marin côtier et hauturier. Le devenir des apports de matière des grands fleuves comme le Mississippi ou le Yangtze dans l'océan côtier, et plus largement vers l'océan global, est au cœur des intérêts de ce programme. Tous les éléments qui entrent dans les cycles biologiques (C, N, P, O₂, S, Si, métaux traces, etc.) ou sont liés à la matière organique, comme les argiles ou le ballast minéraux, seront étudiés dans ce programme

tant leur importance est cruciale dans le devenir des apports fluviaux sur la marge. Les mesures concernent les isotopes stables du carbone et de l'azote, les sucres totaux et hydrosolubles, ainsi que les isotopes de Pb, Sr, Nd, les terres rares et les métaux en phase minérale sur les matières en suspension. Le Rhône apparaît comme un bon modèle de grand fleuve débouchant dans une mer fermée, à l'image du Mississippi ou du Yangtze.

■ L'Ifremer est intéressé dans le cadre du projet intégré Méditerranée/Médicis par la connaissance des flux de contaminants apportés par le Rhône et, plus largement, par l'acquisition de données impliquées dans la modélisation des processus qui interviennent dans le transport et le transfert de contaminants à l'échelle régionale. Une thèse IRSN/Ifremer en cours, intitulée « Modélisation du transport particulaire dans le panache du Rhône et le golfe du Lion, application au devenir des traceurs radioactifs », s'inscrit dans cette thématique.

Références

- [1] DUFFA, C., RENAUD, P., Projet CAROL, Rapport final IRSN/DEI/SESURE/04-22, 42 p., 2004.
- [2] CHARMASSON, S., « Cycle du combustible nucléaire et milieu marin – Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique Nord-Est. », Thèse d'État, Université d'Aix-Marseille II, 359 pp., 1998.
- [3] ANTONELLI, C., « Représentativité des flux de radioactivité mesurés par la station-observatoire du Rhône (station d'Arles – réseau OPERA) », Rapport IRSN/DEI/SESURE/04-15, 23 p., 2004.
- [4] [HYPERLINK "<http://ccbr.lyon.cemagref.fr/>"] "<http://ccbr.lyon.cemagref.fr/> – 2004 : Conférence de consensus. Débits du Rhône à Beaucaire pour la crue de décembre 2003 »
- [5] EYROLLE, F., CHARMASSON, S., MASSON, O., « Projet EXTREME – Rapport de lancement », IRSN/DEI/SESURE/05-07, 2005.
- [6] EYROLLE, F., ROLLAND, B., « Radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval – Conséquence des crues sur les niveaux d'activité des eaux et sur les flux à la mer – 2000-2003 », Rapport IRSN/DEI/SESURE/04-16, 2004.
- [7] ROLLAND, B., « Transfert des radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires rhodaniens et les exports vers la Méditerranée », Mémoire de thèse, Université Paul Cézanne, Aix-Marseille, 10 février 2006.
- [8] MASSON, O., EYROLLE, F., BOULLIER, V., ANTONELLI, C., « Station observatoire Rhône aval, Réseau OPERA – Bilan de fonctionnement sur la période 2000-2003 et perspectives », Rapport IRSN/DEI/SESURE/04-05, 2004.
- [9] MASSON, O., « Radionucléides artificiels en phase dissoute dans le Rhône aval », Colloque de synthèse Rhône-Méditerranée, Centre d'océanologie de Marseille, 5-7 mai 2004.
- [10] BONTÉ, PH., MOUCHEL, J.-M., « Flux et temps de séjour des particules dans le bassin de la Seine », Rapport de synthèse, Programme PIREN-Seine 1998-2001, UMR CNRS 7619 Sisyphé Université Pierre-et-Marie-Curie, 2002.
- [11] MATISOFF, G., BONNIWELL, E. C., WHITING, P. J., « Radionuclides as Indicators of Sediment Transport in Agricultural Watersheds that Drain to Lake Erie », *Journal of Environmental Quality*, 31:62-72, 2002.
- [12] BOUISSET, P., CALMET, D., « Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry Applied to Low-Level Environmental Sample Measurements », Proceedings of the International Workshop on the Status of Measurement Techniques for the Identification of Nuclear Signatures, Geel, 25-27 February, 1997.
- [13] GOUTELARD, F., MORELLO, M., CALMET, D., « Alpha-Spectrometry Measurement of Am and Cm at Trace Levels in Environmental Samples Using Extraction Chromatography », *Journal of Alloys and Compounds*, 271-273, 25-30, 1998.
- [14] LEPRIEUR, F., MASSON, O., « Résultats des mesures complémentaires aux plans de surveillance des installations nucléaires de base de la vallée du Rhône suite à la crue de décembre 2003 », Rapport IRSN/SESURE 2004-11, 2004.
- [15] ANTONELLI, C., EYROLLE, F., « Les flux de matières en suspension et de ¹³⁷Cs dans le Rhône à Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003 », Rapport IRSN/DEI/SESURE/05-30, 20 p., 2005.
- [EYROLLE, F., DUFFA, C., « Flux annuels de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²³⁸Pu du Rhône à la mer Méditerranée de 1945 à nos jours et stocks continentaux actuels », Rapport IRSN/DPRE/SERNAT/2002-32, 2002.

1.4

Le césium 137 dans l'environnement terrestre français au cours des quinze dernières années

Depuis une quinzaine d'années des échantillons de sols, de végétaux cultivés ou sauvages et de produits d'origine animale ont été prélevés dans l'environnement terrestre français et analysés par spectrométrie gamma⁽¹⁾.

Ces échantillons ont conduit à l'acquisition de plus de 3 000 résultats de mesure en ¹³⁷Cs dans le cadre des suivis annuels et décennaux pratiqués autour des centrales nucléaires⁽²⁾ d'Électricité de France (EDF) depuis 1990 et de l'Observatoire permanent de la radioactivité de l'environnement OPERA depuis 1995. Un bilan de ces résultats a été réalisé [3 ; 4].

La *figure 1* indique la localisation des stations. Le fond de carte présente les activités surfaciques théoriques en ¹³⁷Cs imputables aux retombées des tirs nucléaires atmosphériques de 1945 à 1980 et à celles de l'accident de Tchernobyl, corrigées de la décroissance radioactive en 2004 [5 ; 6]. Ces retombées sont à l'origine des activités en ¹³⁷Cs présentes sur le territoire national.

Principales observations

Dans tous les compartiments de l'environnement, l'activité massique du césium 137 décroît en fonction du temps avec une « période effective » T_{eff} inférieure à la période radioactive ($T = 30$ ans).

Pour les sols T_{eff} intègre notamment les processus de dilution mécanique dans le profil consécutifs aux labours, la migration verticale, l'érosion, l'exportation par les récoltes, etc.

Dans le cas des végétaux, et *in fine* des produits d'origine animale, T_{eff} reflète non seulement la baisse d'activité du sol, mais aussi la diminution de la biodisponibilité du césium 137 qui induit une réduction du transfert racinaire au cours du temps.

Les périodes effectives sont des valeurs approchées, car les ajustements exponentiels des valeurs mesurées constituent une simplification importante, et aussi parce que la durée de la chronique observée (une quinzaine d'années) est brève par rapport aux valeurs de T_{eff} .

(1) Métrologie réalisée par le laboratoire IRSN de métrologie de la radioactivité dans l'environnement (LMRE).

(2) Aucun impact des rejets des centrales n'a pu être mis en évidence dans le milieu terrestre autour des sites EDF [1], sauf pour le carbone 14 [2]. Les données relatives au césium 137 peuvent donc être analysées sous l'hypothèse que les prélèvements sont représentatifs du bruit de fond environnemental.

Sylvie ROUSSEL-DEBET,
Philippe RENAUD
Laboratoire d'études radioécologiques
du milieu continental et marin
Jean-Michel MÉTIVIER
Laboratoire de modélisation
environnementale

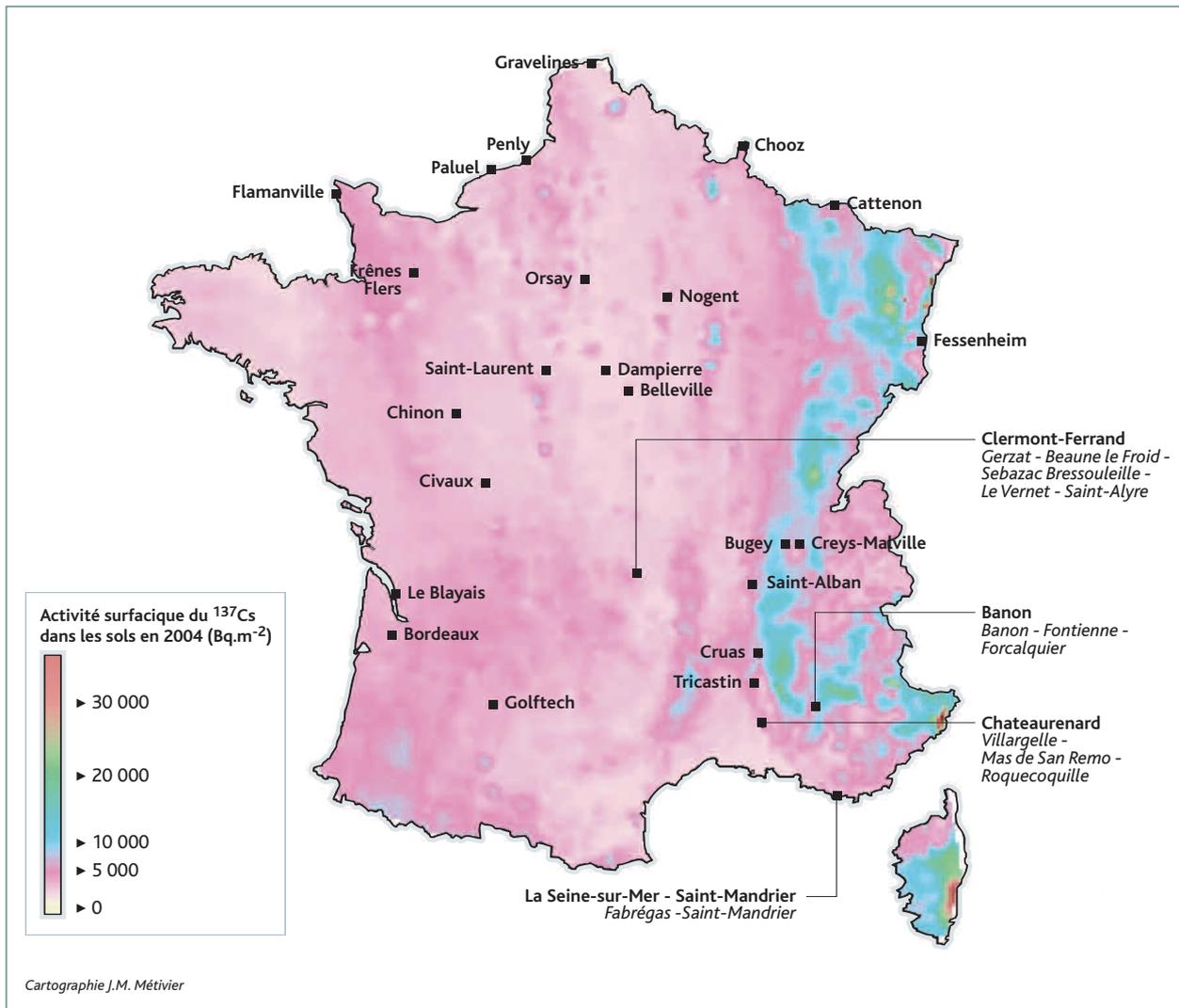


Figure 1 : Localisation des stations de prélèvement.

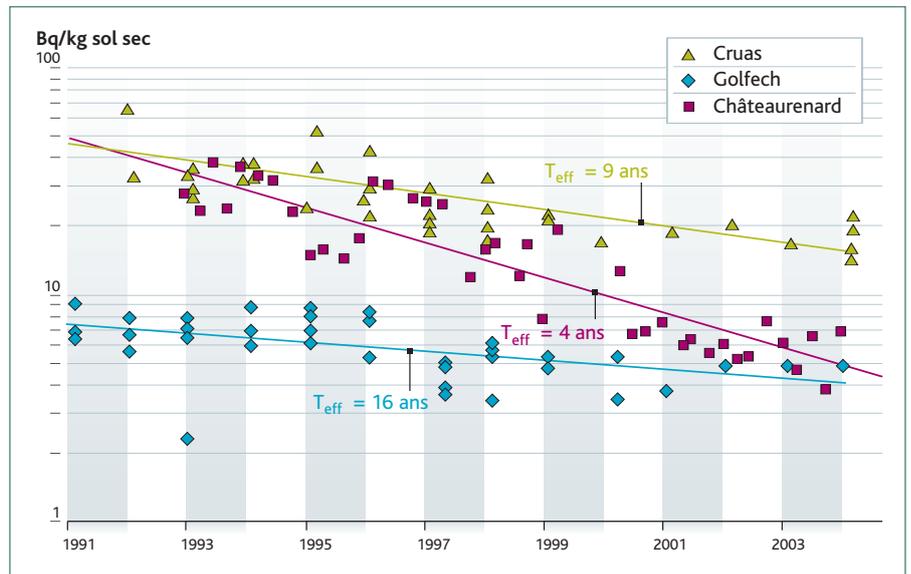


Figure 2 : Illustration de la variabilité des niveaux d'activité des sols en ^{137}Cs et des périodes effectives.

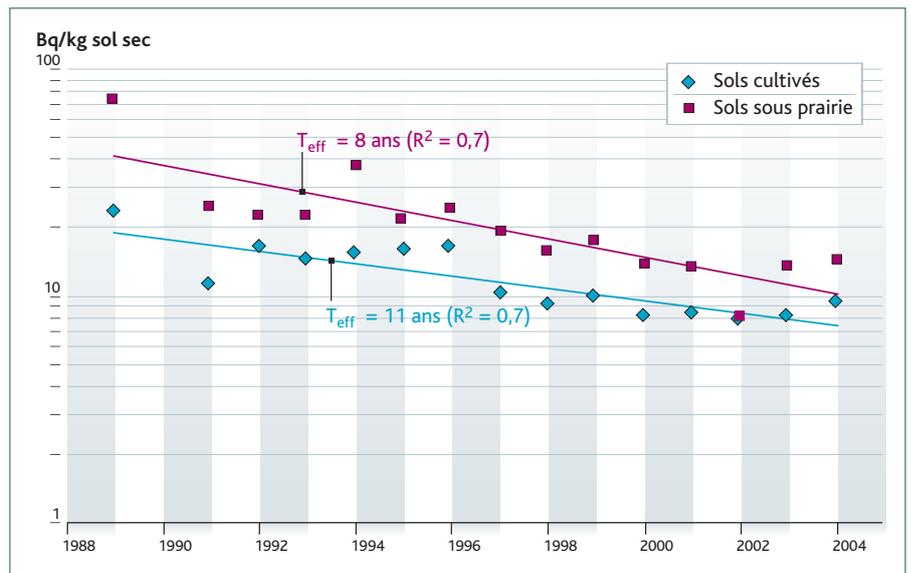


Figure 3 : Niveaux d'activité et périodes effectives moyennes observés sur les sols (moyennes annuelles, ensemble des sites).

Sols

L'hétérogénéité des dépôts se traduit par une large gamme d'activités initiales, qui ont pu ensuite être amplifiées ou réduites par le biais des processus d'accumulation-décroissance dont l'intensité varie avec les caractéristiques du sol et son utilisation (figure 2).

Les activités massiques des prélèvements⁽¹⁾ ont décliné depuis le début des acquisitions de données avec une période effective moyenne de 8 et 11 ans respectivement pour les sols sous prairie et les sols cultivés (figure 3).

Ces valeurs sont de l'ordre de grandeur de celles observées par ailleurs [7 ; 8] ou préconisées comme valeurs par défaut. Notons que ces observations de terrain viennent contredire le modèle empirique de migration-rétention dans les sols basé sur le coefficient de distribution K_d , ainsi que cela avait été souligné lors d'expérimentations comme le programme PEACE [9].

(1) La terre est prélevée dans la couche 0-20 cm pour les sols cultivés labourés et dans la couche 0-5 cm pour les sols sous prairie.

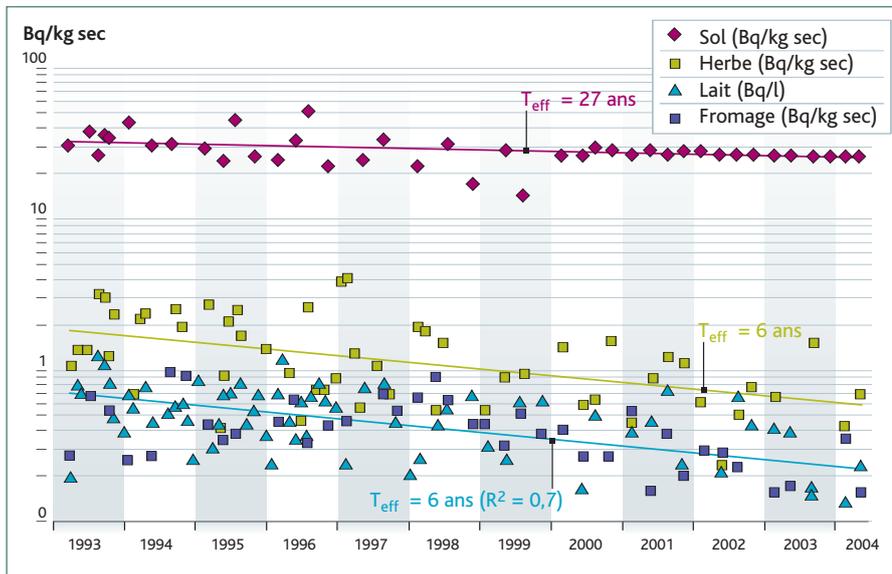


Figure 4 : Évolution des activités en ¹³⁷Cs dans la chaîne sol → herbe → lait → fromage de vache (station OPERA de Beaune-le-Froid dans le Massif central).

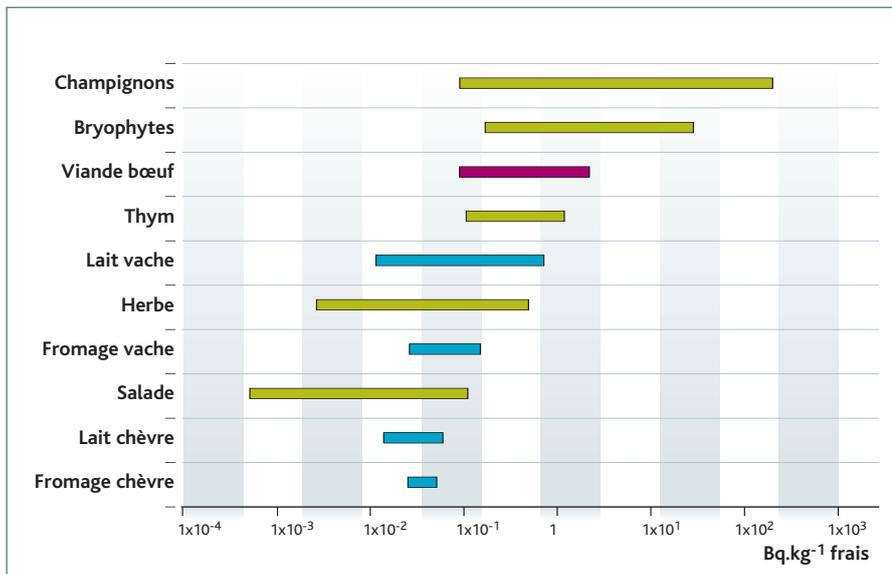


Figure 5 : Activités en ¹³⁷Cs observées en 2003-2004 sur l'ensemble des stations (valeurs exprimées en Bq.kg⁻¹ frais).

L'activité massique en surface des sols cultivés et sous prairie varie actuellement de quelques becquerels à quelques dizaines de becquerels par kilogramme sec en moyenne, bien que les différences entre sites tendent à s'estomper.

Végétaux et produits d'origine animale

Les activités des végétaux dépendent de celles des sols en raison du transfert racinaire qui est actuellement et désormais la voie principale de l'incorporation du césium 137 dans les végétaux supérieurs. Ils reflètent ainsi l'hétérogénéité du niveau d'activité de la couche racinaire,

qui varie avec les sites. À la décroissance effective dans les sols s'ajoute une diminution de la biodisponibilité du ¹³⁷Cs qui s'explique par un accroissement de la sorption du radionucléide au cours de son « vieillissement » et par sa redistribution vers une couche de sol moins accessible au système racinaire [10].

La période effective d'un végétal est donc très généralement inférieure à celle du sol qui le supporte : de l'ordre de cinq ans pour l'herbe, de six ans pour la salade, de quatre ans pour le thym en moyenne. Ces valeurs sont cohérentes avec celles de la littérature [11 ; 12 ; 13].

Les périodes effectives observées pour les produits d'origine animale

sont équivalentes à celles de l'herbe et similaires aux rares valeurs publiées par ailleurs [14; 15]. Les échantillons de produits laitiers bovins et caprins et de viande de bœuf proviennent essentiellement de stations OPERA où les chaînes de transfert *sol* → *herbe* → *produit animal* → *produit transformé (fromage)* sont parfaitement identifiées (**figure 4**), ce qui permet d'en déduire des facteurs de transfert *in situ*. Ces facteurs se situent généralement dans la gamme basse des quelques valeurs publiées par ailleurs.

Les niveaux d'activité du ^{137}Cs observés actuellement sont résumés dans la **figure 5**. Seuls les produits dont les activités sont supérieures à la limite de détection figurent sur ce schéma : les activités en ^{137}Cs des fruits et des céréales ne sont généralement plus mesurables actuellement. L'activité massique des végétaux cultivés est maintenant de quelques centièmes de becquerels par kilogramme frais.

Les champignons dont la physiologie est particulière, et qui poussent généralement sur la couche humifère des sols forestiers plus fortement contaminée, présentent quant à eux des activités très variables qui peuvent encore atteindre la centaine de becquerels par kilogramme frais.

Les produits laitiers reflètent l'activité des végétaux composant la ration alimentaire du bétail, avec par exemple une activité de l'ordre de 0,01-0,7 Bq.l⁻¹ et 0,03-0,2 Bq.kg⁻¹ frais respectivement pour le lait et le fromage de vache. La viande de bœuf présente des activités plus élevées : 0,1-1 Bq.kg⁻¹ frais, ce qui s'explique par l'accumulation du césium 137 dans le muscle.

Une estimation de la dose efficace moyenne liée à la présence actuelle du ^{137}Cs en France a été faite à partir de ces résultats pour les adultes résidant à proximité des stations étudiées, sachant qu'aucune de celles-ci ne se trouve dans les zones les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl. La dose totale serait de l'ordre de quelques microsieverts par an, imputable principalement à l'exposition externe au dépôt présent sur le sol.

■ Perspectives

En termes d'utilisation opérationnelle, les résultats permettent de disposer d'un référentiel des niveaux d'activité du ^{137}Cs indispensable à toute comparaison avec les mesures ultérieures particulières qui susciteraient des questions de la part des pouvoirs publics, des collectivités locales ou du public.

Par ailleurs, l'examen des jeux de données acquis durant ces quinze dernières années incite à infléchir le volet terrestre d'OPERA [16], avec d'une part le renforcement du nombre de stations pour mieux couvrir le territoire – en particulier dans les zones où la rémanence des retombées de Tchernobyl reste encore significative – et, d'autre part, l'augmentation de la diversité des produits prélevés.

Références

- [1] DUFFA, C., MASSON, M., GONTIER, G., CLAVAL, D., RENAUD, P., « Synthèse des études radioécologiques annuelles menées dans l'environnement des centrales électronucléaires françaises depuis 1991 », *Radioprotection*, 39: 233-254, 2004.
- [2] ROUSSEL-DEBET, S., GONTIER, G., SICLET, F., FOURNIER, M., « Distribution of Carbon 14 in the Terrestrial Environment Close to French Nuclear Power Plants », *J. Environ. Radioactiv.*, 87(3): 246-259, 2006.
- [3] ROUSSEL-DEBET, S., MASSON, O., SALAUN, G., « Radioactivité en ^{137}Cs de l'environnement terrestre français. Interprétation des données OPERA acquises de 1993 à 2004 », Rapport IRSN/DEI/SESURE n°2005 10, 2005.
- [4] ROUSSEL-DEBET, S., DUFFA, C., « Radioactivité en ^{137}Cs dans l'environnement terrestre des sites électronucléaires d'Électricité de France. Interprétation des données acquises de 1989 à 2004 », Rapport IRSN/DEI/SESURE n°2005 – 36, 2005.
- [5] RENAUD, P., LEPRIEUR, F., MÉTIVIER, J.-M., POURCELOT, L., DUFFA, C., LEMAITRE, N., LINDEN, G., CHAMPION, D., « Éléments de réponse sur les représentations cartographiques des retombées de l'accident de Tchernobyl en France », Rapport IRSN/DEI n°04-02, 2004.
- [6] RENAUD, P., GARCIA-SANCHEZ, L., MÉTIVIER, J., POURCELOT, L., CHAMPION, D., « Interprétation phénoménologique et analytique de la relation pluie-dépôt utilisée pour la reconstitution des dépôts de ^{137}Cs en France consécutifs à l'accident de Tchernobyl », Rapport IRSN/DEI n°2005-03, 2005.
- [7] ANDERSSON, I., LONSSJO, H., ROSEN, K., « Long-term Studies on Transfer of ^{137}Cs from Soil to Vegetation and to Grazing Lambs in a Mountain Area in Northern Sweden », *J. Environ. Radioactiv.*, 52(1): 45-66, 2001.
- [8] ROBISON, W., CONRADO, C., BOGEN, K., STOKER, A., « The Effective and Environmental Half-Life of ^{137}Cs at Coral Islands at the Former US Nuclear Test Site », *J. Environ. Radioactiv.*, 69(3): 207-223, 2003.
- [9] BRÉCHIGNAC, F., MADOZ-ESCANDE, C., GONZE, M., SCHULTE, E., « Controlled Lysimetric Simulation of Accidents Giving Rise to Radioactive Pollution of the Agricultural Environment: Synthetic Overview of Research Carried Out at IPSN », *Radioprotection*, 36(3): 277-302, 2001.
- [10] EHLKEN, S., KIRCHNER, G., « Environmental Processes Affecting Plant Root Uptake of Radioactive Trace Elements and Variability of Transfer Factor Data: A Review », *J. Environ. Radioactiv.*, 58(2-3): 97-112, 2002.
- [11] MUCK, K., « Long Term Effective Decrease of Cesium Concentration in Foodstuffs After Nuclear Fallout », *Health Phys.*, 72(5): 659-673, 1997.
- [12] PASTEFANO, C., MANOLOPOULOU, M., STOULOS, S., IOANNIDOU, A., GERASOPOULOS, E., « Cesium 137 in Grass from Chernobyl Fallout », *J. Environ. Radioactiv.*, 83: 253-257, 2005.
- [13] SYNNOTT, H. J., MCGEE, E. J., RAFFERTY, B., DAWSON, D. E., « Long-Term Trends of Radiocesium Activity Concentrations in Vegetation in Irish Semi-Natural Ecosystems », *Health Phys.*, 79(2): 154-161, 2000.
- [14] MUCK, K., « Long-Term Reduction of Caesium Concentration in Milk after Nuclear Fallout », *Sci. Tot. Environ.*, 162(1): 63-73, 1995.
- [15] KOSTIAINEN, E., « Ecological Half-Lives of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Dairy Milk Regions with Different Soil Types », *Radioprotection*, 40(1): S391-397, 2005.
- [16] ROUSSEL-DEBET, S., RENAUD, P., MASSON, O., « Proposition d'échantillonnage 2006 en vue d'optimiser la stratégie de prélèvements en milieu terrestre d'OPERA », Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2006-08, 2006.
- PASTEFANO, C., MANOLOPOULOU, M., SAWIDIS, T., « Lichens and Mosses: Biological Monitors of Radioactive Fallout from the Chernobyl Reactor Accident », *J. Environ. Radioactiv.*, 9(3): 199-207 C, 1989.
- ZIBOLD, G., DRISSNER, J., KAMINSKI, S., KLEMT, E., MILLER, R., « Time-Dependence of the Radiocaesium Contamination of Roe Deer: Measurement and Modelling », *J. Environ. Radioactiv.*, 55(1): 5-27, 2001.

1.5

Vers la mise en place d'une méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux radionucléides

Jacqueline GARNIER-LAPLACE,
Rodolphe GILBIN

Laboratoire de radioécologie
et d'écotoxicologie

Karine BEAUGELIN

Laboratoire de modélisation
environnementale

Jean-Christophe GARIEL

Service du comportement
des radionucléides dans les écosystèmes

Ce travail de synthèse critique sur l'état de l'art dans le domaine de la radioprotection de l'environnement en général et les développements réalisés dans le domaine de l'évaluation du risque pour les écosystèmes a bénéficié pour certains aspects du support financier d'EDF (GGP-Environnement), de l'Andra et de la Commission européenne (ERICA). Nos remerciements leur sont adressés.

1.5

Introduction – problématique et contexte général

En Europe, la méthode traditionnelle pour démontrer l'occurrence d'un risque avéré pour l'environnement en liaison avec le rejet ou la présence d'un polluant dans un écosystème donné est basée sur une procédure en quatre phases :

- l'identification des dangers par un inventaire quantitatif des substances présentes dans les rejets en fonction des modalités d'émission et l'identification de l'écosystème récepteur ;
- l'analyse des voies d'exposition par le calcul ou la mesure des concentrations auxquelles un compartiment de l'écosystème est ou peut être exposé (PEC, *Predicted Environmental Concentration*) ;
- l'analyse des effets par un examen critique des relations entre dose (concentration) et effet associées à chaque substance avec détermination des concentrations prévues sans effet (PNEC, *Predicted No Effect Concentration*) ;
- la caractérisation du risque, calculée par exemple pour sa plus simple expression par le rapport PEC/PNEC [1].

Cette méthode est directement inspirée des travaux développés depuis plus de 20 ans par l'Agence américaine de protection de l'environnement (EPA), qu'elle a formalisés dans le concept ERA (*Ecological Risk Assessment*, [2]) qui définit une démarche standardisée pour l'évaluation du risque écologique associé aux polluants chimiques.

L'Europe n'en est pas au même stade de développement en ce qui concerne l'évaluation du risque pour l'environnement associé aux radionucléides, ces derniers n'étant mentionnés explicitement dans aucun des documents officiels relatifs aux substances chimiques comme le guide technique européen (*Technical Guidance Document* [1]) ou la directive-cadre sur l'eau. Face à cette lacune, les développements réalisés dans le cadre des 5^e et 6^e PCRD du domaine EURATOM – programmes FASSET⁽¹⁾ (2001–2004) et ERICA⁽²⁾ (2004–2007) respectivement – correspondent à une étape préparatoire pour la mise en place à l'échelle européenne d'une méthode d'évaluation du risque écologique adaptée aux radionucléides. Cette méthode une fois conçue et validée contribuera à comparer de manière prospective des scénarios de gestion/démantèlement d'installations du cycle du combustible et/ou à hiérarchiser les différentes catégories de substances

(1) FASSET : *Framework for ASSESSment of environmental impact of ionising radiation. EC 5th Framework Programme.*

(2) ERICA : *Environmental Risk from Ionising Contaminants: Assessment and Management. 6th Framework Programme.*

Tableau 1

Rôle des principales instances internationales et actions conduites dans le domaine de la radioprotection de l'environnement durant ces cinq dernières années (pour une liste exhaustive, consulter le document IRSN, 2006[1]).	
Description sommaire du rôle principal	Actions en radioprotection de l'environnement
<p>AIEA : Agence intergouvernementale au sein des Nations Unies, forum scientifique et technique dans le domaine du nucléaire. Développe et vérifie l'application des standards à appliquer dans divers domaines, notamment celui de la radioprotection.</p>	<ul style="list-style-type: none"> ■ Publie en 1999 sur la protection de l'environnement contre les effets des rayonnements ionisants [2], puis sur les considérations éthiques [3] et réunit des spécialistes sur le sujet [4]. ■ Met en place un projet de plan d'actions dès 2004. Ce projet puise son inspiration dans les conclusions de la conférence internationale d'octobre 2003 à Stockholm, avec un calendrier planifié jusqu'à fin 2007 [5]. ■ Démarre le plan d'actions en janvier 2006 [6].
<p>CIPR : Émet des recommandations sur les principes de radioprotection afin d'établir les bases de réglementation et de gestion futures.</p>	<ul style="list-style-type: none"> ■ Crée un <i>task group</i> en 2000 afin d'émettre des recommandations pour le développement d'un système de réglementation de la protection de l'environnement en tant que tel. Dans un souci de cohérence avec le système de radioprotection humaine, la CIPR développe le concept d'organismes de référence pour la faune et la flore [7 ; 8]. ■ La radioprotection de l'environnement est prise en compte en tant que telle dans les nouvelles recommandations (<i>The development of a policy for non-human species</i>). ■ En 2005, met en place le comité 5 dédié à la protection de l'environnement avec des travaux prioritaires planifiés sur cinq ans.
<p>UNSCEAR : Au sein du système des Nations Unies, représente 21 nations et met à jour régulièrement l'état de l'art sur les niveaux et les effets sur la santé des radiations. Reconnue comme l'instance de référence pour l'établissement des bases scientifiques pour l'évaluation des risques liés aux rayonnements ionisants, pour l'établissement de critères et normes de radioprotection.</p>	<ul style="list-style-type: none"> ■ Met à jour le rapport de 1996 [9] sur les effets des rayonnements ionisants sur les organismes non humains en y incluant les méthodes d'évaluation du risque aux écosystèmes. Ce document sera achevé mi-2007.

[1] IRSN (2006). Radioprotection de l'environnement/synthèse et perspectives. Édition du 1^{er} juillet 2006. Rapport 2005/56 IRSN-FR.
 [2] IAEA (1999). *Protection of the environment from the effects of ionizing radiation: a report for discussion*. IAEA-TECDOC-1091. Vienna, Austria, IAEA.
 [3] IAEA (2002). *Ethical considerations in protecting the environment from the effects of ionizing radiation*. IAEA-TECDOC-1270. Vienna, Austria, IAEA.
 [4] IAEA (2002). *Specialist meeting on protection of the environment from the effects of ionizing radiation: international perspectives*. IAEA-723-J9-SP-114.3. Vienna, Austria.
 [5] IAEA (2003). *The president's findings*. Stockholm, Sweden, in: *International Conference on the protection of the environment from the effects of ionizing radiation*, International Atomic Energy Agency, Vienna.
 [6] IAEA (2006). *Report from the first meeting of the coordination group on radiation protection of the environment and appendix (Plan of activities on the radiation protection of the environment)*. IAEA Headquarters, Vienna, Austria, International Atomic Energy Agency, Vienna.
 [7] ICRP (2003). *A framework for assessing the impact of ionizing radiation on non-human species*. ICRP Publication 91, *Annals of the ICRP* 33 n°3. London, International Commission on Radiological Protection, London, UK.
 [8] ICRP (2005). *The concept and use of reference Animals and Plants for the purposes Environmental Protection*, *Annals of the ICRP*; International Commission on Radiological Protection, J. Valentin (Eds), London, UK.
 [9] UNSCEAR (1996). *Sources and effects of ionizing radiation*. A/AC.82/R.549. Report to the general assembly with scientific annex, United Nations, Vienna.

potentiellement rejetées par l'utilisation d'une approche commune. Elle sera également applicable en évaluation rétrospective à différentes échelles de temps et d'espace (comme l'examen des demandes d'autorisation de rejets et de prélèvements d'eau). L'une des applications importantes en termes de réglementation sera également d'en faire déduire de manière cohérente par les États membres des valeurs guides dites sans effet pour tout ou partie de l'écosystème.

Parallèlement à la réflexion européenne, la prise en compte de la radioprotection de l'environnement évolue au plan international. Les principales instances internationales dans ce domaine, comme la CIPR, l'AIEA et l'UNSCEAR, ont mis en place durant les cinq dernières années diverses initiatives résumées dans le **tableau 1**.

En résumé, l'enjeu actuel quant à la radioprotection de l'environnement est de disposer d'une méthode d'évaluation du risque écologi-

que inspirée des développements réalisés dans le domaine des substances chimiques, afin d'évaluer de manière scientifique, en toute transparence et dans sa globalité, le risque pour l'environnement associé aux activités liées au cycle du combustible nucléaire.

Cet enjeu est renforcé par le contexte actuel et futur dans le domaine du nucléaire puisque la plupart des États membres sont ou seront confrontés dans un avenir proche à la mise en place de nouvelles installations (comme l'EPR), à l'expansion ou au maintien des programmes nucléaires, ce qui inclut le démantèlement, la mise en œuvre de sites de stockage de déchets et la gestion d'anciens sites miniers d'uranium U.

(1) FRED Radiation Effect Database, (FASSET, 2003).

Tableau 2

Critères pris en compte dans chaque phase d'une évaluation du risque à l'environnement et différences selon la catégorie de stressseurs. **Caractères gras** : critères spécifiques aux radionucléides. *Caractères italiques* : critères spécifiques aux métaux/métalloïdes stables ou jamais appliqués aux radionucléides jusqu'à lors. Caractères droits : critères communs aux deux catégories de stressseurs.

Phase	Actions en radioprotection de l'environnement
Analyse des expositions	<ul style="list-style-type: none"> ■ Spéciation et stabilité (persistance) des formes. ■ Comportement biogéochimique et distribution dans les compartiments abiotiques. ■ Échelle d'espace locale et régionale. ■ Biodisponibilité (et bioaccumulation). ■ Voie d'exposition (irradiation) externe. ■ Voie d'exposition interne. ■ Calcul de dose/débit de dose avec utilisation du concept d'organismes de référence. ■ Pondération liée à l'efficacité biologique du type de rayonnement considéré. ■ Additivité des doses/débit de doses issues des diverses voies d'exposition et des divers radionucléides. ■ Concentration ajoutée au bruit de fond géochimique. ■ Durée d'exposition (biocinétiques).
Analyse des effets	<ul style="list-style-type: none"> ■ Toxicité potentielle des formes physiques et chimiques pour la contamination interne. ■ Toxicité des fils issus de la décroissance radioactive du radionucléide père. ■ Toxicité fonction du caractère essentiel ou non du métal/métalloïde (adaptation, tolérance, déficience). ■ Effets liés à irradiation externe. ■ Relation exposition-dose-effet. ■ <i>Relation exposition-effet.</i> ■ <i>Données d'effets rapportées à la concentration dans les milieux.</i> ■ Données d'effets rapportées à la dose/débit de doses reçues par les organismes. ■ Durée d'exposition. ■ Effets au niveau individuel avec une emphase sur des variables d'effet reliée à la démographie (mortalité et capacité reproductive). ■ Biomarqueurs subcellulaires quantifiant et qualifiant la morbidité. ■ Idem pour les dommages à l'ADN. ■ Effets déterministes. ■ Effets stochastiques. ■ <i>Sélection d'organismes tests en lien avec leur niveau trophique.</i> ■ Sélection d'organisme de référence en lien avec un niveau d'exposition au radionucléide le plus élevé (géométrie source de rayonnement-cible, habitat, mode de vie, bioaccumulation). ■ <i>Dérivation d'une valeur ou d'une gamme de variation assurant la protection de tout ou partie d'un écosystème par extrapolation sur la base des résultats de tests d'écotoxicité les plus sensibles (espèces et endpoints) ou sur la base statistique (technique SSD).</i>
Caractérisation du risque	<ul style="list-style-type: none"> ■ Comparaison exposition et valeur <i>benchmark</i> seuil protectrice de l'écosystème (PEC/PNEC). ■ <i>Approches probabilistes si les données sont suffisantes.</i>

1.5

Méthode en cours de développement pour la caractérisation du risque associé aux radionucléides

La démarche proposée par le programme ERICA

Depuis la fin du programme FASSET, mais aussi au plan international [3 ; 4], un consensus est établi sur la faisabilité de l'adaptation des méthodes d'évaluation du risque environnemental mises en place et éprouvées pour les substances chimiques aux radionucléides, et ceci, bien que des différences existent et soient à prendre en compte entre les deux catégories de stressseurs (*tableau 2*).

Partant de la structure classique existant pour les substances chimiques, le cadre pour l'évaluation de l'impact environnemental associé aux radionucléides a été développé au cours des programmes FASSET

pour la formulation du problème et les phases d'analyses (exposition et effet), et ERICA, pour les autres phases de caractérisation et de gestion du risque (*figure 1*) [5 ; 6].

Les outils de modélisation et les bases de données concernant les paramètres et les connaissances associées ont été assemblés pour permettre de procéder à l'analyse de l'exposition (transport et transfert entre composantes des écosystèmes et calculs dosimétriques) et à l'analyse des effets reposant sur une utilisation critique des informations issues de la base de données FRED⁽¹⁾. Une méthode statistique pour la détermination systématique de valeurs guides dites « sans effet » (ou valeurs *benchmark*) ainsi qu'une démarche graduée complète allant jusqu'à la caractérisation et la gestion du risque à l'environnement sont actuellement en cours de finalisation dans le cadre du programme ERICA.

1.5

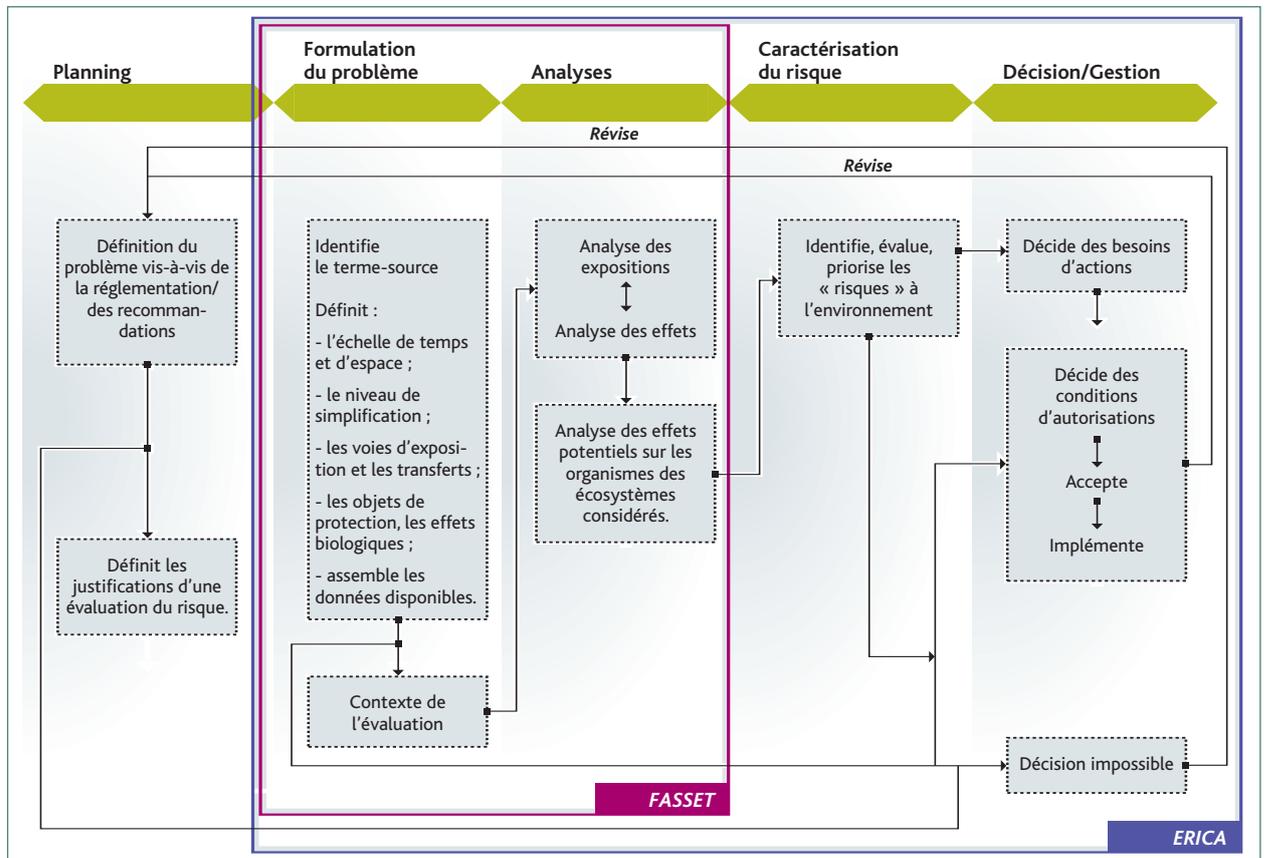


Figure 1 : Synoptique de l'articulation et du contenu des programmes FASSET et ERICA (selon ERICA, 2004 ; [7]).

Un aperçu du stade de développement actuel de cette approche intégrée est présenté sur la **figure 2**. La démarche peut être exposée comme suit : après avoir situé le problème posé et les objectifs de l'évaluation (étape préliminaire), l'étape 1 correspond à un exercice de *screening*, où chaque radionucléide et chaque composante de l'écosystème sont passés en revue pour calculer l'indice de risque associé. La complexité liée à la biodiversité de la composante vivante de l'écosystème est simplifiée par la sélection justifiée d'un nombre limité d'organismes de référence. L'étape 2, enclenchée si un risque est mis en évidence lors de l'étape 1, est une évaluation générique identique à la première, mais incluant une analyse plus raffinée des expositions. Ces deux étapes utilisent la notion de *Predicted No-Effect Dose Rate* (PNEDR) équivalente à la PNEC pour les substances chimiques. Cette valeur est exprimée en Gy ou en Gy par unité de temps. Elle est déduite d'une analyse des connaissances existantes sur les effets des radionucléides sur les organismes non humains.

L'étape 1 propose un rétrocalcul pour chaque radionucléide et chaque organisme de référence à partir de la PNEDR afin de déterminer les concentrations limites dans les milieux comme l'eau, le sol et le sédiment. Cette valeur (une par milieu) correspond pour un radionucléide donné à la concentration minimum obtenue parmi les résultats de rétrocalculs réalisés pour l'ensemble des organismes. Ces valeurs limites sont comparées aux concentrations maximales mesurées, ou prédites, dans les milieux correspondants. Pour l'étape 2, la PNEDR est utilisée directement et comparée aux débits de dose calculés pour le jeu d'organismes de référence. Dans les deux cas, l'indice de risque est calculé selon la méthode du ratio. Enfin l'étape 3 propose d'utiliser des données spécifiques du site avec des méthodes probabilistes pour calculer le risque [6 ; 8].

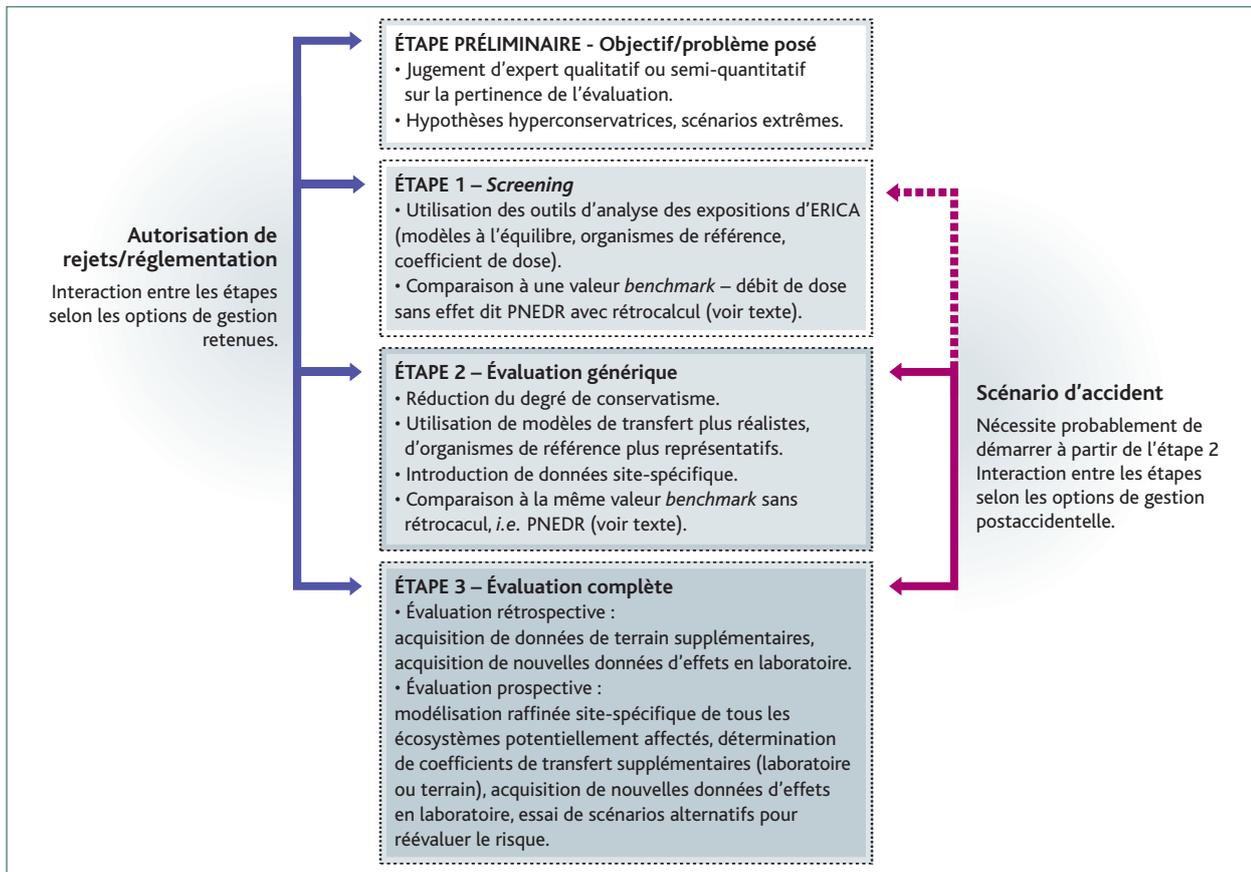


Figure 2 : Approche graduée proposée dans le cadre du programme ERICA pour la caractérisation du risque environnemental associé aux radionucléides – adaptée de ERICA, 2005 a [6]. Chacune des étapes comprend les quatre phases : formulation du problème, analyse des expositions, analyse des effets et caractérisation du risque.

Conceptualisation des écosystèmes pour un exercice d'évaluation du risque

Dès le programme FASSET, la démarche, intégralement reprise dans ERICA, a consisté à définir les écosystèmes de manière simplifiée pour représenter la distribution des radionucléides au sein des habitats et les voies d'exposition qui peuvent en découler pour les organismes vivants. Par exemple, deux compartiments sont utilisés pour les écosystèmes aquatiques : les sédiments de fond et la colonne d'eau.

Ces compartiments et/ou les organismes de référence qui s'y trouvent ne sont pas les objets de la protection en soi, qui demeurent la structure – avec tous les niveaux trophiques – et le fonctionnement des écosystèmes que ces ensembles sont censés représenter. Le concept d'organisme de référence (**tableau 3**) assiste l'évaluateur dans cette tâche. Les écosystèmes (et/ou communautés, populations, individus d'une espèce donnée) seront mis en correspondance avec l'un des écosystèmes types (et/ou un niveau trophique et/ou un organisme de référence respectivement). Les organismes de référence ont été choisis pour couvrir toute la gamme de variation des expositions aux rayonnements ionisants et des radiosensibilités. Ils sont utilisés lors du calcul des doses ou des débits de dose potentiellement reçus.

Cette notion permet d'effectuer des calculs dosimétriques, à partir de géométries fixées par défaut, représentant l'organisme par un ellipsoïde et l'associant à un scénario d'exposition prédéfini.

Critères de protection de l'environnement et doses ou débits de dose sans effet pour les écosystèmes

État des connaissances sur les effets des radionucléides sur les organismes non humains

En proposant des valeurs limites, dites aussi valeurs *benchmark*, pour la protection des écosystèmes par l'application de méthodes similaires à celles recommandées en Europe pour les substances chimiques, le travail réalisé dans le cadre du projet ERICA correspond à une étape majeure du développement de la méthode d'évaluation graduée du risque écologique associé aux substances radioactives [9].

La source de données qui a été utilisée à cet effet est la base de données FRED. Elle rassemble les connaissances sur les effets des rayonnements ionisants sur les organismes non humains.

Tableau 3

Organismes de référence, niveaux trophiques et écosystèmes associés définis dans le cadre des programmes FASSET et ERICA.		
Écosystèmes terrestres	Écosystèmes aquatiques	
Forêts, prairies semi-naturelles, marécages, écosystèmes agricoles	Écosystèmes d'eau douce, écosystèmes marins, écosystèmes d'eau saumâtre	
	Pélagique	Benthique
Producteurs primaires		
Arbres, buissons, graminées, plantes supérieures, bryophytes et microflore	Phytoplancton	Micro et macro-algues, plantes vasculaires
Consommateurs primaires (herbivores et omnivores)		
Micro-organismes (protozoaires), invertébrés (insectes), vertébrés (mammifères et oiseaux)	Protozoaires et zooplancton	Détritivores : brouteurs (vers, échinodermes, crustacés), filtreurs (mollusques)
Prédateurs		
Invertébrés, vertébrés carnivores	Vertébrés (poissons, reptiles, mammifères, amphibiens, oiseaux) et invertébrés (mollusques et crustacés)	Vertébrés (poissons, mammifères) et invertébrés (mollusques et crustacés)
Super prédateurs		
Vertébrés (poissons, reptiles, mammifères, amphibiens, oiseaux) et invertébrés (mollusques et crustacés)	Mammifères carnivores, oiseaux, poissons	Mammifères carnivores, oiseaux, poissons
Décomposeurs		
Vertébrés, invertébrés, micro-organismes, champignons saprophytes		

Cette base de données contient 25 000 entrées ou couples de points (dose ou débit de dose, effet) accompagnés d'informations sur leurs conditions d'obtention : référence bibliographique, type d'exposition, type de rayonnement, émetteurs, acquisition en laboratoire ou *in situ*, espèce, durée d'exposition, dosimétrie, etc. Ils sont assemblés en 16 groupes pseudo-taxonomiques : amphibiens, reptiles, invertébrés aquatiques, plantes aquatiques, bactéries, oiseaux, crustacés, poissons, champignons, insectes, mammifères, mollusques, mousses/lichens, faune du sol, plantes terrestres et zooplancton. La grande majorité des données relève d'effets observés à l'échelle individuelle puis subindividuelle. Elles ont été assemblées en quatre catégories :

- la morbidité, dont le taux de croissance, les effets sur le système immunitaire, les effets sur le comportement liés à des dommages sur le système nerveux central ;
- la mortalité, incluant les effets stochastiques de mutation à l'échelle de cellules somatiques et les conséquences en matière d'induction de cancer, les effets déterministes qui modifieraient les taux de mortalité et la durée de vie ;
- la capacité reproductive, incluant la fertilité, la fécondité, la survie, le développement embryonnaire ;
- et enfin les mutations des cellules somatiques et germinales [10].

La qualité et la quantité des données sur les effets biologiques des rayonnements ionisants à différents niveaux d'organisation ont été analysées. L'une des conclusions est que les connaissances sont en général issues d'études dont les conditions expérimentales ne reflètent pas les situations environnementales prédominantes, par exemple les situations d'exposition chronique à faibles doses, et ce quel que soit le groupe pseudo-taxonomique considéré.

Cela est vrai tant pour les gammes de dose ou débits de dose testés, que pour le type de rayonnement majoritairement étudié ou encore les variables d'effet (*endpoint*) ou les espèces utilisées dans ces études. Dans le cadre d'ERICA mais aussi du programme ENVIRHOM de l'IRSN des études sont consacrées à la définition de règles à respecter pour la conception et la justification d'expériences visant à établir des relations dose-effet pertinentes au sens de leur utilisation dans le cadre de la protection de l'environnement [11 ; 12 ; 13].

Ainsi, de nombreuses extrapolations sont nécessaires en l'état actuel des connaissances. Cela implique de tracer la méthode utilisée et l'incertitude introduite par ce biais (*tableau 4*).

Tableau 4

Principaux manques de connaissances et types d'extrapolations associés nécessaires pour une évaluation du risque écologique associé aux radionucléides (selon Garnier-Laplace <i>et al.</i> , [14]).	
Manques de connaissances	Extrapolations
Données chroniques à faibles doses	Effets aigus aux effets chroniques
Irradiation interne, particules à fort LET	Irradiation externe à irradiation interne
Mélange de stressseurs	Radionucléide à multicontaminants
Données à l'échelle de la population	Individu à la population
Données en chronique pour plusieurs groupes taxonomiques	Entre les espèces
Données sur le fonctionnement des écosystèmes	Structure de l'écosystème à son fonctionnement

Une publication de synthèse sur ces extrapolations a permis de hiérarchiser l'importance des incertitudes associées à chacune comme suit : « extrapolation d'une espèce à l'autre » > « depuis des expositions aiguës à des expositions chroniques » = « de l'irradiation externe à l'irradiation interne » = « d'un radionucléide à une situation de multipollution » > « de l'individu à la population » > « de la structure de l'écosystème à son fonctionnement » [14].

L'analyse critique des informations disponibles quant aux effets des rayonnements ionisants sur les organismes non humains a permis d'émettre les observations et recommandations suivantes en matière d'analyse des effets :

- les données recensées sur les effets relatifs à l'irradiation externe chronique par des débits de dose supérieurs à 1 mGy/h sur les plantes, les poissons et les mammifères sont raisonnablement suffisantes, alors qu'elles sont rares voire inexistantes pour les autres groupes pseudo-taxonomiques ;
- sur ces bases, le seuil de significativité statistique dans la plupart des études est de l'ordre de 100 µGy/h, la réponse augmente ensuite progressivement avec l'augmentation du débit de dose pour devenir claire à partir de 1 mGy/h appliqué pendant une large fraction de la durée de vie ;
- et enfin des réponses plus subtiles (niveau subcellulaire) peuvent être observées à des débits de dose plus faibles, inférieurs à 100 µGy/h, mais leur signification pour l'individu ou la population reste à déterminer.

Utilisation de ces connaissances pour déterminer des critères de protection des écosystèmes : choix de la méthode statistique (*Species Sensitivity Distribution*)

Dans les quelques initiatives existantes ayant mis en œuvre une méthode d'évaluation du risque pour les radionucléides [15 ; 16], les valeurs guides utilisées dans la phase de *screening* sont dérivées de revues effectuant une analyse critique des connaissances sur les effets résultant

Tableau 5

Valeurs <i>benchmark</i> obtenues par application de la méthode des SSD et d'un facteur de sécurité de 5, appliqué au seuil de protection de 95 % des espèces [HD(R) ₅]. Les espèces initialement allouées à un écosystème précis (terrestre, marin ou eau douce) ont pu être regroupées par écosystème suite à un test statistique de significativité en termes de différence de radiosensibilité.			
Exposition	Écosystème	HD(R) ₅ [95%CI]	Valeur <i>benchmark</i> ERICA (étapes 1 et 2)
Aiguë externe γ	Continental (terrestre et eau douce)	1,86 Gy [1,16 ; 2,98]	300 mGy
	Marin	4,84 Gy [0,64 ; 12,7]	900 mGy
Chronique externe γ	Continental et marin (terrestre, eau douce et marin)	µGy/h 81,8 [23,8 ; 336]	10 µGy/h

d'expositions aiguë ou chronique aux rayonnements ionisants [17 ; 18 ; 19]. Dans ces revues, les débits de dose sans effet sont proposés pour certains groupes pseudo-taxonomiques, mais ils ont été utilisés dans les exemples précités sans justification particulière de l'extrapolation nécessaire à leur interprétation en tant que débits de dose sans effet pour l'écosystème. Ces revues de littérature ont par ailleurs identifié la reproduction comme le critère d'effet le plus sensible, mais en faisant clairement une hypothèse de poids, à savoir que la population serait protégée de manière adéquate si le débit de dose à l'individu le plus exposé n'excède pas cette valeur guide. De telles valeurs ne sont donc pas encore clairement appropriées pour justifier la protection de la structure et du fonctionnement des écosystèmes. Pour les substances chimiques, deux méthodes sont principalement utilisées pour l'analyse des effets et la détermination des valeurs *benchmarks*. La première, dite méthode des facteurs de sécurité, utilise le jugement d'expert pour décider quel facteur de sécurité appliquer à la plus petite valeur issue de tests d'écotoxicité afin d'assurer une caractérisation du risque avec conservatisme. Ces facteurs varient de 10 à 10 000 selon la qualité et la quantité de données d'effets disponibles, mais ils combinent plusieurs sources d'incertitudes avec peu de clarté sur le degré de conservatisme qu'ils introduisent. Une deuxième méthode, dite des SSD (*Species Sensitivity Distribution*), est souvent préférée pour les substances chimiques, aux États-Unis comme en Europe, quand la qualité et la quantité des données d'écotoxicité le permettent. Cette méthode consiste à décrire la distribution statistique de la variation de sensibilité à un stressseur au sein des espèces testées appartenant à un même taxon ou représentant un assemblage d'espèces au

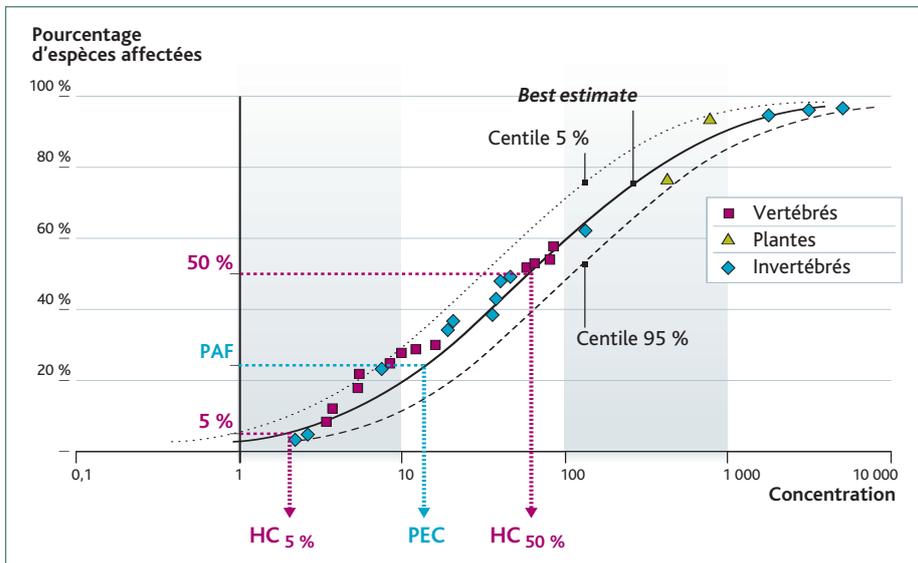


Figure 3 : Représentation des deux utilisations principales d'une SSD. Le choix d'un seuil de protection de $(100-p)$ % d'espèces permet de lire la valeur d'exposition correspondante (HCp ou Hazardous Concentration p %). La mise en correspondance de la concentration d'exposition calculée ou mesurée dans le cadre de l'analyse des expositions (PEC) avec le pourcentage d'espèces affectées (ou PAF pour Potentially Affected Fraction) peut également être utilisée dans le cadre d'une évolution du risque.

sein d'une communauté [20]. Ce jeu de données est considéré comme un échantillon représentatif de la population, au sens statistique du terme, et est visualisé sous la forme d'une courbe de fréquence cumulée exprimée en fonction des concentrations d'exposition. En général, les données d'écotoxicité utilisées pour les expositions aiguës sont des CE_{50} (concentration induisant 50 % d'effet pour la variable observée) et celles retenues pour les expositions chroniques, les NOEC (*No Observed Effect Concentration*) ou les CE_{10} (concentration induisant 10 % d'effet pour la variable observée). Deux possibilités d'utilisation de cette distribution sont offertes [21]. Après avoir choisi un seuil de protection de $(100 - p)$ % d'espèces, la concentration protectrice seuil est assimilée à la valeur d'exposition lue sur l'axe des abscisses correspondant à p % d'espèces affectées. Elle est dénommée HCp (*Hazardous Concentration p %*) et peut servir de base pour produire une valeur *benchmark*. Le choix de cette valeur seuil pour la protection de l'écosystème est une décision non scientifique. Une autre utilisation inverse d'une SSD est possible et consiste à mettre en correspondance la concentration d'exposition calculée ou mesurée dans le cadre de l'analyse des expositions avec le pourcentage d'espèces affectées, ou PAF pour *Potentially Affected Fraction*, (figure 3). Si un seuil de protection a déjà été décidé par ailleurs, comme une protection de 95 % des espèces, toute concentration d'exposition supérieure à la valeur de HC_5 peut potentiellement être identifiée comme étant à risque non acceptable. Le principal intérêt de la méthode des SSD est d'utiliser de façon rationnelle les connaissances pertinentes vis-à-vis du contexte étudié. La méthode permet également de visualiser chacune des données d'écotoxicité utilisées, en particulier celles relatives aux espèces les plus sensibles,

positionnées à gauche de la distribution. La démarche peut être aisément assortie d'une analyse d'incertitudes en proposant le calcul des intervalles de confiance pour la valeur seuil. Les inconvénients majeurs des SSD se situent au niveau des limites des méthodes statistiques en tant que telles, comme le choix de la loi de distribution (empirique, *log-normal*, *log-logistic*, *log-triangulaire*, etc.), la sensibilité au nombre et à la qualité des données de base et la non-prise en compte des interactions entre espèces [22 ; 23 ; 24]. Dans tous les cas, il ne faut pas oublier que la fiabilité des conclusions issues de l'application de ces méthodes est avant tout et intrinsèquement dépendante des données d'entrée, tant en qualité qu'en quantité.

Application aux données d'effet de FRED pour obtenir les critères de protection adaptés aux substances radioactives

Les valeurs de *screening* d'une évaluation graduée du risque, comme les étapes 1 et 2 de l'approche ERICA, ont été déterminées selon les recommandations européennes pour l'estimation des PNECs pour les substances chimiques [1], à savoir l'application de la technique des SSD assorties de l'utilisation d'un facteur de sécurité variant entre 1 et 5 selon la qualité et la quantité des données d'effet exploitables. L'information contenue dans la base FRED a été extraite et réorganisée de façon cohérente pour pouvoir appliquer un modèle de régression et estimer les valeurs de toxicité critique correspondant aux ED_{50} (doses induisant 50 % de l'effet en cas d'exposition aiguë) ou EDR_{10} (débits de dose induisant 10 % de l'effet en cas d'exposition chronique). Ces résultats de toxicité ont à leur tour été utilisés pour tracer

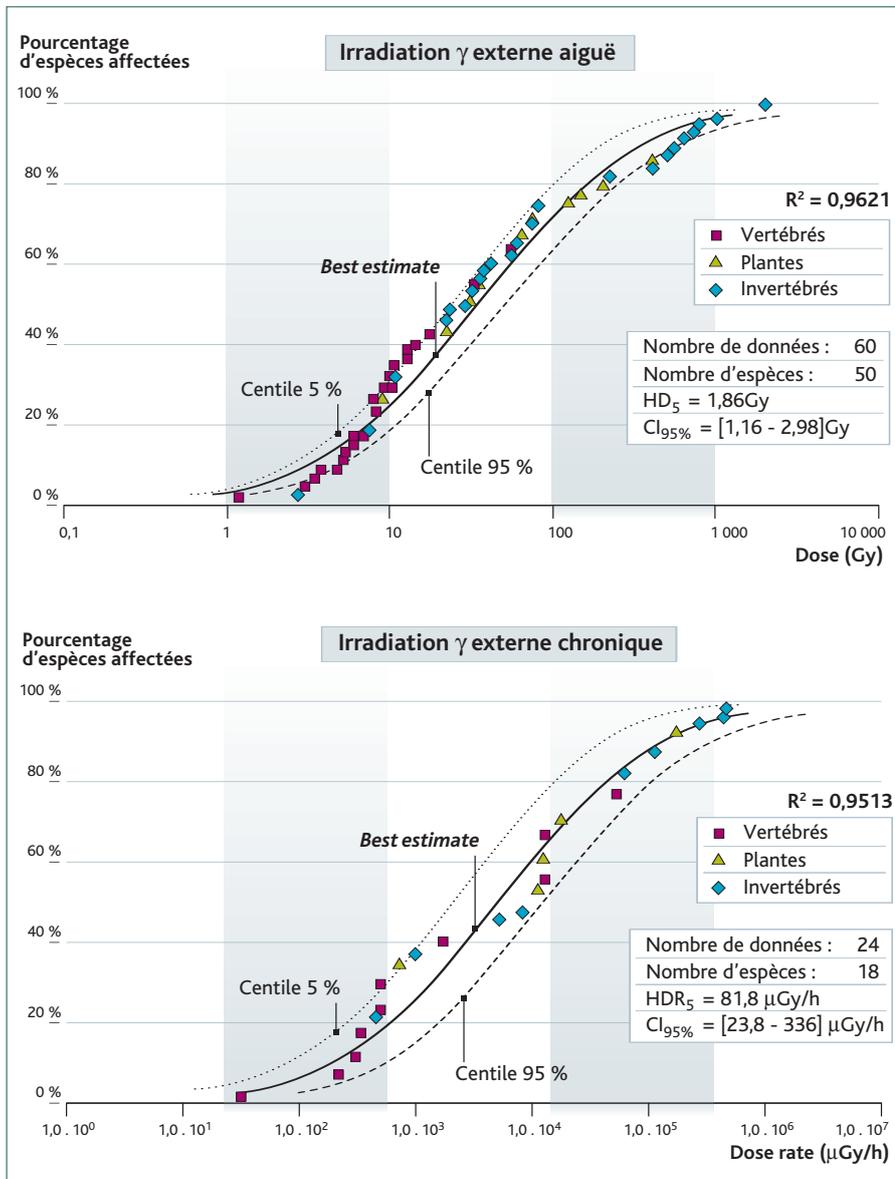


Figure 4 : Distribution de sensibilité des espèces (SSD) des écosystèmes continentaux (aquatiques et terrestres) obtenue à partir des données d' ED_{50} et d' EDR_{10} pour les conditions d'irradiation gamma externe aiguë et chronique respectivement. Les espèces sont réparties en trois groupes trophiques couramment utilisés (plantes, invertébrés, vertébrés). Les courbes représentent la loi log-normale ajustée et son intervalle de confiance à 90 %.

les distributions de sensibilité d'espèces (SSD) et estimer les doses (ou débits de dose) en deçà desquelles 95 % des espèces d'un écosystème donné sont protégées (HD_5 ou HDR_5) [9]. Les distributions statistiques obtenues dans le cas d'une exposition externe γ aiguë ou chronique sont présentées figure 4. Un dernier facteur de sécurité de 5 a été appliqué aux estimations HD_5 et HDR_5 pour obtenir la valeur guide limite utilisée pour les étapes 1 et 2 de la méthode ERICA, afin de prendre en compte la nécessité d'une extrapolation supplémentaire : des effets observés lors d'une irradiation externe vers ceux issus d'une irradiation interne.

L'application de cette méthode a permis de produire, de manière tracée et semblable à celle qui est appliquée pour les substances chimiques, divers critères seuils assurant la protection de 95 % des espèces d'un écosystème pour une exposition aiguë et chronique par irradiation gamma externe (tableau 5).

Ces valeurs ont pu être comparées aux valeurs représentatives des débits de dose délivrés aux diverses espèces exposées et relatifs au bruit de fond naturel. Ce débit de dose varie de 0,01 à 6 $\mu\text{Gy/h}$ selon les écosystèmes et les espèces exposées [25].

■ Conclusion

Compte tenu des données disponibles, le strict domaine de validité de ces critères de protection concerne l'irradiation gamma par voie externe. Le manque de données relatives à l'exposition interne conduit à aborder les effets qui en résultent par extrapolation des effets obtenus en irradiation externe, en s'appuyant sur des traitements statistiques des valeurs trouvées dans la littérature qui prendraient en compte le type de rayonnement mais aussi le type d'effet pour un groupe taxonomique donné. Par ailleurs, d'autres extrapolations sont aussi nécessaires : propagation des effets de l'individu à la population abordés par la modélisation, effets intergénérationnels, effets directs sur une espèce ou indirectes sur les ressources trophiques de cette espèce, etc. Elles sont aujourd'hui traitées (ou en cours de traitement) au moyen d'approches théoriques, mais nécessitent encore la mise en œuvre de recherche et développement pour substituer progressivement la connaissance adéquate aux extrapolations. Le programme de recherches environnement et santé ENVIRHOM est consacré en partie à ces aspects [13]. Aujourd'hui, parallèlement à une évaluation du risque sanitaire, il est possible d'évaluer un risque aux écosystèmes vis-à-vis des substances radioactives pour divers cas d'études. Après avoir défini l'objectif de l'évaluation, établi la liste des radionucléides rejetés, leurs quantités et fréquence de rejets et les écosystèmes récepteurs, l'étape préliminaire revient à établir un modèle conceptuel décrivant les liens entre la source d'émission et les différents récepteurs écologiques pour les principaux niveaux d'organisation : l'écosystème, la communauté, la population et l'individu. Si ce lien n'existe pas (comme dans le cadre des zones Natura 2000, où l'écosystème à protéger n'est pas connecté aux rejets car appartenant à un autre bassin-versant), il n'est pas utile de conduire l'évaluation du risque. S'il existe, cette étape doit s'accompagner de l'établissement des correspondances entre les

composantes écologiques à protéger et les moyens qu'il est possible de mettre en œuvre dans le cadre d'un suivi écologique pour appréhender les effets sur ces composantes (indice de biodiversité d'une communauté végétale par exemple). Ce modèle est décrit de manière plus ou moins raffinée selon l'étape de l'approche graduée. L'hypothèse d'équilibre est retenue en première approche pour l'analyse des expositions au cours de laquelle sont quantifiées toutes les voies d'exposition retenues au sein du modèle conceptuel pour les toxiques d'intérêt (étapes 1 et 2). Elle peut être raffinée en étape 3 en prenant en compte les échelles de temps et d'espace. Les étapes 1 à 3 sont enchaînées si nécessaire, notamment si l'indice de risque est supérieur à 1. Les valeurs *benchmark* sont sélectionnées de manière adéquate en fonction de l'étape : critères génériques en étapes 1 et 2, puis critères spécifiques au contexte d'étude en étape 3.

Plusieurs outils sont déjà développés par l'IRSN, ou en cours de développement pour accompagner l'application d'une telle méthode d'évaluation du risque pour l'environnement associé aux radionucléides :

- EDEN pour le support au calcul dosimétrique nécessaire lors de l'analyse de l'exposition des organismes vivants aux radionucléides [26] ;
- la plate-forme SYMBIOSE pour l'accueil du modèle conceptuel et des bases de données de paramètres associés [27] ;
- ainsi que l'exploitation de la base de données FRED pour construire des relations dose-effet utiles à la déduction de données d'écotoxicité critique pour les radionucléides [28].

Références

- [1] EUROPEAN COMMUNITY, Technical Guidance Document in Support of Commission Directive 93/67/EEC on Risk Assessment for New Notified Substances and Commission Regulation (EC) No 1488/94 on Risk Assessment for Existing Substances, Directive 98/8/EC of the European Parliament and of the Council Concerning the Placing of Biocidal Products on the Market. Part II. Luxembourg, Office for Official Publication of the European Communities, 2003.
- [2] SUTER, G. W., *Ecological Risk Assessment*, CRC Press, Lewis Publishers, Boca Raton, London, New York, Washington DC, 538 pages, 1993.
- [3] ICPR, 2003.
- [4] OUGHTON, D., ZINGER, I. *et al.*, « The Second Thematic EUG Event. Part 1: Ionising Radiation and other Contaminants and Part 2: Contribution to Deliverable D4 on Risk Characterisation. Deliverable 7b: Briefing Notes. », Aix-en-Provence, European Commission, ERICA Project, 2004.
- [5] FASSET, LARSSON, CM (Eds), « Framework for Assessment of Environmental Impact of Ionising Radiation in Major European Ecosystems », Deliverable 6, Euratom, Contract N° FIGE-CT-2000-00102, EC 5th Framework Programme, 2004.
- [6] ERICA, COPPLESTONE, D., BJÖRK, M., GILEK, M. (Eds), « Ecological Risk Characterisation: An Interim Method for the ERICA Integrated Approach », Deliverable 4a, European Commission, 6th Framework, Contract N° F16R-CT-2003-508847, 2005.
- [7] ERICA, « Environmental Risk from Ionising Contaminants: Assessment and Management », Technical Annex I, European Commission, 6th Framework Programme, 2004.
- [8] ERICA, BJÖRK, M., GILEK, M. (Eds), « Overview of Ecological Risk Characterization Methodology », Deliverable 4b, European Commission, 6th Framework, Contract N° F16R-CT-2003-508847, 2005.
- [9] ERICA, GARNIER-LAPLACE, J., GILBIN, R. (Eds), « Derivation of Predicted No-Effect Dose Rates Values for Ecosystems and Their Sub-Organisational Level Exposed to Radioactive Substances », Deliverable D5, European Commission, 6th Framework, Contract N° F16R-CT-2003-508847, 2006.
- [10] FASSET, WOODHEAD, ZINGER (Eds), « Radiation Effects on Plants and Animals », Deliverable 4, FASSET Project Contract FIGE-CT-2000-00102, 2003.
- [11] ERICA, GARNIER-LAPLACE, J., GILBIN, R. (Eds), « Guidelines for the Design and Statistical Analysis of Experiments on Chronic Effects of Radioactive Substances », Deliverable D5, Annex A, European Commission, 6th Framework, Contract N° F16R-CT-2003-508847, 2006.
- [12] ERICA, GILBIN, R., OUGHTON, D. (Eds), « Experiments on Chronic Exposure to Radionuclides and Induced Biological Effects on Two Invertebrates (Earthworm and Daphnid) », Deliverable D5, Annex B, European Commission, 6th Framework, Contract N° F16R-CT-2003-508847, 2006.
- [13] IRSN, « ENVIRHOM – Bioaccumulation of Radionuclides in Situations of Chronic Exposure of Ecosystems and Members of the Public. Progress Report 2 Covering the Period June 2003-September 2005 », *Report DEI-2005-05 DRPH-2005-07*, IRSN, Clamart, 2005.
- [14] GARNIER-LAPLACE, J., GILEK, M. *et al.*, « Assessing Ecological Effects of Radionuclides: Data Gaps and Extrapolation Issues », *J. Radiol. Prot.*, 24: A139-A155, 2004.
- [15] ENVIRONMENTAL AGENCY, COPPLESTONE, D., BIELBY, S. *et al.*, « Impact Assessment of Ionising Radiation on Wildlife », *R&D Publication 128*, Environment Agency, Bristol, UK, 2001.
- [16] USDOE, « A Graded Approach for Evaluating Radiation Doses to Aquatic and Terrestrial Biota », US Department of Energy, Technical Standard DOE-STD-1153-2002, Washington, DC, USA, 2002.
- [17] NCRP, « Effects of Ionising Radiation on Aquatic Organisms: Recommendations of the National Council on Radiation Protection and Measurements », Bethesda, MD, USA, NCRP rep. 109: 1-115, 1991.
- [18] IAEA, « Effects of Ionizing Radiation on Plants and Animals at Levels Implied by Current Radiation Protection Standards », IAEA-TECDOC-332, Vienna, Austria, IAEA, 1992.
- [19] UNSCEAR, « Sources and Effects of Ionizing Radiation », A/AC.82/R.549, Report to the General Assembly with Scientific Annex, United Nations, Vienna, 1996.
- [20] POSTHUMA, L., TRAAAS, T. *et al.*, « General Introduction and History of SSDs. Species Sensitivity Distributions in Ecotoxicology », Boca Raton, London, New York, Washington DC, Lewis: 3-36, 2002.
- [21] RIVM, « Guidance Document on Deriving Environmental Risk Limits », National Institute of Public Health and the Environment, RIVM, 601501012, 2001.
- [22] DUBOUDIN, C., CIFFROY, P. *et al.*, « Effects of Data Manipulation and Statistical Methods on Species Sensitivity Distributions », *Environ. Toxicol. Chem.*, 23(2): 489-499, 2004.
- [23] FORBES, V. E., CALOW, P., « Species Sensitivity Distributions Revisited: A Critical Appraisal », *Hum. Ecol. Risk Assess.*, 8(3): 473-492, 2002.
- [24] PENNINGTON, D. W., « Extrapolating Ecotoxicological Measures From Small Data Sets », *Ecotoxicol. Environ. Safe.*, 56(2): 238-250, 2003.
- [25] GOMEZ-ROS, J., PRÖHL, G. *et al.*, « Estimation of Internal and External Exposures of Terrestrial Reference Organisms to Natural Radionuclides in the Environment », *J. Radiol. Prot.*, 24: 79-88, 2004.
- [26] BEAUGELIN-SEILLER, K., JASSERAND, F. *et al.*, « Modeling Radiological Dose in Non-Human Species: Principles, Computerization and Application », *Health Physics*, 90(5): 485-493, 2006.
- [27] GONZE, M. A., GARCIA-SANCHEZ, L. *et al.*, « SYMBIOSE: A Modeling and Simulation Platform for Environmental Risk Assessment », SPEIR 3, Darwin, Australia, 22-26 July 2002.
- [28] GARNIER-LAPLACE, J., DELLA-VEDOVA, C., GILBIN, R., COPPLESTONE, D., HINGSTON, J., CIFFROY, P., « First Application of Species Sensitivity Distributions to Derive Protection Thresholds for Freshwater and Terrestrial Ecosystems Exposed to Radioactive Substances », *Environ. Sci. & Technol.* 40(20): 6498-6505, DOI: 10.1021/es0606531, Published on Web 09/14/2006.

1.6

Nathalie van MEIR,
Christophe ARDOIS
Laboratoire d'étude
des transferts dans les sols
et le sous-sol

La migration dans les sols d'un élément mobile : évolution du panache de strontium 90 dans l'environnement de Tchernobyl

■ L'IRSN développe depuis 1999, en collaboration avec deux organismes ukrainiens (UIAR⁽¹⁾ et IGS⁽²⁾), un programme de recherches dédié à l'étude de la migration de radionucléides dans un sol sur un site expérimental réel. Ce site est situé dans la zone d'exclusion (à 2,5 kilomètres à l'ouest du réacteur n° 4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl). Il est organisé autour d'une tranchée peu profonde contenant essentiellement du sable contaminé par des particules de combustible nucléaire et se situe pour partie en zone insaturée, pour partie en zone saturée.

■ La mise en place d'un équipement adapté au niveau de la tranchée, de la zone insaturée et de l'aquifère a permis d'acquérir l'ensemble des paramètres influant sur la migration. Le modèle élaboré intégrant le terme source

(dissolution des particules de combustible), les interactions des radionucléides avec les composants du sol et leur convection et dispersion dans les deux zones saturées et insaturées ont permis de simuler le panache de contamination du strontium 90.

■ Cette simulation montre qu'après vingt ans le panache de strontium s'étire sur 20 m à partir de la tranchée. Ce résultat est cohérent avec les analyses de strontium 90 réalisées régulièrement. La reconduction jusqu'en 2008 de l'accord de collaboration permettra de préciser les conditions du transport en conditions insaturées en particulier en régime transitoire (hydraulique et chimique) et d'étudier le transport de certains éléments transuraniens comme le plutonium.

- (1) UIAR : *Ukrainian Institute of Agricultural Radiology* (Institut ukrainien de radio-écologie agricole).
(2) IGS : *Institute of Geological Sciences* (Institut des sciences géologiques).

1.7

Mireille ARNAUD,
Sabine CHARMASSON
Laboratoire d'études
radioécologique du milieu
continental et marin

CARMA : conséquences des apports rhodaniens sur le milieu littoral associé. Cas des événements extrêmes

■ Les apports du Rhône au niveau du golfe du Lion structurent fortement les écosystèmes de la zone côtière tant des points de vue biologique et hydrologique que sédimentaire. Les apports solides du Rhône, notamment la charge sableuse, constituent un paramètre majeur de contrôle du bilan sédimentaire côtier et donc de l'évolution du trait de côte. Les particules les plus fines fixent préférentiellement les contaminants issus de l'agriculture et des rejets industriels et urbains. La majeure partie de ces apports de matériel fin se dépose en périphérie de l'embouchure par des fonds de l'ordre de 30 à 80 m dans une zone appelée « pro-delta ».

■ Des études récentes ont montré que les flux de sable et de particules fines, et par voie de conséquence les flux de contaminants associés, se font essentiellement durant les périodes de crues du fleuve (thèse de B. Rolland). Les tempêtes du large accompagnées de houle sont des événements extrêmes importants à étudier dans le cadre de la gestion de la zone côtière.

L'agitation liée à ces houles et les courants importants qui peuvent être induits près de la côte par le vent soufflant en tempête peuvent déstabiliser les dépôts sédimentaires, éroder les plages de manière parfois spectaculaire et remettre en suspension les sédiments fins, et les contaminants piégés, jusqu'à des profondeurs qui peuvent atteindre une cinquantaine de mètres.

■ Cette problématique est d'autant plus à l'ordre du jour que les années 2002 et 2003 ont été marquées par des crues records, tandis qu'on a compté sept tempêtes avec une houle supérieure à 3 m pendant la période d'octobre 2003 à avril 2004. Les travaux récents sur le changement climatique en Méditerranée effectués par Météo France indiquent de plus qu'on semble se diriger vers des hivers beaucoup plus doux avec une réduction des épisodes de mistral et une augmentation des tempêtes au large. La montée du niveau marin irait également dans le sens d'une aggravation des crues dans les régions très plates telles que la Camargue.

■ L'objectif principal de CARMA est la compréhension du fonctionnement hydrosédimentaire de la région sous l'influence des apports rhodaniens, en mettant l'accent sur les conséquences des crues et des tempêtes⁽¹⁾ sur les profonds remaniements du littoral et sur le devenir des particules fines qui piègent la matière organique et les contaminants, notamment les radionucléides. Les points forts de ce projet sont la mise en œuvre d'une instrumentation performante dans le débouché du Rhône grâce à des courantomètres doppler et des altimètres acoustiques (une première), ainsi que le développement de la modélisation qui lui est associée.

■ Un système de mesures sera mis en place pour atteindre cet objectif. Il permettra de réaliser un suivi fin du système sédimentaire afin de caractériser sa réponse aux crues et aux tempêtes. Le dispositif expérimental sera basé sur le suivi en continu de paramètres clés, sur la période de six mois correspondant au premier cycle automne-hiver du projet, comme les apports du fleuve, les courants, la turbidité et le niveau sédimentaire avec des interventions ponctuelles complémentaires pour des mesures ciblées (granulométrie, bathymétrie). Un point important pour le succès de ces mesures sera la modélisation réalisée en temps réel pendant la période d'observation, qui permettra alors

de sélectionner les zones à explorer. Finalement, les mesures permettront de qualifier et de valider la modélisation numérique qui pourra être utilisée de manière prospective, notamment pour la gestion du littoral.

■ L'enjeu de ce projet, qui s'inscrit dans le cadre des études sur les conséquences du changement climatique, explique l'intérêt des différents organismes financeurs. L'IRSN y apporte un savoir-faire et des compétences reconnues, notamment dans l'utilisation des radionucléides comme traceurs des grands phénomènes naturels. Ce projet interrégional contribue ainsi au programme EXTREME de l'IRSN qui porte sur l'étude des événements extrêmes, notamment sur la redistribution des stocks de radionucléides naturels et artificiels.

■ **Nos partenaires scientifiques :**

■ Pôle d'océanographie côtière de l'Observatoire Midi-Pyrénées (Laboratoire d'aérodynamique/LEGOS), Toulouse

■ IRSN – Laboratoire d'études et de recherche en milieu marin et continental

■ CEREGE, Aix-en-Provence

■ **Nos partenaires industriels :**

■ Noveltis, Toulouse

■ Adhoc Vision, Marseille

■ InVivo Environnement, La Ciotat

(1) Programme financé par les régions Midi Pyrénées et PACA, en cours de labellisation au pôle mer PACA avec demande de financement complémentaire auprès de l'Agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse et du Fonds européen de développement régional (FEDER).

1.8

Fabrice LEPRIEUR
Laboratoire de veille
radiologique de
l'environnement

Le Réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement

■ Instauré par l'article R.1333-11 du Code de la santé publique et l'arrêté du 27 juin 2005, le Réseau national répond à deux objectifs majeurs :

■ assurer la transparence des informations sur la radioactivité de l'environnement en mettant à disposition du public les résultats de la surveillance de la radioactivité dans l'environnement et des informations sur l'impact sanitaire de l'industrie nucléaire en France ;

■ poursuivre le développement d'une politique qualité pour les mesures de radioactivité dans l'environnement, par l'instauration d'un agrément des laboratoires, délivré par arrêté conjoint des ministres chargés de la Santé et de l'Environnement.

Le Réseau national est développé par l'IRSN sous l'égide de l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) en coordination avec la Direction de la prévention des pollutions et des risques (DPPR) et les acteurs du réseau ainsi que des représentants des principaux ministères, des agences sanitaires, des industriels du secteur nucléaire, des associations de protection de l'environnement et des consommateurs.

■ Mis en ligne le 12 juin 2006, le site Internet du Réseau national (www.mesure-radioactivite.fr) est le point d'entrée unique pour accéder facilement et rapidement à toutes les informations relatives au Réseau : objectifs, organisation et acteurs, agréments des laboratoires, campagnes d'intercomparaison, résultats des mesures ou encore éléments d'information sur la radioactivité.

■ L'ouverture de ce site s'inscrit dans une démarche de transparence visant à mieux informer le public à partir de données de mesures nombreuses et diversifiées.

Dans le cadre du comité de pilotage et des orientations générales retenues, l'IRSN a procédé en 2006 aux consultations nécessaires en vue d'élaborer un cahier des charges fonctionnel pour la création du système d'information du Réseau national, qui comportera à terme tous les outils de gestion des données (centralisation, traitement, archivage, valorisation) et de mise à disposition sur Internet. L'aboutissement de la phase de spécification de ce projet est prévu pour le deuxième semestre 2006.

1.9

Christophe DEBAYLE
Laboratoire de veille
radiologique de
l'environnement

Présence de radiopharmaceutiques dans les effluents urbains

■ L'IRSN réalise depuis plusieurs années des prestations spécifiques sur les eaux usées de certaines agglomérations françaises. Ces expertises ont d'abord mis en évidence la présence dans les stations d'épuration de radionucléides utilisés en médecine nucléaire, principalement l'iode 131 et le technétium 99 métastable, grâce à des balises installées à l'arrivée des eaux usées (réseau TÉLÉHYDRO). Parallèlement à ces expertises faites à la demande de clients privés, l'IRSN a été chargé par l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) d'étudier l'impact de ces effluents sur la santé des travailleurs et du public.

■ Une première étude a confirmé l'origine des radionucléides présents dans les stations d'épuration des villes de Toulouse et de Tours : des services de médecine nucléaire des hôpitaux. Une seconde étude a

permis d'évaluer l'exposition interne et externe attribuable à l'iode 131 et au technétium 99 métastable dans les réseaux d'assainissement et les stations d'épuration. Elle démontre notamment qu'en dépit de concentrations ponctuellement importantes, l'exposition à ces effluents n'engendre pas de dépassement de la dose efficace admissible pour le public du fait des courtes périodes physiques de ces radionucléides et des durées d'exposition limitées.

■ Fort de ces études et s'appuyant sur un réseau TÉLÉHYDRO modernisé, l'IRSN propose dorénavant un service performant aux stations d'épuration et aux hôpitaux désireux d'obtenir des mesures en continu ou ponctuelles de leurs effluents.

En quelques dates

Soutenances de thèses et autres faits marquants

3 novembre 2005

■ Une nouvelle version du code de calcul ASTRAL a été mise en service. Ce code, développé par l'IRSN et cofinancé par EDF, permet de quantifier les transferts d'éléments radioactifs dans les milieux agricole et forestier, dans l'hypothèse d'un accident nucléaire provoquant des rejets atmosphériques.

Décembre 2005

■ Ont débuté les travaux du groupe de travail Mesures du GRNC chimique en collaboration entre l'IRSN (Direction de l'environnement et de l'intervention) et l'INERIS.

Mars 2006

■ Le conseil scientifique de l'IRSN émet un rapport dans lequel il analyse les travaux de

l'IRSN visant à reconstituer les retombées en France de l'accident de Tchernobyl (voir article p.10).

Juin 2006

■ L'IRSN publie son premier bilan radiologique annuel de surveillance de l'environnement.

Juillet 2006

■ L'IRSN publie le document « Radioprotection de l'environnement : synthèse et perspectives » dans la collection « Doctrine et synthèses ». Il présente l'état des connaissances internationales en matière d'évaluation du risque à l'environnement associé à une contamination des écosystèmes par des radionucléides.

10 février 2006

■ **Benoît Rolland** a soutenu sa thèse, « Transfert des radionucléides par voie fluviatile : conséquences sur les stocks sédimentaires rhodaniens et les exports vers la Méditerranée », dans les locaux de l'INSTN au centre CEA de Cadarache.

28 novembre 2006

■ **Émilie Farcy** a soutenu sa thèse, « Étude de l'impact des radionucléides rejetés par les installations nucléaires du Nord Cotentin sur l'huître creuse *Crassostrea gigas*. Analyse de l'expression de marqueurs moléculaires de stress », à l'université de Caen.

2 Recherche sur les accidents

2	Des programmes de recherche sur les accidents pour améliorer la sûreté des installations	70
2.1	Caractérisation de la géométrie d'un cœur dégradé par analyse statistique des tomographies issues des essais PHÉBUS PF	72
2.2	Étude expérimentale du comportement de matériaux de boîtes à gants soumis à un rayonnement thermique	79
2.3	Les enseignements tirés du programme PHÉBUS PF	84
2.4	La recherche et développement sur le risque d'explosion d'hydrogène	96
2.5	Risque de colmatage des filtres des puisards de l'enceinte. Étude des effets chimiques au sein du lit fibreux déposé sur les grilles filtrantes	104
2.6	Physique et métrologie des agrégats : application à l'aérosol de combustion	111
2.7	Modélisation de la dispersion d'un gaz lourd dans un local ventilé	116
	<i>flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash</i>	
2.8	Des surprises sur le comportement de l'iode lors de l'essai PHÉBUS FPT-3	124
2.9	CARINÉA	124
2.10	Étude du comportement du combustible irradié lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire (APRP)	125
2.11	Lancement du logiciel de simulation DRACCAR	125
2.12	Programme MOZART sur l'oxydation par l'air des gaines de crayon de combustible REP	126
2.13	Diffusion à l'international de logiciels accidents graves développés par la Direction de la sûreté des réacteurs	128
2.14	En quelques dates / Soutenances de thèses et autres faits marquants	129

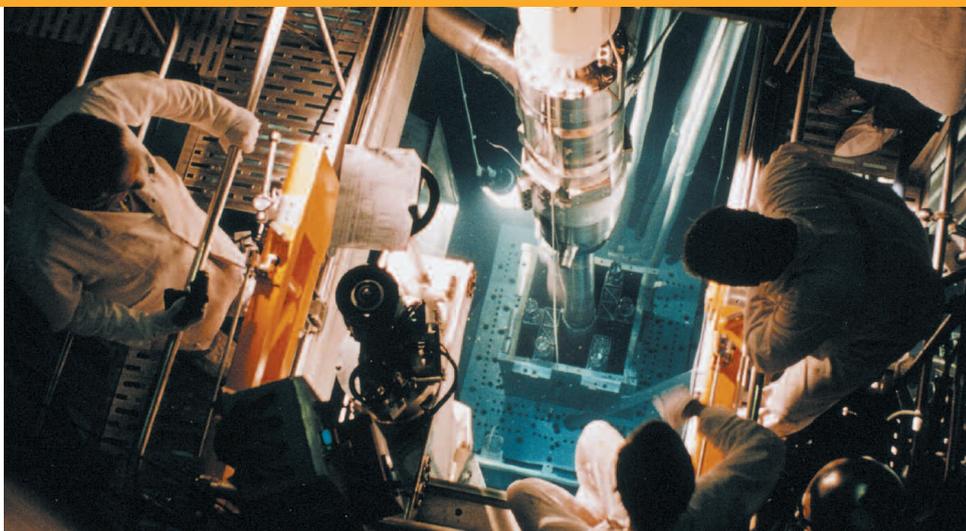
2

Des programmes de recherche sur les accidents pour améliorer la sûreté des installations

La maîtrise des risques présentés par les installations nucléaires repose principalement sur les dispositions techniques prises lors de leur conception et sur les modalités de leur exploitation. Mais la sûreté n'est pas un concept totalement figé en regard de la durée de vie importante de ces installations : le retour d'expérience, le progrès des connaissances et la nécessité, souvent pour des raisons économiques, de faire évoluer les modalités d'exploitation de ces installations peuvent soulever des interrogations en matière de sûreté. Afin d'y répondre, l'exploitant et l'Institut, séparément ou ensemble selon les enjeux, mènent ou participent à des programmes de recherche, le plus souvent dans un cadre international.

La démarche généralement suivie en matière de recherche dans le domaine de la sûreté consiste à réaliser des études expérimentales à échelle réduite visant à comprendre les phénomènes élémentaires. Les résultats servent à développer des modèles mathématiques qui sont ensuite codés dans des logiciels de simulation utilisés pour réaliser des études de sûreté à l'échelle du réacteur. Lorsque les phénomènes décrits sont multiples et complexes, il peut s'avérer nécessaire de recourir à des expériences globales, parfois conduites dans des réacteurs nucléaires de recherche, pour s'assurer qu'aucun phénomène important n'a été omis au niveau de la modélisation et que les logiciels rendent correctement compte de l'interaction entre les différents phénomènes.

■ **Un accident de fusion de cœur d'un réacteur à eau sous pression** présente une probabilité très faible de se produire, car il suppose la défaillance de plusieurs systèmes de sécurité indépendants. Néanmoins, ses conséquences potentielles en termes de rejets de produits radioactifs dans l'environnement ont conduit l'Institut à lancer d'importants programmes de recherche sur ce thème. L'objectif poursuivi est une meilleure compréhension des mécanismes en jeu afin d'évaluer les mesures à prendre pour prévenir un tel accident ou pour en atténuer les conséquences. Le programme international PHÉBUS PF constitue l'un des programmes de recherche les plus importants au monde menés par l'Institut. De 1993 à 2004, ce programme a donné lieu à cinq essais globaux effectués dans le réacteur PHÉBUS du CEA. Deux articles lui sont consacrés : le premier traite de la modélisation de l'évolution des caractéristiques géométriques d'un cœur de réacteur au cours de sa dégradation. Le second analyse les principaux enseignements tirés du programme, notamment dans l'évaluation des rejets radioactifs dans l'environnement. Le programme PHÉBUS PF a permis notamment des avancées importantes dans la connaissance du comportement de l'iode, qui présente un risque sanitaire majeur dans les heures qui suivent l'accident.



2

Un troisième article fait le point de l'état des connaissances acquises dans l'évaluation du risque d'explosion de l'hydrogène. Ce gaz se forme lors d'un accident de fusion de cœur par réaction chimique entre le métal constituant le gainage des crayons de combustible et la vapeur d'eau. Dans certaines conditions, exposées dans l'article, la combustion de l'hydrogène au contact de l'air présent à l'intérieur de l'enceinte de confinement pourrait donner lieu à une explosion et mettre en péril l'intégrité de l'enceinte, dernière barrière entre les produits radioactifs et l'environnement.

Enfin, un quatrième article dresse une synthèse des résultats obtenus par l'Institut dans les recherches menées sur le colmatage des grilles filtrantes des puisards de l'enceinte de confinement. Un tel colmatage pourrait survenir à la suite de l'accumulation et éventuellement de la dégradation chimique de fibres de calorifuge provenant des zones endommagées. Il pourrait entraîner la défaillance des pompes relevant l'eau contenue dans le puisard et utilisée pour refroidir le cœur et asperger l'enceinte de confinement afin de réduire la pression et rabattre les aérosols radioactifs.

■ **L'incendie est une source de risques importante dans une installation nucléaire**, notamment vis-à-vis du confinement des matières radioactives. C'est pourquoi l'Institut mène des programmes

de recherche sur ce thème. Un premier article traite du comportement d'éléments de boîtes à gants utilisées dans les laboratoires et usines du cycle du combustible et exposés à un flux de chaleur, alors qu'un second dresse l'état des connaissances sur la physique et la métrologie des suies produites par un incendie. La connaissance des flux de chaleur tolérables pour la tenue des boîtes à gants permet d'évaluer leur vulnérabilité en fonction de la puissance du feu et de sa distance. De même, la connaissance de la granulométrie et de la morphologie des particules de suie s'avère indispensable pour développer des modèles de colmatage des filtres situés dans les réseaux de ventilation et assurant le confinement des matières nucléaires en situation d'incendie. L'évaluation des propriétés radiatives des particules de suie est également nécessaire pour quantifier leur impact sur la propagation de l'incendie à l'intérieur d'une installation.

■ Dans les usines du cycle du combustible, la maîtrise du confinement de l'hexafluorure d'uranium nécessite de modéliser le comportement d'un gaz lourd dans un local ventilé. Le dernier article sur ce thème rapporte les travaux effectués par l'Institut en coopération avec l'exploitant pour étudier expérimentalement la dispersion d'un gaz lourd dans un local et la modéliser à l'aide d'un logiciel de calcul multidimensionnel à champs.

Michel SCHWARZ
Direction de la prévention
des accidents majeurs

2.1

Caractérisation de la géométrie d'un cœur dégradé par analyse statistique des tomographies issues des essais PHÉBUS PF

En cas d'accident grave sur un REP⁽¹⁾, les assemblages combustibles sont susceptibles d'être fortement déformés, fragmentés ou même fondus. La géométrie du cœur passe alors d'une configuration essentiellement unidimensionnelle et anisotrope (l'écoulement vertical est favorisé) à une configuration beaucoup plus isotrope favorisant l'existence d'écoulements multidimensionnels.

Pour apporter un soutien aux études de sûreté de l'IRSN, la DPAM⁽²⁾ développe les logiciels de calcul ASTEC et ICARE/CATHARE qui permettent de simuler la dégradation du cœur et son renoyage éventuel en cas de renvoi d'eau dans le cœur.

Exposé du problème

La difficulté de la modélisation est double. D'une part, les phénomènes physiques mis en jeu sont nombreux et très couplés : transferts thermiques, oxydation des métaux, dissolution du combustible, fusion, renoyage, etc. D'autre part, la géométrie du cœur et les échelles de longueur caractéristiques sont variables dans l'espace, évolutives et mal connues. La modélisation physique repose le plus souvent soit sur des techniques de changement d'échelle, soit sur des analyses dimensionnelles. Dans les deux cas, il est nécessaire de connaître précisément certaines grandeurs géométriques caractéristiques telles que la distance entre deux crayons déformés, la taille des crayons ou des fragments, la surface d'échange entre les fragments et le fluide, etc. Pour accéder à ces grandeurs, il est nécessaire d'analyser les images obtenues lors d'essais de dégradation de crayons de combustible. Parmi les différents essais permettant ce type d'analyse (CORA, QUENCH, PHÉBUS PF, CODEX), les essais réalisés dans le réacteur PHÉBUS sont les plus intéressants car le chauffage neutronique permet de ne pas altérer la géométrie réelle des crayons (avec un chauffage électrique, une âme métallique devrait être insérée dans les crayons). De plus, des analyses *post-mortem* approfondies ont été effectuées sur ces essais et l'on dispose d'une base de données d'images très importante.

Dans la suite de cet article, on présente une méthode d'analyse statistique de ces images permettant de déterminer les distributions des tailles des particules et des tailles des porosités dans les grappes de crayons des essais PHÉBUS PF. On propose ensuite une interprétation de ces résultats

(1) REP : réacteur à eau sous pression (tous les réacteurs électronucléaires de puissance fonctionnant en France sont de ce type)

(2) DPAM : Direction de la prévention des accidents majeurs

permettant de mettre en évidence certaines évolutions caractéristiques d'une grappe de crayons au cours de la dégradation. Enfin, on montre comment ces résultats peuvent servir à améliorer les modèles utilisés dans des logiciels de calcul d'accidents graves tels qu'ASTEC ou ICARE/CATHARE.

Analyse statistique des tomographies

Parmi les analyses faites sur la grappe de crayons après essai, des tomographies aux rayons X permettent d'obtenir une cartographie tridimensionnelle de la densité [1]. Grâce au contraste entre les zones vides et les zones denses, il est possible d'identifier le contour des éléments denses tels que les crayons, les fragments et les coulées de matériaux. Le seuil de détection en densité est de l'ordre de 2 à 3 g/cm³. Cela signifie que l'on peut clairement identifier tous les principaux matériaux de la grappe (UO₂, Zr, ZrO₂, Fe, Ag, In, Cd). Cependant, le carbure de bore (B₄C) de la barre de contrôle de l'essai FPT3 est difficilement visible car sa densité est à peine supérieure à 2 g/cm³. La définition spatiale de la mesure est de l'ordre d'environ 250 µm, la taille d'un pixel. On peut donc estimer que la résolution spatiale est de l'ordre de 2 pixels, soit 500 µm. Cela signifie qu'il est difficile d'identifier clairement les gaines, sachant que leur épaisseur initiale est de 600 µm.

En résumé, les tomographies permettent de distinguer toutes les « particules » (crayons, coulées ou fragments) dont la taille est supérieure ou égale à 1 mm, sauf si elles sont en B₄C.

Le premier objectif de notre analyse des tomographies est d'obtenir :

- la distribution des tailles de particules ;
- la distribution des tailles de pores (les espaces vides entre les particules) ;
- la densité de surface des particules (l'aire des particules par unité de volume) ;
- la fraction volumique des particules (ou, de manière équivalente, la porosité).

Le deuxième objectif est d'établir des relations entre ces grandeurs géométriques ainsi que d'étudier l'existence de liens entre les distributions de tailles et l'état de dégradation. Cet aspect sera abordé dans la partie suivante.

La technique d'analyse consiste, dans un premier temps, à transformer l'image initiale (voir un exemple sur la *figure 1*) en une image binaire où les interfaces vide-particule sont clairement identifiées. On procède ensuite à un balayage de l'image pour déterminer les distributions de tailles.

2.1



Figure 1 : Exemple de tomographie (PHÉBUS-FPT-1).



Figure 3 : Identification de l'aire interfaciale. Les pixels d'interface sont marqués en rouge.

Le balayage (pixel par pixel) est fait dans les deux directions principales de l'image. Il est clair que le fait de privilégier ces deux directions induit un biais statistique. Néanmoins, comme il s'agit d'une phase exploratoire, nous n'avons pas cherché à raffiner l'algorithme d'analyse d'image. Nous avons cependant montré qu'il permet d'identifier avec une précision suffisante la géométrie initiale, non dégradée (taille moyenne des particules : 8 mm et taille moyenne des pores : 2 mm). La **figure 2** présente un schéma de principe de la méthode de balayage et un exemple de distribution obtenue.

La fraction du volume (ici la surface puisque c'est une coupe) occupé par les particules est obtenue pendant le balayage en sommant les pixels « pleins ». L'aire interfaciale (ou encore la surface exposée au fluide, par unité de volume) des particules est également obtenue directement pendant le balayage : les pixels situés sur le pourtour des particules sont identifiés et les longueurs des côtés sont sommées pour aboutir au périmètre total d'interface (les coupes étant en 2D, l'estimation de l'aire revient à mesurer un périmètre). Un exemple d'identification d'aire est présenté sur la **figure 3**.

Interprétation

En comparant les résultats obtenus à partir de crayons peu dégradés et ceux obtenus à partir de crayons fortement dégradés, on constate que les distributions deviennent bi-modales dès que les effets de la dégradation sont « visibles » sur les images. À la distribution initiale (**figure 4**) se superpose une autre distribution qui caractérise l'apparition de « perturbations » de plus petite taille. Pour les particules, la taille moyenne initiale est de l'ordre de 8 mm et de 1 à 2 mm pour les perturbations. Pour les porosités, la taille moyenne initiale est de l'ordre de 7 mm et de 1 à 15 mm pour les perturbations, selon les zones considérées.

En comparant les zones haute et basse de la grappe, on constate que les perturbations de taille de particules ont quasiment la même valeur (1 à 2 mm). Cela signifie que les différents processus physiques intervenant au cours de la dégradation des crayons, tels que les coulées de corium fondu, l'éclatement des gaines ou la fragmentation des pastilles, produisent tous des perturbations de taille de particules similaires. Pour ce qui est des porosités, il faut distinguer les zones haute et basse de la grappe. Dans la zone basse,

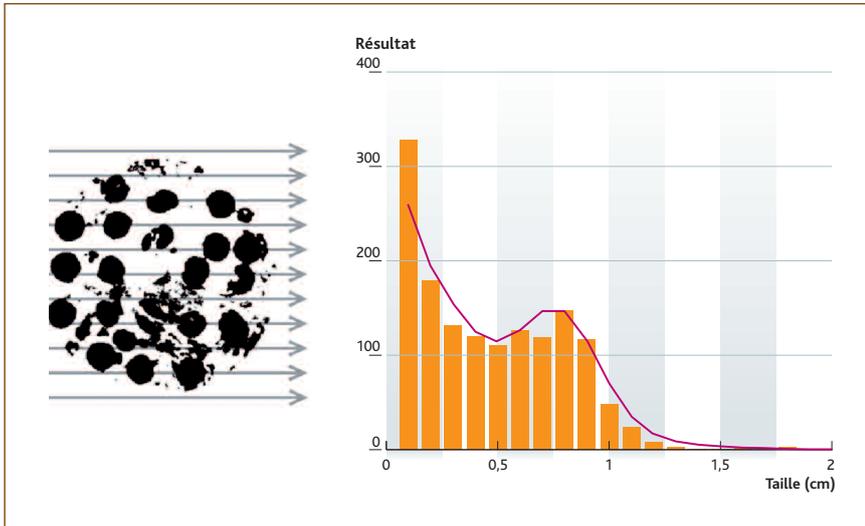


Figure 2 : Schéma de l'algorithme de balayage et distribution obtenue.

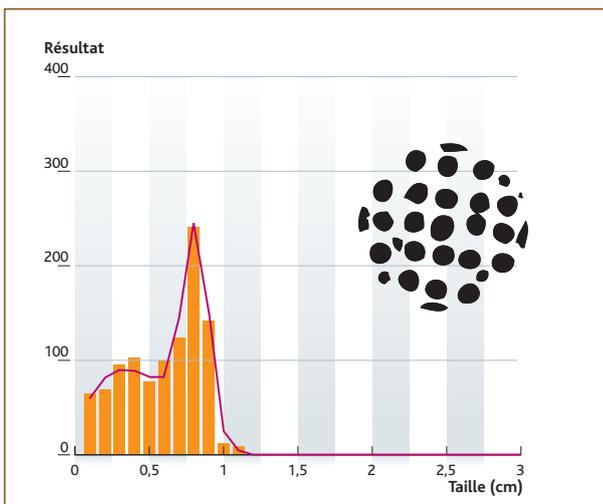


Figure 4 : Exemple de distribution obtenue pour des crayons quasi intacts.

principalement affectée par des coulées de matériaux fondus, les perturbations de taille de porosité sont de l'ordre de 1 à 2 mm. Pour la zone haute, affectée par les phénomènes de déplacement des crayons, d'éclatement de gaine et de dissolution du combustible, les perturbations de taille de porosité ont un spectre plus large, avec des valeurs pouvant dépasser 10 mm. Cela correspond à l'existence de canaux relativement larges et localisés, à travers lesquels le réfrigérant est susceptible de passer facilement. Ce point est particulièrement important pour l'étude du phénomène de renoyage d'un cœur dégradé dans le cas où les opérateurs auraient à leur disposition de l'eau à injecter dans le réacteur.

Nous avons montré qu'il est possible d'obtenir une bonne approximation des distributions de tailles en faisant la somme de deux « fonctions Bêta » (fonctions de distribution classiques pour des variables statistiques dont la variation est bornée). Cela confirme que les phénomènes physiques intervenant lors de la dégradation conduisent à superposer une distribution de perturbations à la distribution initiale, ces deux distributions étant nettement distinctes. Lorsque la dégradation est très avancée (fusion ou

dissolution partielle des crayons), la distribution initiale disparaît et seules subsistent les perturbations. On voit donc tout l'intérêt de la modélisation physique : on peut représenter les crayons comme des « particules » dont la taille est initialement de 8 mm en moyenne et seulement 1 à 2 mm lorsqu'ils sont très dégradés. Rappelons toutefois que ces particules sont étirées dans la direction verticale (non analysée ici), les crayons gardant une structure continue et bien identifiable.

Les distributions bimodales ne se prêtent pas aisément aux analyses statistiques. Il est préférable, au moins pour une première approche, de se ramener à des distributions uniformes, c'est-à-dire de ne considérer que la valeur moyenne et la valeur cumulée des distributions obtenues précédemment (ou, plus précisément, l'intégrale de la fonction de répartition). Sur la *figure 5*, on présente la valeur moyenne des tailles de porosités en fonction de la position dans la grappe de crayons. Le même type de résultat a été obtenu pour les tailles de particules, pour l'aire interfaciale et pour la porosité.

L'étape suivante consiste à déterminer des corrélations possibles entre ces grandeurs moyennes pour améliorer la modélisation du comportement des crayons lors de la dégradation. Ce point est abordé dans la partie suivante.

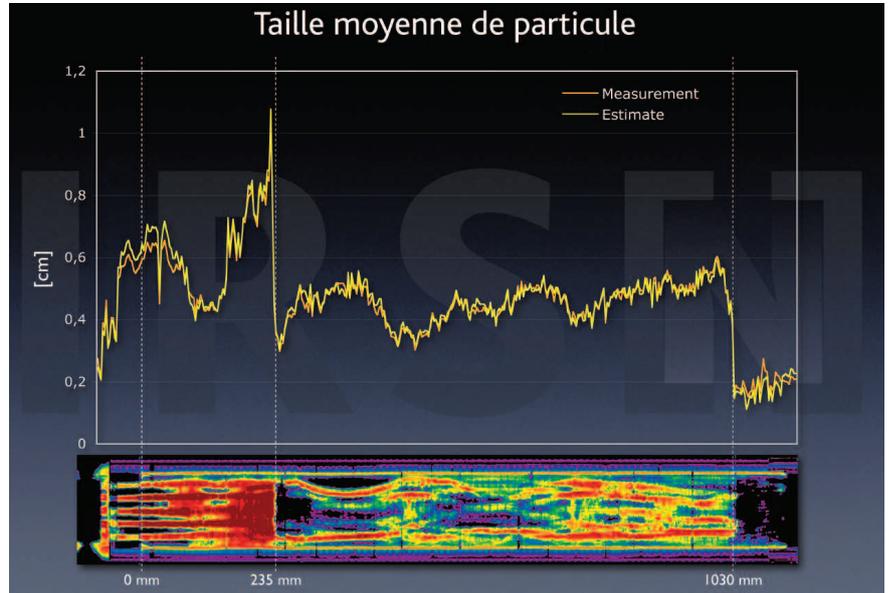


Figure 5 : Évolution de la taille moyenne des particules en fonction de la hauteur dans la grappe (valeurs mesurées et estimées). Les deux courbes sont quasiment confondues.

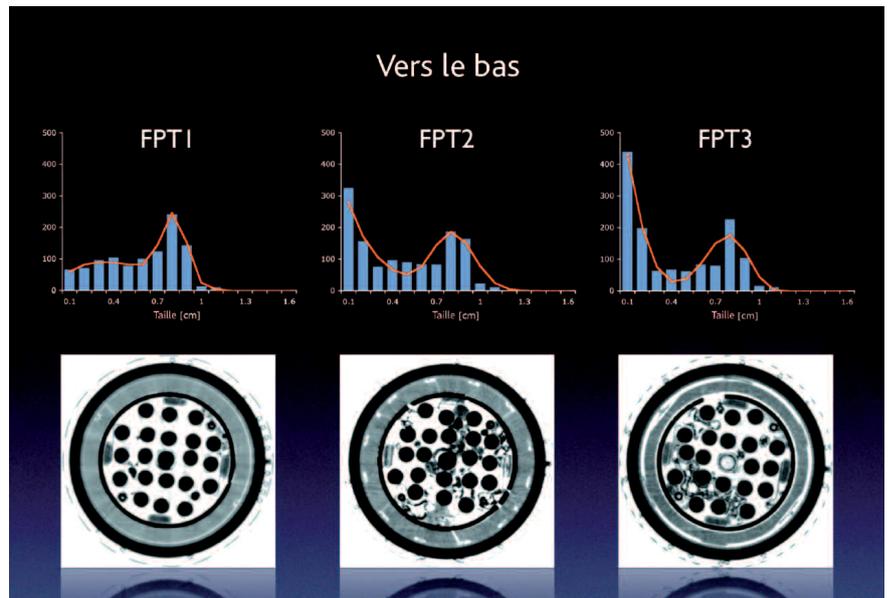


Figure 6 : Comparaison du bas de la grappe pour les essais FPT1, FPT2 et FPT3 (les distributions présentent le nombre de particules (en ordonnée) par classe de taille (en abscisse)).

Comparaisons entre les essais PHÉBUS PF et perspectives pour la modélisation

Un des objectifs principaux de ces analyses d'images est l'amélioration de la description des crayons dégradés dans les modèles et logiciels de calculs utilisés pour simuler les accidents graves. À l'IRSN, le logiciel intégral ASTEC et le logiciel mécaniste ICARE/CATHARE utilisent le module commun ICARE2 [2] pour calculer la dégradation du cœur. La représentation des crayons dans le logiciel ICARE2 repose sur l'hypo-

thèse que les crayons restent cylindriques, avec un diamètre variant au cours de la dégradation en fonction des phénomènes physiques mis en jeu : dilatation, oxydation des gaines, dissolution du combustible, fusion, coulée des matériaux fondus le long des crayons. À partir des analyses d'images, il devient possible d'établir des corrélations entre les grandeurs géométriques moyennes caractérisant le milieu dégradé. À titre d'exemple, on retrouve la relation suivante pour la taille moyenne des particules :

$$l_p = 4 \frac{(1 - \varepsilon)}{A_v}$$

où ε est la porosité, A_v l'aire interfaciale volumique et l_p la taille moyenne des particules. La **figure 5** montre l'évolution de la taille moyenne des particules en fonction de la cote dans la grappe. On peut constater que l'accord entre la mesure (courbe jaune, obtenue à partir des distributions de tailles) et la corrélation (courbe orange) est très satisfaisant. Notons que ce sont surtout les parties haute et basse de la grappe qui sont les plus intéressantes pour l'analyse. En effet, dans la partie centrale se trouvent la cavité et le bain, c'est-à-dire deux configurations singulières du point de vue géométrique et simples à modéliser. C'est donc plutôt sur les zones comportant encore des crayons qu'il est préférable de raffiner l'analyse.

En complément à ces corrélations, l'étude et la comparaison des différents essais PHÉBUS PF permettent de mieux caractériser l'impact de certains phénomènes :

- FPT0 : oxydation importante en haut de grappe et peu de coulées ;
- FPT1 : semblable à FPT0 mais avec du combustible irradié ;
- FPT2 : oxydation limitée, nombreuses coulées ;
- FPT3 : puissance plus faible mais nombreuses coulées dues au B₄C.

À titre d'exemple, on présente, sur la **figure 6**, les tomographies et les distributions de tailles de particules obtenues à une même hauteur dans le bas de la grappe. On peut ainsi vérifier « visuellement » la présence de coulées plus importantes sur les images FPT2 et FPT3 mais, surtout, à l'aide de courbes telles que celles de la **figure 4**, on peut quantifier l'impact de ces coulées sur les tailles de particules et sur l'aire interfaciale.

Au-delà des informations sur l'évolution « géométrique » des crayons dégradés apportées par les analyses précédentes, il est possible à partir de ces résultats d'améliorer la modélisation physique des phénomènes de dégradation. En effet, les principaux phénomènes physiques intervenant au cours de la dégradation nécessitent pour leur modélisation des informations géométriques, dont on peut faire la liste suivante :

Phénomènes physiques	Paramètres de modèles	Données géométriques nécessaires
Thermohydraulique	<ul style="list-style-type: none"> ■ Coefficients d'échange de chaleur ■ Coefficients de perte de charge 	<ul style="list-style-type: none"> ■ Taille des porosités (diamètre hydraulique) ■ Aire interfaciale (périmètre mouillé) ■ Porosité
Transferts thermiques	<ul style="list-style-type: none"> ■ Conductivité effective du milieu 	<ul style="list-style-type: none"> ■ Taille des particules ■ Porosité
Oxydation des gaines	<ul style="list-style-type: none"> ■ Surface de réaction 	<ul style="list-style-type: none"> ■ Aire interfaciale
Dissolution des crayons	<ul style="list-style-type: none"> ■ Surface de réaction ■ Masse de métal liquide 	<ul style="list-style-type: none"> ■ Taille des particules ■ Aire interfaciale

À titre d'illustration, on peut estimer de manière simple le coefficient d'échange de chaleur entre la vapeur et les « particules » par la formule suivante :

$$h = Nu A_v \frac{k_g}{l_v}$$

Où Nu est le nombre de Nusselt local (qui caractérise l'intensité de la convection), A_v l'aire interfaciale, l_v la taille moyenne des porosités et k_g la conductivité de la vapeur. Même si les formulations réellement utilisées dans les modèles sont un peu plus compliquées, elles dérivent de cette formule et l'on voit ici toute l'importance de quantifier précisément les grandeurs géométriques caractérisant le milieu. Cette remarque est également valable pour la plupart des corrélations permettant de calculer des coefficients de transfert de quantité de mouvement et d'énergie.

■ Conclusion

Les essais PHÉBUS PF ont permis de constituer une importante base de données d'images de grappes de crayons dégradés après avoir subi un transitoire représentatif d'un hypothétique accident grave. Ces images résultent des nombreux examens radiographiques effectués dans l'installation. On a entrepris de faire une analyse statistique de ces images afin de mieux caractériser l'évolution de la géométrie des crayons dégradés. Il apparaît que la dégradation se traduit par l'apparition de petites « particules », de tailles de 1 à 2 mm qui s'ajoutent aux « particules » initiales qui ne sont autres que les crayons, dont la taille est nettement plus grande (8 à 9 mm). Ces petites « particules » proviennent de différents phénomènes physiques, principalement la dissolution du combustible, la fragmentation du combustible et les coulées de matériaux. Plus l'état de dégradation est avancé,

plus la proportion de ces petites « particules » s'accroît. L'apparition de ces « petites particules » modifie l'aire interfaciale ainsi que la taille moyenne des porosités à travers lesquelles s'écoule le réfrigérant. Cela a un impact direct sur tous les processus de transfert (masse, énergie, quantité de mouvement) dans le cœur. Il est possible de corrélérer ces grandeurs géométriques entre elles, sous forme de relations assez simples, directement utilisables pour la modélisation. Lorsque ce travail sera terminé, il est prévu d'utiliser ces résultats dans les modèles du logiciel ICARE2, module de dégradation commun aux logiciels de calcul d'accidents graves ASTEC et ICARE/CATHARE. L'analyse détaillée des tomographies et la comparaison entre les différents essais PHÉBUS sont encore en cours. Cette analyse permettra de mieux caractériser l'impact de chaque phénomène physique comme l'oxydation, la dissolution ou la coulée sur la géométrie des crayons.

Références

- [1] JACQUEMAIN, D., BOURDON, S., DE BREMAECKER, A. and BARRACHIN, M. : « PHÉBUS FPT1 Final Report », *Document PHÉBUS PF*, IP/00/479, 2000.
- [2] ORTEGA BERNARDO, M. and FICHOT, F. : « Post-test calculation of FPT1 test using ICARE2 V3Mod0 : an alternative scenario », *Proceedings of ICON-8*, Baltimore (USA), 2000.

2.2

Étude expérimentale du comportement de matériaux de boîtes à gants soumis à un rayonnement thermique

Marc PILLER
Laboratoire d'expérimentation des feux
Jean-Marc SUCH
Cellule projet expérimentation
P. AINE
Areva NC

Le programme expérimental baptisé PICSEL_C, objet de l'étude présentée dans cet article, vise à caractériser du point de vue de leur résistance à un éclairage thermique, des cibles constituées pour des éléments de boîtes à gants utilisées dans les laboratoires et usines nucléaires. Après avoir décrit brièvement le dispositif expérimental, nous présenterons les différents phénomènes de dégradation (événements) observés au cours de la campagne d'essais, puis nous préciserons les objectifs recherchés dans le cadre de la caractérisation des échantillons, à savoir la détermination des instants d'apparition des événements, et l'évaluation des flux de chaleur critiques associés.

Principe de fonctionnement du dispositif expérimental

Les essais ont été réalisés dans la tour Saturne du laboratoire d'expérimentation des feux de l'IRSN, à Cadarache. La tour est une enceinte d'un volume intérieur de 2 000 m³. Le principe du dispositif, présenté sur le schéma de la *figure 1* est de chauffer des équipements à l'aide d'un panneau radiant composé de résistances électriques. Le flux de chaleur radiatif émis par le panneau est tel que l'éclairage (le flux de chaleur) reçu au niveau de la surface de l'échantillon peut atteindre 70 kW/m². Le panneau radiant est utilisé selon trois positions de fonctionnement.

En position 1 (*figure 1*) le panneau est porté à la puissance nécessaire pour obtenir le niveau d'éclairage prédéterminé. L'évolution de la puissance est contrôlée par un opérateur, en observant la courbe de flux enregistrée par un fluxmètre radiatif (MEDTHERM®) à fenêtre en Saphir.

Lorsque la stabilisation du flux radiatif est atteinte, le panneau est déplacé en position 2, position où la quantification et le contrôle du flux vont être réalisés. Le contrôle en phase de pré-exposition de l'échantillon est réalisé à l'aide d'une boîte métallique équipée de sept fluxmètres radiatifs et permet de s'assurer que l'échantillon recevra bien sur sa surface l'éclairage souhaité. Enfin, en position 3, le panneau transmet à l'échantillon le flux de chaleur recherché. Une hotte permet de capter les produits de dégradation qui sont analysés (gaz de combustion, imbrûlés, hydrocarbures, suies, etc.).

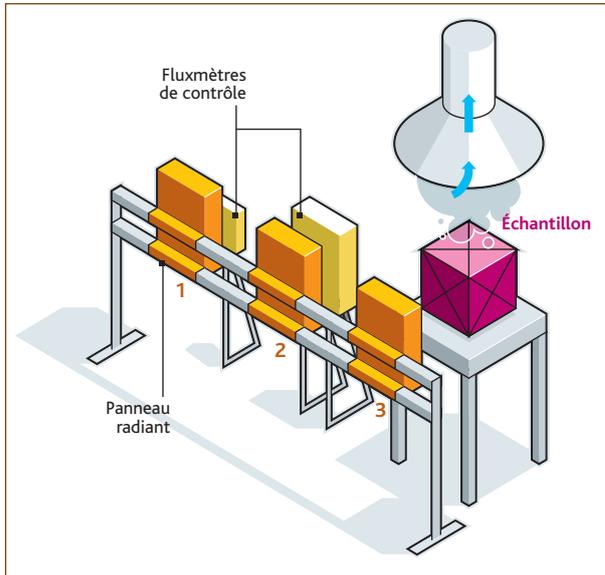


Figure 1 : Schéma de principe du dispositif d'essai.

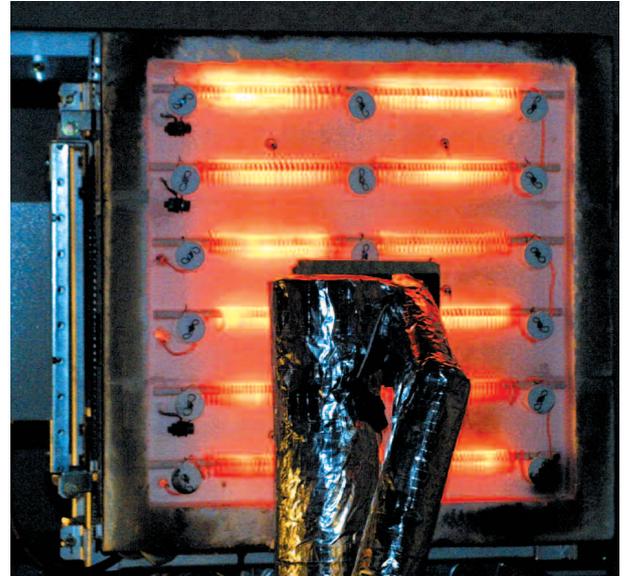


Figure 2 : Panneau radiant électrique.

Tableau 1

Synthèse des événements observés au cours de la campagne d'essais.	
Type d'évènement	Échantillons concernés
Dégagement de fumées	TOUS
Formation de bulles	A, N, O
Distension et gonflement	A, J
Auto-inflammation	A, B, C, D, I, J, P, Q
Coulée de matière	A, K, I, L, N, O
Laminage	F, G
Trou en surface	F, B, C, D, I, G, E
Décollement et chute	K, B, E
Changement de texture	C
Rugosités en surface	H
Rupture du joint	M
Chute des vis de fixation	N
Sortie du joint	O

A : LEXAN	J : PP ⁽¹⁾ + NÉOPRÈNE
B : NÉOPRÈNE souple (0,6 mm)	K : PVC + NÉOPRÈNE
C : HYPALON	L : PP ⁽¹⁾
D : NÉOPRÈNE/HYPALON	M : NÉOPRÈNE (3 mm)
E : PUR ⁽¹⁾ (épaisseur 0,4 mm)	N : LEXAN + JOINT VITON
F : PVC (épaisseur 0,2 mm)	O : LEXAN + JOINT NITRILE
G : PUR ⁽¹⁾ (épaisseur 0,18 mm)	P : NITRILE + PP ⁽¹⁾
H : PVC (3 mm)	Q : NITRILE + PP ⁽¹⁾ + PVC
I : PE ⁽¹⁾ + NÉOPRÈNE	

(1) : PUR = Polyuréthane ; PP = Polypropylène ; PE = Polyéthylène.

Pendant cette phase de dégradation des échantillons, un observateur relève les phénomènes physico-chimiques qui apparaissent au cours du temps. Cette description des processus de dégradation, essentiellement visuelle, est étayée par des mesures physiques comme la perte de masse de l'échantillon, la concentration des gaz produits et la production de suies. À noter qu'en première approche, l'étude PICSEL_C ne prévoit pas de tester les échantillons soumis à la force de pression due à la dépression régnant dans une boîte à gants, cette force étant plus faible que le poids de la majeure partie des équipements testés. Toutefois, en cas de besoin, une étude expérimentale plus poussée pourra prendre en compte cette contrainte technologique.

Caractérisation des échantillons

Description des phénomènes de dégradation (événements)

Les processus de dégradation de seize matériaux de boîtes à gants ont été décrits et repérés dans le temps selon les niveaux d'éclairage reçus. Ces éléments ont été retenus car ils sont les plus utilisés sur site dans leur catégorie et ont la particularité de constituer un risque de rupture de confinement en cas de dégradation. La liste des matériaux est donnée dans le **tableau 1** (éléments de A à Q). Le **tableau 1** ci-contre synthétise l'ensemble des phénomènes observés (événements) ainsi que la liste des matériaux concernés, par type d'évènement. Par exemple, au vu de ce tableau, le LEXAN^(A) et le polypropylène^(J) ont fait l'objet d'une distension et d'un gonflement au cours de leur dégradation.

Il convient de noter que les objectifs de la caractérisation se limitent

à mesurer des instants d'apparition d'évènements observés, sans pour autant considérer que l'apparition de ces évènements coïncide avec la perte d'étanchéité de la boîte à gants.

Étude de l'influence du flux incident sur l'instant d'apparition des évènements

La première démarche en termes de caractérisation a été l'étude de l'influence du flux incident sur l'instant d'apparition des évènements. Pour ce faire, il a été élaboré, à partir des observations, des graphes donnant les instants d'apparition des évènements en fonction du flux incident (*voir nomenclature ci-contre*).

À titre d'exemple, deux graphes associés à deux matériaux sont donnés en *figure 3*. Chaque graphe comporte les courbes donnant l'instant d'apparition t_a des évènements observés lors de la dégradation, en fonction de l'éclairement E (flux radiatif reçu) au niveau du matériau.

Ces graphes constituent des abaques uniques et spécifiques de caractérisation, associés à des composants réels de boîtes à gants et de fûts de déchets et permettent de mettre en exergue deux constatations. La première est la vérification que plus le flux reçu est important, plus l'instant d'apparition des phénomènes est précoce. On constate également que les meilleures courbes de régressions associées aux points expérimentaux sont des courbes en loi de puissances négatives, où E est fonction de $(1/t_a)^n$. Ce dernier point sera corroboré par la recherche des flux critiques dans le chapitre suivant.

Recherche des flux critiques de dégradation

Dans le but d'évaluer plus finement la résistance des échantillons vis-à-vis d'un rayonnement thermique, les éclairements critiques de dégradation sont recherchés pour chaque matériau. Dans cette étude, l'éclairement critique d'un évènement est défini comme étant l'éclai-

rement minimal à partir duquel apparaît l'évènement recherché au cours de la dégradation. Afin de les comparer, nous avons cherché à évaluer les éclairements critiques de deux façons différentes. D'abord à partir d'une méthode semi-empirique s'appuyant sur un modèle physique (utilisant un modèle de transfert de chaleur par conduction pour déduire des nuages de points expérimentaux une valeur d'éclairement critique), puis par une méthode purement expérimentale utilisant uniquement les résultats d'observation (explicitée au chapitre Éclairements critiques expérimentaux).

Éclairements critiques semi-empiriques (les symboles utilisés sont définis dans le tableau « Nomenclature » ci-dessous)

Nomenclature	
t	Temps, s
T	Température, K
E	Éclairement (flux radiatif reçu) au niveau de l'échantillon, kW.m ⁻²
ρ	Densité, kg.m ⁻³
C	Chaleur spécifique, J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
h	Coefficient d'échange convectif, W.m ⁻² .K ⁻¹
k	Conductivité thermique, W.m ⁻¹ .K ⁻¹
τ	Épaisseur du matériau, m
T	Température ambiante, K
E ^{se}	Éclairement critique semi-empirique, kW.m ⁻²
E ^{se}	Éclairement critique expérimental, kW.m ⁻²

Dans le cadre des transferts thermiques par convection et par rayonnement, la littérature fournit des relations simples permettant de relier les

variables temps, température de surface du matériau, et éclairement [1]. Les hypothèses de base sont les suivantes : le flux thermique dans le solide est monodimensionnel et perpendiculaire à la surface exposée ; la dégradation se déclenche lorsque la température de la surface exposée atteint une valeur qui dépend du matériau ; le matériau est opaque. On suppose également que le comportement de l'échantillon ressemble à celui d'une plaque semi-infinie soumise à un éclairement E constant sur l'une de ses faces et que la réflectivité ainsi que les pertes d'énergie par rayonnement sont négligeables devant E .

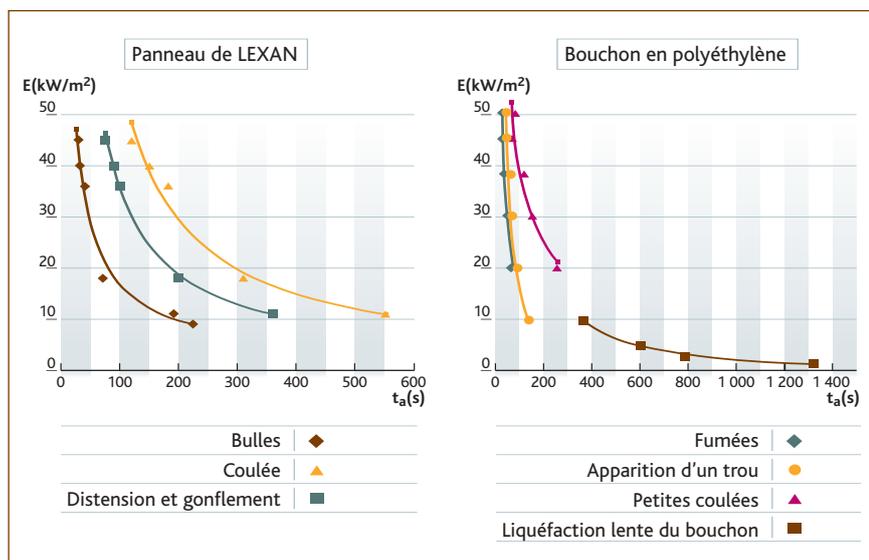


Figure 3 : Exemples de graphes donnant les instants d'apparition des évènements en fonction de E.

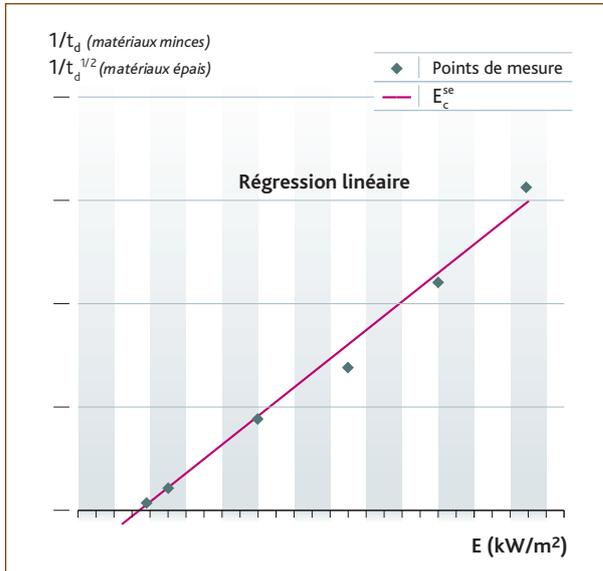


Figure 4 : Détermination des éclaircements critiques semi-empiriques.

Enfin, les valeurs de la conductivité thermique k , de la masse volumique ρ , et de la capacité calorifique c sont supposées constantes. Les équations sont alors :

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

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

Un matériau est considéré mince si son nombre de Biot, $Bi = ht/k$, est inférieur à la valeur 0,1 [2]. Si ce critère n'est pas vérifié, le matériau est considéré épais. À noter que le calcul du nombre de Biot a été réalisé pour tous les échantillons testés. Selon les équations (1) et (2), lorsque la température du matériau atteint la température de dégradation T_d , on obtient, avec $\rho, c, \tau, T_d, T_\infty$ constants, pour l'instant de dégradation t_d :

$$t_d \propto \frac{1}{E} \quad \text{soit } 1/t_d \propto E \quad \text{pour les matériaux minces}$$

$$t_d \propto \frac{1}{E^2} \quad \text{soit } 1/\sqrt{t_d} \propto E \quad \text{pour les matériaux épais}$$

En première approche, on constate que ces équations, donnant l'instant de dégradation en fonction de l'éclairement, sont cohérentes au regard de l'allure des courbes présentées au chapitre *Étude de l'influence du flux incident sur le temps d'apparition des événements*. Toujours selon ces équations, il existe une relation linéaire entre l'éclairement de l'échantillon et l'inverse du temps de dégradation pour les matériaux minces, et l'inverse de la racine du temps pour les matériaux épais. Ainsi, il est possible de déterminer les éclaircements critiques semi-empiriques E_c^{se} , pour chaque échantillon, en reportant sur un graphe les points $1/t_d$ en fonction de E pour les matériaux minces, et $1/t_d^{1/2}$ en fonction de E pour les matériaux épais. En calculant les régressions linéaires associées aux nuages de points ainsi élaborés ($1/t = aE + b$), on obtient l'éclairement critique à l'intersection avec l'axe des abscisses ($E_c = -b/a$). En effet, lorsque E tend vers E_c , le temps d'apparition de l'évènement tend vers l'infini (là où $1/t_d$ et $1/t_d^{1/2}$ tendent vers 0, c'est-à-dire lorsque le temps de dégradation devient infini). Cette méthode est illustrée en *figure 4*.

Éclaircements critiques expérimentaux

En regard des éclaircements critiques semi-empiriques, il est pertinent de déterminer des éclaircements critiques à partir des seules observations expérimentales. Lors des essais, il a été imposé à chaque échantillon une série d'éclaircements de valeurs décroissantes d'un essai à l'autre. Parmi les éclaircements appliqués, on peut distinguer le plus petit éclaircissement de la série conduisant à une dégradation, appelé ici E_1 , ainsi que le premier éclaircissement inférieur à E_1 , ne permettant plus d'obtenir la dégradation considérée, que l'on appellera E_0 .

L'éclairement critique expérimental E_c^{exp} , qui est l'éclairement minimal de dégradation, se situe logiquement entre les deux bornes E_0 et E_1 , soit par approximation :

$$E_c^{exp} = \frac{E_0 + E_1}{2}$$

Tableau 2

Exemples de résultat obtenus sur les flux critiques de dégradation.				
Familles d'échantillon	Exemple	Dégradation	E_C^{SE} (kW/m ²)	E_C^{EXP} (kW/m ²)
Très fragile	Échantillon polyéthylène	Apparition d'une brèche	1	2
Peu résistant	Échantillon PVC	Décollement	4	4
Assez résistant	Échantillon néoprène	Rupture	12,5	17,5
Très résistant	Échantillon PP et nitrile	Auto-inflammation	37	37,5

Analyse des résultats

L'analyse des résultats (*tableau 2*) a permis de montrer que les deux méthodes de détermination des éclaircissements critiques, l'une semi-empirique et l'autre expérimentale, convergent vers des valeurs voisines pour les matériaux fins, mais que la méthode semi-empirique ne s'applique pas aux échantillons épais. En effet, les éclaircissements critiques semi-empiriques déterminés sont pratiquement tous négatifs pour cette catégorie de matériaux. Cette incohérence peut provenir du fait que les hypothèses de base ne s'appliquent pas aux dimensions des échantillons épais.

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

■ Conclusion

L'étude expérimentale PICSEL_C a permis de caractériser le comportement, vis-à-vis d'une agression thermique, de matériaux utilisés dans les laboratoires et usines nucléaires pour confiner des matières radioactives. Ces données sont utilisées pour évaluer les risques de défaillance de ces matériaux et de dispersion des matières qu'ils retiennent lors d'un incendie survenant dans le même local ou dans un local voisin, comme l'embrasement d'une armoire contenant des équipements électriques. Les flux de chaleur sont alors calculés par des logiciels comme ceux développés par l'IRSN (logiciel à zones SYLVIA ou logiciel à champs ISIS) et qualifiés sur les essais réalisés à l'IRSN. La caractérisation de ces cibles a permis en outre de mettre en exergue les points qui peuvent être améliorés sur une boîte à gants et ses équipements, en termes d'éclaircissements critiques de dégradation.

Références

- [1] DRYSDALE, D., *An Introduction to Fire Dynamics*, Second Edition, Wiley.
- [2] SACADURA, J.-F., *Initiation aux transferts thermiques*, Technique et Documentation, Paris, 1978.

2.3

Les enseignements tirés du programme PHÉBUS PF

Depuis l'accident du réacteur n° 2 de la centrale nucléaire américaine de Three Mile Island (TMI-2), le 28 mars 1979, qui s'est traduit par la fusion de la moitié du cœur du réacteur et des rejets de produits de fission limités, un ensemble de programmes expérimentaux de recherche en sûreté ont été réalisés par de nombreux organismes internationaux à travers le monde. De nombreux modèles ont également été développés pour simuler le déroulement de tels accidents, en évaluer les conséquences et apprécier l'efficacité des différentes mesures qui pourraient être mises en œuvre pour en limiter les effets. Le programme expérimental PHÉBUS PF, lancé par l'IPSN en 1988, est l'un des principaux parmi ces programmes de recherche internationaux consacrés aux accidents graves de réacteurs à eau (accidents de fusion de cœur).

Un bon nombre des résultats obtenus lors de ce programme, dont certains importants pour les évaluations de sûreté, étaient inattendus. Ce sont ceux relatifs notamment à la dégradation des crayons de combustible et à l'oxydation de leurs gaines, à l'impact des matériaux constitutifs des barres de commande sur la dégradation du combustible et la chimie des produits de fission, au comportement de l'iode dans le circuit primaire du réacteur et à l'intérieur de son enceinte de confinement. L'analyse de l'ensemble de ces résultats et leur utilisation dans les études d'évaluation des rejets radioactifs potentiels vers l'environnement en cas d'accident ont permis de dégager un certain nombre d'enseignements [1 ; 2 ; 3 ; 4]. Par ailleurs, les outils de calcul existants permettant de simuler les différents phénomènes physiques intervenant lors d'un accident grave de réacteur nucléaire ont été sensiblement améliorés grâce au développement de nouveaux modèles. Des essais spécifiques à petite échelle ont été réalisés pour comprendre les phénomènes inattendus observés et valider les nouveaux modèles. Une liste des principales incertitudes restantes a été établie à l'issue du programme PHÉBUS PF. Le projet européen EURSAFE – intégré au 5^e PCRD européen – dont l'objectif était de conduire à une évaluation réaliste des rejets possibles dans l'environnement pour une meilleure gestion des risques associés, a conduit à une hiérarchisation des recherches à mener en vue de réduire ces incertitudes. Une partie de ces recherches fait l'objet du nouveau programme international TERME SOURCE [5] lancé conjointement par l'IRSN, le CEA et EDF en 2005. Ce programme comprend une série d'essais analytiques relatifs à la chimie de l'iode, à la dégradation du combustible en présence de carbure de bore, à l'oxydation des gaines sous air et aux cinétiques de relâchement des produits de fission à partir du combustible.

L'objectif de cet article est de résumer les enseignements tirés du programme PHÉBUS PF en rappelant les principaux résultats expérimentaux et l'analyse qui en a été faite, en expliquant comment ces nouvelles connaissances ont été incorporées dans les outils de calcul utilisés dans les analyses de sûreté et en montrant quelques exemples de leur utilisation dans les études visant à évaluer les rejets potentiels vers l'environnement.

Bernard CLÉMENT
Service d'études et de modélisation de l'incendie,
du corium et du confinement

Nathalie GIRAULT
Laboratoire d'études du corium
et du transfert des radioéléments

Georges REPETTO
Laboratoire d'études et d'interprétation
des essais de dégradation du cœur

Béatrice SIMONDI-TEISSEIRE
Laboratoire d'expérimentation et de mesure
des relâchements accidentels

2.3

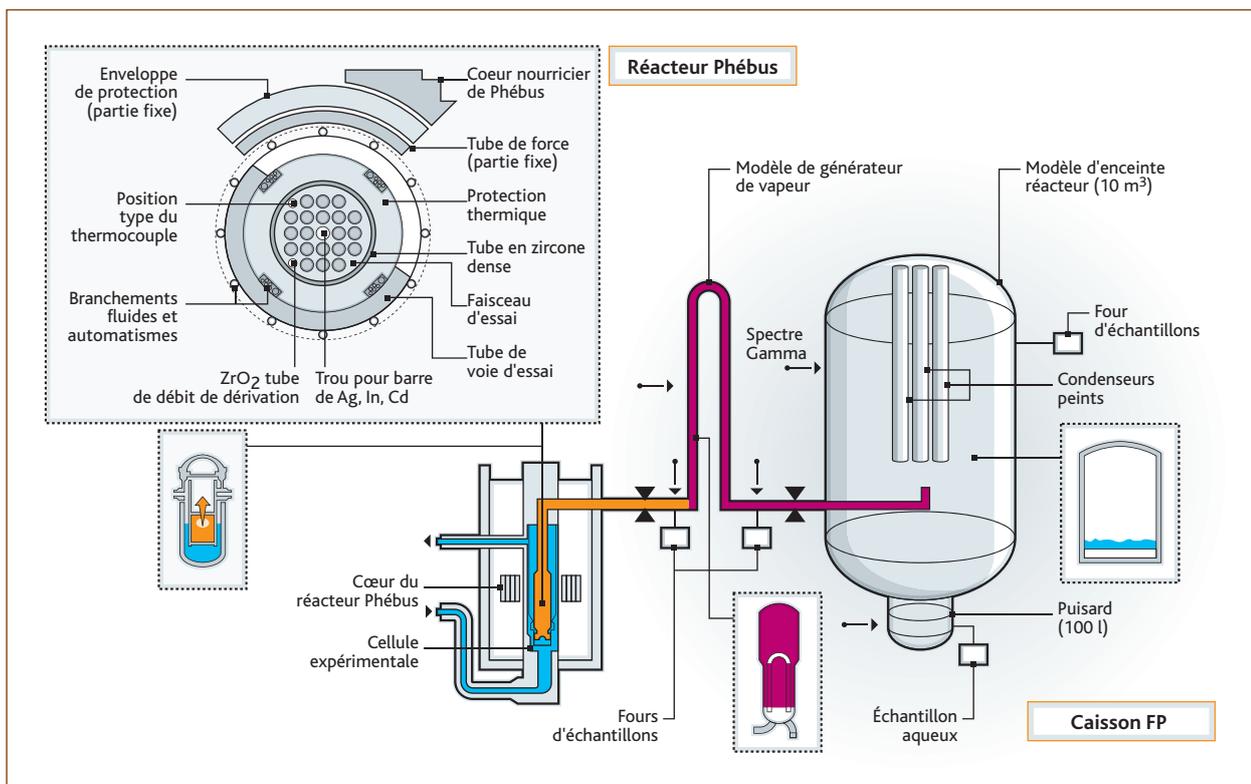


Figure 1 : L'installation PHÉBUS PF.

Description succincte de l'installation et de la grille d'essais

Cinq essais intégraux en pile ont été réalisés durant le programme PHÉBUS PF. L'installation permet d'étudier, dans des conditions expérimentales représentatives de celles d'un réacteur nucléaire à eau sous pression en situation d'accident grave [6 ; 7], la dégradation du combustible jusqu'à la formation d'un bain fondu, la production d'hydrogène, le relâchement et le transport des produits de fission, la physique des aérosols et la chimie de l'iode dans le circuit primaire et au sein de l'enceinte de confinement.

Les différents phénomènes physiques étudiés interviennent :

- dans le cœur du réacteur simulé par 20 crayons de combustible et un crayon absorbant d'un mètre de long ;

- dans le circuit primaire dont le générateur de vapeur est simulé par un tube en U inversé ;
- dans l'enceinte de confinement simulée par un réservoir de 10 m³ comprenant un volume rempli d'eau en guise de puisard, un volume gazeux et des surfaces peintes.

Ces trois zones sont reproduites à l'échelle 1:5000 (en volume) par rapport à un réacteur nucléaire à eau sous pression de type 900 MWe (*figure 1*).

La grille des essais est détaillée dans le **tableau 1**. Les conditions expérimentales des deux premiers essais étaient identiques hormis la nature du combustible : vierge pour l'essai FPT-0, irradié à 23 GWj/tU pour l'essai FPT-1. Les principales caractéristiques de ces deux essais étaient un débit de vapeur d'eau élevé en entrée du dispositif d'essai permettant de conserver une atmosphère oxydante durant toute la phase d'oxydation des gaines en zircaloy par la vapeur d'eau, l'utilisation d'une barre de commande en argent-indium-cadmium (AIC) comme absorbeur de neutrons, un circuit primaire régulé à 970 K en branche chaude et à 420 K en branche froide, une solution aqueuse acide remplissant le puisard de l'enceinte de confinement et dont la température était maintenue en dessous de celle de la phase gazeuse. Le débit de vapeur d'eau injecté était beaucoup plus faible lors de l'essai FPT-2, conduisant à une phase réductrice (riche en hydrogène) lors de l'oxydation des gaines des crayons de combustible. La solution aqueuse de l'enceinte de confinement était maintenue alcaline et à

une température supérieure à celle de la phase gazeuse, de manière à simuler un puisard évaporant. Les conditions expérimentales de l'essai FPT-3 étaient identiques à celles de l'essai FPT-2, hormis la nature de la barre de commande, le carbure de bore remplaçant l'AIC. Enfin l'essai FPT-4, dont l'objectif principal était d'étudier la cinétique de relâchement des produits de fission peu volatils et des actinides à partir d'un lit de débris constitué de fragments de pastilles de combustible et de gaines oxydées, a nécessité la conception d'un dispositif d'essai radicalement différent des autres essais.

Principaux enseignements sur la dégradation des crayons de combustibles

Oxydation des gaines des crayons de combustibles

La dégradation du combustible débute par l'oxydation des gaines avec un emballement des températures. L'emballement observé lors du premier essai FPT-0 a été plus violent que ce qui avait été prédit par les logiciels de calcul, conduisant à un taux de production d'hydrogène important, au-delà même du dimensionnement des dispositifs de mesure (*figure 2*), et une augmentation de la température jusqu'à une valeur dépassant 2 600 K. Les calculs effectués après l'essai, utilisant les mêmes modèles que ceux des calculs préparatoires et les conditions aux limites réelles de l'essai n'ont pas permis de reproduire les observations. Du fait de l'augmentation brutale de la température,

Tableau 1

Objectifs et conditions expérimentales des essais PHÉBUS PF					
Essai	Objectif principal	Conditions expérimentales			
		Zone combustible	Circuit primaire	Enceinte de confinement	Date
FPT-0	Progression bain fondu & relâchement PF sous vapeur d'eau	Combustible vierge 1 crayon en A/C réirradiation : 9 j.	Pas de condensation de la vapeur d'eau dans le GV	Puisard pH 5	2 déc. 1993
FPT-1	Idem FPT-0 avec combustible irradié	Combustible BR3 irradié à 23 GWj/tU 1 crayon en A/C réirradiation : 9 j.	Idem FPT-0	Idem FPT-0	26 juil. 1996
FPT-2	Idem FPT-1 avec relâchement PF sous mélange riche en hydrogène	Idem FPT-1 combustible BR3 BR3 irradié à 32 GWj/tU	Idem FPT-1 avec effet de l'injection d'acide borique	pH 9, puisard évaporant échantillons de recombinés	12 oct. 2000
FPT-3	Idem FPT-2	Idem FPT-1 avec 1 crayon en B ₄ C combustible BR3 irradié à 24 GWj/tU	Idem FPT-0	pH 5, puisard évaporant échantillons de recombinés	18 nov. 2004
FPT-4	Relâchement PF peu volatils & actinides d'un lit de débris UO ₂ -ZrO ₂	Combustible irradié à 38 GWj/tU pas de réirradiation	Ajout de filtres intégraux en aval du dispositif d'essai Analyses chimiques des échantillons prélevés		22 juil. 1999

il y a compétition entre l'oxydation des gaines, progressant depuis l'extérieur et conduisant à la formation d'une couche d'oxyde, et la dissolution du combustible au contact de la partie encore métallique des gaines en fusion. Ces phénomènes s'interrompent lorsque la couche extérieure d'oxyde de zirconium (ZrO_2) est devenue trop fragile et ne peut plus contenir la couche de métal liquide (phénomène dit de dislocation des gaines). Les modèles utilisés dans les logiciels de calcul pour simuler ces phénomènes sont des corrélations définissant un critère de perte d'intégrité des gaines basé sur la température et l'épaisseur d'oxyde de zirconium. Ces corrélations ont donc dû être revues pour permettre de reproduire l'oxydation des gaines et la production d'hydrogène (*figure 2*) pour les essais FPT-0, FPT-1 et FPT-2 [8].

La cinétique de production d'hydrogène a été quant à elle fortement liée au débit de vapeur injecté dans l'assemblage, conduisant notamment à une période de starvation significative (consommation de la majeure partie de la vapeur d'eau) lors des phases principales d'oxydation du gainage des essais FPT-2 et FPT-3. L'analyse de l'essai FPT-3, réalisé plus récemment, est en cours. Dans l'état actuel des logiciels de calcul, cette phase reste difficile à prédire, et une amélioration de la modélisation, notamment du couplage oxydation-dissolution du combustible-perte d'intégrité de la gaine sera nécessaire.

Dégradation du combustible

Les expériences PHÉBUS PF ont mis en évidence une dégradation plus importante que celles obtenues dans le passé lors d'autres expériences intégrales du même type. Il a été observé, en particulier, que la liquéfaction du combustible et la transition d'une géométrie de type assemblage de crayons vers un bain fondu pouvaient se produire à une température ($2\,600 \pm 200\text{ K}$) bien inférieure au point de fusion de l' UO_2 pur ($3\,100\text{ K}$) [8]. Les dégradations très sévères observées semblent liées à des interactions significatives entre le combustible et les matériaux de structure (gainage en zircaloy principalement), probablement intensifiées par le gonflement du combustible irradié à la suite de la présence de quantités importantes de produits de fission gazeux et volatils, sa fragmentation et son changement de stœchiométrie [9]. Bien que la modélisation détaillée de ces phénomènes reste à développer, les outils de calcul utilisés reproduisent bien l'état final de la dégradation d'un assemblage (*figure 3*), à condition d'imposer une réduction appropriée de la température de relocalisation⁽¹⁾ des crayons combustibles [10].

La sensibilité des paramètres de dégradation (dislocation des gaines et relocalisation du combustible) a été évaluée pour des calculs de l'accident de TMI-2 à l'aide du logiciel de calcul américain MELCOR [11]. Dans cette étude, il a été montré que le comportement du cœur dépendait fortement des hypothèses des modèles de dégradation et des valeurs de leurs paramètres.

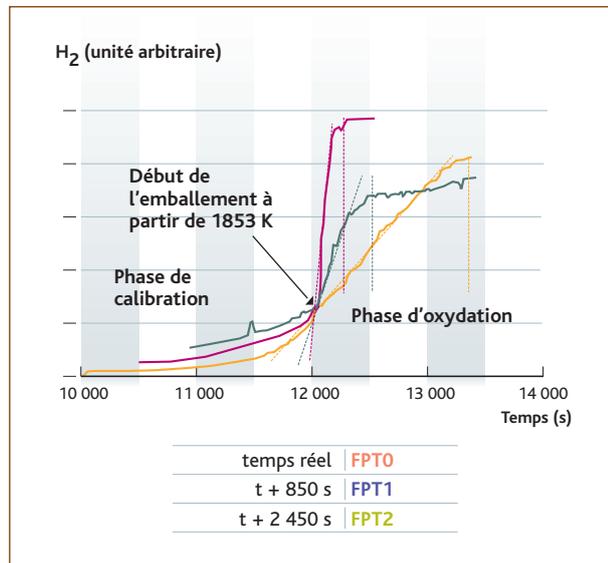


Figure 2 : Cinétique de production d'hydrogène lors des essais PHÉBUS FPT-0, FPT-1 et FPT-2.

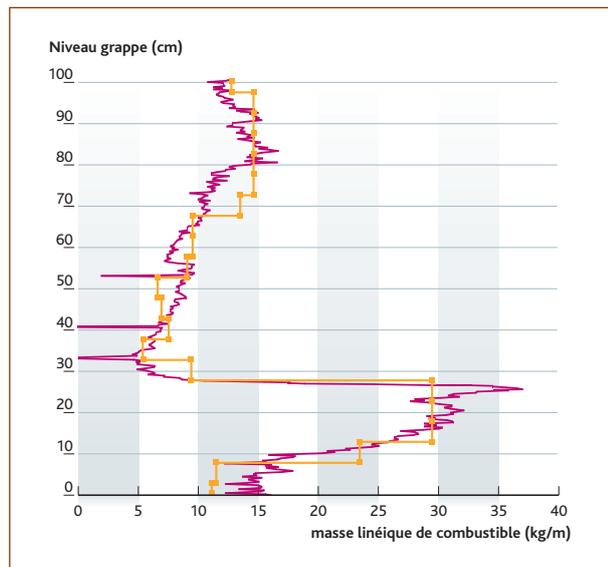


Figure 3 : Exemple de distribution axiale de combustible calculée à la fin d'essai FPT-2 (masse totale mesurée en rouge, calculée avec ICARE2 en jaune – Repetto, 2005).

(1) On appelle « température de relocalisation du combustible » la température à laquelle, dans les logiciels de simulation, on considère que la géométrie de type « assemblage de crayons » n'est plus conservée, et qu'il y a mouvement massif du combustible vers le bas, que cela soit dû à des phénomènes de liquéfaction ou à des écroulements en phase solide.

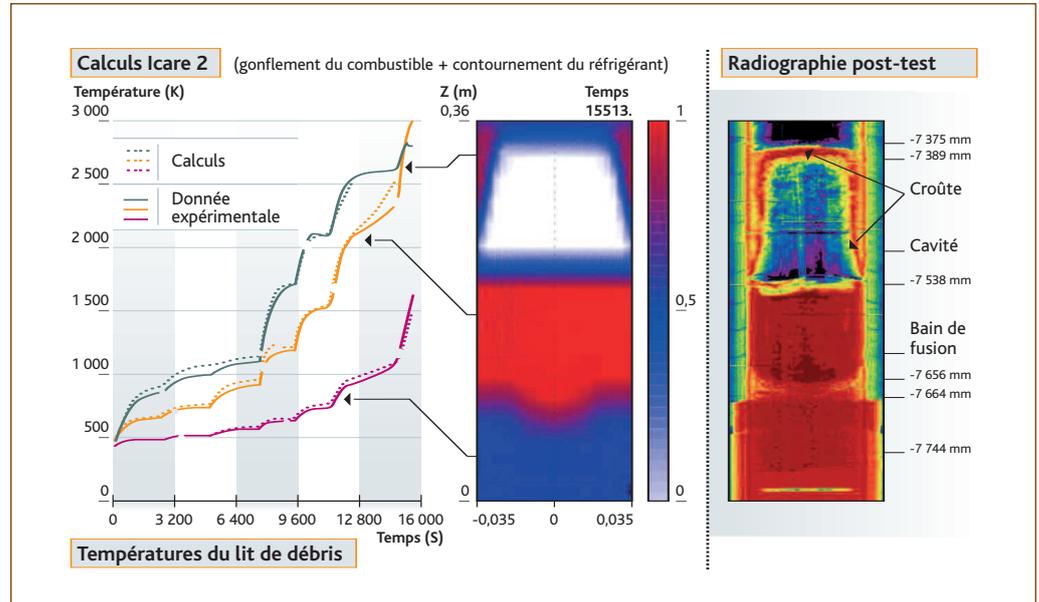


Figure 4 : Évolution des températures (calculées et mesurées) dans le lit de débris FPT-4 et état final de dégradation donné par le code ICARE2 et la radiographie.

L'utilisation d'une température de relocalisation (changement de géométrie) de 2 500 K, déduite des résultats des essais PHÉBUS PF, est désormais la valeur standard pour le logiciel MELCOR, ce qui permet d'obtenir d'assez bons résultats. Les mêmes conclusions et retours d'expérience ont été tirés d'études menées avec les logiciels ICARE/CATHARE et ASTEC développés par l'IRSN.

La dégradation du lit de débris du dispositif FPT-4, y compris la transition du lit de débris vers un bain fondu, a pu être reproduite (figure 4) en supposant un gonflement du combustible [12] provoquant une réduction des porosités au sein du lit de débris et, par conséquent, la redistribution du débit de vapeur vers la périphérie du fait de la réduction des échanges thermiques par convection. Des examens destructifs actuellement en cours sur des fragments de combustible soumis à l'essai pourraient aider à la validation de cette hypothèse.

L'expérience FPT-3 [13] a été réalisée dans des conditions très semblables à celles de l'essai FPT-2, exceptée la présence d'une barre de commande en carbure de bore (B_4C) au lieu d'un absorbant à base d'alliage d'argent, d'indium et de cadmium (AIC). Il s'est avéré cependant que la dégradation s'est passée différemment (dégradation plus précoce, notamment pendant la phase d'oxydation) et que les logiciels de calcul capables de reproduire correctement les résultats de l'essai FPT-2 ne pouvaient pas le faire pour FPT-3 [14]. Quelques hypothèses sur l'effet possible du B_4C ont été formulées, mais elles doivent être confirmées par des expériences à effets séparés prévues dans le programme d'essais BECARRE du programme TERME SOURCE [5] en cours de réalisation à l'IRSN.

Relâchement à partir du cœur

Relâchement des produits de fission

De manière générale, les fractions de produits de fission relâchées du combustible lors des trois essais PHÉBUS PF (FPT-0, FPT-1 et FPT-2) sont similaires. Néanmoins, du fait du plus faible débit de vapeur injecté dans l'essai FPT-2, une fraction non négligeable des produits de fission volatils (Mo, Cs, I et Te)

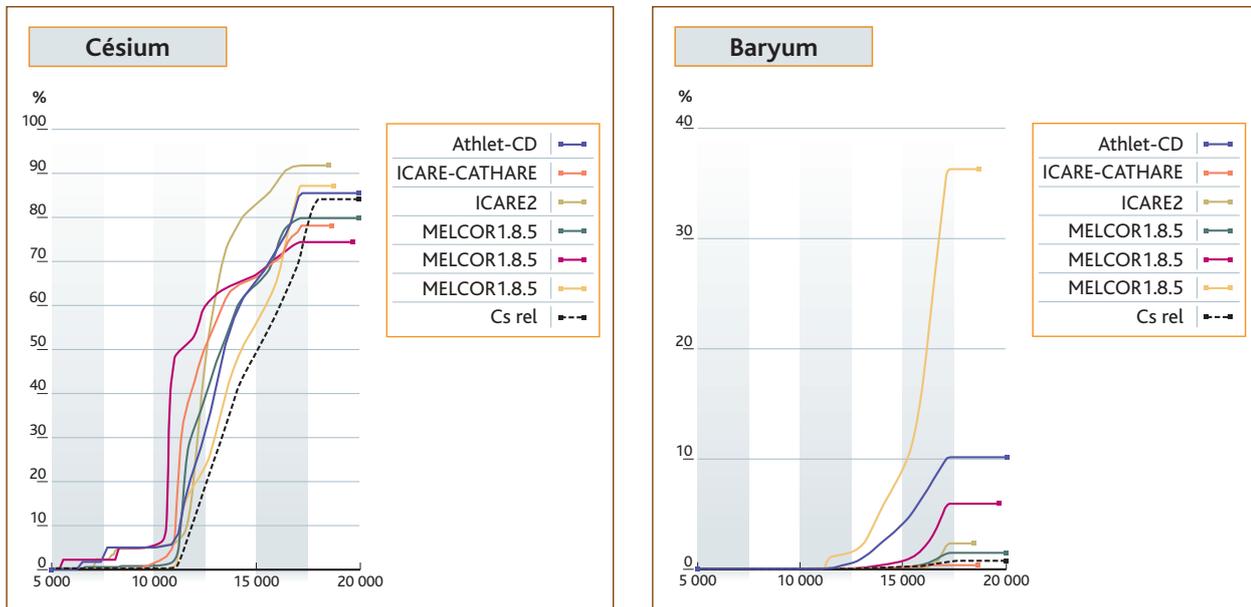


Figure 5 : Cinétique de relâchement du césium (à gauche) et du baryum (à droite) lors de l'essai PHÉBUS FPT-1 telle que prédite par différents codes de calcul (ISP 46 (Clément, 2004a) – Comparaison avec les mesures expérimentales (en pointillés noirs).

se redépose dans la partie supérieure de la grappe combustible et dans la zone non régulée thermiquement située juste au-dessus.

Le relâchement des produits de fission dépend des caractéristiques du combustible (température, degré d'oxydation, taux de combustion) ainsi que de ses interactions potentielles avec les autres éléments constitutifs du cœur à mesure que la dégradation des matériaux progresse. Ces phénomènes ont été clairement mis en évidence dans les essais PHÉBUS PF. Le relâchement des produits de fission volatils est globalement bien prédit par l'ensemble des logiciels de calcul (figure 5) même si certains, notamment ceux basés sur une approche de type CORSOR⁽¹⁾, surestiment leur cinétique de relâchement au début du transitoire de puissance, lors de l'emballement de la réaction d'oxydation des gaines du combustible [15 ; 16]. Les codes semi-empiriques, bien que ne modélisant pas de façon détaillée l'ensemble des processus, mais prenant en compte via des modèles simplifiés les phénomènes les plus influents comme l'accroissement significatif de la diffusion à l'intérieur de la matrice d'oxyde d'uranium lors de son oxydation, calculent de façon satisfaisante les relâchements des produits de fission volatils aussi bien pour les essais analytiques que pour les essais intégraux de type PHÉBUS. C'est le cas par exemple du module ELSA du logiciel ASTEC.

À noter que dans le cas particulier de l'essai FPT-0, caractérisé par un combustible très faiblement irradié, le relâchement précoce des produits de fission volatils observé ne peut s'expliquer que par la dissolution partielle du combustible dès la phase d'oxydation des gaines [17]. La prédiction par les logiciels semi-empiriques de la cinétique de relâchement des produits de fission semi-volatils et peu volatils, fortement

dépendante des interactions chimiques, est beaucoup moins satisfaisante (figure 5). Néanmoins, une meilleure compréhension des phénomènes régissant leur relâchement a pu être obtenue grâce à l'utilisation de modèles mécanistes [17] tels que ceux inclus dans le logiciel MFPR. Ces connaissances devront par la suite être intégrées dans les logiciels de calculs semi-empiriques sous la forme de modèles simplifiés. Le relâchement du baryum lors des essais PHÉBUS réalisés avec une géométrie en grappe est beaucoup plus faible que celui mesuré lors des essais analytiques. La différence a été attribuée aux interactions du combustible avec les matériaux de gainage, comme le zirconium et le fer contenus dans la gaine de la barre de commande, qui entraînent une nette réduction de la volatilité du baryum [18]. Une telle hypothèse est d'ailleurs confirmée par les résultats de l'essai PHÉBUS FPT-4 caractérisé par un lit de débris de combustible et de morceaux de gaines sans matériau de barre de commande. Le relâchement du baryum est plus important durant les premières phases de l'essai, lorsque les matériaux sont encore solides que lors des phases à plus haute température, durant lesquelles s'amorce la liquéfaction et s'initient les interactions entre les débris de combustible et les fragments de gaines oxydées. Ainsi, les résultats des essais PHÉBUS PF mettent clairement en évidence le lien entre la cinétique de relâchement des produits de fission et les phénomènes de dégradation du combustible.

(1) Les modèles de type CORSOR utilisent des corrélations de relâchement en fonction de la température issues de résultats d'expérimentations à petite échelle.

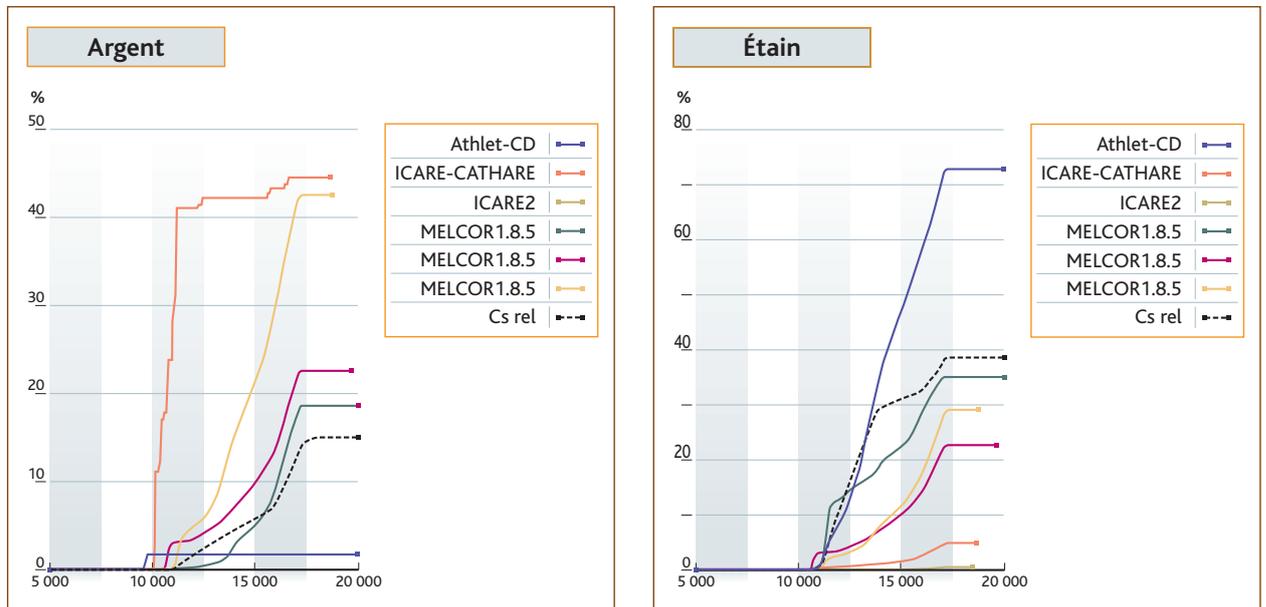


Figure 6 : Cinétique de relâchement de l'argent (à gauche) et de l'étain (à droite) lors de l'essai PHÉBUS FPT-1 telle que prédite par différents codes de calcul – ISP 46 Clément, 2004a – Comparaison avec les mesures expérimentales (en pointillés noirs).

Émission d'aérosols de matériaux de structure

L'émission d'aérosols de matériaux de structure est importante à double titre :

- la masse des matériaux de structure est en excès par rapport à celle des produits de fission. Ces matériaux constituent une part importante des aérosols circulant dans le circuit primaire et relâchés dans l'enceinte de confinement. Elle est majoritaire dans le cas des deux premiers essais ; plus faible pour FPT-2 (35 %). La masse totale d'aérosols présente dans l'enceinte de confinement au cours du temps ainsi que la cinétique de dépôt de ces aérosols dépendent donc de cette émission ;
- certains d'entre eux interagissent avec les produits de fission, comme l'argent avec l'iode, et peuvent ainsi modifier leur comportement et leur volatilité.

L'émission des éléments constitutifs des barres de commande en argent-indium-cadmium était souvent mal calculée par la plupart des logiciels de calcul [15], en particulier celle de l'argent (figure 6). Les processus majeurs gouvernant l'émission de ces éléments sont à ce jour relativement bien compris et des modèles ont été développés et introduits dans certains logiciels tels que ICARE et ASTEC ou vont l'être très prochainement dans MELCOR. Néanmoins, il reste à mieux prendre en compte l'influence des processus de dégradation du crayon absorbant sur l'émission de ces éléments constitutifs. L'émission d'étain contenu initialement dans le zircaloy des gaines (figure 6) a elle aussi été reconsidérée. Sur la base des résultats expérimentaux PHÉBUS, un nouveau modèle a été élaboré prenant en compte un relâchement progressif de cet élément au fur et à mesure de l'oxydation des gaines pendant le transitoire.

Enfin, les modèles d'émission d'uranium, un des autres constituants

majeurs des aérosols émis et transportés dans l'enceinte de confinement, ont été également revus sur la base des résultats expérimentaux de l'essai PHÉBUS FPT-4. Une grande dispersion dans les prédictions d'émission de l'uranium suivant les logiciels de calcul avait été mise en évidence lors des calculs prévisionnels de l'essai démontrant la nécessité d'améliorer les modèles. D'après les calculs, réalisés après l'essai en utilisant les conditions thermiques expérimentales, l'émission d'uranium à partir de la partie inférieure du lit de débris pourrait atteindre 60 g [19]. Cependant, une très large proportion (non mesurée) de cet élément s'est déposée dans la partie supérieure du lit si bien que la fraction calculée d'uranium relâché à partir du combustible est compatible avec la valeur expérimentale, estimée d'après les analyses chimiques des filtres intégraux disposés en aval du dispositif d'essai (environ 11 g, d'après Bottomley, 2005 [20]).

Transport des produits de fission et des aérosols dans le circuit primaire

Deux zones principales de rétention des aérosols et des produits de fission ont été identifiées au cours des essais PHÉBUS PF dans la partie simulant le circuit primaire. Ces zones, où les températures de paroi et de fluide chutent brutalement, sont la portion verticale de la branche chaude située immédiatement au-dessus de la grappe de combustible (refroidissement maximal d'environ 2 000 à 970 K) appelée par la suite « ligne verticale » et la branche ascendante du générateur de vapeur (refroidissement de 970 à 420 K).

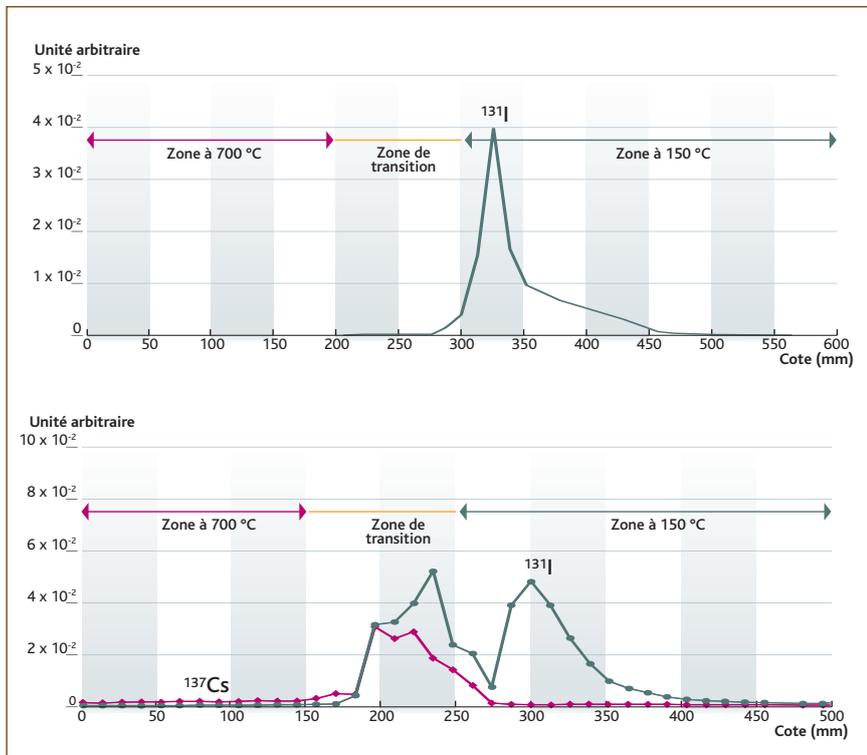


Figure 7 : Profil de condensation des vapeurs de césium (en rose) et d'iode (en vert) dans des lignes à gradient de température entre 970 et 420 K durant la première phase d'oxydation des gaines (en haut) et durant la phase d'échauffement du combustible (en bas).

Lors des deux premiers essais, FPT-0 et FPT-1, la plupart des éléments sont transportés sous forme d'aérosols dans la branche chaude du circuit primaire réglée à 970 K, à l'exception de l'iode, du cadmium et partiellement du césium. Dans ces essais, l'iode et le cadmium se sont déposés principalement en quantité importante à l'entrée du générateur de vapeur par condensation de leurs vapeurs. La masse déposée par unité de temps de ces éléments est constante tout au long de l'essai. Le césium, en revanche, s'est déposé en quantité similaire dans les deux zones à gradient thermique élevé : la portion verticale et l'entrée du générateur de vapeur, compte tenu de sa plus faible volatilité. D'autres éléments enfin, tels que le molybdène et l'argent, moins volatils, se sont déposés principalement dans la ligne verticale. Quelques différences notables ont pu être observées lors de l'essai FPT-2. En particulier, outre les trois éléments cités précédemment (I, Cs, Cd), l'indium et le tellure sont également transportés partiellement sous forme de vapeur à 970 K. Pour chacun de ces éléments, la fraction transportée sous forme vapeur est à peu près constante au cours de l'essai et représente plus de la moitié de la masse totale. Une vitesse de dépôt en branche chaude du générateur de vapeur identique pour ces éléments mais aussi pour le molybdène a été mesurée. Des phénomènes de revaporisation partielle et temporaire des dépôts en branche chaude ont pu clairement être mis en évidence lors de l'essai FPT-2. Ils ont surtout été observés pour le césium après la fin des relâchements et s'expliquent par une baisse de la pression partielle de vapeur du césium dans le fluide. Le tellure semble avoir eu pendant l'essai FPT-2 un comportement spécifique, caractérisé en particulier par une importante fraction déposée dans le circuit primaire en amont du générateur de vapeur, peut-être par chimisorption. Enfin, les différentes formes chimiques de l'iode transportées au cours de l'essai 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 prélèvement, dans une zone où la température chutait de 700 à 420 K.

Au moins deux espèces ont pu être différenciées : l'iodure de césium détecté uniquement après la phase d'oxydation principale des gaines (détection par spectrométrie des éléments Cs et I dans les mêmes proportions) et une deuxième espèce plus volatile non identifiée à ce jour (*figure 7*).

Les analyses les plus récentes du transport des aérosols et des produits de fission dans le circuit primaire lors des essais FPT-0 et FPT-1 ont été effectuées à l'aide du logiciel de calcul SOPHAEROS [21], module du logiciel ASTEC. En général, elles montrent que les calculs décrivent et prédisent de façon satisfaisante le comportement des vapeurs et des aérosols ainsi que les valeurs de rétention globale. Néanmoins, la rétention des produits de fission dans la ligne verticale est sous-estimée tandis que celle dans le générateur de vapeur est surestimée. La sous-estimation des dépôts dans la ligne verticale peut s'expliquer par un écoulement non établi dans cette région où les gradients de température sont importants et où les perturbations de l'écoulement par des effets de géométrie sont non négligeables, favorisant ainsi le transfert de masse vers les parois. La rétention dans la branche ascendante du générateur de vapeur est surestimée d'un facteur 2 environ par la plupart des logiciels de calcul. Si un certain nombre d'hypothèses ont été avancées pour expliquer cet écart [21], et des calculs bidimensionnels de suivi de trajectoire de particules réalisés [22], aucune conclusion définitive n'a été retenue à ce jour.

Pour ce qui concerne la spéciation des produits de fission, il faut noter que lors des essais FPT-0 et FPT-1 le césium est majoritairement transporté sous forme condensée, et ce dès la branche chaude du circuit primaire. Cela montre clairement que l'hydroxyde CsOH n'est pas la forme chimique prédominante, comme il était couramment admis dans le passé. D'après les calculs thermodynamiques, dans les conditions expérimentales des deux premiers essais PHÉBUS PF, la formation de molybdate de césium serait favorisée. Cette espèce est prédite par le logiciel de calcul SOPHAEROS et va être introduite dans les bases de données thermodynamiques d'autres logiciels de calcul comme MELCOR [23]. Pour ce qui concerne l'essai FPT-2, l'analyse en cours des données des tubes à gradient thermiques et des lignes de prélèvement mettent en évidence les difficultés rencontrées dans le calcul des espèces iodées et plus particulièrement la prédiction d'iodure de césium qui n'est pas toujours conforme aux résultats qu'elles que soient les phases de l'essai.

Thermohydraulique et comportement des aérosols dans l'enceinte de confinement

La thermohydraulique dans l'enceinte de confinement de l'installation PHÉBUS est principalement gouvernée par les débits d'injection et de condensation de la vapeur d'eau. Les calculs simplifiés réalisés avec un maillage grossier de l'enceinte sur un ou quelques compartiments repro-

duisent assez bien les mesures thermohydrauliques (température, pression, taux d'humidité, etc.) ainsi que la répartition finale des aérosols [15]. Conformément aux mesures expérimentales, ils confirment que la majeure partie des aérosols a sédimenté sur le fond elliptique de l'enceinte de confinement, le reste ayant été déposé sur les surfaces où se condensait la vapeur d'eau. Dans les calculs, une faible fraction se dépose sur les parois latérales de l'enceinte de confinement lors des deux premiers essais. Les parois sont chauffées pour éviter le phénomène de condensation de vapeur d'eau et respecter le facteur d'échelle surface sur volume. La cinétique et la répartition des dépôts aérosols mesurées lors de l'essai FPT-2 diffèrent quelque peu des essais précédents avec en particulier une cinétique de dépôts plus lente tous phénomènes confondus, une fraction moins importante déposée sur les surfaces condensantes, mais plus importante sur les parois latérales de l'enceinte. Ces différences peuvent s'expliquer à la fois par un débit d'injection/condensation de la vapeur d'eau plus faible dans l'enceinte et par une taille et une densité moyenne de particules plus faibles.

La masse d'aérosols retenue à la fin des essais PHÉBUS sur le fond elliptique de l'enceinte et sur les surfaces condensantes est généralement bien calculée par les logiciels point utilisant les modèles classiques de dépôts d'aérosols par sédimentation et diffusiophorèse [15 ; 5 ; 24], bien que pour certains d'entre eux la fraction respective d'aérosols déposés suivant ces deux mécanismes ne soit pas tout à fait exacte. Un nouveau modèle de dépôt des particules par diffusion sur les parois latérales de l'enceinte, basé sur une description de l'amortissement de la turbulence dans la couche limite aux abords de la paroi, permet de reproduire la masse d'aérosols déposée sur ces surfaces [25]. Suivant les essais, la masse calculée varie entre 2 et 4 %. Elle est plus importante pour l'essai FPT-2, conformément aux mesures expérimentales. En résumé, les logiciels de calcul point prédisent de manière satisfaisante la thermohydraulique dans l'enceinte de confinement [26] ainsi que la physique des aérosols au cours des essais PHÉBUS.

La chimie de l'iode dans l'enceinte de confinement

Un des résultats les plus inattendus et ayant un impact important pour la sûreté est la mise en évidence expérimentale très tôt durant les essais PHÉBUS FPT-0-1-2 [27] d'une petite fraction d'iode volatil à basse température dans l'enceinte de confinement. En se basant sur des mesures expérimentales d'iode dans les capsules gazeuses du circuit primaire, l'iode gazeux mesuré dans l'enceinte de confinement à cet instant a été interprété comme provenant du circuit, contrairement aux prédictions des modèles de thermochimie qui prévoyaient que l'iode se trouvait sous une forme condensée (CsI) à la sortie du circuit. Des limitations d'ordre cinétique dans les réactions chimiques en phase

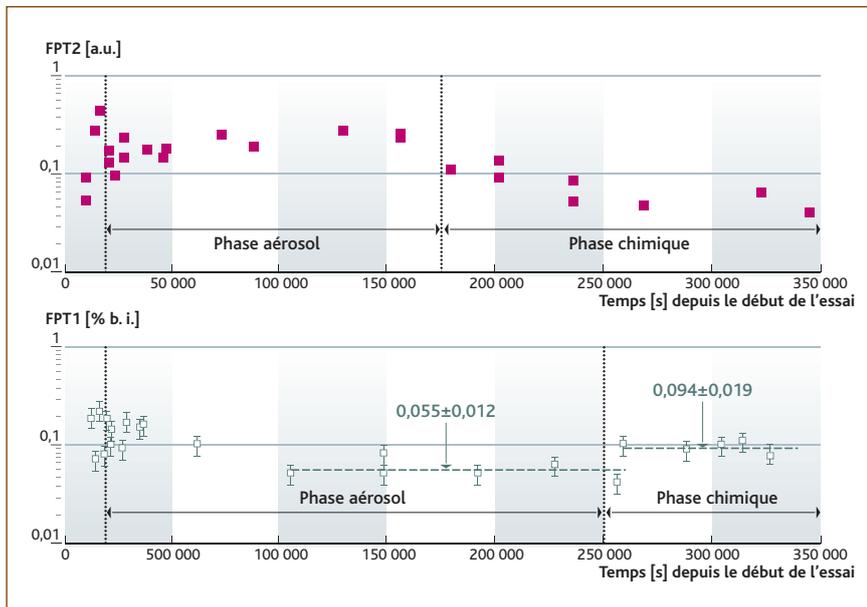


Figure 8 : Évolution de la concentration (% de l'inventaire total dans le combustible) en iode volatil dans l'enceinte de confinement lors des essais FPT-1 et FPT-2.

gazeuse sont l'explication la plus plausible puisqu'aucun des calculs présumant un équilibre chimique dans le gaz ne permet de reproduire les résultats expérimentaux [28 ; 29]. Ces limitations peuvent être induites par les conditions thermiques spécifiques régnant dans le circuit primaire lors des essais PHÉBUS, avec en particulier de forts gradients thermiques à la sortie du dispositif d'essai et à l'entrée du générateur de vapeur. Ces limitations sont également plus importantes pour les concentrations en produits de fission les plus faibles. Cela expliquerait la plus forte fraction d'iode volatil mesurée lors de l'essai FPT-0 réalisé avec du combustible très faiblement irradié et comportant environ 50 fois moins de produits de fission que FPT-1 et FPT-2 qui utilisaient du combustible irradié.

Le rôle clé de l'argent issu de la barre de commande a été clairement mis en évidence lors des essais PHÉBUS, et plus particulièrement lors des deux premiers, caractérisés par d'importantes fractions d'argent relâchées. Ainsi, lors des deux premiers essais PHÉBUS, l'iode est majoritairement présent dans le puisard de l'enceinte de confinement sous la forme d'une espèce insoluble identifiée comme de l'iodure d'argent. La cinétique de réaction de l'iode avec l'argent est dans certaines conditions assez rapide. Cela conduit à inhiber la volatilisation qui était attendue de l'iode du puisard par suite de l'oxydation radiolytique ou de la formation d'iodures organiques à partir des surfaces peintes immergées. Un ensemble de programmes expérimentaux analytiques et semi-intégraux ont permis de quantifier les différentes cinétiques des réactions argent-iode et de modéliser les processus mis en jeu [30 ; 31].

L'importance des surfaces peintes non immergées de l'enceinte de confinement dans le processus de formation d'iodures organiques a été clairement mise en évidence lors des deux premiers essais PHÉBUS. Ce processus devient en effet prédominant par rapport à la formation des iodures organiques à partir des surfaces peintes immergées dès lors que la fraction d'iode soluble dans le puisard est faible, c'est-à-dire pour des fractions relâchées d'argent largement en excès par rapport à celles de l'iode [32]. C'est pourquoi, lors des deux premiers essais PHÉBUS tout du moins, les iodures organiques sont l'espèce d'iode volatil qui se retrouve majoritairement dans l'atmosphère de l'enceinte de confinement au bout d'environ une journée.

De manière générale, les essais PHÉBUS ont montré que la concentration en iode volatil dans l'enceinte de confinement à long terme (au-delà de 24 heures) dépend principalement des processus physico-chimiques intervenant dans la phase gazeuse, et donc de la concentration en iode volatil provenant du circuit primaire, ou formé dans l'enceinte lors de la fusion du cœur. Plusieurs heures plus tard, au-delà d'une journée, la concentration en iode dans l'atmosphère de l'enceinte de confinement devient constante, ce qui montre qu'un équilibre est atteint entre les réactions de formation et de destruction de l'iodure volatil et les processus d'adsorption et de désorption (*figure 8*). Par ailleurs, les réactions radiolytiques homogènes en phase gazeuse (comme les réactions de destruction de l'iodure moléculaire et organique par les produits de radiolyse de l'air) sont déterminantes pour la spéciation des espèces iodées à long terme, et donc pour l'évaluation des rejets accidentels dans l'environnement en cas de perte d'intégrité de l'enceinte de confinement, à cause d'un éventage à travers des filtres ou du percement du radier. En effet, l'oxydation radiolytique des iodures volatils par l'ozone et/ou les oxydes d'azote, produits majoritairement formés lors de la radiolyse de l'air, conduit en grande partie à la formation d'oxydes d'iodure sous forme condensée [33 ; 34]. La formation de nitroxydes d'iodure, espèces majoritairement gazeuses, même si elle est minime, ne peut être totalement exclue. La concentration en iode volatil à l'échelle d'un ou quelques jours va donc dépendre du devenir de ces produits d'oxydation radiolytique de l'iodure, et en particulier de leur affinité pour les surfaces de l'enceinte de confinement (peintures, acier, etc.).

Les analyses de l'ensemble des résultats relatifs au comportement de l'iodure lors des essais FPT-0 et FPT-1, effectuées dans le cadre du Cercle d'interprétation international dédié à la chimie de l'enceinte (CCIC), sont résumées dans l'article [29]. Ces analyses ont contribué à l'amélioration de la compréhension du comportement de l'iodure et ont permis notamment de mettre en évidence :

- l'occurrence probable de limitations d'ordre cinétique lors des réactions chimiques en phase gazeuse dans le circuit primaire, qui pourraient être à l'origine de la formation d'iodure volatil à basse température ;
- le rôle clé de l'argent issu des barres de commande dans la chimie de l'iodure en phase liquide, qui en formant irréversiblement de l'iodure d'argent insoluble empêche la revolatilisation d'iodure moléculaire par oxydation radiolytique des iodures et la formation d'iodure organique ;
- l'importance des surfaces peintes non immergées dans la production d'iodures organiques lorsque l'iodure est peu soluble en phase liquide (par exemple lors d'un relâchement important d'argent dans l'enceinte de confinement) conduisant à des formes d'iodure volatil majoritairement organiques ;
- l'équilibre atteint dans l'enceinte de confinement entre les processus de formation et de destruction de l'iodure volatil conduisant à des concentrations d'iodure en phase gazeuse quasi-stationnaires ;
- l'importance des réactions de radiolyse en phase gazeuse entre l'iodure

et les produits de radiolyse de l'air dans la spéciation de l'iodure à long terme (oxydes et/ou nitroxydes d'iodure) et par conséquent dans l'évaluation des rejets accidentels dans l'environnement.

Les enseignements issus de l'analyse des résultats relatifs au comportement de l'iodure lors des essais PHÉBUS PF ont été utilisés pour l'amélioration et le développement de modèles, par la suite intégrés dans la plupart des logiciels de calcul traitant de la chimie de l'iodure dans l'enceinte, comme ceux décrivant :

- les réactions iode-argent dans la phase liquide (prenant en compte les réactions $\text{Ag}/\text{I}_{2(g)}$, Ag/I^- et $\text{Ag}_{(ox)}/\text{I}^-$ mais aussi l'oxydation de l'argent par les produits de radiolyse de l'eau) ;
- l'oxydation radiolytique de l'iodure moléculaire et organique par les produits de radiolyse de l'air et la formation d'oxydes d'iodure ;
- la formation hétérogène d'iodure organique à partir de l'adsorption de l'iodure moléculaire sur les surfaces peintes non immergées.

Utilisation des résultats des essais PHEBUS dans les études de sûreté

Les résultats des essais PHÉBUS PF sont utilisés par les différents partenaires du programme pour leurs études de sûreté, en particulier pour ce qui concerne les rejets accidentels potentiels vers l'environnement. À titre d'exemple, on peut citer ce qui a été fait à l'IRSN, à l'US-NRC, et au niveau des programmes européens, l'Union européenne étant un sponsor majeur du programme.

À l'IRSN, cela concerne en particulier la quantification des rejets de type S3 et les études probabilistes de niveau 2 [4]. Les rejets accidentels dans l'environnement de type S3 correspondent à des rejets diffusés et filtrés, soit par les filtres de l'enceinte de confinement lors de la dépressurisation volontaire de l'enceinte prévue par les procédures d'urgence, soit par le sol lors du percement du radier par le corium. Les résultats les plus récents seront intégrés dans les futures études probabilistes de niveau 2.

À la NRC, les résultats des essais PHÉBUS PF ont été utilisés par un groupe d'experts, dont certains de l'IRSN, pour évaluer l'adéquation et la validité des recommandations et hypothèses rassemblées dans le rapport NUREG-1465 [35] traitant des rejets accidentels [36].

Les résultats de PHÉBUS PF ont été utilisés, entre autres, pour définir les priorités en matière de recherche sur les accidents graves dans le cadre du projet européen EURSAFE [37]. Les leçons qui continuent à être tirées de PHÉBUS PF sont utilisées par le réseau d'excellence SARNET [38]. Les priorités en matière de recherche y sont revisitées périodiquement. Le programme international TERME SOURCE [5] destiné à réduire les incertitudes qui ont été mises en évidence fait partie de cet effort coopératif.

Références

- [1] SCHWARZ, M., CLÉMENT, B., JONES, A. V., « Applicability of Phebus FP Results to Severe Accident Safety Evaluations and Management Measures », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 209, pp. 173-181, 2001.
- [2] CLÉMENT, B., « Summary of the Phebus FP Interpretation Status », *Proc. 5th Technical Seminar on the Phebus FP Program*, Aix-en-Provence, France, June 24-26, 2003.
- [3] BIRCHLEY, J., HASTE, T., BRUCHERTSEIFER, H., CRIPPS, R., GÜNTAY, S., JÄCKEL, B., « Phebus-FP: Results and Significance for Plant Safety in Switzerland », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 235, pp. 1607-1633, 2005.
- [4] EVRARD, J.-M., MARCHAND, C., RAIMOND, E., DURIN, M., « Use of Phebus FP Experimental Results for Source Term Assessment and Level 2 PSA », *Proc. 5th Technical Seminar on the Phebus FP Program*, Aix-en-Provence, France, June 24-26, 2003.
- [5] CLÉMENT, B., « Towards Reducing the Uncertainties on Source Term Evaluations: An IRSN/CEA/EDF R&D Program », *Proc. Eurosafe Forum*, Berlin, Germany, November 8-9, 2004.
- [6] SCHWARZ, M., HACHE, G., VON DER HARDT, P., « Phebus FP: A Severe Accident Research Program for Current and Advanced Light Water Reactors », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 187, pp. 47-69, 1999.
- [7] CLÉMENT, B., HANNIET-GIRAULT, N., REPETTO, G., JACQUEMAIN, D., JONES, A. V., KISSANE, M. P., VON DER HARDT, P., (2003b) « LWR Severe Accident Simulation: Synthesis of the Results and Interpretation of the First Phebus FP Experiment FPT-0 », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 226, pp. 5-82, 2003.
- [8] REPETTO, G., CLÉMENT, B., EDERLI, S., « Analysis of the FPT-0, FPT-1 and FPT-2 Experiments of the Phebus FP Program Investigating in Vessel Phenomena During a LWR Accident », *10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10)*, Seoul, Korea, October 5-9, 2003.
- [9] BARRACHIN, M., « Phebus FPT-0 and FPT-2 : Post Irradiation Examination (PIE) Interpretation », *IRSN Internal Report*, NT SEMIC 018/06, 2006.
- [10] REPETTO, G., EDERLI, S., « Analysis of the FPT-0 and FPT-2 Phebus FP Experiments Using Porous Medium Geometry With the ICARE2 Code », *11th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-11)*, Avignon, France, October 2005.
- [11] HASTE, T., CAZZOLI, E., VITASKOVA, J., BIRCHLEY, J., « TMI-2 Analysis With MELCOR 1.8.5 and SCDAPSIM », *MELCOR Cooperative Assessment Meeting*, September 20-21, Albuquerque (NM) USA, 2005.
- [12] CRESTIA, J.-C., REPETTO, G., EDERLI, S., « Phebus FPT-4 First Post Test Calculations on the Debris Bed Using the ICARE V3 Code », *Proc. 4th Technical Seminar on the Phebus FP Program*, Marseille, France, March 2000.
- [13] MARCH, Ph. et al., « First Results of the Phebus FPT-3 Test », *Proc. of the 14th International Conference on Nuclear Engineering*, Miami, Florida, USA, July 17-20, 2006.
- [14] CLÉMENT, B., DE LUZE, O., REPETTO, G., « Preliminary Results and Interpretation of Phebus FPT-3 Test », *MELCOR Cooperative Assessment Meeting*, September 20-21, Albuquerque (NM) USA, 2005.
- [15] CLÉMENT, B., HASTE, T., ISP-46 – Phebus FPT-1, NEA/CSNI/R(2004)18, August, 2004.
- [16] CLÉMENT, B. et al., « Thematic Network for a Phebus FPT-1 International Standard Problem (THENPHEBISP) », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 235, pp. 347-357, 2005.
- [17] DUBOURG, R., FAURE-GEORGS, H., NICAISE, G., BARRACHIN, M., « Fission Product Release in the First Two Phebus Tests FPT-0 and FPT-1 », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 235, pp. 2183-2208, 2005.
- [18] DUBOURG, R., TAYLOR, P., « A Qualitative Comparison of Barium Behaviour in the PHEBUS FPT-0 Test and Analytical Tests », *Journal of Nuclear Materials*, vol. 294, pp. 32-38, 2002.
- [19] MANENC, H., MASON, P. K., KISSANE, M. P., « The Modelling of Fuel Volatilisation in Accident Conditions », *Nuclear Engineering and Design*, vol.294, pp. 64-68, 2001.
- [20] BOTTOMLEY, P. D. W., CARBOL, P., GLATZ, J.-P., KNOCHÉ, D., PAPAIOANNOU, D., SOLATIE, D., VAN WINCKEL, S., GRÉGOIRE, A.-C., GRÉGOIRE, G., JACQUEMAIN, D., « Fission Product and Actinide Release From the Debris Bed Test Phebus FPT4: Synthesis of the Post Test Analyses and of the Revaporisation Testing of the Plenum Samples Performed at ITU », *International Congress on Advanced Power Plants (ICAPP-05)*, May 15-19, Seoul, Korea, 2005.
- [21] KISSANE, M. P., DROSİK, I., « Interpretation of Fission-Product Transport Behaviour in the Phebus FPT-0 and FPT-1 Tests », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 236, pp. 1210-1223, 2006.
- [22] HOUSIADAS, C., MÜLLER, K., CARLSSON, J., DROSSINOS, Y., « Two-Dimensional Effects in Thermophoretic Particle Deposition: The Phebus-FP Steam Generator », *Journal of Aerosol Science*, vol.32, supplement 1, pp. S1029-S1030, 2001.
- [23] GAUNTT, R. O., « Overview of MELCOR Development, Assessment and Applications Activities », *MELCOR Cooperative Assessment Meeting*, September 20-21, Albuquerque (NM) USA, 2005.
- [24] KLJENAK, I., MAVKO, B., « Simulation of Containment Phenomena During the Phebus FPT-1 Test with the CONTAIN Code », *Proc. Nuclear Energy for New Europe 2002*, Kranjska Gora, Slovenia, September 9-12, 2002.
- [25] LAYLY, V. D., « Aerosol Behaviour in a Closed Vessel: Analysis of the Phebus FPT-0 Test Aerosol Phase in the Containment », *IPSN Internal Report NT SEMAR 98/99*, Phebus IP 98/391, 1998.
- [26] LAYLY, V. D., SPITZ, P., TIRINI, S., MAILLIAT, A., « Analysis of the Phebus FPT0 Containment Thermal Hydraulics With the Jericho and TRIO-VF Codes », *Nuclear Engineering and Design*, 166 (1996) pp. 413-426, 1996.
- [27] JACQUEMAIN, D., HANNIET, N., POLETIKO, C., DICKINSON, S., WREN, C., POWERS, D., KRAUSSMANN, E., FUNKE, F., CRIPPS, R., HERRERO, B., « An Overview of the Iodine Behaviour in the Two First Phebus Tests FPT-0 and FPT-1 », *OECD Workshop on Iodine Aspects of Severe Accident Management*, Vantaa, Finland, May 18-20, 1999.
- [28] CANTREL, L., KRAUSSMANN, E., « Reaction Kinetics of a Fission Product Mixture in a Steam-Hydrogen Carrier Gas in the Phebus Primary Circuit », *Nuclear Technology*, vol. 144, 2003
- [29] GIRAULT, N., DICKINSON, S., FUNKE, F., AUVINEN, A., HERRANZ, L., KRAUSSMANN, E., « Iodine Behaviour Under LWR Accidental Conditions: Lessons Learnt From Analyses of the First Two Phebus FP Tests », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 236, pp. 1293-1308, 2006.
- [30] FUNKE, F., GREGER, G.-U., BLEIER, A., HELLMANN, S., MORELL, W., « The Reaction Between Iodine and Silver Under Severe PWR Accident Conditions », Chemistry of Iodine in Reactor Safety, *Workshop proceedings*, Würenlingen, Switzerland, NEA/CSNI/R(96)6, 10-12 June, 1996.
- [31] BALL, J., KUPFERSCHMIDT, W. C. H., WREN, J. C., « Results From the Phase 2 of the Radioiodine Test Facility Experimental Programme », *Chemistry of Iodine in Reactor Safety, Workshop Proceedings*, Würenlingen, Switzerland, 10-12 June, NEA/CSNI/R(96)6, 1996.
- [32] DICKINSON, S., SIMS, H. E., BELVAL-HALTIER, E., JACQUEMAIN, D., POLETIKO, C., HELLMANN, S., KARJUNEN, T., ZILLIACUS, R., « Organic Iodine Chemistry », *Nuclear Engineering and Design*, vol. 209, pp. 193-200, 2001.
- [33] FUNKE, F., ZEH, P., HELLMANN, S., « Radiolytic Oxidation of Molecular Iodine in the Containment Atmosphere », Iodine Aspects of Severe Accident Management, *Workshop proceedings*, Vantaa, Finland, 18-20 May, NEA/CSNI/R(99)7, December 1999.
- [34] DICKINSON, S., « The Radiolysis of Gaseous Iodine Species in Air », *Data Analysis and Modelling of Iodine Chemistry and Mitigation Mechanism*, EC Report, SAM-ICHEMM-D010, 2002.
- [35] SOFFER, L., BURSON, L., BURSON, S. B., FERRELL, C. M., LEE, R. Y., RIDGELY, J. N., *Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants*, NUREG 1465, February 1995.
- [36] ENERGY RESEARCH, INC., *Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants: High Burnup and Mixed Oxide Fuels*, ERI/NRC 02-202, October 2002.
- [37] MAGALLON, D. et al., « European Expert Network for the Reduction of Uncertainties in Severe Accidents Safety Issues (EURSAFE) », *Nuclear Engineering and Design*, vol.235, pp. 309-346, 2005.
- [38] MICAELLI, J.-C. et al., « SARNET : A European Cooperative Effort on LWR Severe Accident Research », *European Nuclear Conference 2005*, Versailles (France), 12-15 décembre 2005.
- KUDO, T., HIDAKA, A., NAKAMURA, T., UETSUKA, H., « Influence of Pressure on Cesium Release From Irradiated Fuel at Temperatures Up to 2773 K », *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 38 (10), pp. 910-911, 2001.
- PETIT, M., MARCHAND, C., BILLARAND, Y., ROUILLON, C., « Simplified Modelling of Iodine Behaviour for Source Term Assessment of French Reactors », Iodine Aspects of Severe Accident Management, *Workshop Proceedings*, Vantaa, Finland, 18-20 May 1999, NEA/CSNI/R(99)7, December 1999.

2.4

La recherche et développement sur le risque d'explosion d'hydrogène

L'explosion d'hydrogène constitue une source d'accidents majeurs aussi bien dans les installations industrielles classiques que nucléaires. Dans les installations nucléaires, l'explosion d'hydrogène peut entraîner la perte de confinement des matières radioactives et par conséquent, des rejets importants dans l'environnement. Ce risque est étudié dans le contexte des accidents graves de réacteurs à eau sous pression, où l'hydrogène peut être produit par l'oxydation du zirconium des gaines et des structures des éléments combustibles lors de la phase de dégradation du cœur, et par l'oxydation des métaux présents dans le bain de corium lors de la phase de l'interaction entre le corium et le béton.

Généralement, un scénario d'explosion de gaz est initié par une fuite ou un relâchement de gaz explosible tel que l'hydrogène. La répartition de ce gaz dans l'atmosphère se fait de manière hétérogène avec des concentrations locales importantes qui peuvent dépasser le seuil d'inflammabilité du mélange gazeux. Aussi, en présence de sources électriques, d'actionneurs, de points chauds, il apparaît probable que l'inflammation se produise assez rapidement après l'entrée dans le domaine de combustion. Sous l'effet des instabilités hydrodynamiques et de la turbulence, la déflagration initialement laminaire (avec une vitesse de l'ordre du mètre par seconde) est susceptible de s'accélérer. Des régimes de combustion rapide peuvent ainsi être atteints : déflagration rapide (quelques centaines de mètres par seconde), transition déflagration détonation (TDD) et détonation (plus de mille mètres par seconde). Ces phénomènes explosifs sont les plus menaçants et peuvent occasionner des chargements dynamiques locaux très importants sur la structure du confinement du réacteur et sur les équipements.

L'étude des mécanismes d'accélération de flamme a fait l'objet de programmes de recherche menés à l'IRSN dans le cadre de projets nationaux et internationaux. L'objectif de cet article est de faire un état des travaux de recherche et de développement sur le risque d'explosion d'hydrogène.

Phénoménologie

Pour évaluer le risque d'explosion d'hydrogène, l'IRSN a développé une méthode cohérente avec l'état de l'art sur l'accélération de flamme et la TDD [1] établie dans le cadre de l'OCDE par un groupe d'experts internationaux, dont des experts de l'IRSN.

La méthode a ensuite été complétée dans le cadre du projet européen HYCOM [2] et améliorée grâce au retour d'expérience de son utilisation dans le cadre des études probabilistes de sûreté de niveau 2 et aux résultats issus des programmes de recherche et de développement menés à l'IRSN.

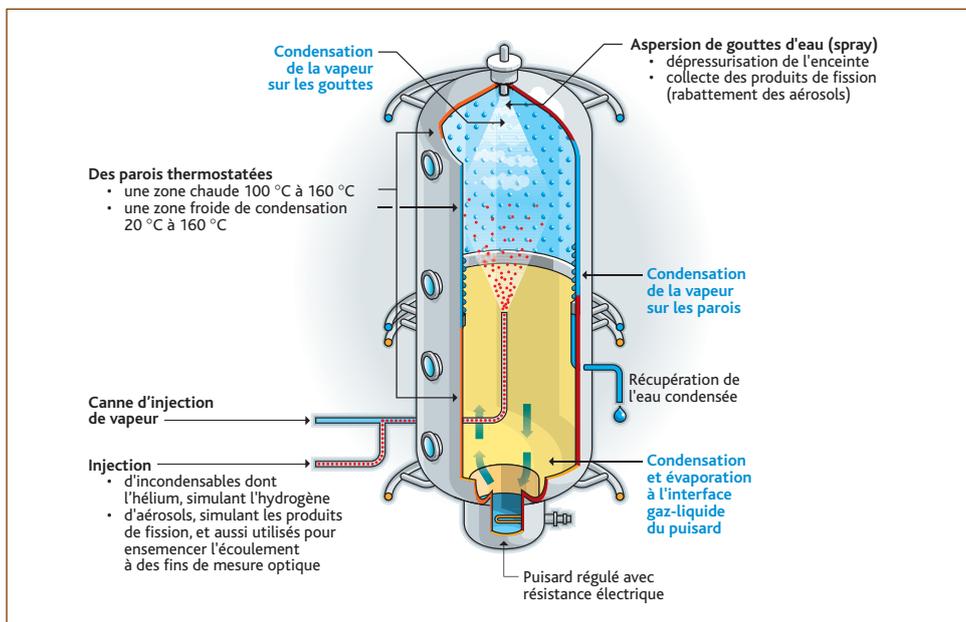


Figure 1 : Schéma de l'installation TOSQAN.

Cette méthode comporte trois volets principaux :

- le calcul de la distribution de l'hydrogène dans l'enceinte de confinement du réacteur ou plus généralement dans le bâtiment considéré ;
- la définition *a priori* de modes potentiels de combustion à partir des résultats de ces calculs de distribution. Ceci permet de mettre en évidence les situations les plus dangereuses vis-à-vis du risque d'explosion d'hydrogène ;
- le calcul des chargements thermiques et de la pression pouvant être générés par la combustion d'hydrogène.

Dans la suite et pour chacun des thèmes identifiés, on dresse un bilan rapide des travaux de recherche et de développement effectués à l'IRSN ces dernières années.

La distribution de l'hydrogène

La prédiction de la répartition d'hydrogène dans l'enceinte de confinement du réacteur ou, plus généralement, dans un bâtiment, est essentielle pour pouvoir statuer sur le risque d'occurrence de phénomènes dynamiques. À cet égard, l'IRSN dispose de codes de calcul basés sur des approches

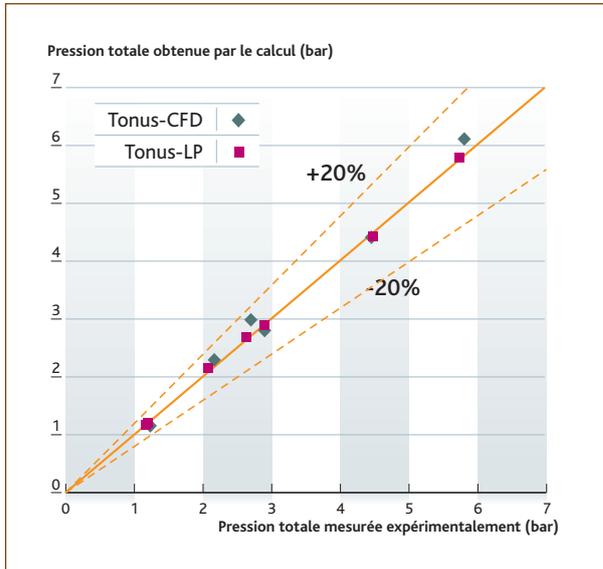


Figure 2 : Évaluation de la pression – comparaison calcul TONUS et expérience TOSQAN.

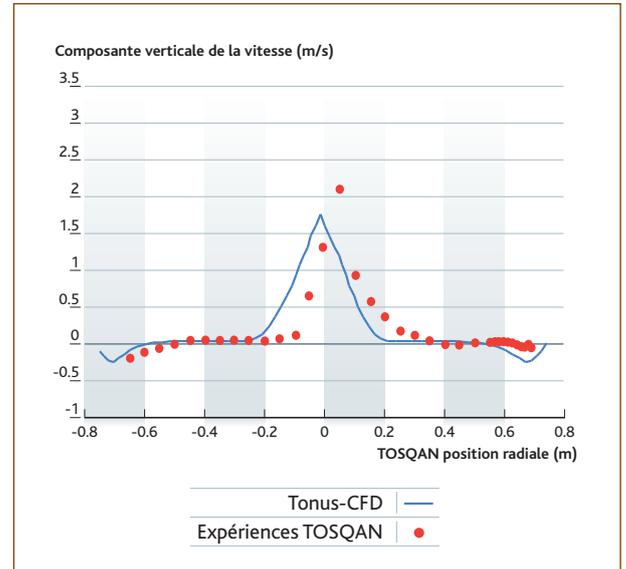


Figure 3 : Profil horizontal de la composante verticale de la vitesse – comparaison calcul TONUS et expérience TOSQAN.

multicompartiments et multidimensionnelles. Le code TONUS, développé en collaboration avec le CEA depuis 1995, utilise les deux approches, tandis que le code ASTEC, développé en collaboration avec GRS, est basé sur l'approche multicompartiment seule. La modélisation consiste :

- pour l'approche multicompartiment, à résoudre les équations de bilan massique et énergétique sur des volumes de contrôle appelés compartiments (qui peuvent être fictifs). L'équation de conservation de la quantité de mouvement est résolue de façon simplifiée par l'intermédiaire de pertes de charge entre les compartiments ;

- pour l'approche multidimensionnelle, à résoudre localement les équations de Navier-Stokes multi-espèces (qui permettent de représenter la thermohydraulique de l'enceinte) couplées aux modèles de turbulence, de condensation et de combustion.

L'approche multicompartiment ne permet pas de couvrir l'ensemble des régimes d'écoulement rencontrés dans le bâtiment du réacteur. L'approche multidimensionnelle permet de remédier à ce handicap avec, néanmoins, un coût en temps de calcul beaucoup plus élevé. Dans le code TONUS, le couplage des deux approches a été effectué pour permettre de traiter, avec une approche multicompartiment, les zones où le mélange serait homogène ou non inflammable et d'utiliser l'approche multidimensionnelle dans les zones où le risque hydrogène est le plus significatif.

La qualification des codes multidimensionnels requiert l'acquisition de valeurs locales pour l'ensemble des variables telles que la température, les concentrations en espèces gazeuses, les vitesses moyennes des écoulements et leur fluctuation, ce qui nécessite de réaliser des expériences sur des installations pourvues d'une instrumentation la plus complète possible. Ces impératifs ont été pris en compte par l'IRSN dans l'installation TOSQAN, située à Saclay. Son objectif principal est

de fournir les données expérimentales servant à qualifier les modèles implantés dans TONUS, notamment ceux traitant de la condensation en paroi et sur les gouttes d'aspersion, ainsi que des échanges thermiques et massiques à l'interface puisard-atmosphère [3].

L'enceinte TOSQAN, présentée dans la figure 1, est une cuve cylindrique en acier de 4,8 m de hauteur et 1,5 m en diamètre. Elle est instrumentée et permet d'effectuer des mesures globales de pression, de débit d'injection et de débit de condensats, et des mesures locales de température (92 thermocouples dans le gaz et 30 en paroi), de flux thermique (9 fluxmètres), de concentration de gaz (54 points de prélèvement analysés par spectrométrie de masse) et de vitesse (vélocimétrie doppler laser et vélocimétrie par images de particules).

Les figures 2 et 3 illustrent la bonne concordance entre les résultats de calcul réalisés à l'aide de TONUS et les données expérimentales de la pression et de la vitesse d'écoulement obtenues lors d'essais air-vapeur réalisés dans l'installation TOSQAN.

Le code TONUS a de plus été validé sur la base d'essais à plus grande échelle et dans des géométries plus complexes (plusieurs compartiments) réalisés dans l'installation MISTRA du CEA/DEN.

Deux essais effectués sur les installations TOSQAN et MISTRA ont été valorisés dans le cadre de l'ISP47 (*International Standard Problem*), exercice organisé dans le cadre de l'OCDE par l'IRSN et GRS [4]. Par ailleurs, une analyse de l'effet d'échelle entre les deux installations est en cours de réalisation afin d'aboutir à des recommandations pour mieux traiter le cas de l'enceinte de confinement du réacteur.

Combustion

La connaissance de la répartition de l'hydrogène permet de déterminer, à chaque instant, la taille du nuage inflammable et la région où

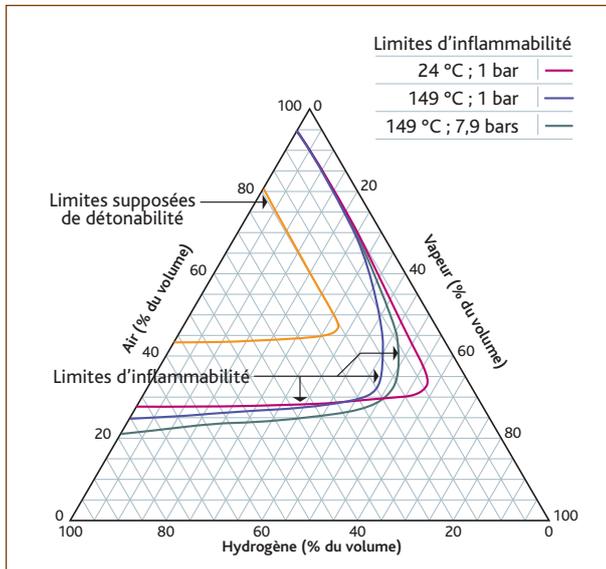


Figure 4 : Diagramme de Shapiro pour les mélanges hydrogène-air-vapeur d'eau.

l'accélération de flamme ou encore la transition vers la détonation serait possible. Pour ce faire, il est nécessaire de définir des limites d'inflammabilité, de détonabilité et des critères de transition vers les modes de combustion générant des surpressions importantes.

Limites d'Inflammabilité

La plage d'inflammabilité dépend non seulement de la concentration en hydrogène mais également de celle des autres espèces présentes dans le mélange gazeux. La température, la pression, la direction et le sens de propagation de la flamme ainsi que le mode d'allumage interviennent également sur la capacité du mélange à brûler. Ainsi l'hydrogène présente des limites inférieures d'inflammabilité (LII) dans l'air sec à 100 kPa et 298 K correspondant à des concentrations molaires de 4 % pour une propagation ascendante, de 6 % pour une propagation horizontale et de 9 % pour une propagation descendante de la flamme [5]. Ces limites en hydrogène augmentent avec la teneur en diluant (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, etc.) dans le mélange combustible. Il existe également une énergie minimale nécessaire à l'allumage qui varie en fonction de la composition du mélange et des conditions thermodynamiques. Ainsi, pour un mélange stœchiométrique, l'énergie minimale d'inflammation passe de moins de 0,02 mJ à plus de 0,04 mJ en substituant le dioxyde de carbone à l'azote dans l'air. Les **figures 4 et 5** illustrent la dépendance des limites d'inflammabilité et de l'énergie minimale d'allumage des conditions thermodynamiques [6].

Régimes de propagation et modèles associés

Le processus global de combustion (sans étouffement) se déroule schématiquement de la façon suivante. La combustion est d'abord initiée par une étincelle. Ensuite, sous l'effet de divers phénomènes dont la

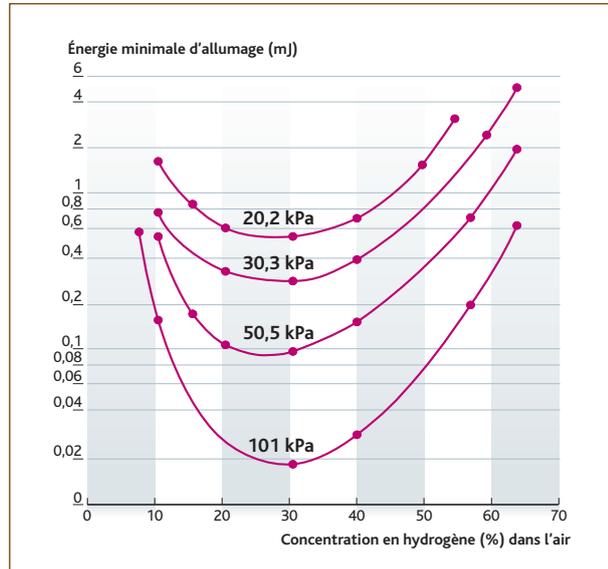


Figure 5 : Énergie minimale d'inflammation des mélanges hydrogène-air pour différentes pressions initiales.

turbulence, la flamme s'accélère. Enfin, sous certaines conditions il peut y avoir phénomène de transition du régime de déflagration vers celui de la détonation (TDD). Les deux étapes clés du processus, à savoir l'accélération de flamme et la TDD, sont des phénomènes physiques complexes, difficiles à modéliser. De ce fait, une approche par l'intermédiaire de conditions nécessaires a été développée par l'Institut Kurchatov en Russie afin de sélectionner les mélanges et les géométries pour lesquels ces phénomènes sont importants. L'accélération de flamme est étudiée par l'intermédiaire du critère d'accélération de flamme σ et la TDD via le critère L/λ [1]. Ces critères, établis initialement par l'Institut Kurchatov, ont été affinés dans le cadre de collaborations internationales et de programmes expérimentaux propres à l'IRSN.

Critère d'accélération de flamme (critère σ)

La grandeur σ représente le rapport entre la densité des gaz frais et celle des gaz brûlés obtenu en considérant une combustion totale, adiabatique et isobare. C'est une grandeur intrinsèque du mélange gazeux. Si l'on suppose que le front de la flamme est une discontinuité infiniment mince séparant les gaz frais des gaz brûlés (hypothèse de flammelettes), le taux de combustion, ou la vitesse de combustion, est alors proportionnel à la surface de la flamme. Initialement, le front de flamme est plan, puis il est plissé sous l'action de plusieurs phénomènes physiques, ce qui entraîne une augmentation de sa surface. Les trois principaux phénomènes agissant sur le plissement du front de flamme sont la turbulence, l'acoustique – l'interaction entre une onde acoustique et une flamme crée de la vorticit  – , et la présence d'instabilités.

Des résultats expérimentaux réalisés sur des tubes munis d'obstacles et sur des expériences à grande échelle ont été examinés à partir de

2.4

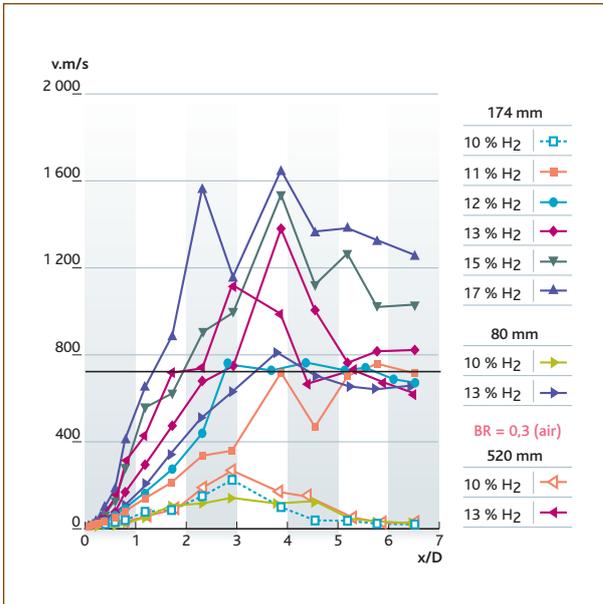


Figure 6 : Établissement du critère σ (la courbe en rouge délimite les flammes lentes des flammes rapides).

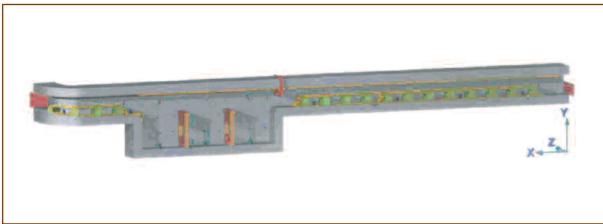


Figure 7 : Illustration de l'installation RUT.

ces considérations théoriques [1]. Les régimes de combustion ont été classés en deux grandes catégories : les flammes lentes et les flammes rapides, définies par une vitesse de propagation supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz frais. Une limite est alors définie entre les deux régimes de propagation (figure 6). Elle représente une condition nécessaire, mais non suffisante, à l'accélération de flamme et ne permet en aucun cas de prédire la vitesse atteinte par la flamme pour un mélange et une configuration géométrique donnés.

Dans le cadre du projet européen HYCOM, auquel l'IRSN a participé, cette limite a été étendue pour tenir compte des effets piston, de l'impact d'exutoires de pression (*venting*) et de la présence de vapeur d'eau [2]. Le programme d'essais sur l'enceinte ENACCEF, mené par l'IRSN en collaboration avec le CNRS, a permis d'affiner les résultats obtenus dans le cadre du projet HYCOM et d'étendre le critère σ aux mélanges hétérogènes avec un gradient d'hydrogène [7].

Critère L/λ

Ce critère établit un lien entre la sensibilité du mélange gazeux, représentée par la taille des cellules de détonation λ dont les valeurs minimales correspondent aux mélanges stœchiométriques, et la géométrie, caractérisée par une dimension L . Comme pour le critère σ , des résultats expérimentaux liés à la transition entre la déflagration et la détonation ont été assemblés et interprétés pour définir le critère L/λ . Ce critère est une condition nécessaire mais non suffisante à la transition vers la détonation.

La taille des cellules de détonation λ est mesurée expérimentalement, essentiellement dans des tubes ayant des diamètres compris entre 5 et 40 cm. Des corrélations ont été développées sur la base de ces mesures, permettant ainsi le calcul de la taille des cellules de détonation pour un mélange donné. Par ailleurs, des règles ont été établies pour définir l'échelle géométrique L pour des géométries simples [1].

Calculs de chargement thermique et en pression

Les critères mentionnés ci-dessus permettent d'exclure *a priori* et sans calcul de combustion les risques d'accélération de flamme et de transition déflagration détonation (TDD) pour un certain nombre de mélanges, mais pas pour la totalité des séquences accidentelles envisageables. Il est donc nécessaire de disposer de modèles spécifiques pour évaluer les chargements mécaniques occasionnés sur les parois du local considéré. L'IRSN dispose de codes de calcul, tels que TONUS, ASTEC et PROCO, capables de modéliser les différents régimes de combustion. La combustion est traitée différemment selon la discrétisation spatiale adoptée :

- dans les codes multicompartiments, tels que le module « OD » de TONUS, le code PROCO et le module CPA du code ASTEC, la flamme est supposée se développer à l'intérieur d'un compartiment avant de se propager aux compartiments adjacents *via* les jonctions des com-

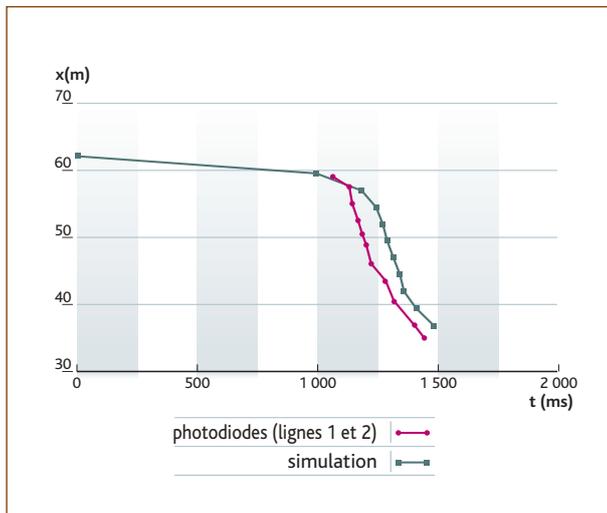


Figure 8 : Position du front de flamme, comparaison entre le calcul TONUS et l'expérience RUT.

partiments. La vitesse de propagation de flamme est obtenue à l'aide de corrélations qui dépendent de la composition du mélange, des conditions thermodynamiques et du niveau de turbulence. Celui-ci est introduit pour traduire l'impact de l'encombrement d'un compartiment sur la vitesse de propagation de flamme. De manière générale, les codes OD, à l'exception du code PROCO, s'appuient sur des approches de type bas Mach et sont donc uniquement adaptés à la description des déflagrations de faible vitesse. Le code PROCO permet, en revanche, de simuler les différents régimes de combustion ;

- les modules « 3D éléments finis » et « 3D volumes finis » du code TONUS couplent la cinétique chimique de la combustion à la turbulence de l'écoulement par des modèles classiques de type Eddy-Break-Up, pour le solveur à éléments finis, ou CREBCOM pour le solveur à volumes finis. Ces modèles couvrent l'ensemble de la gamme des déflagrations turbulentes et de détonation.

Les modèles de combustion implantés dans TONUS, ASTEC et PROCO ont été validés sur la base d'essais analytiques et à grande échelle réalisés en particulier dans l'installation RUT. Cette installation, située en Russie, a un volume total de 480 m³ et une longueur totale de 62 m (figure 7). L'instrumentation utilisée est bien adaptée à la validation des codes CFD et des codes multicompartment.

Une comparaison entre les mesures expérimentales et les résultats de la simulation avec TONUS d'un essai d'accélération de flamme réalisé dans l'installation RUT est présentée à titre d'exemple sur la figure 8. Le front de flamme est suivi lors de l'essai à l'aide de photodiodes entre les points 62 m (allumage) et 35 m de la canalisation.

Les mélanges étudiés dans le cadre du programme RUT sont pour la plupart homogènes. Or les mélanges sont essentiellement hétérogènes dans l'atmosphère de l'enceinte de confinement ou d'un local. Aussi,

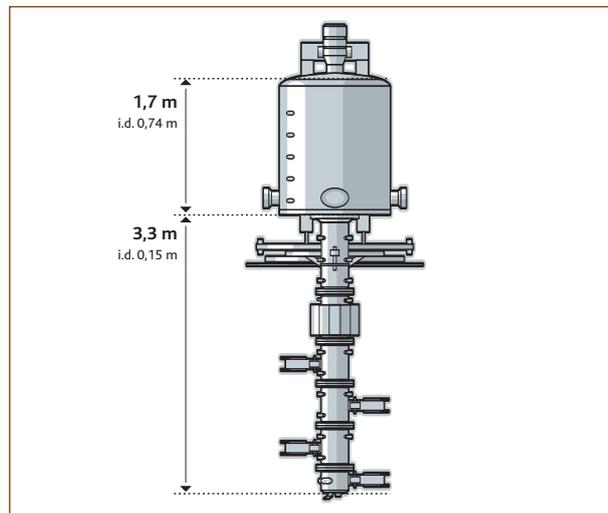


Figure 9 : Illustration de l'installation ENACCEF.

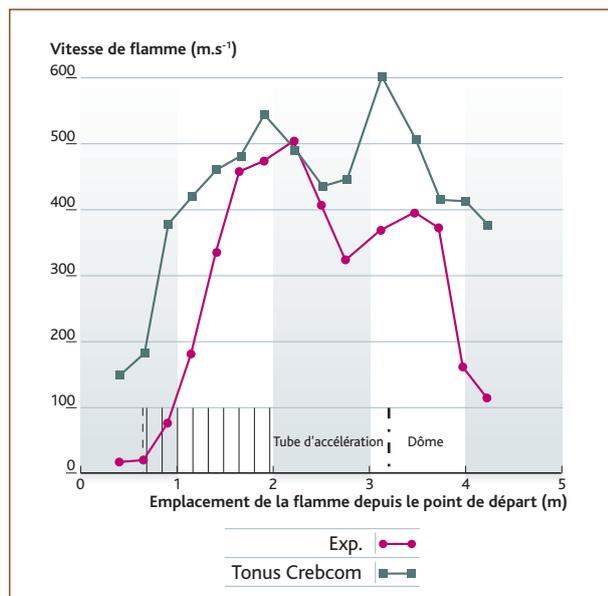


Figure 10 : Vitesse de flamme sur l'installation ENACCEF – comparaison calcul TONUS-expérience.

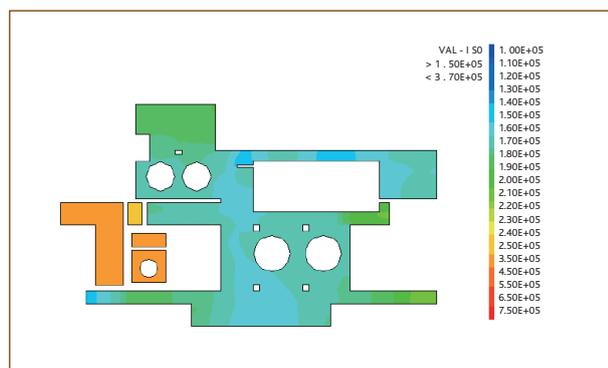


Figure 12 : Champ de pression généré par la combustion du mélange H₂-air (BAN de Chinon).

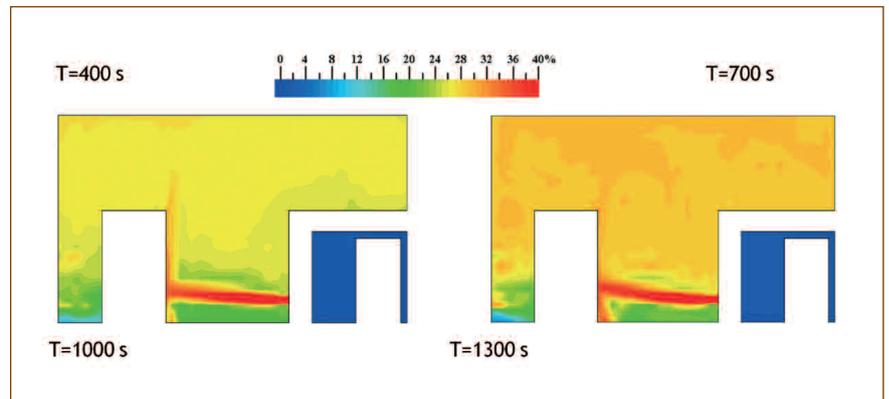


Figure 11 : Évaluation de la répartition de l'hydrogène à deux instants différents dans le local contenant la fuite (BAN de Chinon).

cet aspect a été étudié dans l'enceinte ENACCEF (figure 9). La partie basse de l'enceinte ENACCEF est constituée d'un tube d'accélération. Ce tube cylindrique, d'un diamètre de 168 mm et d'une hauteur de 3,2 m, peut être muni d'obstacles avec différents taux de blocage et différentes formes. Il peut également contenir un obstacle simulant un générateur de vapeur. La partie haute est constituée d'un dôme modulable dont le volume peut être varié entre 781 et 958 litres. L'instrumentation utilisée est suffisante pour valider les codes CFD.

Les résultats de calcul obtenus avec le code TONUS dans le cas d'un essai effectué avec un mélange initial hétérogène présentant un gradient de concentration d'hydrogène de 13 % à 10,5 % sont en bon accord avec les résultats expérimentaux (figure 10) [8]. Le mécanisme de propagation de flamme dans un mélange hétérogène est néanmoins un phénomène très complexe. Des efforts sont entrepris par l'IRSN dans le cadre du programme ENACCEF et du projet européen SARNET pour améliorer les modèles de combustion afin de mieux reproduire l'impact des hétérogénéités sur l'accélération de flamme. Par ailleurs, l'impact sur la propagation de flamme de la présence de gouttelettes d'eau dans l'atmosphère est en cours d'investigation dans le cadre du programme ENACCEF.

Exemples d'application de la méthode

Les codes de calcul développés à l'IRSN sont à présent suffisamment qualifiés pour évaluer le risque d'explosion d'hydrogène dans les installations nucléaires et industrielles. Les exemples suivants illustrent la capacité du code TONUS à traiter des configurations complexes et réalistes. Ils concernent :

- l'étude de l'explosion d'hydrogène dans le Bâtiment des auxiliaires nucléaires (BAN) d'un réacteur de la centrale de Chinon. Cette étude consistait tout d'abord à prédire à l'aide du code TONUS la répartition de l'hydrogène issu d'une fuite de canalisation en tenant compte de

la ventilation dynamique dans le BAN. Des calculs de combustion ont ensuite été réalisés avec le code TONUS pour estimer les surpressions générées par une explosion d'hydrogène à différents instants du scénario accidentel. La figure 11 décrit la répartition de l'hydrogène dans le BAN pour un débit de fuite de 9 g/s. La combustion est amorcée lorsque le mélange atteint la stœchiométrie dans le local contenant la fuite. Le champ de pression généré par cette combustion est présenté dans la figure 12 [9] ;

- l'étude de l'impact du concept *two-rooms* sur le risque hydrogène dans l'enceinte du réacteur EPR, munie de recombiners. Il s'agissait d'étudier l'impact de la surface d'ouverture entre les zones accessibles aux opérateurs en fonctionnement normal du réacteur et non accessibles de l'enceinte de confinement de l'EPR sur la répartition de l'hydrogène et sur l'éventualité d'avoir un régime accéléré de flamme. Les codes ASTEC/CPA et TONUS ont été utilisés, de manière complémentaire, pour calculer la répartition de l'hydrogène dans l'atmosphère de l'enceinte de confinement. La combustion a ensuite été simulée à l'aide du code TONUS. Les figures 13 et 14 montrent la délimitation des zones vérifiant le critère σ à un instant du transitoire de dégradation du cœur et le champ de température résultant d'une combustion déclenchée au même moment [10].

Conclusion

Les études entreprises à l'IRSN sur le risque d'explosion d'hydrogène ont permis d'obtenir un certain nombre de résultats et ont conduit, entre autres, à conforter la décision d'implanter des recombiners catalytiques d'hydrogène sur l'ensemble des tranches du parc électronucléaire français.

Ainsi, des critères permettant, s'ils sont respectés, d'exclure les risques d'accélération de flamme et de transition vers la détonation

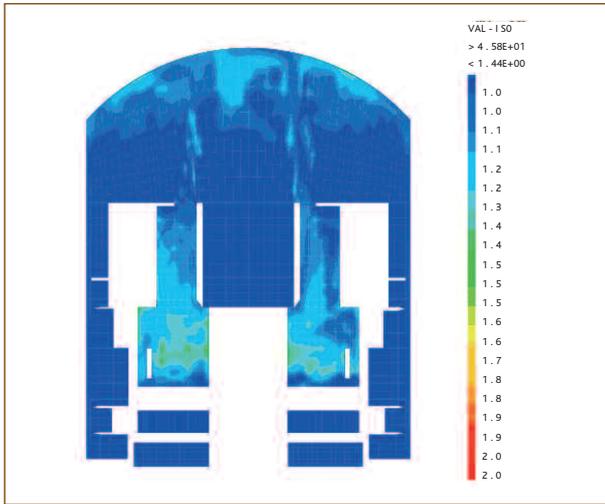


Figure 13 : Délimitation des zones vérifiant le critère σ , 200 secondes après le début d'injection d'hydrogène dans l'enceinte EPR (visualisation du rapport $\sigma/\sigma_{critique}$).

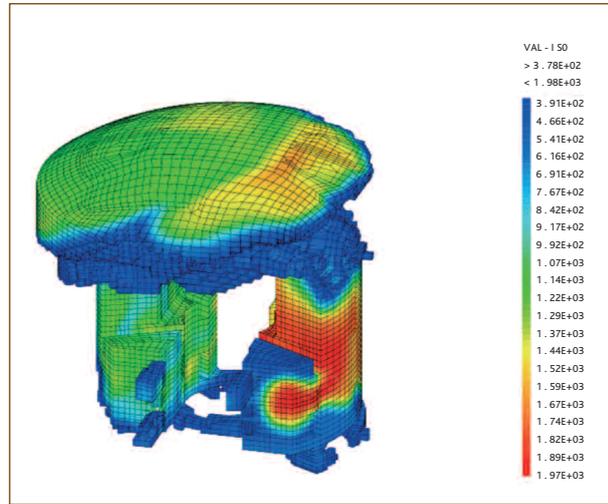


Figure 14 : Champ de température généré par la combustion du mélange H_2 -air vapeur, 200 secondes après le début d'injection d'hydrogène dans l'enceinte EPR.

ont été élaborés. Des codes de calcul dédiés, comme TONUS, ASTEC et PROCO, ont été développés, validés et sont utilisés pour évaluer le risque d'explosion d'hydrogène. Des actions de recherche et développement complémentaires sont néanmoins nécessaires pour améliorer les modèles et lever certains conservatismes sur les résultats des calculs des chargements générés par une explosion.

Ces actions visent :

- pour la répartition de l'hydrogène, à une meilleure représentation de la condensation en présence de gaz incondensables avec stratification, notamment en régime d'écoulement transitoire ;
- pour la combustion, à l'amélioration des modèles de combustion de façon à mieux reproduire les effets des hétérogénéités sur la propagation de flamme et à tenir compte de l'impact de la présence de gouttes d'eau sur l'accélération de flamme d'hydrogène.

Références

- [1] BREITUNG W. & al, 1999; OECD State-of-the-Art Report on Flame Acceleration and Deflagration-to-Detonation Transition In Nuclear Safety, OECD/CSNI, Octobre 1999
- [2] BREITUNG W. & al, 2005; Integral large scale experiments on hydrogen combustion for severe accident code validation HYCOM, Nuclear Engineering and Design, volume 235, pp 253-270
- [3] ZAVALA P. & al, 1999; Expérience TOSQAN Description du programme expérimental 1^{ère} partie : condensation en paroi ; rapport d'étude SERAC/LPMC/99-03
- [4] CORNET P. & al, 2002; ISP-47, Specification of the calculations - International standard problem on containment thermal- hydraulics, Step1: TOSQAN-MISTRA., December 2002. Rapport DPEA/SERAC/LPMAC/02-44
- [5] MALET F. 2005; Etude Expérimentale et Numérique de la Propagation de Flammes de Prémélange dans une Atmosphère Pauvre en Hydrogène, Thèse de l'Université d'Orléans 2005
- [6] CONTI R. S. & al, 1988; Autoignition temperature for hydrogen-air and methane-air mixture, Journal of Fire Sciences, p 348-355, 1988
- [7] CHAUMEIX N. & al, 2005; H_2 Gradient Effect on Premixed Flame Propagation in a Vertical Facility: ENACCEF, ICEDERS 20th, Montréal, juillet 2005
- [8] BENTAIBA A. & al, 2005; Experimental and numerical study of flame propagation with hydrogen gradient in a Vertical Facility: ENACCEF, ERMSAR 2005, Aix-en-Provence
- [9] BLEYER A., & al, 2005; Evaluation of the pressure loads generated by hydrogen explosion in auxiliary buildings of a nuclear power plant, Proceedings of NURETH-11, paper 274, October 2-6, 2005, Avignon, France
- [10] BENTAIBA A. & al, 2006; Containment thermal-hydraulic simulations with an LP-CFD approach: qualification matrix of the TONUS code, ICONÉ 14, MIAMI July 2006
- C. E. PAILLARD & al, 2001; Note technique sur l'enceinte d'accélération de flamme, Rapport CNRS- LCSR Octobre 2001
- DOROFEEV S. & al, 2002; Large scale experiments for validation of hydrogen combustion models and criteria, article présenté au Jahrestagung Kerntechnik, Stuttgart, Mai 2002

2.5

Risque de colmatage des filtres des puisards de l'enceinte. Étude des effets chimiques au sein du lit fibreux déposé sur les grilles filtrantes

En 1999, l'IRSN a engagé un programme d'actions visant, à mieux connaître les phénomènes intervenant dans la formation et le comportement d'un lit fibreux sur les grilles filtrantes des systèmes de sauvegarde des puisards de l'enceinte de confinement, et à vérifier le caractère opérationnel de ces systèmes en phase de recirculation après une brèche du circuit primaire. Les résultats des travaux menés jusqu'en 2003 par l'IRSN ont confirmé l'existence d'un risque important de colmatage de ces grilles pour l'ensemble des tranches du parc français lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire. À la suite de ces travaux, l'IRSN a présenté, lors du groupe de travail du CSNI [1] sur le colmatage des puisards tenu à Albuquerque en février 2004, les deux domaines pour lesquels des recherches devaient être engagées en vue de lever les incertitudes et d'étayer les connaissances pour la conception de nouveaux dispositifs de filtration. Ces domaines sont la formation de débris sous l'effet du jet par la brèche, et les effets chimiques dans le lit fibreux fixé sur les grilles de filtration. Le premier axe de recherches qui était envisagé dans le cadre d'un programme OCDE n'a pas reçu un soutien suffisant pour être mis en œuvre. En revanche, le programme sur les effets chimiques a été engagé par l'IRSN et réalisé avec la collaboration de la société VUEZ (Slovaquie) et de l'université de Trencin (Slovaquie). Les résultats en sont présentés ci-après.

Présentation du problème

Lors d'une brèche importante du circuit primaire, les systèmes de sauvegarde d'injection de sécurité (RIS) et d'aspersion dans l'enceinte (EAS) sont sollicités par le système de protection. Ils injectent dans un premier temps la réserve d'eau borée à 2 500 ppm contenue dans la bache du circuit PTR située à l'extérieur de l'enceinte, une réserve de 1 600 m³, ainsi que le contenu du réservoir de soude. Lorsque la réserve d'eau de la bache PTR est épuisée, ils passent en mode de recirculation sur les puisards de l'enceinte par ouverture des vannes d'isolement des lignes correspondantes. Durant ces diverses phases, l'eau recueillie dans les puisards qui a été portée à un pH de l'ordre de 9,3 subit d'abord un pic de température

Tableau 1

Paramètres associés à l'établissement du modèle chimique et tests de laboratoire.				
	Calorifuge	Béton	Peinture	Poussière
Composés chimiques	x, y, z, ...	x, y, z, ...	x, y, z, ...	x, y, z, ...
Caractéristiques (masse, géométrie, granulométrie)	a, b, c	a, b, c	a, b, c	a, b, c
Forme des débris étudiés	Fibre + grain	Grain	Grain	Grain
Solution	Eau distillée, bore (2 500 ppm), soude, pH = 9,3 Autres composés chimiques : x, y, z, ...			
Température	Plusieurs valeurs dont 65 °C, 80 °C, 95 °C			
Tests statiques de dissolution	Ils permettent d'obtenir : <ul style="list-style-type: none"> ■ les concentrations à l'équilibre : f (qualités de la solution, température) ; ■ les conditions de formation des précipités et leur composition chimique. 			
Tests dynamiques de dissolution	Ils permettent d'obtenir : <ul style="list-style-type: none"> ■ la vitesse initiale de corrosion ; ■ l'étude de la formation des divers précipités. 			

à 120 °C environ. Puis la température décroît jusqu'aux alentours de 30 °C compte tenu du refroidissement par les échangeurs du système de refroidissement intermédiaire (RRI) et du système d'eau brute secouru (SEC) qui refroidissent le RIS et l'EAS. Les débris produits par la brèche primaire peuvent parvenir jusqu'aux grilles de filtration lors de la recirculation de l'eau contenue dans les puisards de l'enceinte en raison de la nature des écoulements verticaux et horizontaux de l'eau dans le bâtiment du réacteur. La constitution d'un milieu poreux sur ces grilles, situées à l'aspiration des pompes des systèmes RIS et EAS, peut notamment conduire à une augmentation des pertes de charge à l'aspiration des pompes, entraînant des risques de dysfonctionnement de celles-ci. Des effets chimiques dans le lit fibreux déposé sur les filtres des puisards

peuvent, en milieu alcalin, conduire à la formation de précipités (cristaux, gels) liés aux divers composés présents dans l'eau de recirculation, dans les calorifuges et dans les autres matériaux charriés comme les peintures, le béton, les poussières, etc. Ces effets peuvent entraîner une évolution significative dans le temps de la perte de charge des filtres, évolution qu'il convient de quantifier.

Compte tenu des évaluations partielles réalisées lors d'essais effectués jusqu'en 2003, l'IRSN a considéré que la caractérisation précise des précipités formés ainsi que leur impact sur la perte de charge des filtres devaient faire l'objet d'un programme de recherches, qui a été lancé en 2004.

Programme expérimental

L'objectif du programme était d'évaluer l'influence de la formation de précipités sur la perte de charge du lit fibreux déposé sur les grilles de filtration lors du fonctionnement des systèmes de sauvegarde en recirculation résultant d'une brèche importante du circuit primaire. Ce programme s'est uniquement intéressé aux effets de la chimie de l'eau dans l'enceinte en conditions standard et non à ceux propres à la chimie de l'eau en conditions d'accident grave. Afin de permettre une utilisation des résultats pour des réacteurs de conceptions différentes, la réalisation du programme a été orientée vers la construction de deux modèles : l'un dit modèle « chimique », le second dit modèle « perte de charge », avec les étapes suivantes :

- **détermination des caractéristiques de la solution contenue dans les puisards ;**
- **détermination de la cinétique de dégradation (dissolution, corrosion) des principaux types de débris provenant du calorifuge, du béton, des peintures ainsi que des poussières ;**
- **modélisation des phénomènes chimiques.** Le code PHREEQC version 2 a été utilisé afin de modéliser les réactions chimiques pouvant conduire à la formation de précipités. Ce code a été conçu pour effectuer une très grande variété de calculs chimiques en milieu aqueux et à basse température, afin de déterminer la nature et la masse de précipités dans une solution en fonction des espèces dissoutes [2] ;
- **essais de perte de charge.** Ils devaient quantifier l'influence des précipités sur la perte de charge du lit fibreux déposé sur les grilles de filtration, et caractériser leur composition et leurs formes (cristaux ou gels) au cours de la période post-accidentelle d'une brèche primaire. Enfin, ils ont été utilisés afin de qualifier le modèle de perte de charge après son établissement ;
- **modélisation de la perte de charge des grilles de filtration.** Les données d'entrée utilisées lors de l'établissement du modèle chimique ont été déterminées à l'aide des résultats des essais présentés dans le **tableau 1**. Les divers paramètres de l'étude ont été considérés, et des tests en laboratoire (statiques et dynamiques) ont permis, entre autres choses, d'identifier l'évolution au cours du temps de la concentration en solution des divers composés chimiques.

Le modèle de « perte de charge » a été qualifié par des essais permettant la mesure de la perte de charge d'un filtre colmaté réalisés sur la boucle ELISA. Celle-ci avait été construite dans le cadre des études menées par l'IRSN jusqu'en 2003. Cette boucle reproduit fidèlement les caractéristiques de fonctionnement d'un puisard (mailles, vitesse d'approche, etc.), et comporte un volume d'eau (ratio 2 700 avec une enceinte), à partir duquel ont été calculés les volumes de débris utilisés lors des expériences. Quelques améliorations ont cependant été apportées à la conception de la boucle afin d'accroître sa fiabilité pour la réalisation d'essais de longue durée. Les débris sont déposés sur le filtre (transport direct) ou dans un panier situé à l'opposé du filtre

Tableau 2

Tests de qualification du modèle « perte de charge »	
Caractéristiques des tests et objectifs de recherches	Types de débris mis en jeu
Test 1 (<i>test de référence</i>)	Lit fibreux simple
Test 2 (<i>test 1 : effet du calorifuge sédimenté</i>)	Lit fibreux + calorifuge sédimenté
Test 3 (<i>test 2 : effet des poussières</i>)	Lit fibreux + calorifuge sédimenté + poussières
Test 4 (<i>test 2 : effet des peintures</i>)	Lit fibreux + calorifuge sédimenté + peintures
Test 6 (<i>test 4 : effet du béton et des poussières</i>)	Lit fibreux + calorifuge sédimenté + peintures + poussière + béton
Test 6Bis, test 6BisRep et test 6BisTro (<i>test 6 : effet de la décroissance de la température</i>)	Lit fibreux + calorifuge sédimenté + peintures + poussière + béton

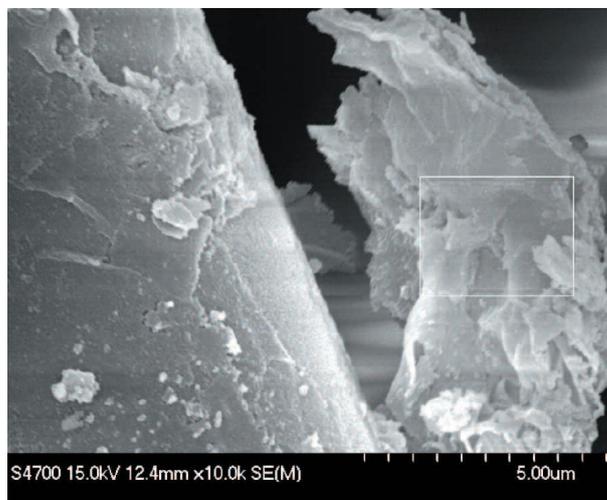


Figure 1 : Surface corrodée d'un grain.

(prise en compte des effets de dissolution des éléments ayant sédimenté dans l'enceinte).

Les huit essais réalisés sont présentés dans le **tableau 2**. Les cinq premiers (tests notés de 1 à 6) ont été menés durant un mois avec une température constante de 60 °C. Les trois derniers (tests notés 6Bis, 6BisRep et 6BisTro) ont été effectués avec une décroissance de température de 60 à 30 °C pendant un mois, conformément à celle observée lors du refroidissement de l'eau dans l'enceinte. La comparaison des résultats obtenus permet d'identifier l'effet de chaque type de débris sur la perte de charge, comme mentionné ci-dessous.

Résultats des essais relatifs au modèle « chimique »

Essais en laboratoire

Parmi les résultats significatifs obtenus, on retiendra que :

- le potassium est un bon traceur pour déterminer la corrosion des fibres. En effet, sa concentration dans la solution croît avec le temps, contrairement à ce qui se passe pour les autres éléments qui voient leur teneur décroître du fait de leur participation à la formation de précipités. Les vitesses de corrosion du calorifuge ont donc été évaluées sur la base de l'évolution de la concentration en solution du potassium en fonction du temps. Une équation de type Arrhenius a été utilisée pour représenter la relation entre la vitesse de corrosion du calorifuge et la température ;
- les tests réalisés avec du béton ont montré que celui-ci passe très rapidement en solution. Le relâchement de calcium est par conséquent très important.

Caractérisation microscopique des précipités possibles

Des études ont été menées concernant la morphologie du lit fibreux, les surfaces des fibres corrodées et les précipités. Le diamètre moyen initial des fibres est de 4,01 μm . Le diamètre moyen des fibres corrodées est de 4,54 μm . Cette augmentation est due à la formation des précipités qui viennent couvrir la surface des fibres corrodées. La photographie d'un précipité formé est présentée ci-après à titre d'exemple (*figure 1*).

Formes de précipités possibles

Le code PHREEQC (v2) a été utilisé afin de déterminer les espèces présentes en solution et de calculer leur concentration respective, compte tenu de la corrosion des débris et pour différentes valeurs de température. À partir des caractéristiques des paramètres du système, tels qu'identifiés dans le cadre des essais (eau, débris, températures, etc.), il a été possible de déterminer l'ensemble des précipités susceptibles de se former à partir des ions présents dans la solution pour diverses températures. Compte tenu du profil de température de l'eau des puisards, utilisé pour rendre compte de la décroissance de la puissance résiduelle, l'évolution temporelle des formes de précipités, en pourcentage du poids total, est donnée dans la *figure 2*.

Exploitation des échantillons prélevés lors des tests effectués avec la boucle ELISA

Deux types d'échantillons (échantillons de solution, échantillons du lit fibreux) ont été prélevés lors des divers tests réalisés avec la boucle ELISA. La *figure 3* montre la variation des quantités des éléments dissous dans la solution lors de l'essai 6Bis. Les échantillons solides ont fait l'objet d'une analyse chimique afin de vérifier l'adéquation entre les précipités formés et les espèces identifiées par le calcul. Par ailleurs, les observations tirées des essais statiques de dissolution sont confirmées pour l'utilisation du potassium comme traceur de la cinétique de corrosion des fibres de calorifuges.

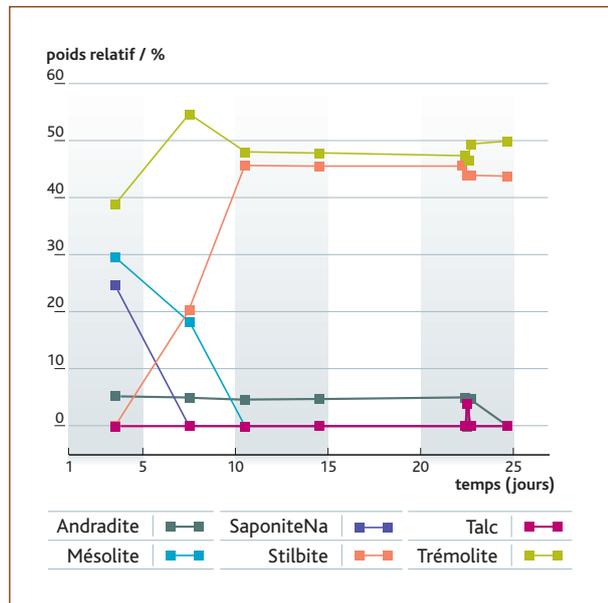


Figure 2 : Évolution en fonction du temps des formes de précipités.

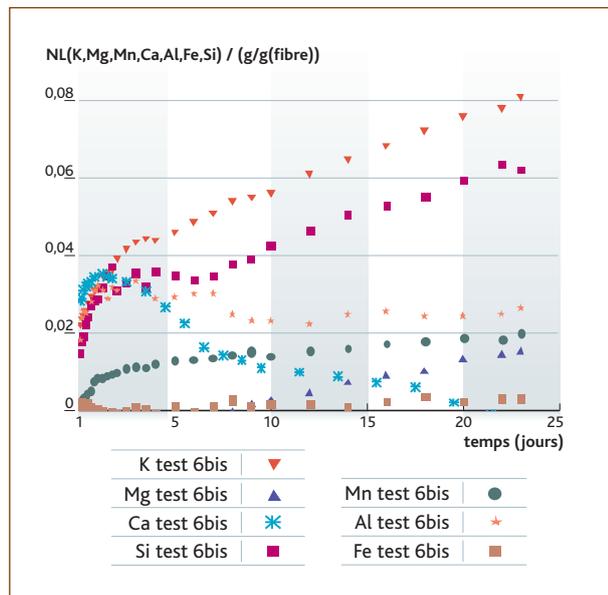


Figure 3 : Évolution des quantités d'éléments dissous (test 6Bis).

Synthèse

Le programme chimique a permis d'obtenir :

- la liste des précipités envisageables compte tenu des éléments dissous, associée à leur densité (estimation du taux de vide résiduel dans le lit fibreux) ;
- la quantité de débris dissoute ;
- la quantité maximale de précipités envisageable ;
- la nature des précipités ;
- la cinétique de formation des précipités envisageables.

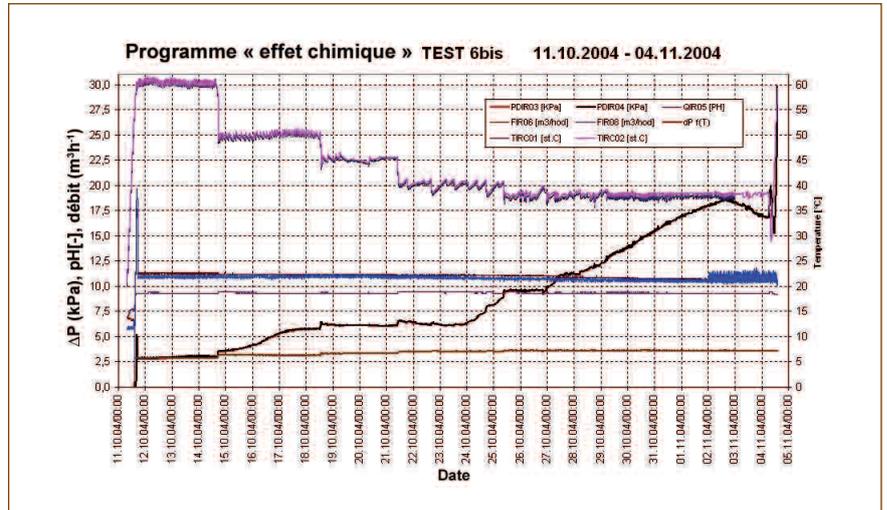


Figure 4 : Résultat du test 6Bis (11/10/04 au 04/11/04).

Interprétation des essais de qualification du modèle « perte de charge »

À titre d'exemple, l'évolution observée de la perte de charge du filtre lors de l'essai 6Bis est présentée dans la *figure 4*. Les résultats obtenus ont permis d'identifier les principaux facteurs qui influent sur la perte de charge aux bornes du filtre, à savoir la nature de l'isolant et sa masse, la température, les débris de béton et le pH de la solution.

Compte tenu des différentes observations réalisées au cours des tests effectués, une approche théorique a été proposée pour caractériser les changements de morphologie du lit fibreux :

- durant la phase de montée en eau dans l'enceinte (injection directe) et de basculement en recirculation, les fibres et les débris présents sont charriés vers le filtre et créent un lit fibreux. La température est estimée voisine de 60 °C. Dès cet instant, la corrosion des fibres commence et les fibres sont en partie dissoutes. Dès que la saturation des composés de la solution est atteinte, des précipités sont créés, principalement sous forme de cristaux (*hypothèse 1*), et se déposent sur les fibres. La perte de charge du filtre (DP) commence à croître (*hypothèse 2*) ;
- lorsque la température de la solution est abaissée progressivement de 60 °C à 45 °C, puis à 38 °C, les précipités se développent et la perte de charge augmente de façon plus importante que sous le seul effet de la viscosité (*hypothèse 3*). En fonction de l'évolution de la température, des précipités déjà créés peuvent être dissous et remplacés par d'autres, de densité plus ou moins grande, ou sous forme de gels (*hypothèse 4*). Aucun gaz ne semble être relâché ou présent dans le lit fibreux déposé sur les filtres (*hypothèse 5*) ;
- la perte de charge augmente brutalement lorsque la température de la solution subit une variation à la hausse, par exemple une rampe de température de 38 °C à 50 °C en 1 heure. La valeur maximale atteinte est inconnue. Le processus a été stoppé à l'atteinte de la valeur dimensionnante du dispositif expérimental 30 kPa aux bornes du filtre. Le refroidissement entraîne une décroissance de la perte de charge, qui retrouve la valeur qui était la sienne avant l'excursion de température. Ce phénomène est par conséquent qualifié de réversible. Deux hypothèses sont avancées en précisant que leur concomitance est possible : la première porte sur la transformation de certains précipités en gels (*hypothèse 6*), la seconde sur la formation d'une phase gazeuse pouvant être capturée par le lit fibreux (*hypothèse 7*). Deux explications sont possibles à cet égard : la première suppose un relâche-

ment de gaz du fait de réactions chimiques (*hypothèse 7.1*), la seconde présume d'un dégazage de la solution lors de son passage dans le lit fibreux, phénomène dû à la perte de pression ou à une variation de la solubilité des gaz dissous (*hypothèse 7.2*).

Dans le cas d'une augmentation unique de température, l'accroissement de la perte de charge pourrait résulter d'une augmentation de la quantité de précipités ou de gels suite à des réactions chimiques (*hypothèse 8*), ou de la capture de gaz accroissant le volume de gel piégé dans le lit fibreux (*hypothèse 9*). Dans le cas de plusieurs transitoires de température successifs créés artificiellement, la répétition des actions mécaniques et/ou des réactions chimiques conduit à une baisse progressive de la perte de charge maximale atteinte due à la dissolution des gels (*hypothèse 10*) ou à une chasse des gels et des bulles gazeuses vers les puisards et les circuits RIS et EAS, effets du débit ou des gaz (*hypothèse 11*) ;

- l'évolution de la perte de charge est lente lors d'un long maintien à une température de 30 °C, du fait de la faible vitesse de corrosion des débris à cette température (*hypothèse 12*). Cependant, la perte de charge aux bornes du filtre devrait s'élever lentement et continuellement au fur et à mesure que les précipités se créent, à condition que ne se produise pas une variation de température intempestive dont les conséquences seraient de même nature que celles citées plus haut (*hypothèse 13*).

Un nouveau programme d'études a été engagé en juillet 2005 afin de confirmer la pertinence des hypothèses évoquées ci-dessus. Ce programme est réalisé au moyen de 6 boucles dénommées ELISA BABIES dont l'échelle a été réduite d'un facteur 10 par rapport à celle de la boucle ELISA. Les grands axes de ce programme ont consisté à étayer les connaissances sur les points suivants :

- la corrosion des fibres de verre à long terme à une température constante de 30 °C ;
- la corrosion du béton par lessivage ;
- la corrosion d'autres types de calorifuge, notamment de la laine de roche ;
- la formation de gaz (et/ou de gel) et leur capture par le lit fibreux ;
- les conséquences de changements de température.

Modèle « perte de charge »

Un modèle monodimensionnel de perte de charge aux bornes du filtre a été établi. Il permet de rendre compte de son évolution dans le temps en fonction de la quantité d'isolant dissous.

Ce modèle suppose une répartition non homogène des particules initialement présentes dans l'eau des puisards (poussières, béton, rouille, etc.). Cet aspect a été démontré au travers d'expériences menées dans le cadre de l'élaboration de ce modèle. Des abaques ont été déterminés afin de préciser la distribution des particules dans l'épaisseur d'un lit fibreux en fonction de leur diamètre.

Ces particules, associées aux fibres de verre, sont réparties dans l'épaisseur du lit de débris. Ce lit est représenté sous la forme d'une succession de fines épaisseurs qui forment un maillage. Une surface spécifique est attribuée à chacune de ces mailles.

Une perte de charge initiale est calculée compte tenu des fibres et des autres débris mis en jeu.

La masse de précipités produite à chaque pas de temps est estimée à l'aide du code PHREEQC. Elle est répartie au prorata des surfaces de nucléation présentes dans chacune des mailles. La porosité de chaque maille est calculée ainsi que sa contribution à la perte de charge totale.

■ Conclusion

À l'issue d'études menées entre 1999 et 2003 sur le colmatage des puisards de l'enceinte de confinement en cas de brèche du circuit primaire d'un réacteur à eau pressurisée [3], l'IRSN a décidé de développer un programme de recherches destiné à améliorer les connaissances de l'influence des effets chimiques sur la perte de charge au sein d'un lit fibreux déposé sur des grilles de filtration [2]. Le programme aboutit aux conclusions suivantes [4] :

- la formation de précipités au sein du lit fibreux est confirmée et se traduit par le dépôt de cristaux et de gels, selon la température de la solution dans les puisards de l'enceinte. Cette formation de précipités entraîne une évolution très significative de la perte de charge au niveau des grilles de filtration des systèmes de sauvegarde ;
- de nouvelles études expérimentales sont indispensables afin d'étayer les questions soulevées par la teneur des résultats. Elles devraient entre autres avoir pour objectif de doter l'IRSN de

données quantitatives qui permettraient de réévaluer des marges associées aux modifications actuellement en cours, comme la validité du dimensionnement des nouvelles surfaces de filtration dans le cadre de la gestion au long terme des situations postaccidentelles. Par ailleurs, divers effets intempestifs ou *stimuli* devraient être pris en compte comme aggravants et susceptibles d'accentuer ces phénomènes chimiques. À titre d'exemple, les effets locaux de température sur la dissolution des débris, notamment au droit de la brèche où l'eau peut avoir une température voisine des 90 °C. Il convient d'approfondir ce sujet et de l'étayer par de nouveaux résultats expérimentaux. Enfin, il convient de s'interroger sur l'impact de ces phénomènes chimiques s'ils survenaient à des endroits critiques des systèmes de sauvegarde RIS et EAS ou des grilles des assemblages combustibles. De nouvelles études sont indispensables sur ce point.

Les résultats obtenus par l'IRSN ont fait l'objet d'une présentation lors de la conférence EUROSAFE 2005 [5].

Références

- [1] Debris impact on Emergency Coolant Recirculation – Workshop Proceedings Albuquerque, NM, USA, 25-27 February 2004
- [2] PHREEQC – Version 2 – A computer programme for Speciation, Batch-Reaction, One Dimensional Transport and Inverse Geochemical Calculations
- [3] Rapport IPSN/DES/SERS n° 400 du 14 octobre 2003 de JM. MATTEI et Y. ARMAND « Étude du risque de colmatage des puisards de l'enceinte »
- [4] Rapport IRSN/DESTQ/DIR n°1 du 30 novembre 2005 de JM. MATTEI « Risque de colmatage des filtres des puisards de l'enceinte - Étude des effets chimiques au sein du lit fibreux déposé sur les grilles filtrantes »
- [5] EUROSAFE 2005 – Risk of Sump Plugging Experimental Program on Chemical effects – Jean-Marie MATTEI, Yves ARMAND (IRSN/France) ; Ivan VICENA, Bela SOLTESZ, Jozef BATALIK, Vladimir GUBCO (VUEZ/Slovaquie) ; Marek LISKA, Andrea KLEMENTOVA (Université de Trenčin/VITRUM LAUGARICIO/Slovaquie)

2.6

Physique et métrologie des agrégats : application à l'aérosol de combustion

François-Xavier OUF,
Jacques VENDEL
Laboratoire de physique et
de métrologie des aérosols

L'incendie est l'un des risques industriels majeurs en termes de conséquences pour les personnes et l'environnement. Dans le domaine nucléaire, il peut ainsi entraîner la perte du confinement des substances radioactives et donc induire des rejets dans l'environnement. Aussi l'IRSN mène-t-il depuis de nombreuses années des travaux sur l'influence d'une telle situation accidentelle sur le maintien du confinement. L'évolution du feu et des dispositifs de filtration dépendent des caractéristiques des suies émises. Les travaux menés au sein de l'IRSN sur la modélisation des incendies en milieux confinés et sur le comportement des barrières de filtration comme les filtres à très haute efficacité (THE) ont souligné un manque de connaissance sur la caractérisation des particules de suie émises [1]. La connaissance de la granulométrie et de la morphologie de ces particules s'avère donc indispensable pour développer des modèles de colmatage des filtres THE et déterminer les propriétés radiatives de ces particules afin de quantifier leur impact sur la propagation d'un incendie. L'étude réalisée s'est donc articulée autour des moyens métrologiques nécessaires pour établir les caractéristiques morphologiques et radiatives des particules de suie.

Les particules de suie : des agrégats à la morphologie complexe

Les particules de suie résultent de phénomènes de formation complexes dans les flammes. De nombreux modèles sont présents dans la littérature [2], mais tous s'accordent sur trois grandes étapes :

- la nucléation, correspondant à la transition entre un système moléculaire et un système particulaire ;
- la croissance de surface, où des dérivés de combustion, notamment les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) réagissent à la surface des particules ;
- et enfin, une phase de coagulation/agrégation, où les particules de suie se structurent.

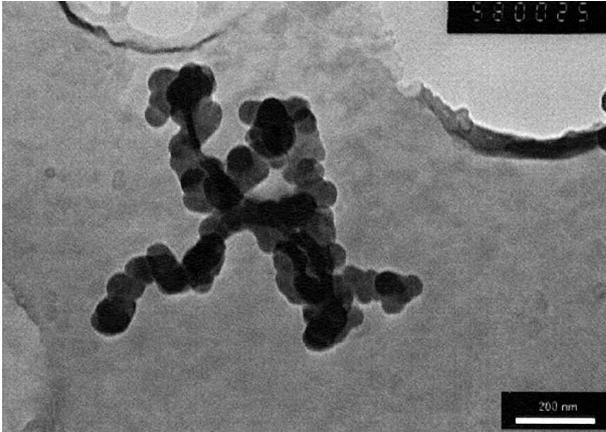


Figure 1 : Cliché de microscopie électronique à transmission d'un agrégat de suie d'acétylène.

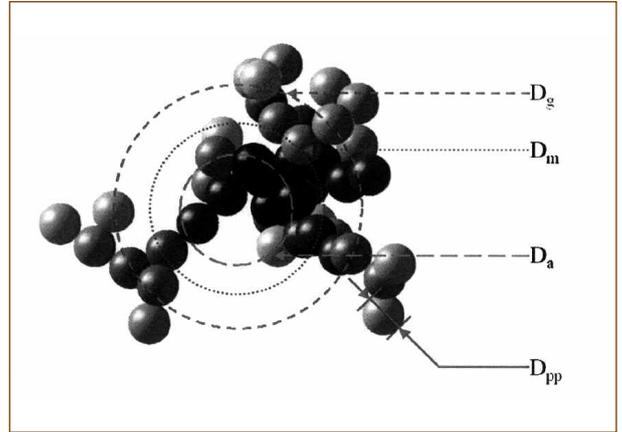


Figure 3 : Comparaison des diamètres permettant de caractériser une particule de suie.

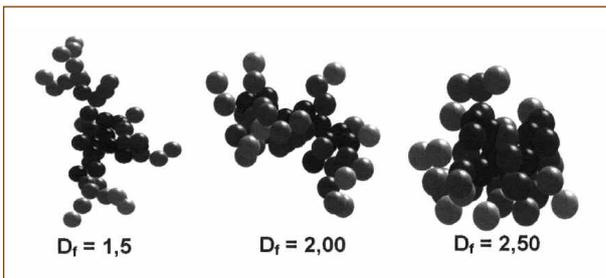


Figure 2 : Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes.

Cette dernière phase d'agrégation impose leur morphologie spécifique comme elle apparaît sur le cliché de microscopie électronique à transmission présenté dans la **figure 1**.

Les suies sont des agrégats de particules primaires sphériques généralement considérées de même taille puisque résultant des mêmes processus de formation. La morphologie de tels agrégats a longtemps posé difficulté pour leur représentation, car ils ne peuvent pas être approchés par des sphères et il a fallu attendre les travaux de Jullien et Botet [3], sur leur nature fractale, pour décrire leur morphologie. La forme des agrégats de suie peut être caractérisée à l'aide d'une relation fractale, vérifiée quelle que soit la taille des agrégats, qui lie le nombre de particules primaires N_p aux différents diamètres caractéristiques de l'agrégat :

$$N_p = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f}$$

Un agrégat de suie se définit alors à partir du diamètre D_{pp} des particules primaires et du diamètre de giration D_g . Ce dernier correspond à la moyenne des carrés des distances entre les particules primaires et le centre de masse de l'agrégat. Ce diamètre, intervenant dans la relation fractale, est généralement déterminé par l'analyse de clichés de micro-

scopie électronique. La relation fractale fait de plus intervenir deux grandeurs : la dimension fractale D_f et le préfacteur k_f . La dimension fractale permet de quantifier la compacité d'un objet. Pour les agrégats de suie issus de la combustion d'hydrocarbures, elle est généralement inférieure à 2, représentant un objet de structure peu compacte. La **figure 2** présente trois agrégats ayant des dimensions fractales différentes.

Moyens métrologiques et caractérisation des particules de suie

En métrologie des aérosols, les deux diamètres les plus couramment utilisés sont le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique. Le diamètre aérodynamique D_a d'une particule de forme quelconque correspond au diamètre de la sphère équivalente de masse volumique $\rho_0 = 1\,000 \text{ kg/m}^3$ ayant la même vitesse de chute que la particule considérée. Le diamètre de mobilité électrique D_m est quant à lui défini comme étant le diamètre de la sphère équivalente ayant la même vitesse de dérive dans un champ électrique E que la particule étudiée. La majorité des dispositifs métrologiques rendent compte de diamètres équivalents à des sphères.

Si cette hypothèse est généralement acceptable en métrologie des aérosols, il est cependant difficile de conclure sur le bien-fondé de cette hypothèse lorsque l'on considère des agrégats dont la morphologie est très éloignée de la sphère. À titre d'exemple, la **figure 3** présente un agrégat ainsi que les différents diamètres associés.

On voit, à travers cette figure, la difficulté de comparer les diamètres équivalents d'un tel agrégat et la nécessité d'intégrer sa nature fractale pour interpréter les informations des dispositifs de mesure de distribution granulométrique.

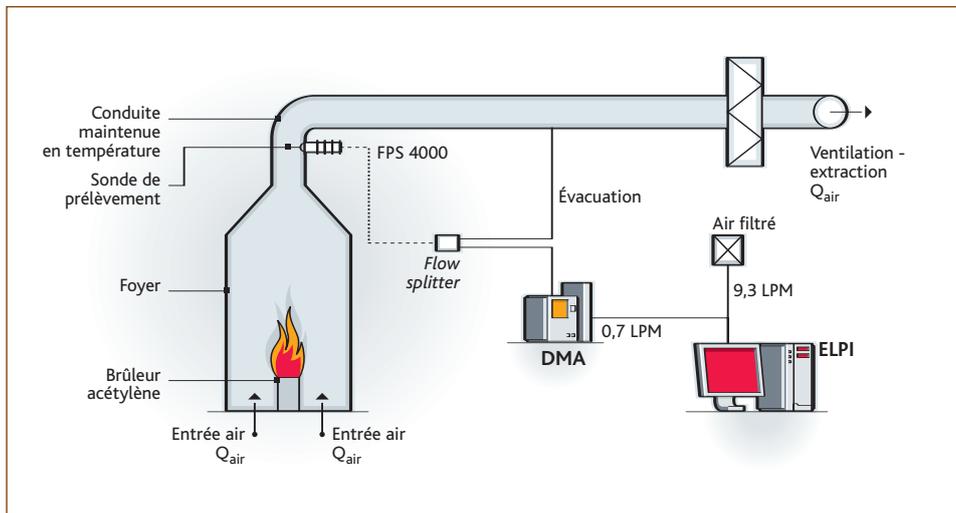


Figure 4 : Dispositif expérimental de production et de caractérisation des particules de suie.

Le dispositif expérimental BANCO

Le dispositif expérimental, dénommé BANCO (pour BANc de COLmatage) dont dispose l'IRSN à Saclay est détaillé en *figure 4*. Il se compose d'un foyer d'un mètre cube surmonté d'une conduite de ventilation maintenue en température pour éviter les condensations. Un système d'extraction associé à un caisson de filtration et à deux diaphragmes étalonnés permet de couvrir une gamme de débits de ventilation dans le foyer allant de 50 à 500 m³/h. Les particules produites sont échantillonnées dans la ligne de ventilation à l'aide d'une sonde isocinétique et d'un système de dilution permettant de conditionner le prélèvement. La production de particules de suie s'effectue à partir de trois combustibles : un gaz, l'acétylène, associé à un brûleur de référence issu de la littérature [4], un liquide, le toluène (également étudié dans la littérature) et un combustible solide, le PolyMéthacrylate de Méthyle (PMMA), composant de boîtes à gants qui peuvent être présentes dans les installations nucléaires.

Caractérisation de la morphologie des particules de suie

Un soin tout particulier a été apporté aux moyens permettant la détermination, aussi directe que possible, des grandeurs fractales des agrégats de suie. Ainsi, des travaux ont été menés afin de lier les caractéristiques granulométriques (D_a et D_m), directement mesurées au cours des essais de combustion, avec les caractéristiques morphologiques (D_f et D_g) nécessaires à la compréhension du comportement physique des agrégats. La dimension fractale peut être définie en comparant, pour une même particule, son diamètre aérodynamique déterminé par un ELPI (impacteur électrique à basse pression) et son diamètre de mobilité électrique sélectionné par un DMA (analyseur de mobilité électrique) à partir des considérations théoriques introduites par Rogak et Flagan [5] liant le diamètre de mobilité électrique et le diamètre de rotation des agrégats de suie.

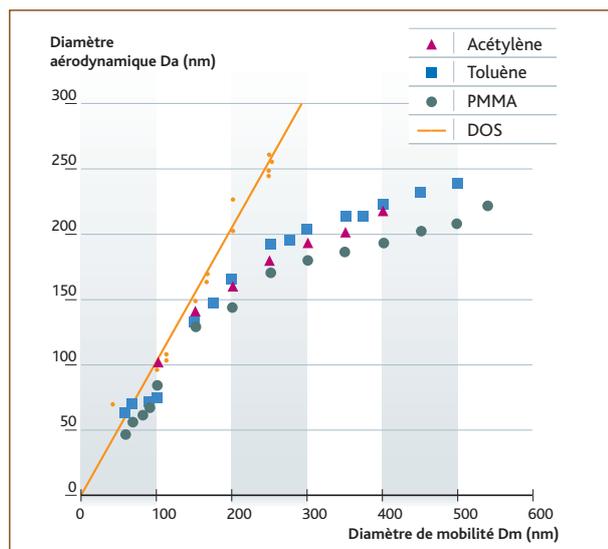


Figure 5 : Évolution du diamètre aérodynamique en fonction du diamètre de mobilité électrique.

Résultats expérimentaux : de la distribution granulométrique à la morphologie des agrégats

La *figure 5* présente l'évolution du diamètre aérodynamique en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des particules sphériques d'huile de Dioctyl sebacate (DOS) et pour des agrégats de suie produits par la combustion de l'acétylène, du toluène et du PMMA.

La relation existant entre ces deux diamètres est fonction de la masse volumique et du facteur de forme dynamique des particules.

2.6

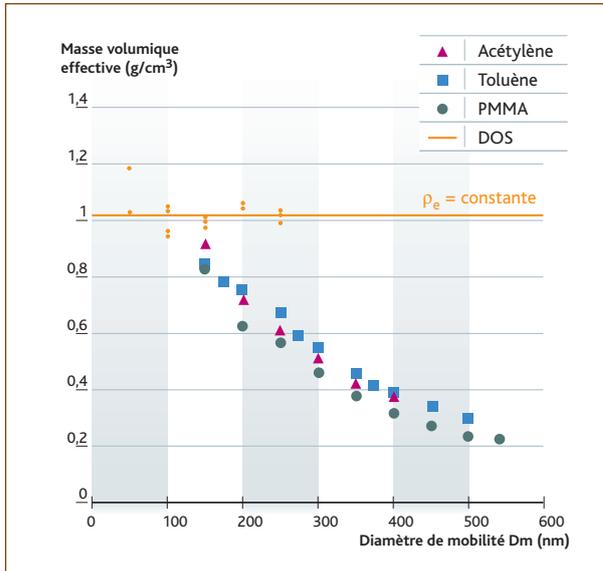


Figure 6 : Évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique.

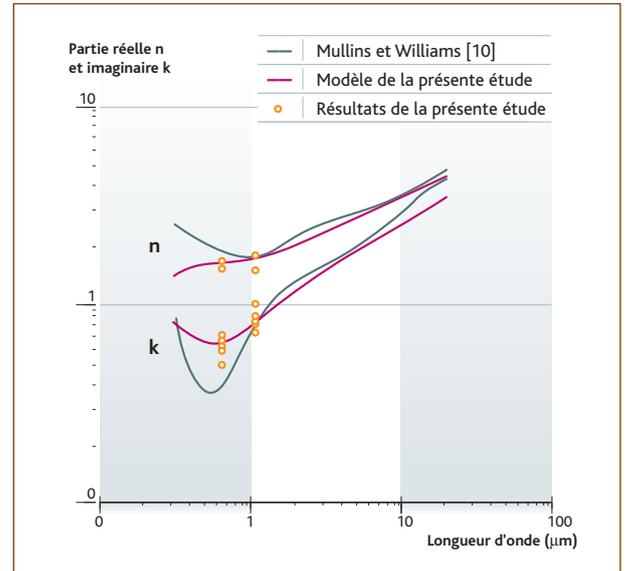


Figure 7 : Évolution de l'indice optique des suies en fonction de la longueur d'onde.

Ainsi, pour des particules sphériques (DOS), une relation linéaire existe entre ces deux diamètres. Pour des particules de suie, cette relation n'est vérifiée que pour celles dont le diamètre de mobilité électrique est inférieur à 150 nm. Au-delà de ce diamètre, on observe une nette divergence par rapport à l'hypothèse de sphéricité soulignant la nature fractale des agrégats. Il convient alors de considérer que la masse volumique évolue en fonction du diamètre des particules et l'on parle alors de masse volumique effective. La *figure 6* présente l'évolution expérimentale de la masse volumique effective ρ_e en fonction du diamètre de mobilité électrique pour les particules de suie et les particules sphériques de DOS.

On retrouve pour les particules sphériques une masse volumique constante et, pour les agrégats de suie, une masse volumique évoluant avec le diamètre de mobilité électrique des particules. Cette évolution, cohérente avec la théorie fractale, lie la masse volumique effective au diamètre de mobilité électrique des agrégats par une fonction puissance ($\rho_e \propto D_m^{D_f-3}$). On peut définir la dimension fractale à l'aide de cette relation expérimentale.

La dimension fractale peut être déterminée par une autre approche. En effet, disposant de la fonction d'évolution de la masse volumique effective selon le diamètre de mobilité électrique, il est possible d'établir une relation expérimentale du même type entre la masse des agrégats et celui-ci. Connaissant le diamètre des particules primaires D_{pp} et leur masse volumique, on peut alors préciser le nombre de particules primaires (N_p) composant les agrégats. On établit, en reprenant l'hypothèse de Rogak et Flagan [5] ($D_g = \beta \cdot D_m$) une relation linéaire entre $\ln(N_p)$ et $\ln\left(\frac{D_m}{D_{pp}}\right)$. La dimension fractale des agrégats est donnée dans cette relation par le coefficient directeur de cette droite. Une représentation équivalente est obtenue en substituant le diamètre de mobilité électrique par le diamètre de giration. Le *tableau 1* regroupe les différentes valeurs de la dimension fractale obtenues à partir du diamètre de giration (analyse de clichés de microscopie électronique à transmission) et à partir du diamètre de mobilité électrique (analyse DMA-ELPI en série). Les dimensions fractales issues de ces deux approches sont quasiment identiques, soulignant ainsi la fiabilité de notre approche comparative du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique des agrégats.

Tableau 1

Comparaison des dimensions fractales issues de l'analyse MET et de l'analyse DMA-ELPI		
Combustible	D _f MET (incertitude en %)	D _f DMA-ELPI (écart avec MET en %)
Acétylène	1,93 (5 %)	1,99 (3 %)
Toluène	1,81 (5 %)	1,82 (1 %)
PMMA	1,72 (7 %)	1,79 (4 %)

De la morphologie aux propriétés radiatives des suies

Une application directe de l'analyse morphologique réside dans la détermination des propriétés radiatives des particules de suie. La contribution des particules de suie au bilan radiatif global d'un incendie nécessite de connaître l'émissivité totale de ces particules. Sa détermination repose sur l'estimation de l'indice optique complexe $m = n - i \cdot k$ (où n représente l'indice de réfraction et k l'absorption du matériau) des agrégats de suie sur toute la gamme du spectre thermique. Le principe de la détermination de l'indice optique des particules de suie repose sur la comparaison des coefficients d'extinction et de diffusion mesurés expérimentalement avec ceux calculés à partir d'un code de calcul fondé sur la théorie de Rayleigh-Debye-Gans (RDG-FA) intégrant la nature fractale des agrégats [6]. On détermine à l'aide d'un dispositif expérimental [7] les coefficients d'extinction et de diffusion « vertical-vertical » des particules de suie. On utilise également le code de calcul RDG-FA, dont les données d'entrée sont la distribution granulométrique des suies, leurs caractéristiques morphologiques (D_f , k_f et D_{pp}) et un indice optique supposé. La valeur physique de l'indice optique correspond à la valeur minimisant l'écart entre les coefficients expérimentaux

et les coefficients issus du calcul RDG-FA. Ce protocole expérimental de détermination de l'indice optique a été appliqué aux trois combustibles étudiés pour des conditions de ventilation différentes correspondant au régime surventilé de combustion. La principale conclusion du travail mené à l'IRSN réside dans la faible influence de la nature du combustible sur la valeur finale de l'indice optique complexe m , et ce quelle que soit la longueur d'onde. Un indice optique moyen a ainsi été introduit pour chacune des longueurs d'onde étudiées :

$m = 1,56 - i \cdot 0,61$ à 632 nm et $m = 1,71 - i \cdot 0,86$ à 1 064 nm.

Il a également été souligné la faible influence sur la valeur de l'indice complexe des suies des conditions de ventilation représentatives du régime surventilé. Les valeurs moyennes d'indice établies apparaissent du même ordre de grandeur que celles issues de la littérature [8]. L'ensemble de ces résultats, associés à un modèle de dispersion de l'indice [9], a alors été utilisé afin d'étendre ceux obtenus aux deux longueurs d'onde à l'ensemble du spectre thermique (figure 7). Des travaux sont actuellement en cours afin d'estimer l'émissivité totale des suies à l'aide de ces résultats [11].

Conclusion

Les travaux de recherche menés à l'IRSN dans le domaine de la caractérisation des particules de suie émises lors d'un incendie ont permis de souligner la nature fractale de ces particules et la faible influence des conditions de production et de la nature du combustible sur leurs caractéristiques morphologiques et optiques. L'interprétation des informations apportées par les dispositifs de mesure de la distribution granulométrique des particules au cours d'essais représentatifs d'incendie a permis d'extraire les grandeurs caractérisant leur nature fractale. Les résultats présentés ici ont été obtenus uniquement pour le régime surventilé de combustion. Des travaux à venir permettront d'étendre la gamme d'étude au régime sous-ventilé de combustion.

Références

- [1] MOCHO, V.M., BOUILLOUX, L. et RENZI V. (2004) Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par les aérosols formés en cas de feux de différents matériaux, 20^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, Paris
- [2] KENNEDY, I.M. (1997) Models of soot formation and oxidation, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 23, 95-132
- [3] JULLIEN, R. et BOTET, R. (1987) *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8
- [4] KÖYLÜ, U.O, SIVATHANU, Y.R. et FAETH, G.M. (1991) Carbon monoxide and soot emissions from buoyant turbulent diffusion flames, *Fire Safety Science: Proceedings of the Third International Symposium*, 625-634
- [5] ROGAK S.N. et FLAGAN R.C. (1990) Stokes drag on self-similar clusters of spheres, *J. Colloid Interface Sci.*, 134, 206-218
- [6] FARIAS, T.L., KÖYLÜ, U.O et CARVALHO M.G. (1996) Range of validity of the Rayleigh-Debye-Gans theory for optics of fractal aggregates, *Applied Optics*, 35, 6560-6567
- [7] OUF, F.X., COPPALLE, A., VENDEL, J., WEILL, M.E. et YON, J. (2005) Détermination expérimentale de l'indice de réfraction de particules de suie dans l'infrarouge, 21^{ème} Congrès Français sur les Aérosols
- [8] KRISHNAN, S.S., LIN, K.C. et FAETH, G.M. (2000) Optical properties in the visible of overfire soot in large buoyant turbulent diffusion flames, *J. Heat Transfer*, 122, 217-524
- [9] DALZELL, W.H. et SAROFIM, A.F. (1969) Optical constants of soot and their application to heat-flux calculations, *J. Heat Transfer*, 91, 100-104
- [10] MULLINS, J. et WILLIAMS, A. (1987) The optical properties of soot: a comparison between experimental and theoretical values, *Fuel*, 66, 277-280
- [11] FELSKE, J.D. et TIEN, C.L. (1973) Calculation of the emissivity of luminous flames, *Combust. Sci. Technol.*, 7, 25-31

2.7

Modélisation de la dispersion d'un gaz lourd dans un local ventilé

Dans le cadre de l'analyse des plans d'urgence interne (PUI) élaborés par les exploitants d'installations nucléaires de base, l'IRSN a notamment en charge l'évaluation des scénarios accidentels retenus et de leurs conséquences dans l'environnement. Certaines des installations du cycle du combustible mettent en œuvre de l'hexafluorure d'uranium (UF_6), dont le comportement en cas de rejet accidentel dans un local ventilé nécessite d'être étudié plus finement pour évaluer les conséquences pour l'environnement de manière plus réaliste. Pour ce faire, un Programme d'intérêt commun (PIC) dédié à l'étude du rejet accidentel d' UF_6 a été mené en collaboration avec Areva NC, Eurodif et FBFC. L'une des étapes de ce PIC visait à étudier le comportement d'un gaz lourd dans un local ventilé. En effet, du fait de sa forte densité (12 par rapport à l'air), l' UF_6 émis sous forme gazeuse est soumis à des effets gravitaires importants, qui conditionnent en grande partie les quantités impliquées dans le processus d'hydrolyse avec l'humidité ambiante. Les produits issus de cette réaction étant particulièrement nocifs (HF et aérosols d' UO_2F_2), l'évaluation de leur rejet dans le local, puis dans l'environnement, essentiellement *via* la cheminée de rejet après transfert dans le réseau de ventilation, est essentielle. Une étude a ainsi été menée au DSU/SERAC, afin de caractériser la dispersion d'un gaz traceur lourd à l'intérieur de locaux de différentes tailles. Cette étude s'est appuyée sur une large campagne expérimentale de dispersion d'hexafluorure de soufre⁽¹⁾ (SF_6 , de densité égale à 5) et sur des simulations multidimensionnelles de l'ensemble des essais. L'objectif final était d'évaluer la capacité du code de calcul retenu (CFX-5) à retranscrire de manière satisfaisante le comportement d'un gaz lourd en termes de dispersion, en vue de son application ultérieure à l'étude de scénarios mettant en jeu de l' UF_6 .

(1) L'emploi de ce gaz traceur, choisi en raison de sa forte densité et de son innocuité, n'est pas représentatif pour simuler la réaction d'hydrolyse de l' UF_6 . Toutefois, les quantités d' UF_6 consommées par cette réaction sont suffisamment faibles en raison de la faible teneur en vapeur d'eau pour ne pas modifier notablement la dispersion du gaz. En ce sens, l'étude de la dispersion de SF_6 est pertinente au regard de l'objectif de l'étude, la qualification de l'outil de calcul CFX-5.

Description du programme expérimental

Le programme expérimental repose entièrement sur la mise en œuvre du traçage gazeux dont l'intérêt est lié à l'emploi d'une substance simulant le comportement du gaz étudié (en termes de dispersion), pour laquelle sont maîtrisées à la fois la production et l'analyse spécifique. Ce programme a été construit sur la base de l'interprétation des données fournies dans les scénarios d'accidents présentés par les différents exploitants, en termes de concentrations de gaz et de renouvellement d'air dans les locaux. Il en ressort des durées de fuites d' UF_6 inférieures à 15 minutes avec des concentrations en

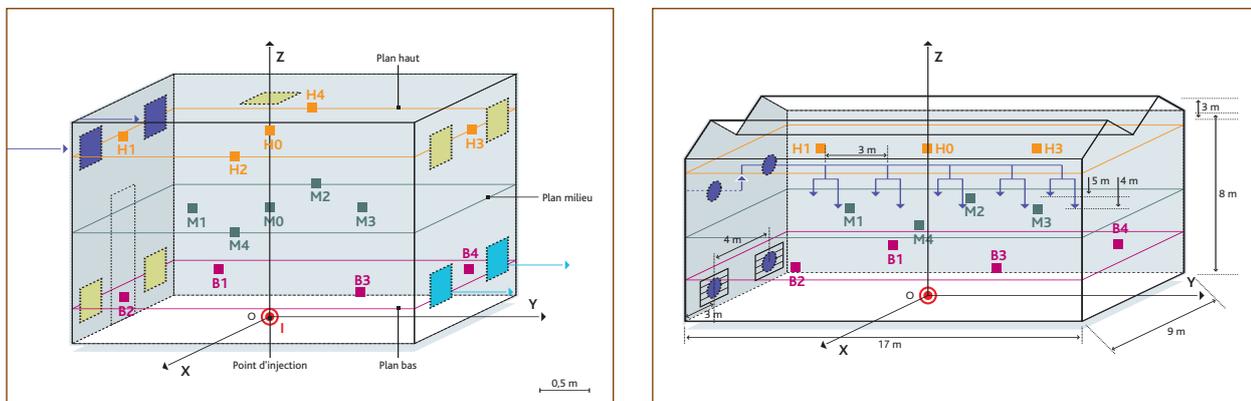


Figure 1 : Cartographie des points de prélèvement dans les deux locaux.

gaz comprises entre 10^4 et 10^5 ppm. De plus, les locaux dans lesquels le relâchement accidentel de gaz peut se produire présentent des volumes compris entre 1 000 et 48 000 m^3 , avec des taux de renouvellement en air compris entre 0,2 et 3 h^{-1} . Il découle de l'ensemble de ces données le choix des valeurs des paramètres fixés comme les débits et les modes de fonctionnement de la ventilation, les débits et les durées d'émission de traceur, compte tenu des concentrations théoriques en polluant. Les grandeurs étudiées sont principalement l'homogénéité du renouvellement en air du local et l'évolution spatio-temporelle des concentrations et des cinétiques de transfert à proximité de la source et à l'échelle du local. Les locaux expérimentaux implantés sur le site de l'IRSN/Saclay présentent des volumes différents, respectivement 36 m^3 et 1 500 m^3 , permettant de couvrir la gamme des concentrations réelles imposées tout en produisant des quantités raisonnables de traceur. Compte tenu du caractère analytique de l'étude, des données dites « enveloppes » et « intermédiaires » des situations accidentelles de relâchement d' UF_6 ont été prises en compte pour les différents paramètres utilisés.

Au total, une vingtaine de configurations d'essais ont été définies pour les deux locaux, soit respectivement 14 et 7 configurations. Les grilles d'essais ont été élaborées sur la base des choix évoqués précédemment. Les concentrations théoriques de traceur évoluent de 10^3 à $3 \cdot 10^4$ ppm pour des durées de fuite variant de 2 à 15 minutes. Les taux de renouvellement en air sont compris entre 0,2 et 3 h^{-1} . De plus, les vitesses d'émission du gaz traceur sont comprises entre 6 et 42 $m \cdot s^{-1}$ selon les scénarios : les diamètres d'injection sont adaptés aux débits injectés. L'orientation du jet d'émission a été choisie verticale et ascendante pour toutes les configurations testées. Enfin, deux modes de fonctionnement de la ventilation des locaux ont été étudiés : continu et discontinu. Dans le cas d'un mode discontinu,

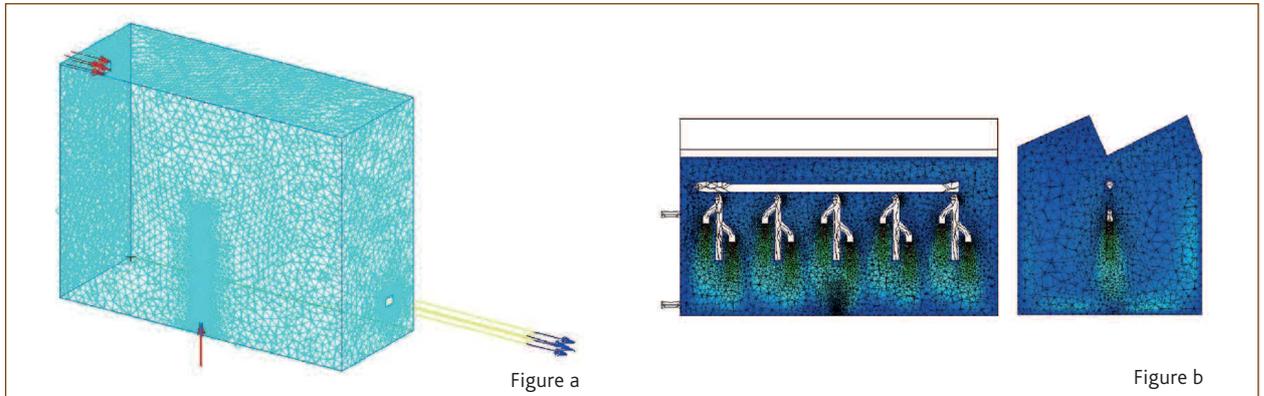


Figure 2 : Géométrie de maillage retenue pour le local de 36 m³ (a) et de 1 500 m³ (b).

la ventilation nominale du local fonctionne, puis est stoppée pendant un délai court, avant remise en service en mode réduit dit « d'assainissement ». Pour chacune des configurations testées, le suivi des évolutions temporelles des concentrations en SF₆ est réalisé par spectrométrie infrarouge en différents points localisés sur 3 niveaux dans les locaux (figure 1). Une représentation des résultats volontairement allégée (suivi de la concentration en un seul point par plans bas, médian et haut) est adoptée dans la suite du document afin de conserver une bonne lisibilité des graphes de l'évolution temporelle de la concentration en gaz aux différents points de mesure.

Description des simulations multidimensionnelles

Les hypothèses formulées pour l'ensemble des calculs de dispersion de SF₆ réalisés avec le code CFX-5 sont les suivantes :

- le fluide considéré est un mélange d'air et de SF₆, ces deux constituants étant supposés mélangés à un niveau moléculaire ;
- l'écoulement est supposé turbulent, isotherme (20 °C) et faiblement compressible, et le mélange gazeux thermodynamiquement parfait ;
- avant toute injection de SF₆, le régime d'écoulement est supposé stationnaire.

Équations

La résolution des équations de Navier-Stokes repose sur l'approche classique dite RANS⁽¹⁾ [1], qui consiste à moyenniser les équations de transport de la masse du mélange (équation de continuité), de la quantité de mouvement et, dans le cas présent, de la masse en SF₆.

(1) Reynolds Averaged Navier-Stokes

(2) À noter que les points de mesure du niveau « bas » dans le second local sont tout de même situés à 2 m du sol.

Les corrélations turbulentes résultant de cette moyenne sont modélisées en introduisant le concept de viscosité turbulente. Elle est calculée par le modèle de turbulence du premier ordre $k - \epsilon$, k étant l'énergie cinétique turbulente et ϵ son taux de dissipation. Cette approche est également retenue dans des études de dispersion d'un gaz lourd dans l'environnement [2 ; 3]. D'autres modèles de turbulence, en particulier du second ordre, ont été testés au cours de cette étude, sans modification notable des résultats.

Domaines de calcul

La figure 2 présente la géométrie et le maillage retenus pour modéliser les deux locaux étudiés. Un raffinement du maillage est imposé en aval des jets de soufflage et de l'injection de SF₆. À noter qu'une étude poussée de sensibilité au maillage a été menée, en particulier pour le local de 36 m³. Des conditions de Dirichlet sont imposées au soufflage : un profil uniforme de vitesse est fixé et les grandeurs turbulentes k et ϵ sont automatiquement calculées à partir de l'intensité turbulente (fixée à la valeur par défaut) et de la dimension des bouches. Enfin, des conditions de Neumann (sortie libre) et la pression atmosphérique sont imposées à l'extraction.

Principaux résultats

Validation globale des résultats de simulation

La figure 3 présente, pour quelques essais, le champ de fraction massique en SF₆ obtenu dans le plan médian vertical de chaque local, à la fin de l'injection du gaz. Une stratification due à l'accumulation du gaz en partie basse du local est mise en évidence dans la plupart des cas. Une très forte influence de l'injection est observée pour le local de 36 m³, ce qui entraîne une grande diversité des configurations étudiées (voir essais 2, 3 et 8). À l'inverse, les résultats obtenus en termes de stratification sont globalement similaires pour le local de 1 500 m³, en raison des valeurs très proches des paramètres caractéristiques de

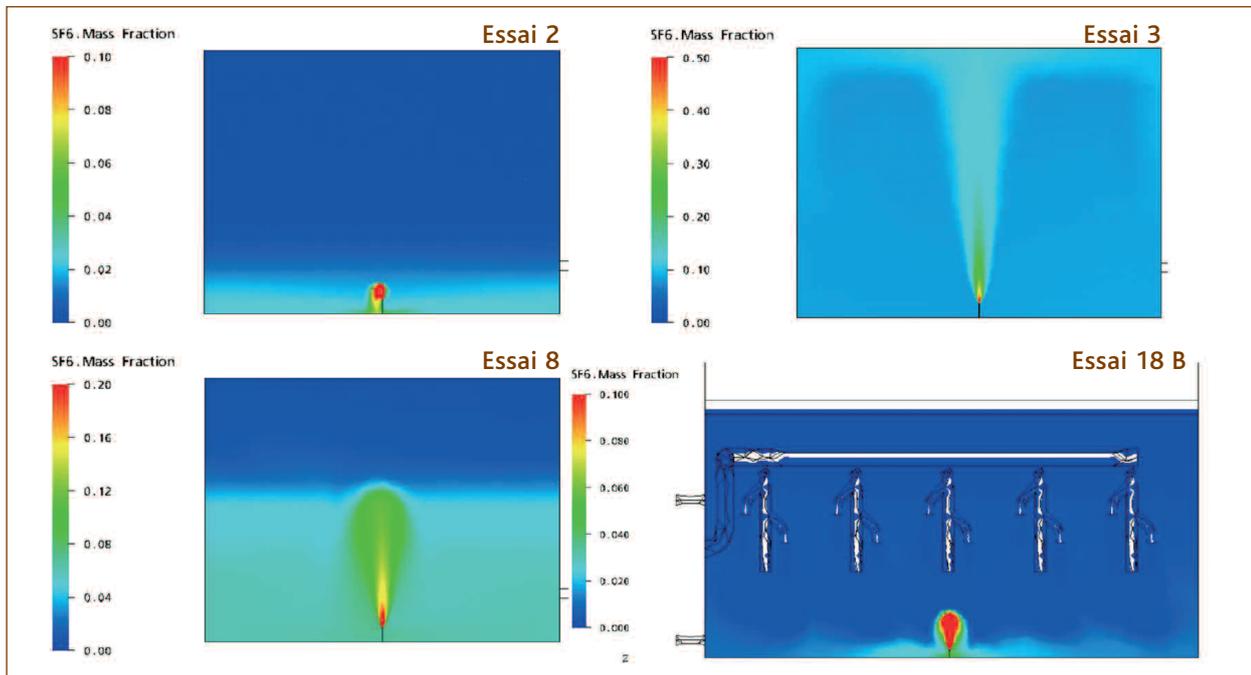


Figure 3 : Champ de fraction massique en SF₆ dans un plan médian vertical des deux locaux.

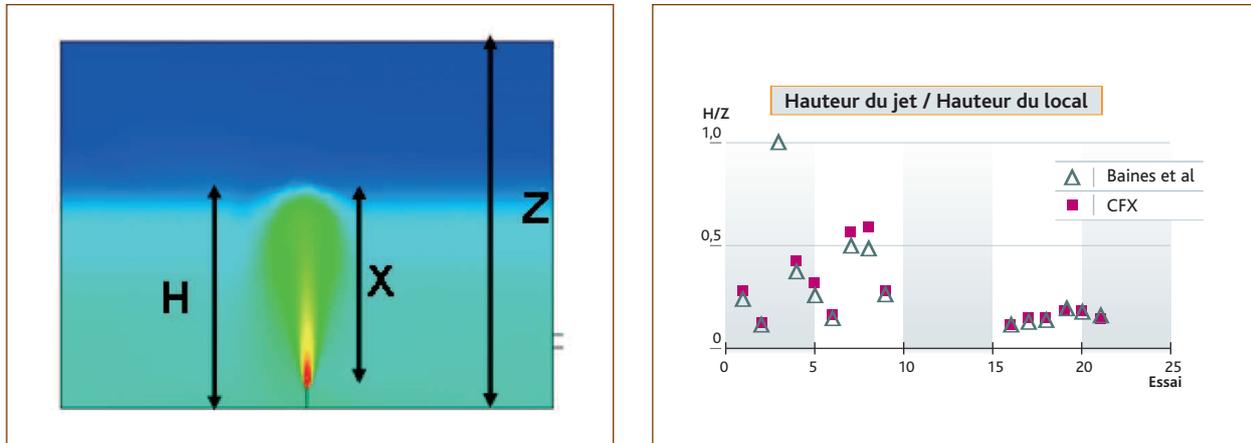


Figure 4 : Comparaison de la hauteur du jet entre CFX-5 et le modèle de Baines et al.

l'injection du gaz : les essais se distinguent principalement par la valeur du taux de renouvellement du local.

Une première validation de ces résultats a été réalisée en comparant la hauteur maximale du jet obtenue par le code à la fin de l'injection, à celle issue de la corrélation de Baines [4] :

$$X = 1,74 \cdot D_{inj} \cdot \sqrt{Fr}$$

où X (m) est la portée du jet, D_{inj} (m) le diamètre de la buse d'injection et Fr le nombre de Froude du jet, exprimant le rapport des forces d'inertie sur les forces de flottabilité liées aux écarts de densité. La **figure 4** montre un accord satisfaisant entre les résultats donnés par CFX-5 et ceux donnés par la corrélation de Baines.

Une seconde validation a été menée en comparant pour chaque configuration expérimentale la valeur de la concentration maximale aux points « bas(2) » obtenue par le calcul avec celle obtenue expérimentalement. La **figure 5** montre une bonne concordance des résultats dans l'ensemble.

Mise en évidence des paramètres les plus influents

L'influence de divers paramètres a pu être analysée bien que les grilles d'essais n'aient pas été conçues pour procéder à une étude paramétrique rigoureuse des résultats.

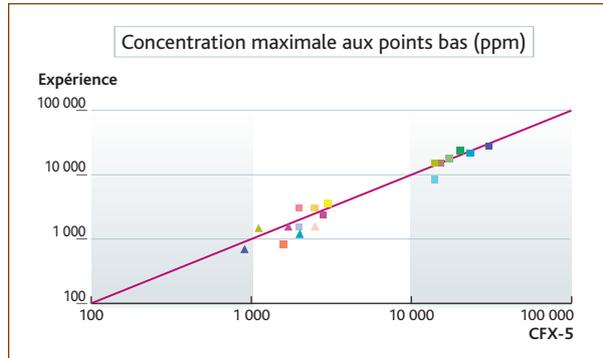


Figure 5: Comparaison des niveaux maximaux de concentration entre calcul et expérience pour les différents essais.

Essais à vitesse d'écoulement élevée

Un des paramètres identifiés comme très influent sur la dispersion du gaz lourd est la vitesse des écoulements à l'intérieur du local pendant la phase d'injection du SF₆, lié à l'intensité du brassage de l'air. En raison de l'effet d'échelle, celle-ci est pilotée essentiellement par l'injection du gaz dans le local de 36 m³, et par la ventilation (taux de renouvellement ou vitesse de l'air au soufflage) dans celui de 1 500 m³.

À titre d'illustration, la *figure 6* montre une comparaison entre les résultats de calcul et les résultats expérimentaux dans le cas de l'essai 3 mené sur le local de 36 m³. La portée du jet liée à l'injection du SF₆ est très élevée dans cet essai. Cela contribue à un brassage important des écoulements dans le local pendant la phase d'injection du gaz (120 s). La comparaison de l'évolution temporelle des concentrations aux points bas (en orange), médians (en bleu) et hauts (en rose) pendant cette phase d'injection s'avère très satisfaisante. Seule la phase de décroissance de la concentration présente des écarts après arrêt de l'injection. Cette constatation est commune à tous les essais menés dans ce local. Dans le calcul, cette décroissance est essentiellement liée au renouvellement de l'air du local, alors qu'expérimentalement s'ajoute un effet lié à la chute du SF₆ dans le local, d'abord au niveau haut, puis médian et enfin bas, ce qui constitue, à chaque fois, un apport de gaz pour les niveaux inférieurs. Cet effet est probablement lié aux faibles vitesses d'écoulement dues à la ventilation lorsque l'injection du SF₆ est arrêtée. Finalement, les niveaux de concentration sont bien retrouvés par le code.

La comparaison entre calcul et expérience est également satisfaisante dans le cas des essais 18B (extraction basse) et 18H (extraction haute) menés dans le local de 1 500 m³ et caractérisés par le taux de renouvellement le plus élevé (*figure 7*). La stratification du gaz, les niveaux de concentration et l'influence de la position de l'extraction sont bien retrouvés (augmentation des niveaux de concentration lorsque l'extraction se situe en partie haute).

Essais à faible vitesse d'écoulement

Les essais caractérisés par un faible brassage des écoulements pendant la phase d'injection du gaz (essais à faible vitesse d'injection dans le local de 36 m³ et à faible taux de renouvellement dans le local de 1 500 m³) présentent les écarts les plus importants entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux. En effet, une disparité très forte est mise en évidence expérimentalement entre les différents points du niveau bas, comme l'illustre la *figure 8* relative aux essais 2 et 19B, et cette disparité n'est pas retrouvée par le code. De plus, les niveaux de concentration atteints en ces points sont généralement surestimés. À noter néanmoins que tous ces essais ont été caractérisés par de grandes instabilités et des problèmes de reproductibilité, ce qui confirme la forte influence du faible niveau de vitesse sur la dispersion du gaz lourd.

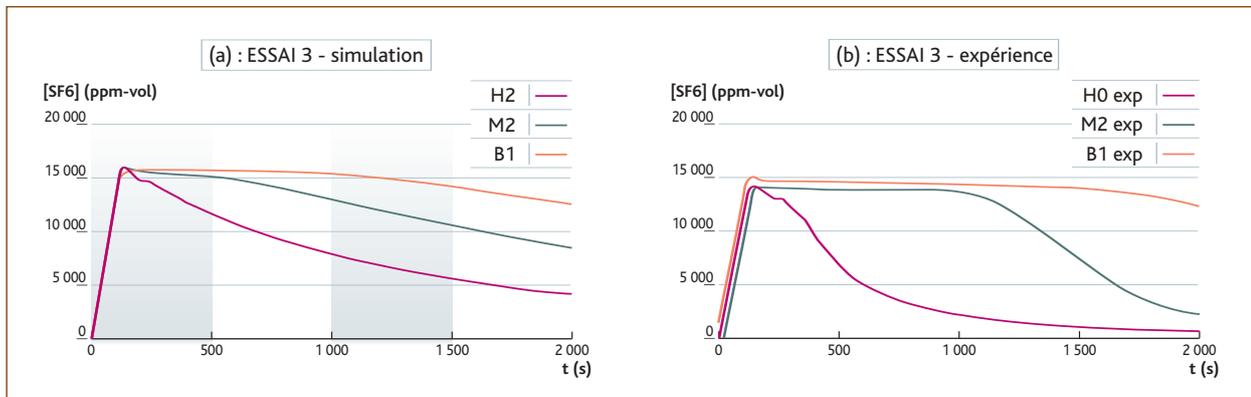


Figure 6 : Essai à forte vitesse d'écoulement dans le local de 36 m^3 ($R = 1 \text{ h}^{-1}$, $D_{inj} = 12 \text{ mm}$, $V_{inj} = 42 \text{ m.s}^{-1}$, $t_{inj} = 2 \text{ min}$).

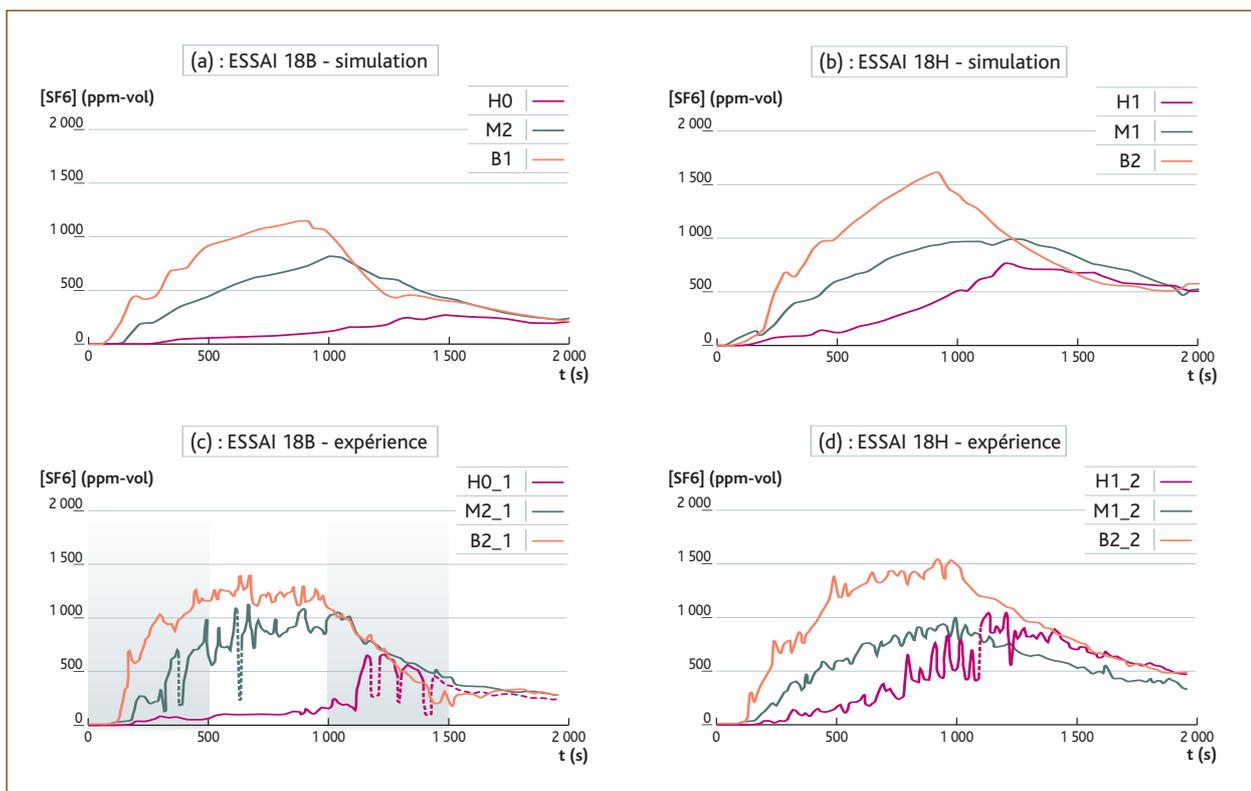


Figure 7 : Essai à forte vitesse d'écoulement dans le local de $1\,500 \text{ m}^3$ ($R = 3 \text{ h}^{-1}$, $D_{inj} = 12 \text{ mm}$, $V_{inj} = 23 \text{ m.s}^{-1}$, $t_{inj} = 15 \text{ mn}$).

Essais à forte concentration

Un autre paramètre influent est le niveau de concentration en SF₆ atteint dans le local. En effet, lors des essais 8 et 9 menés dans le local de 36 m³, caractérisés par des niveaux de concentration pouvant atteindre jusqu'à 30 000 ppm aux points bas, une chute très rapide des concentrations aux points médians a été observée expérimentalement juste après l'arrêt de l'injection du gaz (cas de l'essai 8) ou pendant l'injection (cas de l'essai 9, voir *figure 9*), démontrant une certaine instabilité de la stratification qui s'établit au cours de l'injection. Toutefois ce comportement n'a pas été retrouvé par le code.

2.7

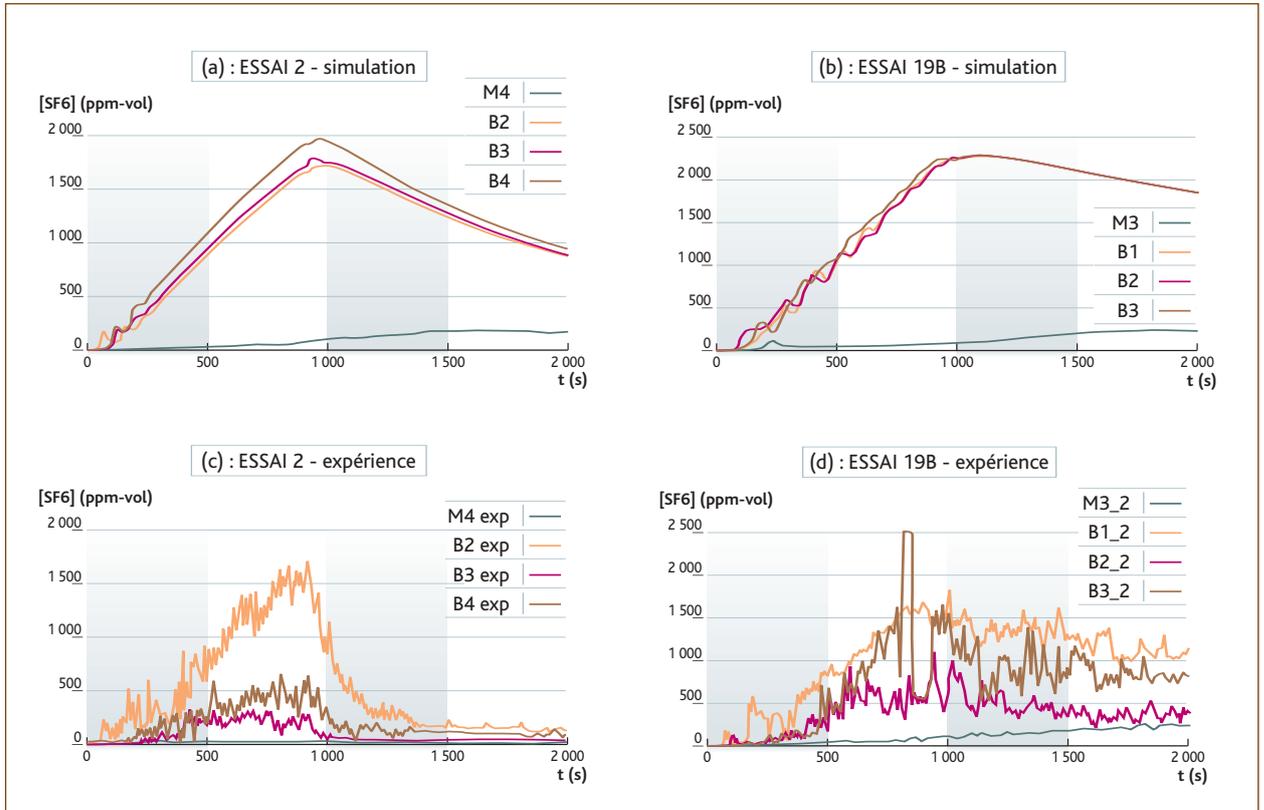


Figure 8 : Essai à faible vitesse d'écoulement dans les deux locaux (essai 2 : local de 36 m^3 , $R = 1 \text{ h}^{-1}$, $D_{inj} = 3 \text{ mm}$, $V_{inj} = 6 \text{ m.s}^{-1}$, $t_{inj} = 15 \text{ min}$) (essai 19B : local de 1500 m^3 , $R = 2 \text{ h}^{-1}$ puis $0,2 \text{ h}^{-1}$, $D_{inj} = 12 \text{ mm}$, $V_{inj} = 19 \text{ m.s}^{-1}$, $t_{inj} = 15 \text{ min}$).

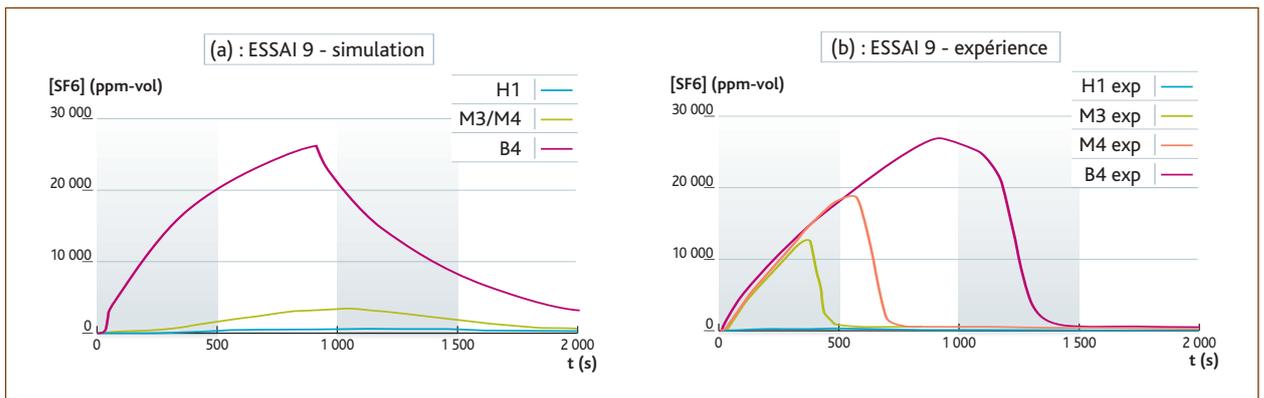


Figure 9 : Essai à forte concentration en SF_6 dans le local de 36 m^3 ($R = 3 \text{ h}^{-1}$, $D_{inj} = 12 \text{ mm}$, $V_{inj} = 9 \text{ m.s}^{-1}$, $t_{inj} = 15 \text{ mn}$).

■ Conclusion

L'étude expérimentale visant à caractériser les effets de dispersion de SF₆ confirme les phénomènes attendus de stratification des concentrations à l'intérieur des différents locaux testés, accentués notamment aux niveaux bas par rapport au reste du volume des locaux. De plus, la dispersion du gaz est essentiellement pilotée par l'action de la vitesse du jet d'émission dans le local de plus faible volume (36 m³). L'effet de la ventilation du local est davantage marqué dans le cas du local de plus grand volume (1 500 m³).

Les simulations multidimensionnelles de l'ensemble des configurations expérimentales menées ont permis globalement de retrouver le phénomène de stratification ainsi que les niveaux de concentration atteints dans les locaux, la comparaison entre simulation et expérience étant d'autant plus satisfaisante que les vitesses d'écoulement sont élevées. Des écarts ont toutefois été mis en évidence. En particulier, lors de l'arrêt de l'injection du gaz dans les locaux, la décroissance de la concentration en SF₆ est liée, dans le cas du code, au taux de renouvellement en air du local alors qu'expéri-

mentalement un effet additionnel dû à la chute du gaz dans le local est observé, alimentant ainsi les niveaux inférieurs.

Cette étude a permis d'identifier certains des paramètres les plus influents sur la dispersion d'un gaz lourd dans un local ventilé et de mettre en évidence des phénomènes attendus comme la stratification, mais aussi inattendus, notamment les instabilités de cette stratification. Par ailleurs, des limites à la qualification du code CFX-5 ont été clairement mises en évidence, bien que cette qualification puisse être considérée comme suffisamment satisfaisante au regard des objectifs généraux du PIC. Cette thématique de la dispersion de polluants gazeux à fort effet de densité dans un local ventilé nécessite par conséquent de mener des études complémentaires, à la fois sous l'angle expérimental et numérique. Sur le plan de la modélisation, il pourrait être intéressant d'adopter une approche de type LES (*Large Eddy Simulation*), qui pourrait permettre de mieux retranscrire les phénomènes d'instabilité constatés, ainsi que l'évolution des concentrations en présence d'une faible vitesse d'écoulement dans le local.

Références

- [1] VERSTEEG H.K., MALALASEKERA W. (1995) An Introduction to Computational Fluid Dynamics – The Finite Volume Method, Longman, New York
- [2] SKLAVOUNOS S., RIGAS F. (2004) Validation of turbulence models in heavy gas dispersion over obstacles, Journal of Hazardous Materials, A 108, 9-20
- [3] PEREIRA J.C.F., CHEN X.-Q. (1996) Numerical calculations of unsteady heavy gas dispersion, Journal of Hazardous Materials, 46, 253-272
- [4] BAINES W.D., TURNER J.S., CAMPBELL I.H. (1990) Turbulent fountains in an open chamber, Journal of Fluid Mechanics, vol. 212, pp 557-592

2.8

Bernard CLÉMENT
Service études et de modélisation de l'incendie, du corium et du confinement

Des surprises sur le comportement de l'iode lors de l'essai PHÉBUS FPT-3

■ Les essais PHÉBUS PF⁽¹⁾ simulent des accidents de fusion de cœur d'un réacteur à eau sous pression et s'intéressent en particulier aux relâchements associés de produits radioactifs. Les résultats de l'essai PHÉBUS FPT-3 ont mis en évidence un comportement inattendu de l'iode. En présence de barres de commande en carbure de bore⁽²⁾, l'iode est relâché dans l'enceinte de confinement essentiellement sous forme gazeuse, au lieu de l'être principalement sous forme condensée comme lors des essais réalisés avec des barres de commande en alliage d'argent, d'indium et de cadmium. Ce point est particulièrement important car l'iode sous forme gazeuse est plus difficilement filtrable que sous forme condensée, et présente de ce fait un potentiel de dispersion dans l'environnement plus important.

■ Le piégeage de cet iode gazeux sur les surfaces peintes présentes dans l'enceinte de confinement a été plus important et probablement plus rapide que lors des essais précédents, ce qui a contribué à réduire significativement la concentration d'iode gazeux dans l'atmosphère de l'enceinte.

■ Les études se poursuivent pour approfondir la compréhension des phénomènes mis en jeu, et estimer leur impact sur les rejets éventuels dans l'environnement en cas d'accident.

(1) L'installation et le programme expérimental PHÉBUS PF sont décrits dans l'article « Les enseignements tirés du programme PHÉBUS PF », dans ce Rapport.

(2) Matériau utilisé dans les réacteurs à eau sous pression les plus récents, les réacteurs à eau bouillante en service en Europe et certains réacteurs de type russe en service en Europe de l'Est.

2.9

Alain DUBOUCHET
Service d'instrumentation et d'ingénierie expérimentale

CARINÉA

■ Le nouveau dispositif CARINÉA (Caractérisation pour l'incendie d'échantillons analytiques) est venu compléter en 2006 la plate-forme d'expérimentation des feux du Service d'études et recherches expérimentales sur les accidents de la Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM). Il permet de réaliser simultanément des essais de combustion de petite puissance et de caractérisation de matériaux soumis à un éclairage thermique.

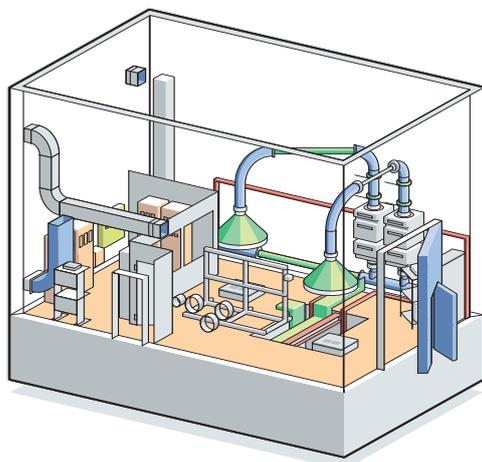
■ Cette installation (*figure ci-dessous*) est composée de deux postes :

■ l'un, appelé « poste éclairage », est destiné à l'étude de la dégradation, de l'inflammation et de l'auto-inflammation de divers matériaux ;

■ l'autre, appelé « poste feux », est dédié à l'étude de la combustion de matériaux.

Défini et réalisé en collaboration étroite entre deux laboratoires de la DPAM (Laboratoire d'ingénierie des installations expérimentales et Laboratoire d'expérimentation des feux), CARINÉA intègre dès la conception les contraintes d'exploitation et des évolutions futures. Il permet à la DPAM de répondre efficacement à des besoins de recherche et développement ou à des demandes de prestations grâce à son fort potentiel et à sa flexibilité.

■ Les principales activités prévues au démarrage de l'installation sont la caractérisation de mélanges de matériaux combustibles solides : débit et chaleur de combustion, production d'espèces gazeuses et de suie, critère d'auto-inflammation et d'inflammation, en réponse aux préoccupations exprimées par les directions chargées des expertises, ainsi que la qualification d'appareils de mesure de concentration de suie, de débit ou de vitesse.



2.10

Claude GRANDJEAN
Laboratoire d'études et
d'interprétation des essais
de dégradation du cœur

Étude du comportement du combustible irradié lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire (APRP)

■ Des programmes expérimentaux relatifs à l'étude du comportement du combustible irradié lors d'un accident de perte de refroidissement primaire (APRP) sont en cours à l'*Argonne National Laboratory* (États-Unis), à la *Japan Atomic Energy Agency* (Japon) et dans le réacteur d'Halden (Norvège).

■ Les deux premiers sont des programmes d'essais réalisés en laboratoire sur un tronçon de crayon de combustible irradié extrait d'un réacteur de puissance.

■ Les essais réalisés dans le réacteur d'Halden consistent quant à eux à soumettre à un flux de neutrons un crayon préalablement irradié en vue de mettre en évidence et de caractériser un éventuel déplacement de combustible. Ce dernier est en effet susceptible de s'accumuler dans le « ballon » qui se forme lors de l'échauffement du crayon par déformation de la gaine sous l'effet de la pression interne. Un tel déplacement modifie les flux de chaleurs locaux, ce qui peut accroître l'échauffement de la gaine lors d'un accident.

■ Quatre essais de ce type ont été menés à Halden entre mai 2003 et avril 2006. Les deux premiers ont été effectués avec des crayons non irradiés afin d'affiner la procédure expérimentale qui allait être utilisée pour les crayons irradiés. En avril 2005, les examens effectués après le premier essai, sur un crayon issu d'un réacteur à eau sous pression (REP) et irradié à fort taux de combustion (82 GWj/tU), ont révélé la présence d'un artefact expérimental, ce qui a conduit à reprendre l'essai en avril 2006. Les mesures en ligne lors de ce dernier essai ont montré, comme on le soupçonnait, qu'un déplacement significatif du combustible s'était produit à l'intérieur de la gaine juste après la rupture de celle-ci.

■ L'IRSN participe activement à la définition de ces essais et à l'interprétation de leurs résultats avec le code ICARE-CATHARE. Il a notamment participé aux différentes phases de l'exercice comparatif international organisé par l'OCDE autour du 3^e essai, IFA-650.3.

2.11

François JACQ
Services études et
de modélisation du combustible
en situations accidentelles

Lancement du logiciel de simulation DRACCAR

■ Le développement du logiciel DRACCAR a été lancé au début de 2006 après une phase de spécification. Ce logiciel permettra d'étudier la déformation et le renoyage d'un assemblage de crayons de combustible en géométrie tridimensionnelle pendant un accident de refroidissement, d'où l'acronyme.

■ DRACCAR servira de support au programme de recherche des accidents de perte de refroidissement primaire (APRP). Il simulera le comportement de différents types de combustible, comme l' UO_2 et le MOX, avec différents matériaux de gainage, tels que le Zr-4 et le M5, aussi bien dans un environnement expérimental – un dispositif limité généralement à quelques crayons entourés par un boîtier – que dans celui d'un assemblage réel de 17 x 17 dans le cas d'un REP français.

■ L'outil est développé à partir d'éléments du logiciel de calcul ICARE, qui modélise en géométrie axi-symétrique la plupart des phénomènes physiques mis en jeu durant un APRP : le gonflement des gaines

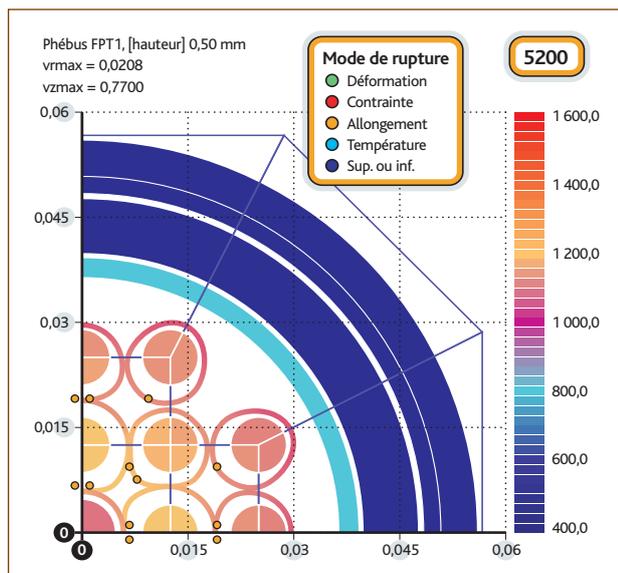
(fluage), la rupture, la dépressurisation des gaines après rupture, le relâchement des gaz de fission, les échanges thermiques, l'oxydation du zirconium par la vapeur d'eau et, enfin, l'oxydation de la face interne des gaines. Ces éléments seront complétés dans DRACCAR par la modélisation de quelques phénomènes non traités par ICARE, comme :

■ l'hydruration et la diffusion de l'oxygène dans la couche métallique de la gaine ayant un effet sur les propriétés mécaniques ;

■ le remplacement de fragments du combustible dans les zones déformées des gaines (ballons) modifiant la répartition axiale des sources de chaleur ;

■ l'interaction mécanique d'un crayon déformé avec les structures voisines (crayon, barre de contrôle, grille ou boîtier) ;

■ l'arcure de crayons (propagation des déformations axiales qui tend à rapprocher la fibre chaude de la gaine du combustible, accentuant ainsi l'effet du point chaud).



■ Partir ainsi des éléments du logiciel ICARE pour développer DRACCAR permet de capitaliser les connaissances : la majeure partie des modèles nécessaires est en effet déjà intégrée dans le code ICARE. Cela permet également de faciliter le couplage de DRACCAR au logiciel de thermohydraulique CATHARE, qui est couplé à ICARE. Enfin, cette démarche garantit de construire dès 2007 une première version rapidement utilisable.

■ Les équipes de développement envisagent d'ores et déjà des connexions aux autres grandes plateformes de logiciels, comme PLEIADES, NEPTUNE et ASTEC.

Les résultats d'un premier calcul de démonstration, simulant la phase d'échauffement de l'expérience PHÉBUS FPT1, est illustrée ci-contre (jusqu'à la rupture des gaines).

2.12

Christian DURIEZ
Laboratoire
d'essais analytiques

Programme MOZART sur l'oxydation par l'air des gaines de crayon de combustible REP

■ Le laboratoire d'essais analytiques de la Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) contribue au programme international TERME SOURCE (élaboré par l'IRSN et auquel collaborent différents partenaires nationaux, comme le CEA ou EDF, et internationaux, comme la Commission européenne, les États-Unis et la Suisse), en réalisant le programme d'essais analytiques MOZART⁽¹⁾, qui est dédié à l'étude de l'oxydation des gaines de crayon de combustible en présence d'air. De nombreux scénarios accidentels peuvent en effet conduire à l'exposition à l'air des assemblages combustibles : accident de fusion du cœur après percement de la cuve, de dénoyage des piscines d'entreposage de combustibles usés, de manutention ou de transport. L'oxydation des gaines en alliage de zirconium a alors été identifiée comme l'un des phénomènes physico-chimiques clés de l'évolution de l'accident. La réaction d'oxydation du zirconium par l'oxygène étant fortement exothermique, elle peut donner lieu à des situations d'emballement et avoir comme conséquence une destruction rapide de la première barrière de confinement que constitue la gaine.

■ La DPAM s'est équipée d'un analyseur thermogravimétrique (ATG) pour conduire ce programme d'essais. Ce dispositif, constitué d'un four tubulaire vertical surmonté d'une balance de précision, permet la pesée d'un échantillon de gaine pendant son oxydation. On



Figure : Échantillon de gaine Zry-4 après oxydation sous air à 950 °C pendant 80 mm.

accède ainsi à la vitesse d'oxydation en temps réel, ce qui, complété par des observations métallographiques après essais, permet une meilleure compréhension des mécanismes complexes d'oxydation.

(1) Mesure de l'oxydation du zirconium par l'air en température.

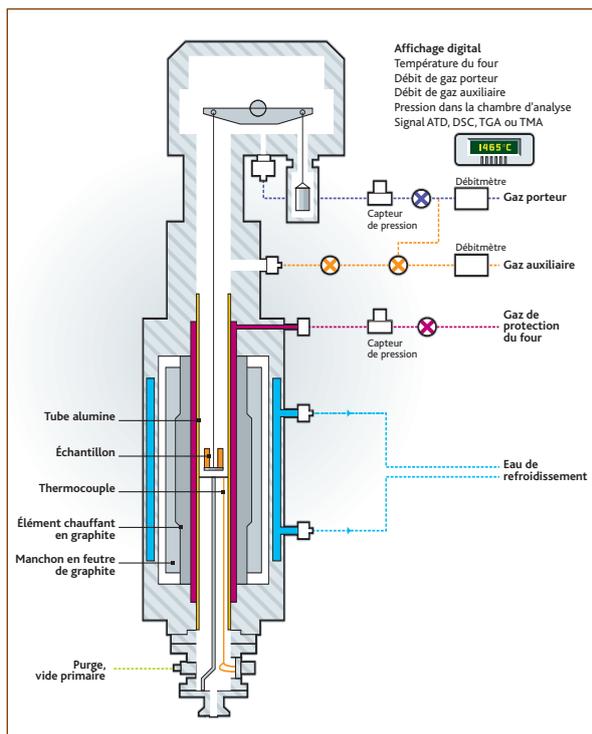


Figure 1 : Schéma de l'analyseur thermogravimétrique (ATG).

■ Des mesures en conditions isothermes et dans une gamme de température allant de 600 à 1 000 °C ont dans un premier temps été réalisées sur l'alliage zircaloy-4, alliage de zirconium et d'étain (1,5 % en masse) largement utilisé dans les réacteurs français. La

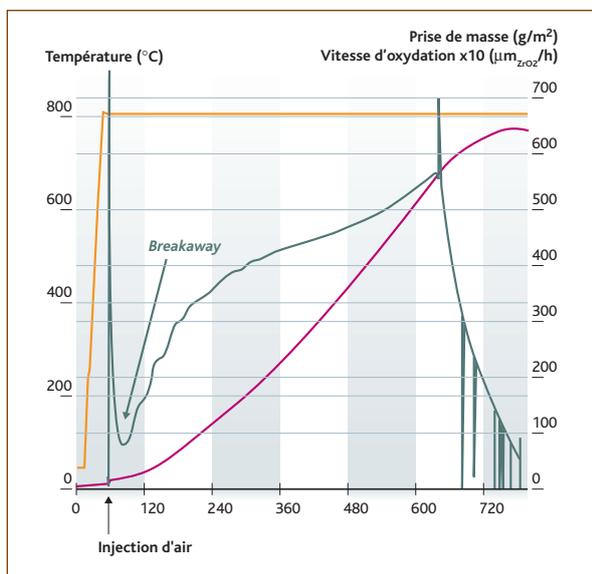


Figure 3 : Essai d'oxydation isotherme à 800 °C sur zircaloy-4, poursuivi jusqu'à oxydation complète.

mesure ATG a permis de déterminer avec précision le moment de l'accélération de la vitesse d'oxydation connue dans la littérature sous le terme de *break-away* et de corréliser sans ambiguïté cette accélération à la fissuration de la couche protectrice d'oxyde de zirconium dense qui se forme initialement sur le métal. Cette fissuration a pour conséquence un accès plus direct de l'oxygène au métal, ce qui explique l'augmentation de la vitesse d'oxydation. Il a été montré que, au-delà de 800 °C, la formation de particules de nitrure de zirconium ZrN, phénomène spécifique à l'oxydation sous air, joue un rôle prépondérant dans cette fissuration.

■ Une comparaison avec des mesures récentes réalisées au *Argonne National Laboratory* (États-Unis) par une technique intégrale, des essais de durées croissantes avec pesée unique en fin d'essai, ont montré que les instants de *breakaway* avaient été fortement surestimés par l'équipe américaine (jusqu'à un facteur 10). Or, du fait de la forte exothermicité de la réaction zirconium-oxygène, des vitesses d'oxydation élevées peuvent conduire à un emballement de l'oxydation des assemblages en cas d'accident et à une rupture rapide de la première barrière de confinement que constituent les gaines. Il est donc important de bien déterminer le moment précis où la réaction s'accélère.

■ Des essais ont ensuite été réalisés sur l'alliage M5TM (1 % en masse de niobium), qui remplace progressivement le zircaloy-4 dans les réacteurs français, car il présente une meilleure tenue à la corrosion sous eau en conditions de fonctionnement. Il a été montré que le M5TM présente également un meilleur comportement que le zircaloy-4 en situation accidentelle d'exposition à l'air, et ce jusqu'à 900 °C : la transition vers des vitesses d'oxydation élevées est nettement retardée et l'accélération de la cinétique de réaction est plus modérée. Au-delà de 900 °C, le comportement du M5TM rejoint celui du zircaloy-4.

■ Les essais se poursuivent en utilisant des échantillons de gaine préalablement oxydés en vapeur d'eau pour simuler l'état de corrosion existant après quelques années de fonctionnement dans un réacteur. Des essais sous des atmosphères plus complexes (air + vapeur d'eau, atmosphères enrichies ou appauvries en azote), ainsi que des essais en transitoires de température sont également prévus dans le programme.

2.13

Cataldo CAROLI
Bureau de physique
des accidents graves

Diffusion à l'international de logiciels accidents graves développés par la Direction de la sûreté des réacteurs

■ Le Service d'évaluation des accidents graves et des rejets radioactifs développe, en collaboration avec le CEA, les logiciels de simulation numérique TONUS et MC3D, utilisés respectivement pour l'analyse du risque hydrogène dans l'enceinte de confinement et pour les études d'interaction entre le combustible fondu et le réfrigérant.

Après plusieurs années de développement et un important programme de validation, les deux logiciels commencent à connaître une diffusion au niveau international.

Ainsi, alors que CNNC (Chine), l'université de Pise (Italie), VTT (Finlande) et AVN (Belgique) ont manifesté leur intérêt pour TONUS, AECL (Canada), JSI (Slovénie), CNNC, KAERI (Corée), I KE et FzK (Allemagne) ont indiqué qu'ils souhaitaient disposer du logiciel MC3D.

Des accords spécifiques sont actuellement en cours de préparation avec ces divers organismes. La livraison des logiciels se fera soit en échange d'un travail de validation du code, soit dans le cadre d'un accord de collaboration plus global (AECL, FzK).

En quelques dates

Soutenances de thèses et autres faits marquants

1^{er} septembre 2005

■ Un nouveau programme international appelé TERME SOURCE, associant les pays membres de l'Union européenne, la Suisse, les États-Unis, le Canada et la Corée du Sud a été lancé, en partenariat avec EDF et le CEA. Ce programme de recherche vise à réduire les incertitudes concernant l'évaluation des rejets de produits radioactifs dans l'environnement en cas d'accident de fusion du cœur des réacteurs à eau.

15 décembre 2005

■ Le premier essai du programme d'étude de la propagation d'incendie dans un environnement de laboratoires et d'usines, PICSEL a été réalisé, dans l'installation DIVA. Les résultats de ce programme contribueront à valider les logiciels de simulation utilisés pour prévoir les conséquences d'un feu accidentel d'armoire électrique sur le confinement des matières radioactives.

1^{er} janvier 2006

■ Démarrage du projet PRISME OCDE sur les feux dans les installations confinées et ventilées représentatives du secteur nucléaire, entre l'IRSN, EDF et la DGA, ainsi que des partenaires étrangers allemands, finlandais, belges, suédois, canadiens, japonais et sud-coréens. Ce programme se composera essentiellement d'essais plus ou moins complexes dans l'installation DIVA de Cadarache. Les modélisations simplifiées et détaillées mises en œuvre par les partenaires du projet seront confrontées aux résultats de ces essais (confrontations faites sur la base du volontariat hors projet OCDE).

17 janvier 2006

■ **François-Xavier Ouf** a soutenu sa thèse, « Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie » à l'Institut des sciences et techniques nucléaires de Saclay.

7 décembre 2006

■ **Sophie Trelat** a soutenu sa thèse « Impact de fortes explosions sur les bâtiments représentatifs d'une installation industrielle » à l'ENSI de Bourges.

3 L'homme et les rayonnements ionisants

3	Des recherches pour la radioprotection des personnes	132
3.1	L'accident d'irradiation : apport de l'IRSN dans les recherches et l'évolution des techniques pour la prise en charge des victimes	134
3.2	Participation de l'IRSN aux projets en dosimétrie du 5^e PCRD	147
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
3.3	Les expositions médicales en France : bilan et perspectives	166
3.4	Le Programme santé/environnement ENVIRHOM évalué par son conseil scientifique	166
3.5	Le programme ÉPICE	167
3.6	Nouvelles courbes de référence pour l'estimation par dosimétrie biologique des fortes doses d'irradiation	168
3.7	AMANDE, un an déjà	169
3.8	L'exposition des Français aux rayonnements ionisants	170
3.9	En quelques dates / Soutenances de thèses et autres faits marquants	171

Des recherches pour la radioprotection des personnes

En 2006, quatre accidents graves d'irradiation (Chili, Belgique, Dakar-Abidjan et Épinal) ont mobilisé la Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH). Des spécialistes en dosimétrie, radiobiologie et radiopathologie de la DRPH ont collaboré étroitement avec les cliniciens en charge du traitement des victimes pour évaluer de façon aussi précise que possible les doses d'irradiation et les dommages radio-induits des victimes. Ces informations de diagnostic et de pronostic sur l'évolution de ces atteintes contribuent à la définition de la stratégie thérapeutique à mettre en œuvre. Si l'Institut est aujourd'hui capable d'apporter un tel soutien, c'est à ses recherches qu'il le doit. Depuis plus de dix ans, la DRPH conduit des travaux à la fois en dosimétrie biologique et physique, mais également sur les nouvelles approches thérapeutiques, moléculaires ou cellulaires, du syndrome aigu d'irradiation.

■ **Le premier article présente les apports de la DRPH dans les recherches et les techniques développées pour la prise en charge des victimes d'irradiation accidentelle.**

Il existe trois phases à cette prise en charge, à savoir la reconstitution dosimétrique, l'élaboration du diagnostic et enfin le traitement. Pour ce qui concerne la reconstitution dosimétrique, l'expérience a montré que dosimétrie biologique et dosimétrie physique sont complémentaires. La dosimétrie biologique permet de confirmer qu'une irradiation globale a bien eu lieu. La dosimétrie physique, avec ses moyens de simulation expérimentale et numérique, permet d'établir en cas d'irradiation localisée une cartographie des doses utile pour guider un geste chirurgical. Le diagnostic et son corollaire le pronostic reposent sur l'existence d'indicateurs biologiques de l'atteinte aux systèmes physiologiques vitaux et leur utilisation comme outil de suivi de l'efficacité thérapeutique. L'Institut a mis au point deux indicateurs opérationnels, le Flt3-ligand pour l'atteinte à la moelle osseuse et la citrulline pour l'atteinte de l'épithélium de l'intestin grêle. Dans le domaine du traitement des pathologies radio-induites, les travaux de l'IRSN ont trouvé leur application pour le syndrome hémato-poïétique et le syndrome cutané. Pour le premier, l'injection de facteurs de croissance a montré son efficacité s'il existe une hémato-poïèse



3

résiduelle suffisante. Pour le second, la thérapie cellulaire par cellules souches mésenchymateuses, mise au point par l'Institut sur modèle animal, a été utilisée pour la première fois chez l'homme avec succès.

■ **Le second article porte sur les recherches en dosimétrie physique conduites dans les quatre laboratoires de dosimétrie externe et interne de la DRPH.**

Ces travaux se caractérisent par le fait qu'ils sont le plus souvent effectués en partenariat avec d'autres équipes scientifiques, généralement européennes. Les domaines d'application concernés couvrent en particulier la dosimétrie individuelle pour les individus exposés dans les champs mixtes neutrons-photons, la dosimétrie des équipages d'avions civils exposés aux rayonnements cosmiques, et l'amélioration de la surveillance et de la dosimétrie de l'exposition interne des personnes contaminées par inhalation ou ingestion de radionucléides. C'est ainsi que les laboratoires de l'IRSN ont été amenés à collaborer avec ceux de quinze autres pays européens dans plusieurs projets du 5^e PCRD (Programme cadre de recherche et déve-

loppement de la Commission européenne – période 2000-2004). Les retombées de tels projets sont nombreuses : établissement de liens personnels et entre laboratoires, travaux d'intercomparaison, échange d'idées de recherches, présentations dans des réunions scientifiques, participation à des collèges d'experts, publications. Et force est de constater que ce partenariat a renforcé le savoir-faire et l'expertise des équipes de l'Institut.

Patrick GOURMELON
Direction de la radioprotection
de l'homme

3.1

L'accident d'irradiation : apport de l'IRSN dans les recherches et l'évolution des techniques pour la prise en charge des victimes

Les accidents d'irradiation impliquent aussi bien les travailleurs que le public. La fréquence des accidents d'irradiation aiguë à de fortes doses a augmenté au cours des dernières années (Géorgie, 1998 ; Turquie, 1999 ; Pérou, 2000 ; Panama, 2001 ; Pologne, 2001 ; Géorgie, 2002 ; Chili, 2005 ; Belgique, 2006), notamment en raison de la mauvaise utilisation de sources de rayonnement en milieu industriel ou médical. Si le phénomène est généralement limité quant au nombre de victimes, il n'en est pas moins très grave sur le plan humain et particulièrement complexe en termes de prise en charge.

Prise en charge d'un irradié accidentel

Cette prise en charge est difficile pour plusieurs raisons. Tout d'abord, l'irradié accidentel peut avoir subi des traumatismes autres que radiologiques. De plus, la nature de l'irradiation, la géométrie de l'irradiation, et donc la dose reçue et son hétérogénéité, sont rarement connues dans l'immédiat. La gestion médicale d'une irradiation accidentelle nécessite de disposer d'informations spécifiques pour une évaluation aussi précise que possible des dommages radio-induits afin d'asseoir la stratégie thérapeutique la plus appropriée. Ces informations concernent les doses reçues, ainsi que des éléments de diagnostic et de pronostic sur l'évolution des lésions radio-induites.

En cas de surexposition généralisée, plusieurs syndromes peuvent en fonction de la dose reçue apparaître conjointement : le syndrome hématopoïétique, le syndrome gastro-intestinal et le syndrome cérébro-vasculaire. Le syndrome hématopoïétique, qui est l'une des atteintes les plus précoces, se manifeste par la diminution des éléments figurés du sang : cette aplasie médullaire induit des risques infectieux et hémorragiques très importants, mettant en jeu le pronostic vital de la victime.

Le facteur le plus important, commun à la très grande majorité des irradiations accidentelles, même à forte dose, est certainement l'hétérogénéité de l'irradiation qui, du fait notamment de l'existence d'une hématopoïèse résiduelle, qu'elle implique, a des conséquences sur la gestion médicale de l'accident.

Philippe VOISIN
Service de radiobiologie
et d'épidémiologie

Laurence ROY
Laboratoire de dosimétrie biologique

Isabelle CLAIRAND
Laboratoire de dosimétrie
des rayonnements ionisants

Jean-Marc BERTHO
Laboratoire de thérapie cellulaire
et de radioprotection accidentelle

Marc BENDERITTER
Laboratoire de radiopathologie

Dominique THIERRY
Laboratoire de thérapie cellulaire
et de radioprotection accidentelle

Dans une première étape, l'estimation de la dose, donc de la gravité de l'irradiation, est primordiale. L'importance des signes cliniques, tels que nausées, vomissements, érythème et la numération lymphocytaire renseignent sur la gravité de l'irradiation. Toutefois, des approches complémentaires à la fois physiques (reconstitution physiques, résonance paramagnétique électronique) et biologiques (dénombrement des aberrations chromosomiques radio-induites) peuvent être utilisées. Développées à l'IRSN, elles sont présentées dans la première partie de ce texte. Cette « dosimétrie », qu'elle soit physique ou biologique, ne permet cependant d'approcher l'atteinte due aux rayonnements ionisants que sous un angle global. Bien qu'il soit possible d'estimer dans certaines circonstances des doses aux organes, ces dernières n'apportent qu'une information indirecte et stéréotypée de la gravité de l'atteinte.

De plus, différentes caractéristiques physiopathologiques mal connues, mais incontestablement liées à l'individu, comme la radiosensibilité, l'effet de voisinage, la radio-adaptation, font que l'évolution de la pathologie radio-induite ne sera pas identique d'un individu à l'autre. Il s'avère donc nécessaire de rechercher d'autres types d'indicateurs permettant de prendre en compte cette spécificité individuelle, tels que des indicateurs biologiques ou biophysiques qui renseignent sur l'état d'un organe, d'un système physiologique, voire de l'organisme entier (indicateur de diagnostic) et aident au suivi du patient irradié lorsqu'ils sont en rapport avec la létalité (indicateur de pronostic). Des résultats prometteurs ont déjà été obtenus par l'IRSN et sont présentés ci-après.

La pathogenèse des irradiations aiguës localisées est assez bien décrite, mais la réponse médicale à ce type de pathologie reste encore une tâche extrêmement complexe et délicate. Une des caractéristiques de la réponse cutanée aux irradiations localisées à forte dose est le développement de la nécrose tissulaire, apparaissant après une phase clinique silencieuse et évoluant par poussées successives difficilement

prévisibles. La réparation tissulaire implique l'intégration de nombreux processus dynamiques mettant à la fois en jeu la matrice extracellulaire du tissu lésé, des cytokines et des facteurs de croissance qui modulent la réponse dans les différents compartiments cellulaires, mais également la matrice des cellules constitutives du tissu cutané et des cellules sanguines infiltrées dans le tissu. Ce système d'interactions et de rétrocontrôles entre cellules, cytokines et matrice extracellulaire joue un rôle capital dans la réparation du tissu cutané.

Depuis cinq ans, le concept de *plasticité cellulaire* s'est considérablement étendu. De nombreuses équipes ont montré qu'une seule cellule souche hématopoïétique pouvait être à l'origine de tissus variés (foie, épithélium pulmonaire, épithélium digestif, etc.). À l'inverse, une cellule *a priori* différenciée (notamment cellule musculaire) est capable de se « dédifférencier » pour reproduire notamment des cellules souches hématopoïétiques. La troisième partie de ce document tente de faire le point de l'application de ces connaissances aux traitements possibles de l'irradiation accidentelle et particulièrement à ceux qui ont été appliqués aux victimes d'accidents récents.

Deux exemples récents de l'intervention de l'IRSN

En décembre 2005 au Chili, un ouvrier a ramassé sur un chantier une source d'iridium 192 provenant d'un appareil de gammagraphie. Il l'a manipulée à mains nues et placée dans la poche arrière gauche de son pantalon, ainsi que dans la poche gauche de sa veste. Ce n'est que 40 minutes environ après sa découverte par l'ouvrier que la source a été détectée par une personne munie d'un dosimètre électronique. Peu de temps après l'irradiation, un érythème est apparu sur la fesse gauche de la victime. Très rapidement, le Chili a demandé l'intervention de l'AIEA, qui a mandaté plusieurs experts sur place, dont le Dr P. Gourmelon de l'IRSN. La victime a ensuite été transportée en France pour être soignée à l'hôpital d'instruction des armées de Percy à Clamart.

3.1

Un autre accident a eu lieu en mars 2006 dans une cellule d'irradiation située à Fleurus, en Belgique. La cellule sert à la stérilisation de matériels médicaux et de denrées alimentaires en les irradiant par les rayonnements gamma produits par des sources de cobalt 60 dont l'activité est de $30 \cdot 10^{15}$ Bq. Alors que les sources, en partie hors de leur enceinte de protection, déclenchaient les alarmes, le contrôleur a pénétré jusqu'au fond de la cellule où se trouve le bouton de réarmement validant le contrôle.

C'est lors de cette opération d'une vingtaine de secondes qu'il a été irradié. La présence de signes cliniques persistant près de vingt jours après l'évènement l'a amené à consulter le médecin du travail qui, après examens biologiques, a suspecté une irradiation accidentelle et contacté aussitôt l'IRSN. Sur recommandation de l'Institut, le médecin du travail a décidé l'hospitalisation en France du patient à l'hôpital d'instruction des armées de Percy à Clamart.

L'expertise de l'IRSN dans la gestion des surexpositions accidentelles reconnue aux plans national et international

Les deux exemples ci-dessus montrent que l'on fait appel aux équipes de l'IRSN, composées de physiciens dosimétristes, de radiobiologistes et de spécialistes en radiopathologie, pour travailler en étroite collaboration avec les cliniciens en charge du traitement des victimes d'irradiation grave. C'est également la reconnaissance de la compétence de l'IRSN par des organisations internationales telles que l'AIEA qui explique que l'IRSN ait été sollicité au niveau international pour de nombreux accidents récents.

Techniques de reconstitution dosimétrique

La reconstitution dosimétrique est le premier problème auquel doivent faire face les équipes médicales en charge du traitement des victimes d'irradiation accidentelle. Cette reconstitution peut se faire essentiellement de deux façons : par la mesure de la dose reçue par la victime à l'aide de la dosimétrie biologique ou par la reconstitution physique de l'accident, expérimentale ou numérique.

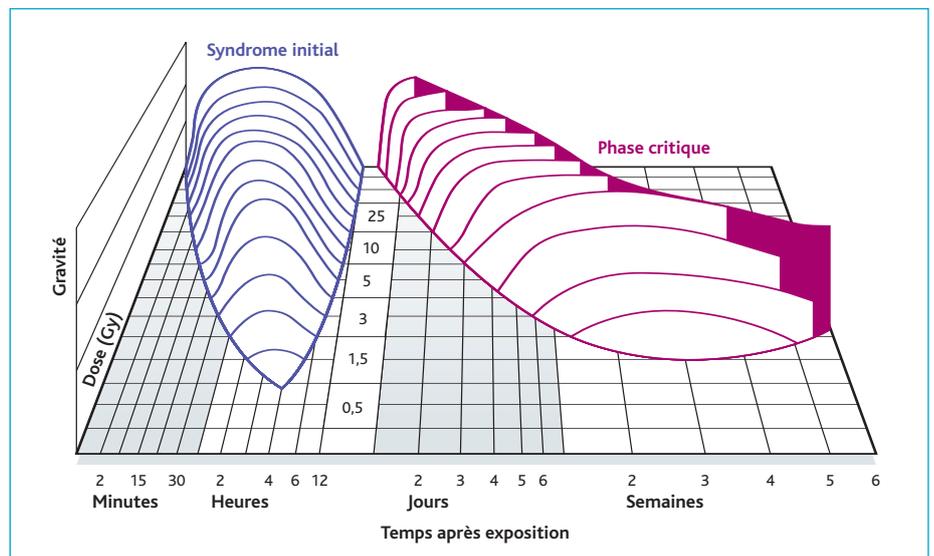


Figure 1 : Évolution du syndrome initial, du temps de latence et du syndrome aigu d'irradiation en fonction de la dose reçue et du temps après irradiation. D'après les données de Young, 1987 et avec l'autorisation du Dr Nénot (IRSN).

Dosimétrie clinique

La dosimétrie clinique repose essentiellement sur le temps d'apparition et la sévérité des symptômes initiaux. Ces symptômes sont des nausées, des vomissements, des céphalées, des diarrhées réflexes, des érythèmes, une hypotension, et dans les cas les plus sévères un syndrome d'incapacitation transitoire. La sévérité et le délai d'apparition de ces symptômes sont directement reliés à la dose d'irradiation reçue par la victime et peuvent permettre d'évaluer très grossièrement la sévérité de l'atteinte radio-induite. Il est donc particulièrement important de noter ces signes cliniques (figure 1).

Cependant, ces signes cliniques doivent être considérés avec prudence en raison d'une interprétation parfois difficile due à la non-spécificité de l'atteinte des rayonnements ionisants et d'une configuration d'irradiation mal connue. En effet, les symptômes décrits ne sont pas spécifiques d'une atteinte radio-induite. Par exemple, pour l'accident de Belgique, les vomissements se sont arrêtés dans l'après-midi de l'irradiation, mais les nausées persistantes ont conduit la victime à consulter deux jours plus tard. La non-spécificité des symptômes précoces décrits a conduit le médecin à conclure à une gastro-entérite, ce qui a retardé la prise en charge médicale de la victime. Une deuxième raison est que la relation entre la sévérité du syndrome initial et la dose d'irradiation peut être compliquée à établir.

Ainsi, lors de l'accident du Chili, la victime a décrit une sensation de chaleur au visage, avec l'apparition d'un érythème facial, ainsi qu'une sensation de malaise et des vertiges. Ces signes l'ont d'ailleurs conduit à ressortir la source de sa poche et ont permis par la suite de suspecter une irradiation en champ large à très forte dose. Cependant, l'examen

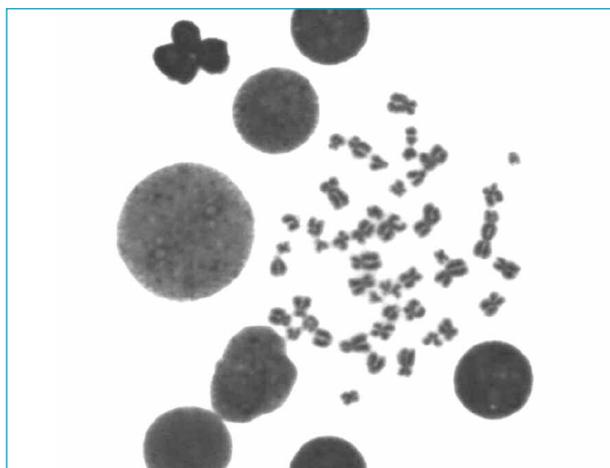


Figure 2 : Image d'une métaphase à 46 chromosomes avec trois chromosomes dicentriques (en rouge), un anneau centromérique (en jaune) et quatre fragments acentriques (en bleu).

des circonstances et la reconstitution physique de dose ont rapidement démontré qu'il s'agissait d'une irradiation localisée due au fait d'avoir regardé la source à une courte distance et qui expliquait donc ces symptômes au visage.

Ainsi, l'observation du syndrome initial et son interprétation peuvent être lourdes de conséquences. Mais lorsqu'un accident d'irradiation est immédiatement reconnu comme tel, l'utilisation du délai d'apparition et de la sévérité des nausées et vomissements peut s'avérer utile pour un tri d'urgence des victimes d'irradiation.

Dosimétrie biologique

La dosimétrie biologique des rayonnements ionisants est un examen qui permet de déterminer la dose reçue par un individu à partir de paramètres biologiques. La technique utilisée actuellement repose sur le dénombrement des aberrations chromosomiques radio-induites dans des lymphocytes du sang circulant. Parmi les aberrations chromosomiques radio-induites, les chromosomes dicentriques (figure 2), du fait de leur morphologie particulière, ont l'avantage d'être facilement identifiables après une coloration homogène. Leur nombre augmente avec la dose d'irradiation délivrée. Quant à la dose moyenne au corps entier, elle est déterminée à partir des courbes de calibration. De telles courbes ont été établies par l'IRSN pour différents rayonnements et différents débits de dose. C'est la technique conventionnelle, fiable si le prélèvement de sang est effectué dans les heures et les semaines qui suivent l'irradiation. En revanche, si l'intervalle de temps entre l'irradiation et l'analyse excède quelques mois, il existe d'autres techniques qui permet-

tent de visualiser les aberrations chromosomiques stables dans le temps. Ce sont les translocations. À cette fin, on utilise une technique de biologie moléculaire pour « peindre » les chromosomes de façon spécifique : c'est la technique d'hybridation *in situ* fluorescente (FISH). Elle permet d'identifier les échanges entre les chromosomes peints de couleurs différentes (figure 3) et est applicable pour les suspicions d'irradiation ayant eu lieu plus de six mois avant l'évaluation. L'IRSN a mis en place un programme de recherche afin d'évaluer les avantages et les limites de cette technique.

Les aberrations chromosomiques sont observées au sein des lymphocytes, à partir d'un simple prélèvement de sang. Comme les cellules sanguines circulent dans l'organisme, la dose estimée par dosimétrie biologique est une dose moyenne délivrée au corps entier et non une dose délivrée à un tissu ou à un organe particulier.

Le Laboratoire de dosimétrie biologique a effectué, entre 1992 et 2005, 157 expertises individuelles. De plus il a réalisé le tri par dosimétrie biologique de 85 personnes afin d'identifier les plus exposées. En 2006, la dosimétrie biologique a été utilisée pour les deux accidents précédemment cités.

Cas de l'accident du Chili (décembre 2005)

L'ouvrier a subi une irradiation localisée très importante. Une première analyse cytogénétique a été pratiquée par le Laboratoire de dosimétrie biologique du Chili. L'IRSN a effectué une seconde analyse lors de l'arrivée de l'ouvrier en France et a confirmé la dose moyenne au corps entier mesurée au Chili (0,76 Gy). La distribution des aberrations chromosomiques a mis en évidence une irradiation hétérogène. D'après cette distribution, le pourcentage de sang irradié représente environ 25 % du sang total. Dans ce cas, la dose est imprécise car l'estimation est réalisée à partir d'un mélange de lymphocytes dont une partie seulement a été exposée. L'une des principales limites de la dosimétrie

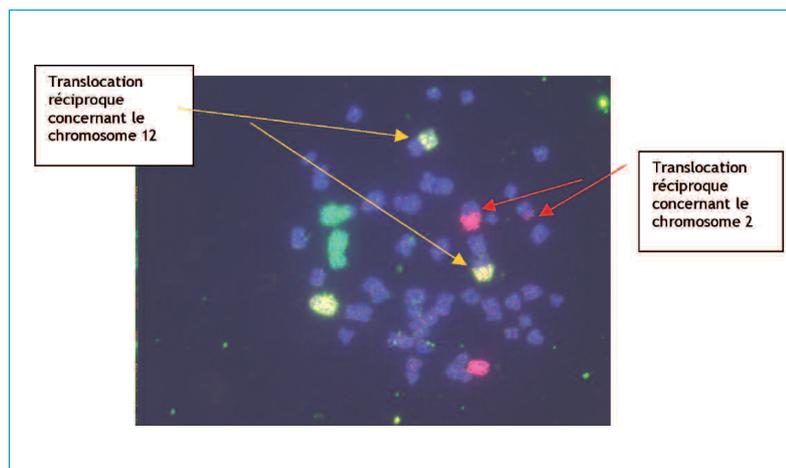


Figure 3 : Visualisation des aberrations chromosomiques stables dans un lymphocyte par la technique d'hybridation *in situ* fluorescente (FISH).

3.1

biologique est l'impossibilité d'estimer la dose reçue localement. Une analyse cytogénétique à partir de cellules résidentes – et en particulier de cellules de peau – a été développée dans le but d'avoir une dosimétrie biologique localisée au site d'irradiation.

Cas de l'accident de Belgique

Un syndrome hématologique sévère diagnostiqué trois semaines après l'accident chez le contrôleur a été le premier signe clinique qui a permis au médecin de suspecter une irradiation accidentelle. Cependant, les conditions d'irradiation étant mal connues, il n'était pas sûr que le travailleur ait été réellement exposé. L'observation d'aberrations chromosomiques au sein des lymphocytes du patient a permis de prouver, deux jours après son arrivée en France, qu'il y avait bien eu une irradiation. La dose estimée de 4,2 Gy délivrée au corps entier a permis de confirmer le scénario établi par la dosimétrie physique et a aidé les médecins à définir une thérapeutique adaptée. Ce cas représente une configuration d'irradiation corps entier, circonstance d'irradiation rare pour laquelle la dosimétrie biologique est particulièrement bien adaptée.

Dosimétrie physique

Outils de reconstitution expérimentale et numérique

La reconstitution dosimétrique expérimentale consiste à irradier, dans des conditions aussi proches que possible de celles de l'accident, un mannequin anthropomorphe équipé de dosimètres et dont la matière possède une composition proche de celle d'un tissu biologique (*figure 4*). En complément, des techniques numériques permettent un paramétrage fin du cadre topographique de l'accident. La reconstitution numérique nécessite l'utilisation de modèles anthropomorphes numériques, associés à un code de calcul Monte Carlo qui permet de simuler le parcours et les interactions des particules dans la matière. Deux types de fantômes numériques (*figure 5*) sont utilisés : les fantômes dits « mathématiques », représentatifs d'un individu standard dont la morphologie est décrite à partir d'éléments géométriques simples, et les fantômes dits « voxélisés », élaborés à partir des images scanner de la victime.

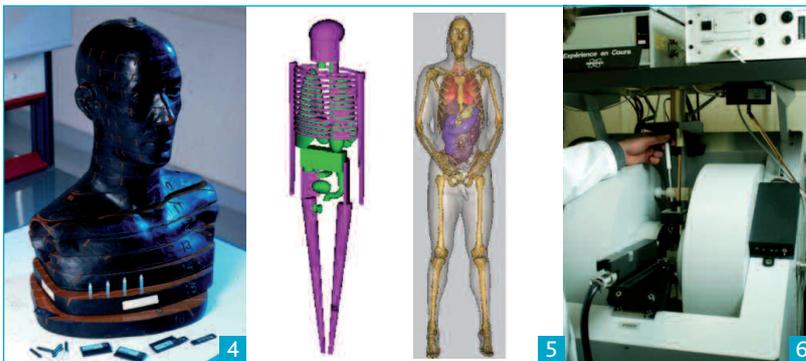


Figure 4 : Mannequin anthropomorphe.

Figure 5 : Fantôme mathématique standard (droite) et fantôme voxélisé (gauche).

Figure 6 : Spectromètre de l'IRSN pour les mesures de résonance paramagnétique électronique (RPE).

La dosimétrie physique, qu'elle soit expérimentale ou numérique, permet d'obtenir une estimation de la distribution de la dose en différents points de l'organisme de la victime avec une précision étroitement corrélée à la connaissance des circonstances de l'accident, notamment en termes de topographie, de séquence et de durée de l'irradiation.

Résonance paramagnétique électronique

La résonance paramagnétique électronique (RPE) est une méthode de mesure physique qui consiste à observer la résonance créée lors de l'absorption d'un rayonnement micro-onde par les espèces radicalaires créées par irradiation, lorsque le matériau est soumis à un champ magnétique (*figure 6*).

Ces espèces radicalaires, dont la quantité est directement proportionnelle à la dose absorbée par le matériau, sont globalement stables dans le temps. À ce jour, les matériaux biologiques les plus utilisés en cas d'accident sont ceux contenant de l'hydroxyapatite, tels l'émail dentaire et l'os.

Une dosimétrie par RPE ne nécessite pas de connaître précisément les circonstances de l'accident, mais elle requiert un ou plusieurs prélèvements invasifs. Cette technique fournit une estimation de la dose au niveau de l'échantillon étudié (dent, os) et peut être utilisée à la fois comme indicateur du niveau de l'exposition et valeur de normalisation lors de la mise en œuvre des techniques de reconstitution dosimétrique physique.

Cas de l'accident du Chili

Les doses mesurées par spectrométrie RPE sur des échantillons d'émail dentaire provenant des dents 2-4 (1^{re} prémolaire supérieure gauche) et 4-5 (2^e prémolaire inférieure droite) ont été respectivement estimées à $8,5 \pm 0,6$ Gy et $5,6 \pm 0,3$ Gy.

Par ailleurs, des simulations numériques ont été réalisées afin d'établir une cartographie des doses en surface et en profondeur au niveau de la fesse. L'irradiation étant très localisée, l'utilisation d'un fantôme

voxélisé généré à partir de 163 coupes issues d'un examen tomодensitométrique de la victime a été retenue. Les calculs ont été réalisés en considérant un temps d'exposition de 10 minutes et une activité de 3,3 TBq de la source d'iridium-192.

Les résultats indiquent une dose absorbée de près de 2 000 Gy à la surface de la peau, dose qui chute rapidement en profondeur. L'isodose 20 Gy, qui constitue une valeur proche de la valeur limite de nécrose tissulaire de 25 Gy, est située à 5 cm de profondeur. En outre, on observe une symétrie entre la distribution de la dose à la surface de la peau

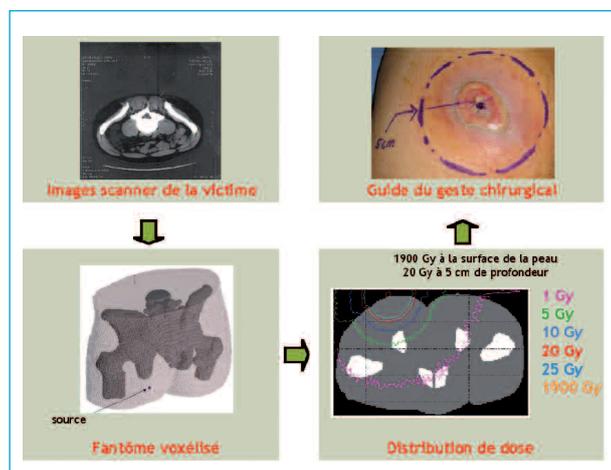


Figure 7 : Étapes de la reconstitution dosimétrique numérique.

et la distribution de la dose en profondeur dans le tissu. S'appuyant sur cette cartographie, une exérèse de 5 cm de profondeur et de 10 cm de diamètre a été pratiquée au niveau de la fesse de la victime le 5 janvier 2006 par l'équipe de l'hôpital d'instruction des armées de Percy à Clamart.

Ainsi, pour la première fois, le geste chirurgical a été guidé par les informations issues de la reconstitution dosimétrique.

Les étapes de cette première mondiale sont illustrées en *figure 7*.

Cas de l'accident de Fleurus

Une reconstitution expérimentale a été effectuée sur place par une équipe de l'IRSN. Les responsables de l'installation d'irradiation n'ont pas pu reproduire les circonstances exactes de l'accident car, au moment des faits, la source se trouvait vraisemblablement à un niveau intermédiaire entre sa position de stockage et sa position normale de fonctionnement.

Néanmoins, des mesures ont été faites en fonctionnement nominal afin de déterminer la variation d'intensité du rayonnement le long du trajet effectué par le contrôleur et par conséquent, d'estimer l'hétérogénéité de la distribution de la dose dans l'organisme à l'aide d'un mannequin anthropomorphe.

Des simulations numériques ont été réalisées en faisant l'hypothèse que la source se trouvait à mi-hauteur dans la casemate d'irradiation, hypothèse la plus réaliste compte tenu des résultats de la dosimétrie biologique. Un gradient de dose d'un facteur 2 a été observé entre la face avant et la face arrière, puis entre le bassin et le crâne de la victime. Aucun gradient latéral significatif n'a été mis en évidence. Les doses au niveau des territoires anatomiques contenant de la moelle osseuse active se situent entre 1,5 Gy et 6 Gy environ.

L'ensemble des résultats de ces reconstitutions expérimentale et numérique démontrent que l'irradiation accidentelle, quelles que soient les hypothèses, est nettement hétérogène. Cette information est capitale pour la mise en place d'une stratégie thérapeutique.

En effet, la mise en évidence de territoires de la moelle osseuse nettement sous-exposés par rapport à d'autres permet d'envisager, compte tenu des gammes de dose, une reprise spontanée secondaire de l'activité de la moelle osseuse dans ces territoires.

Conclusion : apport de la dosimétrie dans la gestion médicale

Lors de ces deux accidents d'irradiation, la dosimétrie clinique n'a pas été la plus exploitable. Dans le cas de l'accident du Chili, la forte irradiation au niveau de la face a provoqué les symptômes d'un syndrome initial, avec nausées et vomissements, malgré la rapide évidence d'une irradiation localisée. Dans le cas de l'accident de Belgique, les symptômes qui auraient pu servir à la dosimétrie clinique ont été confondus avec les symptômes d'une gastro-entérite. Cependant l'existence de ces symptômes précoces a permis de suspecter, même tardivement, une irradiation accidentelle sévère.

Pour ces deux accidents, la complémentarité des deux approches de dosimétrie (biologique et physique) a été un élément essentiel dans les prises de décision des équipes soignantes. Pour l'accident du Chili, la dosimétrie physique a permis d'établir, à partir du scénario de l'accident, une reconstitution des doses reçues par l'ouvrier, qui a servi ensuite à guider le geste chirurgical d'exérèse. Dans le cas de l'accident de Belgique, la dosimétrie biologique a été un apport précieux dans la gestion du traitement du patient. Elle a permis de confirmer l'occurrence d'une irradiation accidentelle et de vérifier la robustesse du scénario élaboré par les physiciens lors de la reconstitution de l'accident.

Cette reconstitution a validé l'hypothèse d'hétérogénéité, élément important pour mettre en œuvre une thérapeutique adaptée.

De la dosimétrie au diagnostic

Si l'estimation de la dose reçue est importante pour juger de la gravité d'un accident radiologique, il est nécessaire de disposer d'indicateurs biologiques – ou bio-indicateurs – pour évaluer l'atteinte aux différents systèmes physiologiques vitaux pour l'aspect diagnostic, ainsi que l'évolution possible des lésions radio-induites pour l'aspect pronostic. L'IRSN a développé depuis plusieurs années un programme de recherches pour le développement de bio-indicateurs des dommages radio-induits à différents organes ou système afin d'aider les équipes médicales dans leurs choix thérapeutiques.

3.1

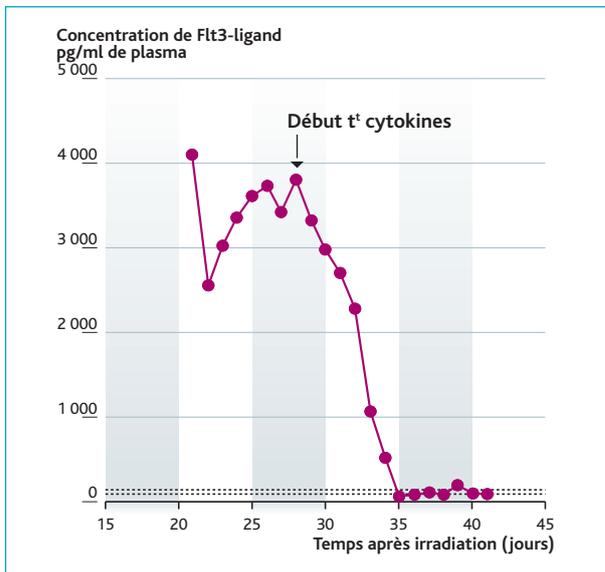


Figure 8 : Évolution de la concentration plasmatique de Flt3-ligand en fonction du temps après irradiation. Les lignes pointillées indiquent l'intervalle des valeurs normales de la concentration de Flt3-ligand chez l'homme.

Indicateurs opérationnels

Le Flt3-ligand

Le Flt3-ligand est une cytokine présente dans le sang à faible concentration, chargée comme d'autres cytokines d'agir sur les cellules immatures de la moelle osseuse afin de stimuler leur production.

Les travaux antérieurs de l'IRSN ont montré que les variations de concentration de cette molécule sont un reflet direct de l'activité de la moelle osseuse. Chez l'homme, comme chez la souris ou chez les primates non humains, l'augmentation de concentration de Flt3-ligand dans le sang est proportionnelle à la fois à la dose reçue et à la fraction de moelle osseuse irradiée. Ceci fait du Flt3-ligand un bio-indicateur fiable de l'atteinte radio-induite à la moelle osseuse.

Les variations de concentration du Flt3-ligand ont été suivies chez les victimes des accidents du Chili et de Belgique, en parallèle avec les paramètres hématologiques.

Chez la victime chilienne, aucune élévation anormale de Flt3-ligand n'a été observée et la numération des cellules sanguines a montré une absence d'atteinte hématologique importante.

Par contre, pour la victime belge, dès sa prise en charge et jusqu'à 20 jours après, la concentration sanguine de Flt3-ligand était jusqu'à 30 fois supérieure à la normale. Cela indiquait une atteinte à la moelle osseuse très sévère.

En parallèle, la numération des cellules sanguines a montré une aplasie importante avec une thrombopénie sévère pouvant induire des risques élevés d'hémorragie et d'infections opportunistes.

Dès que le patient a été mis sous traitement par injection de cytokines, une baisse régulière de la concentration sanguine de Flt3-ligand a été observée (figure 8), montrant ainsi que le traitement avait été efficace.

Ainsi, l'expérience acquise sur ces deux victimes a permis de valider le suivi des variations de concentration du Flt3-ligand comme bio-indicateur de l'atteinte à la moelle osseuse en situation d'irradiation accidentelle.

La citrulline

La citrulline est un acide aminé produit spécifiquement par les entérocytes (cellules intestinales) et résultant du métabolisme de la glutamine par des enzymes mitochondriales (figure 9).

Une étude préclinique a permis de valider le taux plasmatique de citrulline comme marqueur de la dénudation de l'épithélium de l'intestin grêle, après irradiation. Cela a été confirmé en clinique chez des patients développant une atrophie de l'intestin grêle au décours de la radiothérapie.

Pour les deux victimes des accidents du Chili et de Belgique, âgées respectivement de 27 et 50 ans, la citrulline a été dosée dans le plasma par des techniques de chromatographie.

Les taux de citrulline du patient chilien mesurés de 19 à 61 jours après irradiation sont compris globalement dans les valeurs contrôles des sujets masculins de 20 à 30 ans (35 ± 9 (mu)mol/l).

Les taux de citrulline du patient belge mesurés de 26 à 37 jours après irradiation sont compris globalement dans les valeurs contrôles des sujets masculins de 40 à 68 ans (34 ± 8 (mu)mol/l).

Globalement, le suivi de la citrullinémie plasmatique a permis d'exclure toute atteinte de l'intestin grêle dans ces deux cas d'irradiation, ce qui a été confirmé par l'évolution clinique.

Indicateurs en devenir

La cytogénétique à la peau

En cas d'irradiation localisée sévère, la situation la plus critique est le développement de la nécrose du tissu cutané lorsque la peau est exposée à des doses supérieures à 25 Gy. Si la physiopathologie du tissu cutané exposé à une brûlure thermique ou à une irradiation semble *a priori* identique, d'un point de vue clinique et biologique, la principale spécificité du syndrome cutané radio-induit réside en partie dans l'enchaînement des phases de latence, d'évolution aiguë et d'évolution chronique par poussées successives aboutissant à la nécrose tissulaire. Le retour d'expérience met en évidence la difficulté d'établir un pronostic fiable de cette évolution vers la nécrose ou la cicatrization tissulaire. L'évaluation de la dose reçue est réalisée essentiellement à partir de la dosimétrie physique fondée sur les éléments fournis par l'enquête rétrospective. Cette reconstruction est souvent tardive et plus ou moins précise. Il n'existe aucun outil dosimétrique fiable permettant de renseigner précisément sur la distribution des doses en surface et en profondeur.

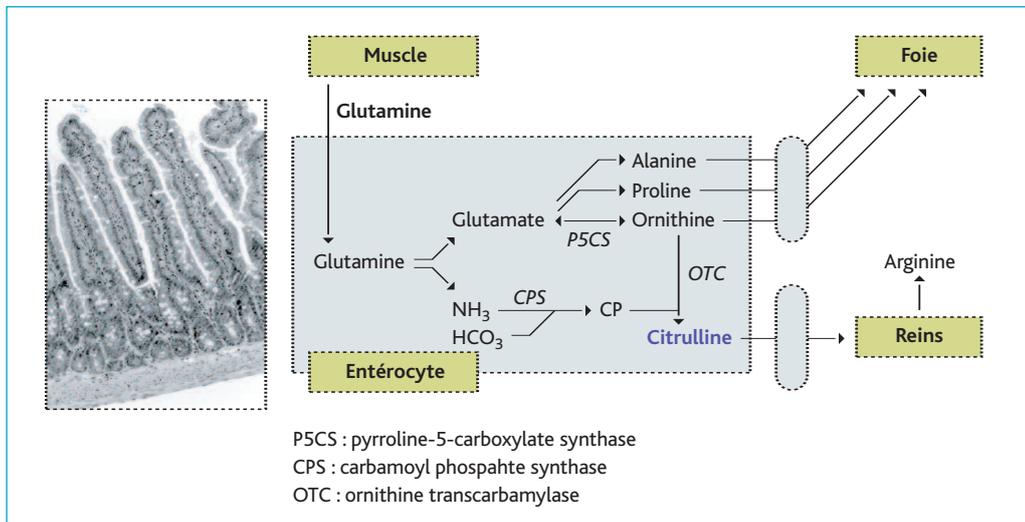


Figure 9 : Schéma de la voie métabolique de la citrulline.

L'utilisation de techniques cytogénétiques directement sur les cellules de la peau devrait permettre de disposer d'un outil de dosimétrie fiable. À l'IRSN, ces techniques sont classiquement utilisées sur les lymphocytes circulants dans le cadre d'expertise en dosimétrie biologique. Elles ont été appliquées sur des cellules isolées à partir d'un tissu exposé aux rayonnements ionisants.

Une technique de ce type a été utilisée dans deux accidents d'irradiation ayant nécessité une exérèse de tissus irradiés. Dans le premier cas (accident de Géorgie), la dose mesurée était cohérente avec la dosimétrie physique. Dans le second cas (accident du Chili), l'analyse cytogénétique a été biaisée par la capacité de prolifération cellulaire modifiée après irradiation (sélection clonale). Des expériences complémentaires doivent être réalisées pour valider définitivement cette approche dosimétrique.

D'autres approches non invasives sont aussi à l'étude. Elles visent à mesurer des variations de caractéristiques biophysiques entre les tissus sains et les tissus irradiés.

La protéomique

L'évolution des lésions cutanées radio-induites dépend principalement de la nature du rayonnement, de la dose et du débit de dose, du volume et de la surface irradiés, de la nature du ou des tissus irradiés et de la radiosensibilité intrinsèque de l'individu. En fonction de ces paramètres, la lésion atteindra des stades de sévérité différente : érythème léger ou sévère, desquamation sèche ou humide, nécrose, ulcère et/ou fibrose dans le cas d'effets très tardifs.

Aucune étude ne fait état d'investigations sur la recherche de bio-indicateurs permettant de prédire l'évolution d'une lésion cutanée radio-induite. L'évolution de ces blessures complexes restant encore difficilement prédictible, l'utilisation par les cliniciens de marqueurs pronostiques devrait apporter une aide conséquente à l'établissement de stratégies préventives ou thérapeutiques.

Des marqueurs pronostiques (protéines, métabolites) peuvent être recherchés dans le sérum des patients, soit par des méthodes classiques à partir de processus pathologiques déjà connus, soit par des méthodes d'analyse globale à grande échelle (protéomique, métabolomique) où l'on cherche des variations sans *a priori* (voir plus bas). Le sérum est un fluide biologique de choix, car il est facilement accessible et contient le plus grand nombre de protéines codées par le génome. De plus, en cas de dommage ou de dysfonctionnement d'un tissu, la composition du sérum en protéines peut changer, témoignant de la présence d'un état pathologique ou permettant de prédire l'évolution de la pathologie.

La protéomique s'appuie sur un vaste ensemble de technologies et de méthodologies qui permettent d'appréhender de manière globale les systèmes biologiques. Il s'agit d'étudier simultanément et sans *a priori* les variations quantitatives (niveaux d'expression) ou qualitatives (modifications post-traductionnelles, réseaux d'interaction entre protéines) d'un grand nombre de protéines différentes. Les techniques de protéomique offrent ainsi la possibilité d'identifier et de quantifier, dans des contextes physiologiques et pathologiques variés, les protéines exprimées par un type cellulaire, un tissu ou encore un fluide biologique à un moment donné. Cette discipline est devenue incontournable pour l'étude des systèmes dans leur globalité et pour la mise en évidence de marqueurs diagnostiques et pronostiques de pathologies extrêmement variées.

Le programme de R&D de l'IRSN vise à découvrir des marqueurs diagnostiques et pronostiques applicables aux lésions cutanées radio-induites. Pour découvrir et valider ces bio-marqueurs, différentes approches utilisant comme outil biologique l'analyse à grande échelle de protéines (protéomique) sont menées en parallèle.

3.1

La première approche, fondée sur l'étude chez l'animal de la lésion cutanée radio-induite, a permis de montrer la pertinence de la protéomique pour la recherche de bio-marqueurs de l'irradiation. La seconde approche, en cours, repose sur une étude clinique impliquant des patientes traitées par radiothérapie pour le cancer du sein.



Figure 10 : Analyse en deux dimensions des protéines sériques de l'ouvrier chilien irradié (exemple d'un des gels obtenus). Les protéines du témoin sont marquées par Cy3 (en vert), celles de l'ouvrier irradié sont marquées par Cy5 (en rouge) et sont séparées dans le même gel pour plus de reproductibilité. L'overlay représente la superposition des deux images (verte et rouge) et permet de repérer visuellement les différences les plus marquantes.

Cette méthodologie a été adaptée à l'analyse du sérum de la victime chilienne. Deux prélèvements sanguins ont été recueillis 22 et 56 jours après l'irradiation. En parallèle, les prélèvements sanguins de huit donneurs volontaires d'âge similaire à celui de la victime ont été recueillis. Les résultats obtenus montrent que dans le sérum de la victime irradiée, un grand nombre de protéines sont anormalement surexprimées (figure 10, en rouge) et que quelques protéines sont sous-exprimées (figure 10, en vert). L'analyse bio-informatique et statistique qui permettra de quantifier ces variations est en cours. Les variants protéiques seront ensuite identifiés par spectrométrie de masse à partir des protéines séparées sur les gels en deux dimensions.

Conclusion : apport de l'indicateur diagnostique dans la gestion médicale

Avec le retour d'expérience des derniers accidents d'irradiation, tels ceux du Chili et de Belgique, il est maintenant évident que certains indicateurs peuvent être utilisés en pratique clinique à la fois comme une aide à la décision dans le choix des stratégies thérapeutiques et comme outils de suivi d'efficacité thérapeutique.

D'autres marqueurs biologiques devraient voir le jour avec l'évolution des connaissances des mécanismes physiologiques des irradiations accidentelles, notamment la prise en compte de l'atteinte multi-organes souvent caractéristique de ces irradiations. Seule une approche multiparamétrique fondée sur la mise en œuvre et la convergence de plusieurs approches complémentaires, ou bien l'utilisation de techniques à large spectre, permettra de répondre encore plus efficacement au défi que constitue la prise en charge thérapeutique des victimes d'une irradiation accidentelle complexe et unique par définition.

Des effets physiopathologiques au traitement

Bilan du traitement du syndrome hématopoïétique

Le syndrome hématopoïétique apparaît à la suite de la destruction des cellules souches hématopoïétiques par l'irradiation. Le système hématopoïétique n'est alors plus capable d'assurer sa fonction de renouvellement des cellules sanguines. Il en résulte la disparition progressive des globules rouges, des granulocytes, des lymphocytes et des plaquettes, cellules sanguines qui ont toutes une durée de vie limitée. Dans ces conditions, l'utilisation d'une greffe de cellules souches hématopoïétiques pour remplacer les cellules détruites semble être la solution idéale. Cependant, l'étude de la survie des victimes d'irradiation accidentelle montre que les victimes ayant reçu une greffe de moelle osseuse n'ont pas eu une meilleure survie que les autres. Cela est dû à différents facteurs parmi lesquels on peut noter :

- la nature hétérogène de l'irradiation accidentelle, qui peut permettre la survie d'un nombre suffisant de cellules lymphoïdes capables de rejeter la greffe ;

- l'existence d'autres lésions telles que les brûlures radiologiques ou une atteinte gastro-intestinale, qui sont de mauvais pronostic pour le succès d'une greffe ;
- les risques associés à la greffe elle-même, c'est-à-dire la réaction de rejet ou du greffon contre l'hôte (GVHD), qui nécessitent un traitement immunosuppresseur spécifique avec des risques de toxicité hématologique.

D'autres approches du traitement du syndrome hématopoïétique ont été développées, en particulier à l'IRSN sur un modèle de primate non humain. Il s'agit notamment des traitements par des facteurs de croissance tels que le G-CSF (*Granulocytes Colony Stimulating Factor*). En effet, si on admet que la nature hétérogène de l'irradiation accidentelle permet la survie de îlots hématopoïétiques fonctionnels, il est alors intéressant de traiter les victimes par des injections de cytokines capables de stimuler la prolifération des cellules survivantes et ainsi d'accélérer la reconstitution des territoires médullaires. Des travaux récents, réalisés par l'IRSN en collaboration avec la société Chugai Pharma France, ont montré l'intérêt de cette approche. L'injection biquotidienne de G-CSF à la dose de 5 µg/kg a permis d'obtenir chez des animaux irradiés de façon hétérogène une récupération hématologique complète en 20 jours, alors que les animaux traités par la greffe d'un produit d'expansion *ex vivo* autologue ont montré une récupération en 28 à 30 jours. Ceci démontre l'efficacité de l'approche thérapeutique par injection de cytokines. Mais le faible nombre de victimes d'irradiation accidentelle traitées soit par greffe de moelle soit par injection de cytokines et la très grande diversité des circonstances accidentelles rendent difficile une étude comparative de ces deux approches thérapeutiques sur des cas réels. De plus, il est envisageable d'utiliser plusieurs molécules en combinaison de façon à augmenter l'efficacité du traitement. Ainsi, des combinaisons G-CSF + interleukine-3 et G-CSF + érythropoïétine (EPO) ont déjà été utilisées chez plusieurs victimes, mais avec les limites d'interprétation décrites ci-dessus. D'autres cytokines sont à l'heure actuelle envisagées : il s'agit du CRH (*corticotropin-releasing hormone*) et du Flt3-ligand. Toutefois, si leur efficacité a été clairement démontrée sur les modèles animaux, leur utilisation chez l'homme est limitée par l'absence d'autorisation de mise sur le marché (AMM).

Cependant, le succès d'un traitement par injection de cytokines repose sur l'existence d'une hématopoïèse résiduelle suffisante pour assurer un redémarrage de la moelle osseuse dans un délai raisonnable. C'est la raison pour laquelle la réunion d'un collège d'experts français en 2003, puis européens en 2005, a proposé de façon consensuelle une stratégie thérapeutique particulière pour le traitement des victimes d'irradiation généralisée accidentelle. À partir d'une évaluation de la sévérité des dommages par les moyens de la dosimétrie clinique, biologique ou physique, tous les patients pour lesquels existe un risque d'apparition d'un syndrome hématopoïétique doivent être traités par injection de cytokines aussitôt que possible après

l'irradiation. Un traitement prophylactique des hémorragies et des infections opportunistes selon l'état de l'art doit être associé, en retardant la décision de greffe durant une période d'au moins trois semaines. Cette stratégie thérapeutique a plusieurs intérêts :

- elle est conservatoire, c'est-à-dire qu'à tout moment, son bien-fondé peut être réévalué et la stratégie modifiée en conséquence, y compris en interrompant les injections de cytokines ;
- elle permet la recherche d'un donneur compatible dans les meilleures conditions, car cela prend du temps ;
- elle permet d'attendre le résultat des évaluations hématologiques, en particulier le résultat des biopsies ostéo-médullaires de diagnostic ;
- dans le cas où une décision de greffe est prise, elle permet de préparer le patient par un conditionnement adapté, en particulier par sérum anti-lymphocytaire qui ne présente pas de toxicité hématologique et par l'utilisation d'une greffe de cellules souches du sang périphérique de taille importante, en association avec un traitement immunosuppresseur par cyclosporine (protocole dit de mini-greffe). Ce type de protocole permet d'obtenir une prise de greffe en réduisant à la fois les risques de rejet et les risques de réactions du greffon contre l'hôte.

Cette stratégie thérapeutique a été appliquée – bien que tardivement – au cas de la victime de l'accident de Belgique. En effet, la reconnaissance tardive de la nature radiologique de l'accident a conduit à l'hospitalisation de la victime au 20^e jour après l'irradiation, sans aucun traitement durant cette période. Cependant, plusieurs signes – en particulier la présence de cellules lymphoïdes circulantes suggérant l'existence de zones partiellement protégées, la concentration de Flt3-ligand très élevée mais stable suggérant une stabilisation de l'activité hématopoïétique et la reconstitution physique suggérant un gradient de dose – ont conduit à choisir un traitement par injection de cytokines à partir du 28^e jour pour stimuler une éventuelle hématopoïèse résiduelle. Le bien-fondé de ce choix a été rapidement démontré puisque la victime présentait des signes de reprise hématopoïétique évidents et sortait définitivement d'aplasie au 34^e jour après l'irradiation (*figure 11*). Tout cela révèle finalement la validité de l'approche pragmatique prônée par l'IRSN et adoptée lors des deux conférences de consensus.

Le syndrome cutané et son traitement

Si la pathogénie des effets cutanés est bien décrite, la réponse médicale reste encore une tâche complexe et délicate face à ce type de pathologie. L'IRSN a constitué, grâce aux liens établis avec les structures hospitalières en charge de ces patients, une « tissuthèque » lui permettant d'affiner ses connaissances dans le domaine de la radiopathologie du tissu cutané et de poser les bases de nouvelles stratégies thérapeutiques.

Actuellement, la seule possibilité thérapeutique envisagée dans les cas le nécessitant est l'exérèse des tissus exposés, accompagnée d'une greffe de peau sur un support sain.

3.1

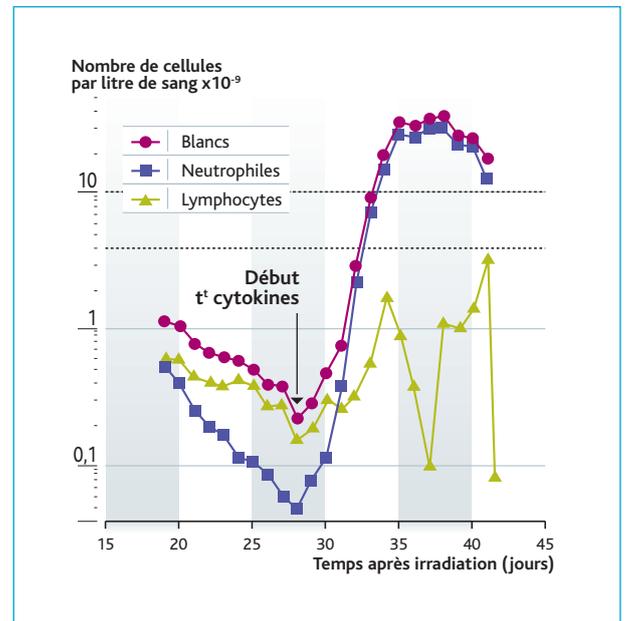


Figure 11 : Évolution du nombre de globules blancs totaux (ronds rouges), de neutrophiles (carrés bleus) et de lymphocytes (triangles verts) en fonction du temps après irradiation. Les lignes pointillées indiquent l'intervalle des valeurs normales du nombre de globules blancs chez l'homme.

Cette approche traumatisante est malheureusement souvent incontournable. L'IRSN a décidé de lancer un programme de recherche dans le domaine du traitement du syndrome cutané radio-induit.

En fonction de l'intensité et de l'étendue du dommage initial, les mécanismes de la réparation tissulaire conduisent à terme : 1) soit à la réparation complète du tissu où les processus d'angiogénèse, de formation du tissu de granulation et de ré-épithélisation sont capitaux ; 2) soit à une absence de réparation tissulaire pouvant évoluer vers une nécrose tissulaire. La *figure 12* illustre cette étape de nécrose intense des tissus cutanés et musculaires après irradiation (cas de l'accident du Chili).

La perte de la jonction dermo-épidermique, la mort cellulaire des kératinocytes et la présence d'un infiltrat inflammatoire important sont caractéristiques de l'épidermolyse radio-induite (*figure 12 B et C*). Le tissu musculaire est le siège de lésions fibro-atrophiques évoluant vers un mode rhabdomyoblastique (*figure 12 E et F*) ou vers une nécrose complète de liquéfaction (*figure 12 I et L*). Les lésions vasculaires sont remarquables par leur polymorphisme, leur caractère focal et leur absence de systématisation. Ainsi, l'expression de ces dommages et les différents mécanismes biologiques qui leur sont associés constituent autant de cibles thérapeutiques potentielles. Deux approches sont explorées simultanément.

La première approche repose sur une stratégie pharmacologique visant à limiter le dysfonctionnement vasculaire et l'inflammation chronique des tissus irradiés, caractéristiques du syndrome cutané d'irradiation. Les études précliniques de l'IRSN sur un modèle d'irradiation localisée de la peau chez la souris ont permis de démontrer l'efficacité des statines.

Ce traitement permet de réduire de 37 % l'expression clinique du syndrome cutané radio-induit. Une étude clinique est envisagée pour démontrer l'efficacité de cette approche chez l'homme (collaboration avec l'Institut Gustave-Roussy).

La seconde approche repose sur une stratégie de thérapie cellulaire qui consiste à injecter des cellules immatures susceptibles d'acquérir la morphologie et la fonction des cellules déficientes dans un tissu lésé. Utilisée depuis plusieurs dizaines d'années dans le cas de greffes de moelle osseuse, son extension à tous les tissus endommagés suscite de grands espoirs, notamment dans des domaines où il n'existe à l'heure actuelle aucun traitement. La thérapie cellulaire pourrait donc apporter un progrès significatif dans le domaine de la réparation cutanée. De par leur efficacité plus ou moins spécifique sur la réparation tissulaire, l'utilisation de différents types de cellules souches a été envisagée. Ainsi, les cellules souches mésenchymateuses (CSM) sont testées pour leur capacité à se différencier préférentiellement en fibroblastes, et les cellules souches adipocytaires (CSA) pour leur fort potentiel pro-angiogénique. Les résultats obtenus par l'IRSN mettent en évidence que chez les animaux irradiés localement et traités par les CSM humaines, les lésions sont moins sévères, la cicatrisation plus rapide et la récupération fonctionnelle meilleure.

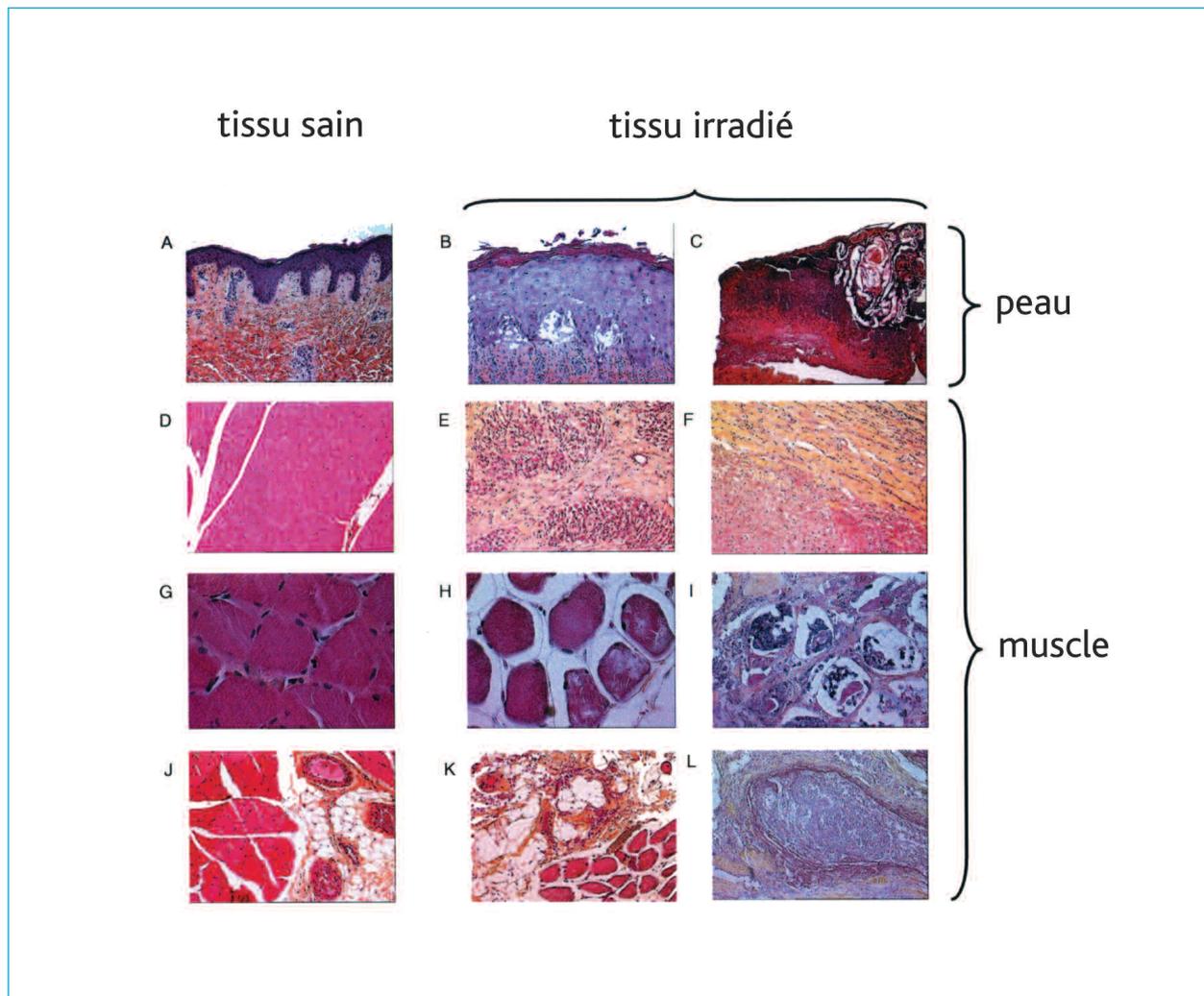


Figure 12 : Caractérisation des lésions radio-induites cutanées et musculaires de la victime de l'accident du Chili. Images microscopiques représentatives de zones contrôles (A, D, G, J) et irradiées (B, C, E, F, H, I, K, L) : épiderme (A-C), muscle (D-F), muscular fasciculus (G-I) et vaisseaux (J-L).

La thérapie cellulaire par cellules souches mésenchymateuses a démontré son efficacité dans le traitement du syndrome cutané radio-induit développé par l'ouvrier chilien. Ce traitement a permis une cicatrisation complète des lésions de la main et du fessier. Ce premier essai chez l'homme semble prometteur. D'autres études sont nécessaires pour consolider cette approche. Sur la base des travaux menés à l'IRSN, les cellules souches adipocytaires ont démontré leur fort potentiel pro-angiogénique indispensable à la restauration des tissus irradiés. Le bénéfice thérapeutique démontré se traduit par une cicatrisation du tissu cutané plus rapide et de meilleure qualité. L'intérêt de ces cellules résidentes repose également sur leur plus grande accessibilité car leur prélèvement nécessite un acte chirurgical beaucoup moins traumatisant qu'un prélèvement de moelle osseuse. Les applications de ces cellules dans un contexte de réparation des tissus irradiés ont fait l'objet d'un dépôt de brevet sur la base des résultats obtenus à l'IRSN.

Un programme de recherche préclinique piloté par l'IRSN est en cours, avec le soutien de la Délégation générale à l'armement. Son objectif est de valider l'efficacité du traitement des brûlures par thérapie cellulaire, notamment chez le gros animal. Ce programme sera associé à une étude clinique pilote chez les grands brûlés, en association avec le Centre de traitement des brûlés de l'hôpital d'instruction des armées de Percy.

■ Conclusion et perspectives

Les récents succès cliniques remportés lors des derniers accidents d'irradiation doivent beaucoup aux travaux menés par l'IRSN depuis plusieurs années sur la faisabilité des nouvelles approches thérapeutiques du syndrome aigu d'irradiation accidentelle, et ce, tant dans le domaine de la thérapie moléculaire (accident de Belgique) que dans celui de la thérapie cellulaire (accident du Chili). Par ailleurs, ces travaux ont largement participé à l'établissement d'une première doctrine dans le traitement des irradiations accidentelles (consensus des Vaux-de-Cernay, 2003 et 2005).

Du fait du caractère particulier de chaque accident, d'importantes études sont encore nécessaires pour pouvoir généraliser les approches thérapeutiques utilisées et les transformer en protocoles standardisés.

Les connaissances acquises dans le domaine des cellules souches mésenchymateuses et des cellules souches adipocytaires permettent d'envisager des applications de thérapie cellulaire plus larges que pour les cellules souches somatiques, généralement spécifiques d'un tissu, après irradiation. Une connaissance approfondie des mécanismes d'action thérapeutique doit être acquise tant sur des modèles expérimentaux qu'au travers du suivi des essais cliniques.

Enfin, l'utilisation des cellules souches embryonnaires comme source de cellules humaines universelles afin de reconstruire *in vitro* ou *in vivo* les organes dans leur intégralité pourrait révolutionner l'abord thérapeutique de la radiopathologie. Il faudra donc, à l'avenir, évaluer le champ thérapeutique d'utilisation des différents types de cellules souches.

Références

- BERTHO, J.-M., FRICK, J., PRAT, M., DEMARQUAY, C., DUDOIGNON, N., TROMPIER, F., GORIN, N. C., THIERRY, D., GOURMELON, P., « Comparison of autologous cell therapy and granulocyte-colony stimulating factor (G-CSF) injection vs. G-CSF injection alone for the treatment of acute radiation syndrome in a non-human primate model. » *Int J Radiat Oncol Biol Phys.*, 63(3):911-20, 2005.
- BERTHO, J.-M., « The Hematopoietic Syndrome Induced by an Accidental Radiation: Evaluation and Treatment. », *Radioprotection*, 41(2) : 215-227, 2006.
- THIERRY, D., BERTHO, J.-M., CHAPEL, A., GOURMELON, P., « Cell Therapy for the Treatment of Accidental Radiation Overexposure », *British J Radiology*, 27 : 175-179, 2005.
- BERTHO, J.-M., COSSET, J.-M., THIERRY, D., DE REVEL, T., GOURMELON, P., « Le syndrome aigu d'irradiation : du syndrome initial à la défaillance multiviscérale », *Menace terroriste : approche médicale*, éd. T. De Revel, P. Gourmelon, D. Vidal, C. Renaudeau, John Libbey Eurotext Publisher, Montrouge, France, pp 76-86, 2006.
- FOUILLARD, L., THIERRY, D., GOURMELON, P., GORIN, N. C., « Thérapie cellulaire et irradiation accidentelle : les perspectives », *Menace terroriste : approche médicale*, éd. T. De Revel, P. Gourmelon, D. Vidal, C. Renaudeau, John Libbey Eurotext Publisher, Montrouge, France, pp 142-146, 2006.
- VAN DER MEEREN, A., MONTI, P., VANDAMME, M., SQUIBAN, C., WYSOCKI, J., GRIFFITHS, N., « Abdominal Radiation Exposure Elicits Inflammatory Responses and Abscopal Effects in the Lungs of Mice », *Radiat Res*, 163(2):144-52, 2005.
- MONTI, P., WYSOCKI, J., VAN DER MEEREN, A., GRIFFITHS, N., « The Contribution of Radiation-Induced Injury to the Gastrointestinal Tract in the Development of Multi-Organ Dysfunction Syndrome or Failure », *British J Radiology Suppl*, 27:89-94, 2005.
- SEMONT, A., FRANÇOIS, S., MOUISEDDINE, M., FRANÇOIS, A., SACHÉ, A., FRICK, J., THIERRY, D., CHAPEL, A., « Mesenchymal Stem Cells Increase Self-Renewal of Small Intestine Epithelium and Accelerate Structural Recovery After Radiation Injury », *Tissue Engineering (in press)*, 2006.
- FRANÇOIS, S., BENSIDHOUM, M., MOUISEDDINE, M., MAZURIER, C., ALLENET, B., SÉMONT, A., FRICK, J., SACHÉ, A., BOUCHET, S., THIERRY, D., GOURMELON, P., GORIN, N. C., CHAPEL, A., « Local Irradiation Induces Not Only Homing of Human Mesenchymal Stem Cells (hMSC) at Exposed Sites but Promotes Their Wide Spread Engraftment to Multiple Organs: A Study of Their Quantitative Distribution Following Irradiation Damages », *Stem Cells*, 24(4):1020-9, 2006.
- FRANÇOIS, S., MOUISEDDINE, M., MATHIEU, N., SÉMONT, A., MONTI, P., DUDOIGNON, N., SACHÉ, A., THIERRY, D., GOURMELON, P., CHAPEL, A., « Human Mesenchymal Stem Cells Favour Healing of the Cutaneous Radiation Syndrome in a Xenogenic Transplant Mode », *Ann. Hematol.* (accepté pour publication), 2006.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, « Cytogenetic Analysis for Radiation Dose Assessment: A Manual », *Technical Report*, # 405, Vienna, 2001.
- VOISIN, P., ASSAEI, R. G., HEIDARY, A., VARZEGAR, R., ZAKERI, F., DURAND, V., SOROKINE-DURM, I., « Mathematical Methods in Biological Dosimetry: the 1996 Iranian Accident », *Int J Radiat Biol*, 76:1545-54, 2000.
- ROY, L., GRÉGOIRE, E., DURAND, V., BUARD, V., DELBOS, M., PAILLOLE, N., SOROKINE-DURM, I., GOURMELON, P., VOISIN, P., « Study of the Tools Available in Biological Dosimetry to Estimate the Dose in Cases of Accidental Complex Overexposure to Ionizing Radiation: the Lilo Accident », *Int J Radiat Biol*, 82:39-48, 2006.

3.2

Participation de l'IRSN aux projets en dosimétrie du 5^e PCRD

3.2

Éric BLANCHARDON, Loïc de CARLAN,
Didier FRANCK,
Laboratoire d'évaluation de la dose interne

Teresa BOLOGNESE-MILSZTAJN
*Direction de la stratégie, du développement
et des relations extérieures*

Jean-François BOTTOLIER-DEPOIS
Service de dosimétrie externe

Isabelle CLAIRAND
*Laboratoire de dosimétrie
des rayonnements ionisants*

Jean-René JOURDAIN
Service de dosimétrie interne

Véronique LACOSTE
*Laboratoire de métrologie
et de dosimétrie des neutrons*

François PAQUET
*Laboratoire de radiotoxicologie
expérimentale*

Pascal PIHET
Direction de la radioprotection de l'homme

Laurence ROY
Laboratoire de dosimétrie biologique

La dosimétrie des rayonnements ionisants réclame des études de R&D spécialisées tant pour améliorer la qualité des connaissances et des données scientifiques que pour satisfaire les exigences réglementaires dans des situations d'exposition particulièrement complexes. Les domaines d'application concernés couvrent en particulier la dosimétrie individuelle dans les champs mixtes neutrons-photons, la dosimétrie des équipages d'avions civils exposés aux rayonnements cosmiques en fonction du cycle solaire, et l'amélioration de la surveillance et de la dosimétrie de la contamination interne pour des travailleurs contaminés par inhalation ou ingestion de radionucléides. L'IRSN a contribué à plusieurs projets conduits de 2000 à 2004 dans le cadre du 5^e PCRD (Programme cadre de recherche et développement de la Commission européenne) au sein de partenariats européens directement intéressés par ces questions sensibles (*figure 1*). La publication des travaux s'est poursuivie en 2005.

Les projets du 5^e PCRD ont permis de renforcer le savoir-faire des équipes en matière de méthodes d'évaluation et de calcul de dose en cas d'exposition à des sources externes et internes de rayonnements ionisants. Les travaux d'enquête et d'intercomparaison sont la garantie de l'expertise européenne en dosimétrie. À ce titre, l'IRSN a assuré durant le 5^e PCRD la présidence du réseau EURADOS dont l'objectif est le transfert des connaissances nouvellement acquises dans et au-delà de l'Union européenne. EURADOS, association de droit néerlandais, évalue au sein de groupes de travail spécifiques les progrès réalisés et identifie les études et recherches à mettre en œuvre. En outre, le transfert des connaissances s'est vu valorisé dans le domaine de la dosimétrie interne au sein de la CIPR (Commission internationale de protection radiologique).

Dosimétrie externe

Projet EVIDOS (R&D)

Le projet EVIDOS (*Evaluation of Individual Dosimetry in Mixed Neutron and Photon Radiation Fields*) [1] avait comme objectif d'étudier la réponse des dosimètres d'ambiance et des dosimètres individuels utilisés dans l'industrie nucléaire pour évaluer les doses de neutrons reçues par les travailleurs à leur poste de travail. Cette évaluation dosimétrique est en effet très complexe et nécessite une méthodologie et des instruments adaptés. Il s'agissait d'étudier la

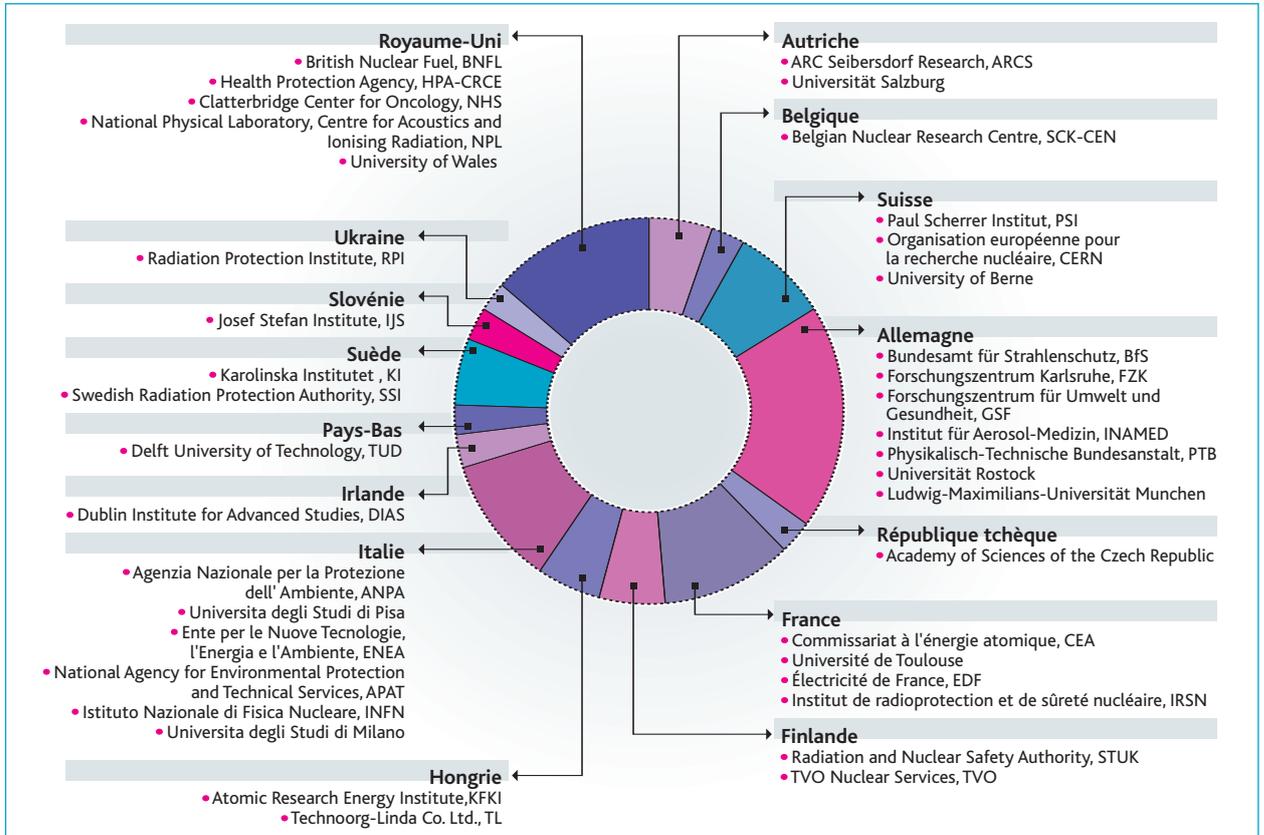


Figure 1 : Partenaires de l'IRSN engagés dans les projets de dosimétrie menés dans le cadre du 5^e PCRD [source : IRSN].

réponse spécifique de dosimètres dans les champs mixtes à chacun des postes de travail concernés, ceux-ci ayant été préalablement caractérisés par spectrométrie (figure 2).

La grandeur utilisée pour évaluer l'exposition aux rayonnements ionisants est la dose efficace $E^{(1)}$. Cette grandeur ne peut pas être mesurée directement, car elle est fonction des caractéristiques du rayonnement incident, mais également des caractéristiques du rayonnement secondaire produit par les différentes parties du corps exposées au rayonnement initial. La dose efficace est évaluée par deux grandeurs opérationnelles qui sont l'équivalent de dose ambiante $H^*(10)$ et l'équivalent de dose individuelle $H_p(10)^{(1)}$. Ces grandeurs sont mesurées par des instruments simples, des dosimètres d'ambiance ou individuels « adaptés » aux caractéristiques des champs de rayonnement présumés rencontrés aux postes de travail. Il est nécessaire de comparer leurs réponses à celles obtenues avec des instruments de référence dans des conditions de référence afin de s'assurer qu'ils mesurent correctement les doses reçues par les travailleurs [2].

En outre, H^* est une grandeur qui dépend uniquement de la nature et de l'énergie du rayonnement, alors que H_p dépend également de la distribution angulaire de ce même rayonnement. La mesure de ces deux grandeurs dépend par conséquent des différentes composantes du champ d'irradiation (neutron, gamma, etc.) ainsi que de leur fluence

en fonction de l'énergie et de l'angle, ce qui justifie la démarche de leur mesure avant l'utilisation de tel ou tel dosimètre. Ces mesures s'effectuent à l'aide de spectromètres à sphères de Bonner [3], qui permettent de déterminer le spectre en énergie des neutrons, et des instruments plus récents (encore en cours de développement) qui permettent d'accéder à la fois au spectre énergétique et à la distribution angulaire des neutrons [4 ; 4b].

Sept instituts européens reconnus pour leurs compétences en radioprotection et en métrologie des rayonnements ionisants ont participé au projet. Quatre sites ont accueilli l'équipe d'EVIDOS permettant de bien couvrir les activités nucléaires : les centrales de recherche et de production, le traitement du combustible nucléaire et le stockage de déchets radioactifs. Quatorze postes de travail ont été choisis en concertation avec les responsables locaux en charge de la radioprotection. Au cours des quatre campagnes de mesure, chaque poste de travail a été caractérisé par spectrométrie et la réponse des différents dosimètres a été évaluée sur la base des spectres en énergie et des distributions angulaires mesurés.

(1) Les définitions précises des grandeurs introduites sont rassemblées à la fin de cet article (« Définitions »)

Tous les instruments utilisés ont été préalablement testés auprès des installations de référence de l'IRSN à Cadarache :

- SIGMA qui produit des neutrons de faible énergie (à forte composante thermique) [5] ;
- et CANEL qui produit des neutrons, de distributions énergétiques et angulaires bien caractérisées, analogues à celles rencontrées dans un réacteur nucléaire [6].

Les instruments comparés comprenaient des prototypes et des modèles déjà commercialisés de dosimètres électroniques des neutrons, des dosimètres d'ambiance ainsi que des dosimètres passifs utilisés en routine. La réponse d'un des prototypes de spectromètre angulaire a été comparée avec les résultats de simulation Monte-Carlo donnés par l'IRSN pour ses rayonnements de référence.

Les mesures de spectrométrie angulaire aux différents postes de travail ont révélé une grande variabilité des distributions (spectres) en énergie [7 ; 8 ; 8b ; 9]. Les spectres neutroniques rencontrés auprès



Figure 2 : Exemples des postes de travail couverts durant les quatre campagnes de mesure réalisées dans le cadre du projet EVIDOS (14 postes différents au total) : (a) sous les barres de contrôle du réacteur PWR de Krümmel, Allemagne ; (b) dans un couloir blindé du réacteur de recherche Venus, Belgique ; (c) auprès d'un assemblage de combustible MOX, Belgonucléaire, Belgique ; (d) à l'intérieur du confinement, réacteur de Ringhals, Suède ; (e) autour d'un château de transport à Krümmel ; et (f) auprès de l'installation de simulation CANEL (IRSN, Cadarache).

3.2

des réacteurs ont une forte composante de basse énergie (neutrons thermiques) due aux importants écrans de protection mis en place, et une faible composante dans les énergies intermédiaires (100 à 200 keV) (figure 3). Le spectre neutronique étudié auprès du réacteur de recherche VENUS (SCK-CEN, MOL, Belgique) montre de plus une composante « neutrons rapides », jusqu'à 1 MeV. Les spectres rencontrés à BELGONUCLÉAIRE auprès des barres des combustibles MOX sont très « durs »⁽¹⁾. Les spectres mesurés auprès du site de stockage sont similaires à ceux rencontrés à BELGONUCLÉAIRE. Pour les conteneurs de transport du combustible usé, la dureté du spectre dépend des protections utilisées. En outre, c'est auprès de ces conteneurs que la distribution angulaire a une forte composante directe. Il est important de le souligner, dans la mesure où H_p sous-estime en général la dose efficace

E ; cela est dû aux distributions angulaires isotropes observées sur la plupart des postes de travail, sauf précisément auprès des conteneurs où le champ de neutrons présente une forte composante directe.

Le spectromètre à sphères de Bonner a été utilisé afin d'évaluer le facteur de conversion nécessaire pour corrélérer la fluence des neutrons mesurée à chaque poste de travail aux valeurs d'équivalent de dose ambiante (figure 4a). La valeur moyenne du coefficient de conversion h^* , calculé comme le rapport de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ à la fluence mesurée, peut être utilisée comme indicateur de la dureté

(1) On dit qu'un spectre neutronique est « dur » s'il a une composante importante de neutrons de haute énergie.

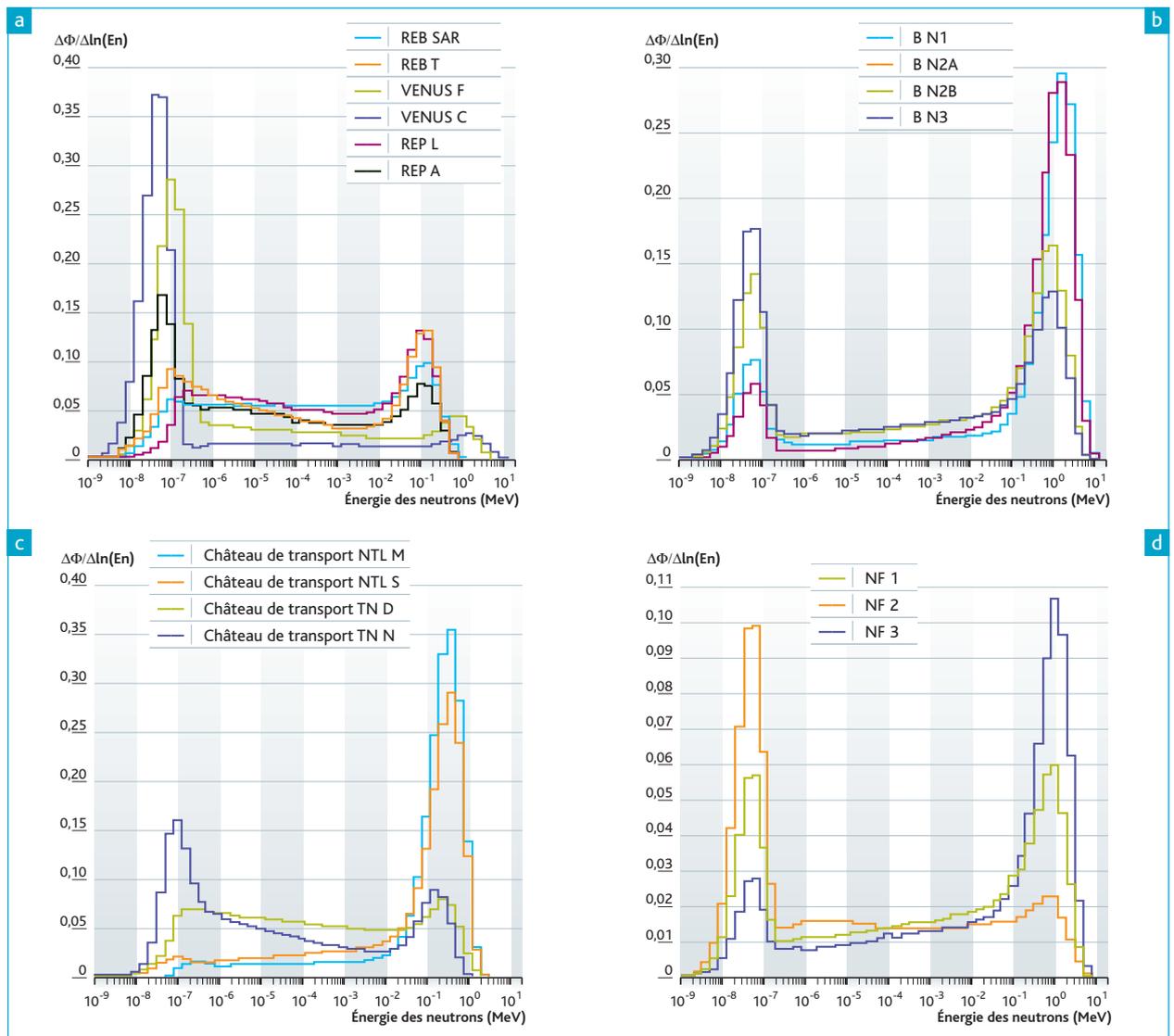


Figure 3 : Caractérisation des postes de travail étudiés dans le cadre du projet EVIDOS par spectrométrie à l'aide de sphères de Bonner [12 sphères de polyéthylène de densité moyenne (0,949±0.003)g.cm⁻³ et chacune de diamètre égal à respectivement 2,5 ; 3 ; 3,5 ; 4 ; 4,2 ; 5 ; 6 ; 7 ; 8 ; 9 ; 10 ; 11 et 1pouces] : (a) réacteurs ; (b) fabrication de combustible MOX ; (c) châteaux de transport ; (d) site de stockage.

du spectre neutronique au poste de travail. Sur la **figure 4a**, les spectres les plus « durs » ont été mesurés auprès d'un château de transport (NTL, Krümmel) et dans certains ateliers de fabrication et de stockage de combustible nucléaire. La comparaison des valeurs de h^* issues des dosimètres d'ambiance montre une surestimation importante pour des spectres neutroniques à forte composante thermique et, pour certains instruments, une légère sous-estimation pour des spectres plus durs (**figure 4b**). La dispersion observée pour les dosimètres individuels est beaucoup plus grande, et les résultats les plus satisfaisants correspondent à des postes de travail caractérisés par des spectres « durs » (**figure 4c**). Des résultats décevants ont été obtenus avec les dosimètres individuels électroniques « neutrons ». En effet, il a été observé des variations de réponse d'un facteur supérieur à 10 d'un poste de travail à l'autre, pour un même dosimètre. Il a été constaté en particulier que les dosimètres électroniques « neutrons » ne se comportent pas mieux que les dosimètres passifs, mais qu'ils présentent l'avantage d'être sensibles à des doses plus faibles, d'afficher les doses en temps réel et de disposer d'alarmes.

La conclusion générale des études réalisées dans le cadre du projet EVIDOS est qu'il est toujours difficile de formuler des recommandations sur les dosimètres, et notamment sur les dosimètres individuels adaptés à tel ou tel environnement de travail en présence d'un champ mixte neutrons-photons lorsque ce champ particulier n'a pas été préalablement caractérisé par spectrométrie. Les raisons en sont multiples. Il est en effet extrêmement difficile de concentrer dans un instrument portable des détecteurs qui peuvent mesurer des neutrons sur une plage d'énergie de 10 décades. Les dosimètres individuels répondent mieux aux énergies élevées pour lesquelles les références métrologiques sont les plus précises. En revanche, il reste difficile de développer des références métrologiques précises dans la région inter-

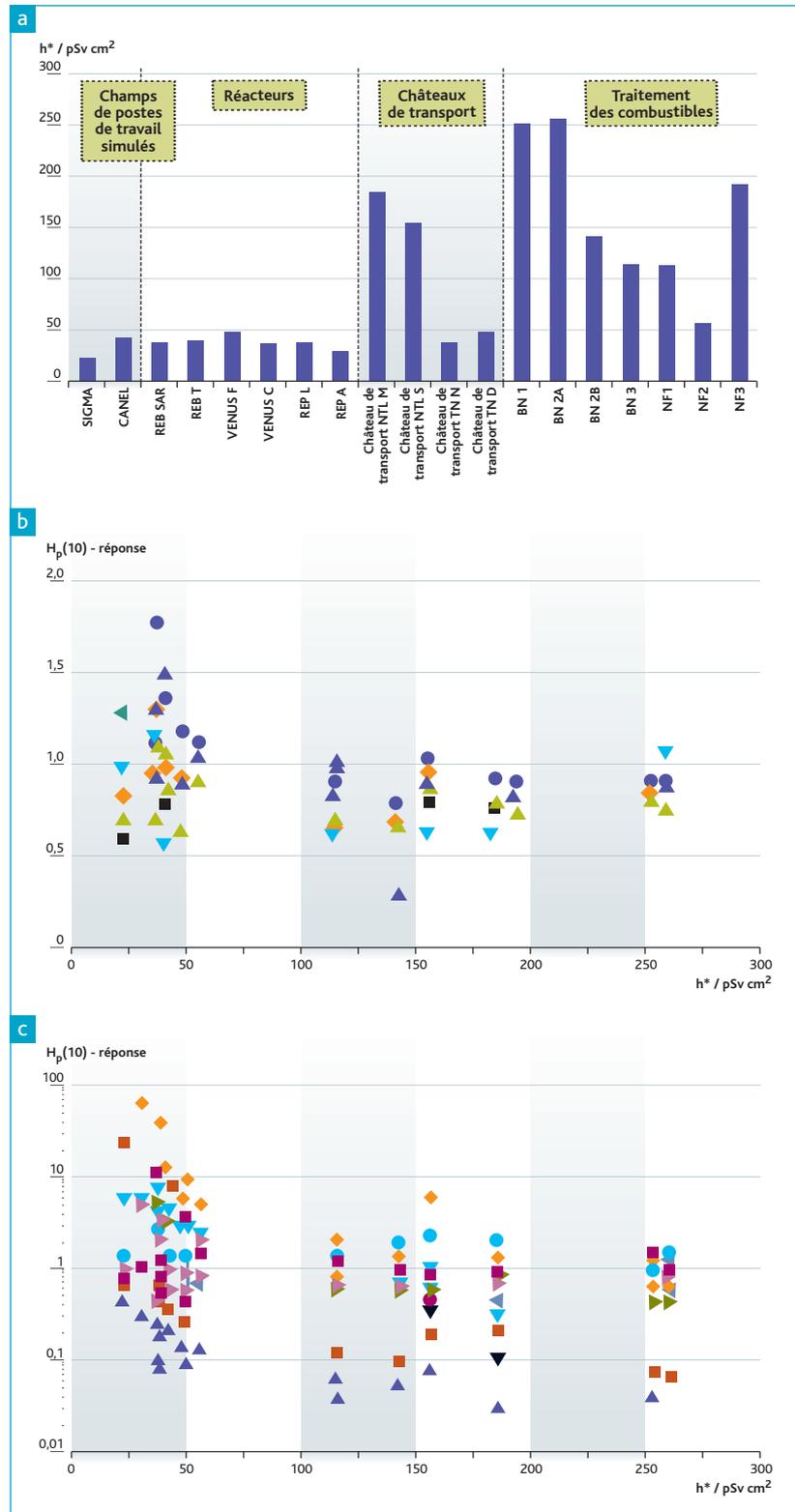


Figure 4: (a) Coefficients de conversion évalués pour passer de la fluence des neutrons obtenue par spectrométrie (sphères de Bonner) auprès des postes de travail étudiés dans le cadre du projet EVIDOS aux valeurs d'équivalent de dose correspondantes. (b) dispersion des réponses des dosimètres d'ambiance évalués dans le cadre du projet EVIDOS. (c) dispersion des réponses des dosimètres individuels évalués dans le cadre du projet EVIDOS en fonction de facteur de conversion moyen h^* .

médiaire comprise entre 1 keV et 100 keV. Même certains dosimètres récemment développés avec une réponse satisfaisante dans des conditions de référence montrent des écarts significatifs dans certains environnements de travail réels, ce qui implique l'emploi de facteurs correctifs spécifiques aux spectres neutroniques rencontrés à ces postes. Une aide importante pour corriger la réponse des dosimètres individuels « neutrons », la réponse en énergie tout au moins, peut venir de leur étalonnage auprès d'installations comme celles développées par l'IRSN pour simuler des spectres réalistes (une norme ISO est en cours de validation). Subsiste néanmoins le problème de la distribution angulaire des spectres multidirectionnels rencontrés aux postes de travail : ces spectres sont difficiles à reproduire dans les laboratoires d'étalonnage où l'émission des sources présente une distribution angulaire étroite.

Projet DOSMAX (R&D)

Le contrat européen DOSMAX (*Dosimetry of Aircrew Exposure to Radiation During Solar Maximum*) réunissant sept partenaires européens avait pour objectifs de :

- qualifier les moyens de mesure utilisés par les laboratoires pour évaluer les doses auxquelles sont exposés les équipages à bord d'avions civils auprès d'installations au sol générant des champs représentatifs du rayonnement cosmique (ions, neutrons et champs complexes de haute énergie auprès de l'installation CERF du Cern à Genève) ;
- réaliser des mesures en vol et en continu sur une période d'un an, puis de les confronter aux résultats obtenus par calcul, afin de les valider.

Comparé au projet conduit durant le 4^e PCRD, DOSMAX couvrait la période 2000-2003, caractérisée par une activité solaire élevée pendant laquelle les groupes engagés dans les nombreuses campagnes de mesures embarquées avaient la plus grande probabilité de pouvoir tester leurs matériels et protocoles durant une éruption solaire. Très peu de résultats de mesure dosimétrique sont en général disponibles en situation étant donné le caractère aléatoire des éruptions solaires.

La qualification des équipements de mesure utilisés dans le cadre du projet DOSMAX a été réalisée conjointement en mars 2002 auprès de l'installation du PTB qui délivre des neutrons monocinétiques entre 0,5 MeV et 19 MeV, et en juillet 2002 auprès de l'installation CERF du Cern qui fournit un champ de rayonnement complexe de haute énergie comparable à celui rencontré à l'altitude de vol des avions de ligne.

Une expérience destinée à comparer la réponse des dosimètres utilisés par chacun des partenaires du projet DOSMAX dans des conditions réelles et identiques a été organisée par l'IRSN en avril 2002 au cours d'un vol cargo Paris-Tokyo via Fairbanks affrété par Air France. Une dizaine de systèmes dosimétriques actifs (compteurs proportionnels, détecteur silicium) et passifs (détecteurs de type thermoluminescent, détecteurs à bulles, détecteurs de traces) ont été embarqués. Les résultats ont montré un accord très satisfaisant entre les différents systèmes ainsi qu'avec les différents modèles de calcul [10]. La dose moyenne mesurée pour le trajet aller-retour a été de $120 \pm 11 \mu\text{Sv}$, comparée à la dose de $126 \mu\text{Sv}$ calculée par le programme SIEVERT⁽¹⁾ développé par l'IRSN. L'incertitude sur la dose mesurée dans le cas d'un vol long-courrier est de l'ordre de 25 % (à 95 % de niveau de confiance). Sur la base du bon accord observé entre les mesures et les résultats fournis par les modèles, l'évaluation en routine des doses reçues par le personnel navigant est maintenant le plus souvent faite par calcul en utilisant des logiciels comme SIEVERT.

L'exposition aux rayonnements cosmiques au cours des mesures embarquées planifiées a pu être mesurée indépendamment par deux groupes en opération durant l'éruption solaire codée GLE60⁽²⁾ enregistrée le 15 avril 2001 par les moniteurs au sol (*figure 5*) [11 ; 12]. Ces mesures ont fourni des données essentielles pour améliorer l'interprétation de la réponse des dosimètres dans ces situations, le spectre des rayonnements cosmiques en cas d'éruption solaire étant *a priori* différent de celui de la composante galactique, et pour évaluer la contribution relative de tels événements par rapport aux valeurs obtenues par calcul en conditions normales.

(1) Système d'information et d'évaluation par vol de l'exposition au rayonnement cosmique, www.sievert-system.org [50].

(2) *Ground level event.*

Intercomparaison internationale de dosimétrie de criticité

L'IRSN et l'Agence pour l'énergie nucléaire (AEN) de l'OCDE ont conjointement organisé du 9 au 21 juin 2002, avec la participation du CEA et le soutien de la CCE, une intercomparaison internationale des systèmes de dosimétrie utilisés en cas d'accident d'irradiation auprès du réacteur expérimental SILÈNE implanté sur le site de Valduc. Cet exercice était le sixième, après ceux organisés en France (1970), aux États-Unis (1971), en Yougoslavie (1973), au Royaume-Uni (1975) et de nouveau en France (1993).

L'exercice proposé avait pour but de comparer en vraie grandeur les systèmes actuels de dosimétrie physique et les moyens de dosimétrie biologique dans des champs de rayonnement représentatifs d'un accident de criticité. Cette intercomparaison s'adressait à tout organisme soucieux d'expérimenter ses propres moyens de mesure dans des champs de rayonnement de référence et d'accéder à des expositions en champs mixtes bien caractérisées compte tenu du nombre réduit de réacteurs expérimentaux permettant ce type d'irradiation. L'IRSN a coordonné l'organisation de l'exercice, caractérisé les champs de rayonnement disponibles auprès du réacteur SILÈNE et fourni les références dosimétriques pour les configurations retenues.

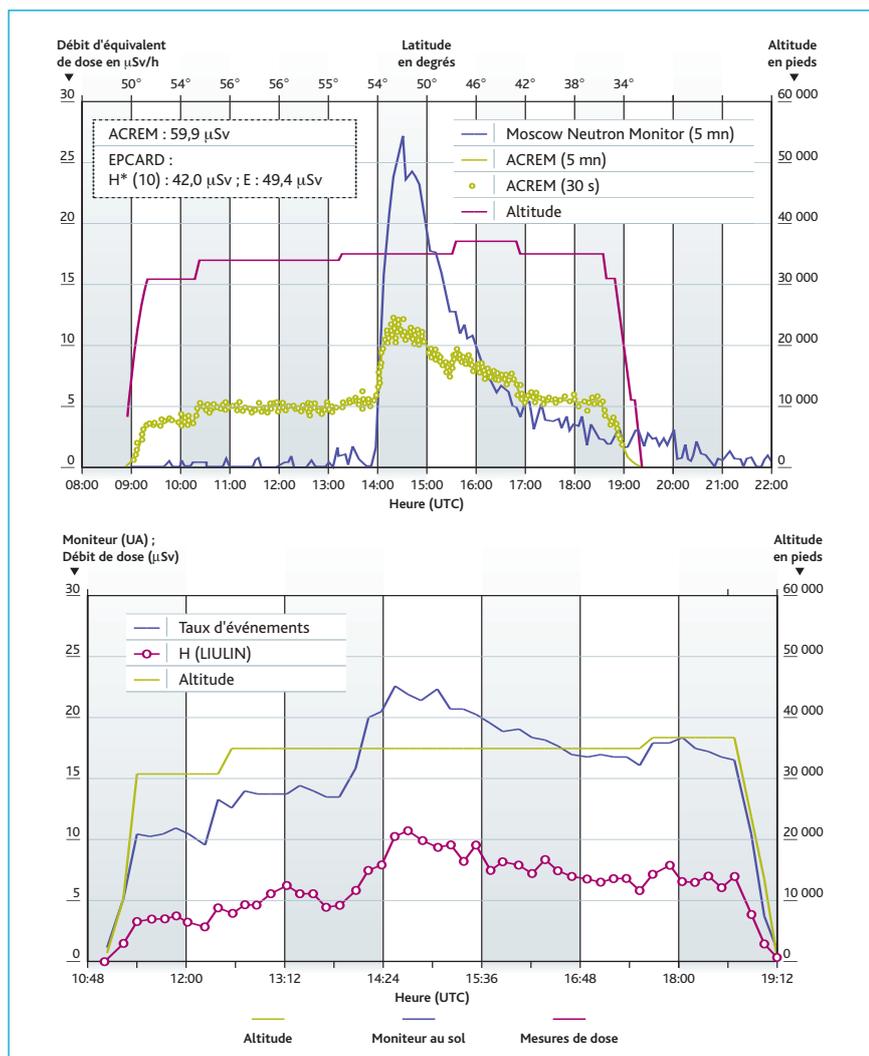


Figure 5 : Enregistrement des doses évaluées au cours de deux campagnes de mesure DOSMAX lors de l'irruption solaire GLE60 (15 avril 2001) : (en haut) mesures réalisées par l'ARCS, système dosimétrique ACREM, vol Francfort-Dallas [11] ; (en bas) mesures réalisées par l'UJF, système dosimétrique LIULIN, vol Prague-New York [12].

3.2



Figure 6 : Les participants à l'intercomparaison de dosimétrie de criticité auprès du réacteur Silène [source : IRSN].

Les participants représentaient 60 laboratoires de 29 pays différents d'Amérique, d'Europe et d'Asie. Les scientifiques présents à Valduc (figure 6) ont apporté leurs équipements de mesure exploités sur site. Une vingtaine de participants non présents sur le site ont expédié leurs dosimètres par voie postale. Après irradiation, ces dosimètres leur ont été renvoyés pour exploitation dans leurs laboratoires d'origine. Les dosimètres ont été exposés dans l'air et sur fantômes à une distance de 4 mètres de l'axe du réacteur suivant trois scénarios (figure 7) [13]. Une irradiation auprès d'une source gamma de forte activité était également proposée dans les laboratoires de l'IRSN à Fontenay-aux-Roses.

Une partie de cette intercomparaison a été consacrée à la dosimétrie biologique, le dénombrement des aberrations chromosomiques radio-induites dans les lymphocytes du sang périphérique, en liaison avec le Laboratoire de dosimétrie biologique multiparamétrique de l'IRSN (LDB) [14]. 19 laboratoires de cytogénétique et de dosimétrie biologique situés dans 16 pays ou continents différents (dont le Canada, les États-Unis, l'Amérique du Sud, l'Inde, l'Europe, l'Ukraine, le Japon) y ont participé.

L'analyse générale des résultats de cette intercomparaison montre un accord satisfaisant entre les résultats obtenus, aussi bien pour les composantes photoniques que neutroniques. Dans le cas de la dosimétrie physique 80 % des résultats dosimétriques fournis par les laboratoires se situent pour les neutrons dans une gamme de $\pm 25\%$ vis-à-vis des doses de référence [15]. Pour la dosimétrie biologique, le test est plus critique pour le dénombrement des aberrations chromosomiques que pour l'estimation de la dose. Ceci provient en particulier des modes opératoires utilisés qui diffèrent d'un laboratoire à l'autre [16]. Les écarts types sur les résultats biologiques restent inférieurs à $\pm 30\%$, les écarts à la moyenne pour certaines valeurs atteignant 40 à 60 %.

Des écarts moindres sont en général observés après conversion des résultats de mesure en dose avec les courbes d'étalonnage adaptées et propres à chaque laboratoire. Cette conclusion n'a cependant pu être confirmée que pour les rayonnements gamma purs, car seuls quatre laboratoires sur 13, dont le LDB de l'IRSN, proposent des courbes d'étalonnage « neutron ».

Action concertée QUADOS

La place occupée par la dosimétrie numérique n'a cessé de prendre de l'importance au cours de la dernière décennie. Les outils de calcul dosimétrique assistés par ordinateur sont maintenant couramment utilisés dans les laboratoires spécialisés pour modéliser des configurations d'exposition particulières, comprendre l'influence des facteurs susceptibles de modifier l'évaluation de la dose, réduire l'incertitude sur sa détermination, voire simuler une condition expérimentale avant sa réalisation. Cette situation a été anticipée depuis une vingtaine d'années par EURADOS [17]. Plusieurs actions concertées ont été successivement menées au cours des PCRD précédents. Dans le cadre du 5^e PCRD, le projet QUADOS (*Quality Assurance of Numerical Methods in Radiation Dosimetry*) a été conduit sous la coordination du PTB avec la collaboration de dix centres européens [18].

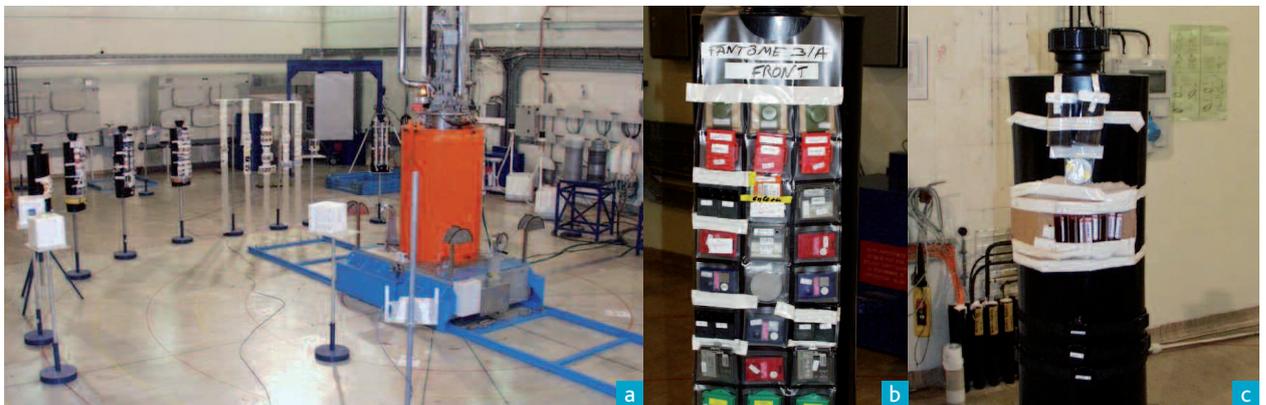


Figure 7 : Irradiations réalisées au cours de l'intercomparaison de dosimétrie de criticité auprès du réacteur SILÈNE : (a) configuration générale, avec écran de plomb (voir chapitre 1) ; (b) positionnement sur fantôme des dosimètres physiques ; (c) positionnement des tubes de sang sur le même fantôme [source : IRSN].

L'enquête réalisée par le groupe d'experts QUADOS auprès des utilisateurs de codes de calcul de Monte Carlo en dosimétrie a montré l'intérêt d'une intercomparaison dédiée à la dosimétrie numérique. En effet, bon nombre d'utilisateurs ne comparent pas systématiquement leurs résultats avec ceux de mesures ou ceux obtenus à l'aide de plusieurs codes de calcul. Huit problèmes dosimétriques faisant appel à des méthodes numériques et soumis au titre de cette intercomparaison ont été répartis entre les experts :

- la dosimétrie de traitements de radiothérapie interstitielle, endovasculaire et oculaire qui utilise respectivement des photons (^{192}Ir), des rayonnements bêta (^{32}P) et des protons (50 MeV) ;
- la réponse de dosimètres individuels de type thermoluminescent dans un champ mixte neutrons-photons ;
- l'influence de la diffusion sur la réponse des dosimètres pour des rayonnements X (champs ISO) et neutrons (source de ^{252}Cf) ;
- la mesure d'un spectre de photons (15 keV à 1 MeV) à l'aide d'un détecteur au germanium ;
- la caractérisation d'un système d'étalonnage « neutron » (source confinée d'Am-Be).

L'IRSN était particulièrement impliqué dans la préparation et l'évaluation des trois derniers problèmes.

Les réponses des participants aux problèmes soumis (nombres de réponses : 12, 7, 9, 17, 17, 18 et 3 réponses aux problèmes respectivement 1 à 8) ont été analysées par le groupe d'experts. Les résultats ont été commentés lors du séminaire QUADOS qui s'est tenu à Bologne en juillet 2003 (figure 8) [19]. Cet ouvrage, qui fait référence dans le domaine, présente la description détaillée de chaque problème, l'analyse des réponses et la conclusion de l'exercice.

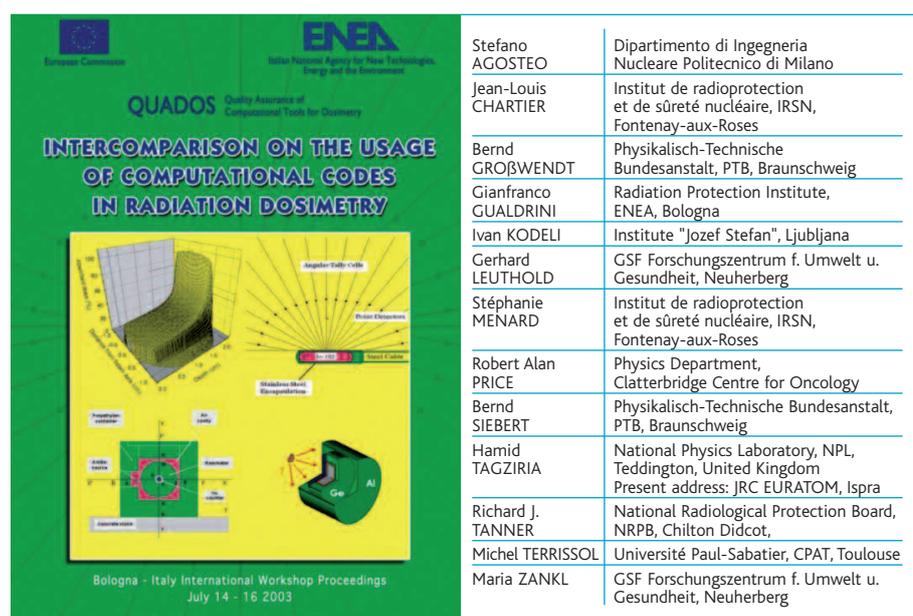


Figure 8 : Fac-similé du rapport de synthèse des résultats soumis en réponse aux exercices proposés par le groupe d'experts QUADOS. (Cet ouvrage est disponible auprès de l'ENEA, G. Gualdrini, irp@bologna.enea.it).

Dosimétrie interne

BIODOS (R&D)

L'évaluation des doses résultant de l'exposition de l'homme, dans le cadre professionnel ou dans l'environnement naturel, par inhalation ou ingestion de radionucléides, appartient au domaine de la dosimétrie interne. Elle fait appel à des modèles dosimétriques complexes associant les paramètres d'incorporation, les modèles biocinétiques décrivant le comportement des radionucléides dans l'organisme, et le calcul des distributions des doses délivrées aux tissus critiques de l'organisme. L'amélioration de ces modèles requiert des recherches avancées pour comprendre les phénomènes impliqués, apporter de nouvelles données scientifiques et évaluer leurs conséquences en termes de dose. Pour conduire ces recherches, le projet BIODOS (*Biokinetics and Dosimetry of Internal Contamination*) coordonné par l'IRSN a impliqué 15 laboratoires européens dans neuf groupes de travail (figure 9). L'IRSN était particulièrement impliqué dans trois d'entre eux.

Révision du modèle dosimétrique pour la contamination par ingestion

Le modèle dosimétrique de l'appareil digestif recommandé par la CIPR [20] a été entièrement révisé [21] pour prendre en compte toutes les régions de l'appareil digestif (en particulier la bouche, l'œsophage et l'estomac) ainsi que les données les plus récentes sur les temps de transit des radionucléides entre ces différentes régions, la possibilité d'une rétention partielle des radionucléides dans chaque région, enfin la révision des calculs de dose aux cellules cibles dans chaque région. Avant sa publication, l'IRSN, membre du Comité 2 de la CIPR (*Doses from Radiation Exposure*) et animateur du sous-groupe en charge de cette

révision, s'est associé au HPA (ex NRPB, Royaume-Uni), au BFS (Allemagne) et à l'Université de Delft pour affiner les données biocinétiques requises par le nouveau modèle et comparer l'ancien et le nouveau modèle pour quelques radionucléides (figure 1).

Tenant compte de la structure du nouveau modèle, la revue des données biocinétiques a été plus particulièrement centrée sur :

- les taux de transfert applicables aux organes traités distinctement par le nouveau modèle et leur variation en fonction du sexe et de l'âge ;
- l'identification plus fine et la distribution spatiale des cellules cibles les plus critiques pour le

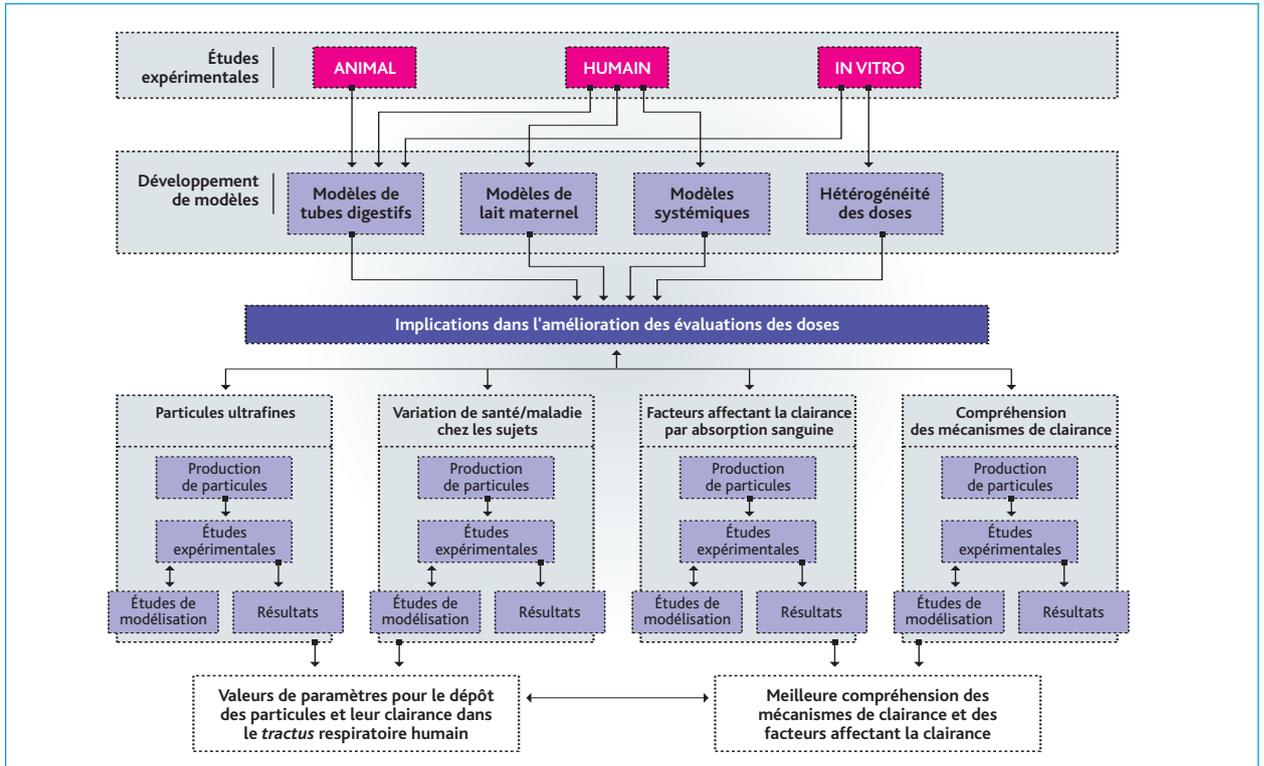


Figure 9 : Structure du projet BIODOS et relations entre les différents groupes de travail [source : IRSN].

calcul de dose d'une région à l'autre de l'appareil digestif, en particulier vis-à-vis des radionucléides émetteurs de rayonnements peu pénétrants ;

- et enfin les données disponibles d'absorption dans le sang et de rétention dans chaque organe.

L'ancien et le nouveau modèle ont été comparés pour quatre radionucléides (^{55}Fe , ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{239}Pu) en considérant les doses délivrées aux différents organes de l'appareil digestif et la dose efficace calculée pour l'organisme entier. De manière générale, l'étude réalisée au cours du 5^e PCRD a permis de mieux apprécier la sensibilité du nouveau modèle HAT (*Human Alimentary Tract Model for Radiological Protection*) vis-à-vis de certains paramètres. Les résultats détaillés figurent dans le rapport de la CIPR en cours de publication.

Calcul de dose en situation non uniforme : exposition des cellules épithéliales aux descendants du radon dans les voies aériennes de l'appareil respiratoire

Le modèle des voies respiratoires s'appuie sur l'hypothèse d'une répartition uniforme des radionucléides déposés sur les parois bronchiques. S'agissant des descendants du radon, ^{214}Po et ^{218}Po émetteurs de particules alpha, il en résulte la représentation classique de cellules cibles isolées dans l'épithélium bronchique et traversées de manière aléatoire par une particule alpha. Des modèles plus avancés de dépôts

dans l'épithélium bronchique fondés sur la dynamique des fluides ont été développés par l'Université de Salzbourg. Ils indiquent que l'inhalation des descendants du radon conduit en réalité à une répartition très hétérogène (figure 10) [22]. Ce modèle montre qu'il y aurait à la fois des cellules isolées traversées par des particules alpha uniques et des cellules exposées à des doses beaucoup plus élevées et traversées par plusieurs particules alpha. Des observations *in vivo* tendent à montrer que les cancers pulmonaires seraient préférentiellement induits dans la zone des crêtes des ramifications de l'arbre bronchique.

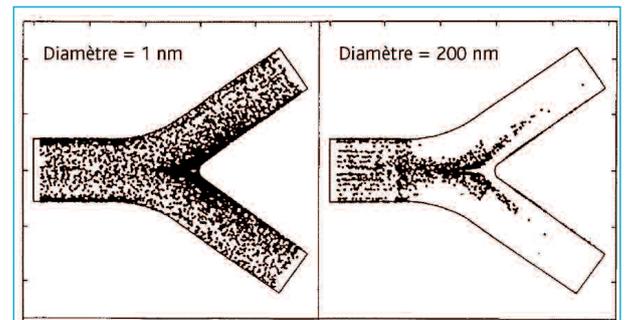


Figure 10 : Modélisation des trajectoires suivies par les particules inhalées et du dépôt qui en résulte sur les parois de l'arbre bronchique réalisée à l'Université de Salzbourg montrant des zones très hétérogènes, en particulier sur les crêtes des ramifications de l'arbre bronchique [22]. Les modèles de clairance intervenant après le dépôt initial tendent à renforcer ces hétérogénéités.

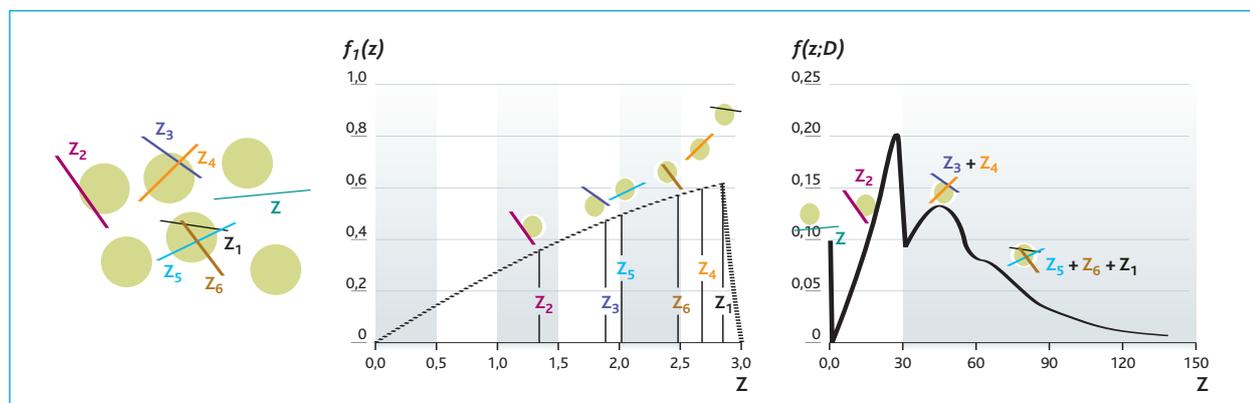


Figure 11 : Illustration des calculs réalisés à l'aide du programme LUNGDOSE pour simuler le passage de zéro, une ou plusieurs particules alpha dans des cellules cibles suivant la profondeur des cellules dans les tissus et la distribution spatiale des dépôts des descendants du radon dans l'arbre bronchique [source : IRSN].

Mais il manquait l'outil de calcul qui permette d'évaluer quantitativement cet effet et son impact biologique.

L'IRSN et l'Université de Salzburg ont développé le programme LUNGDOSE qui associe les principes et le formalisme de la microdosimétrie et une méthode de simulation de type Monte Carlo (figure 11) [23]. La méthode de simulation a été nécessaire pour modéliser la géométrie des ramifications de l'arbre bronchique, et pour modéliser une répartition non uniforme des radionucléides. Rappelons que l'hypothèse classique simplificatrice assimile les bronches à des cylindres infinis de sorte qu'une cellule cible particulière est représentative de toutes les cellules se trouvant à la même profondeur dans l'épithélium pour une répartition uniforme, ce qui simplifie considérablement le calcul. LUNGDOSE a d'abord été développé pour simuler des conditions expérimentales chez le petit animal. Un programme optimisé a dû être développé pour appliquer le calcul à l'homme. En outre, le calcul des distributions microdosimétriques correspondant à des particules alpha multiples est réalisé en associant LUNGDOSE à un calcul analytique de convolutions successives utilisant comme donnée d'entrée le spectre microdosimétrique de particules alpha interceptant la cible de manière individuelle. LUNGDOSE a été utilisé pour comparer quantitativement différentes conditions d'exposition de cellules épithéliales en surface (cellules sécrétoires) ou en profondeur (cellules basales). Le cas d'une exposition professionnelle de mineurs d'uranium et celui d'une exposition domestique moyenne ont été examinés [24 ; 25]. Il en ressort que seules les cellules situées dans les crêtes des ramifications de l'arbre bronchique connaissent des fréquences significatives de multiples particules alpha interceptant la cible. L'occurrence d'événements multiples doit être calculée quelle que soit la profondeur de la cellule. Elle est fréquente dans le cas d'exposition professionnelle, mais ne peut être négligée dans le cas domestique. Dans tous les autres cas, l'exposition des cellules dans les voies respiratoires est bien décrite par le spectre de particules alpha uniques, la principale variable d'ajustement étant la fréquence totale d'événements qui peut varier d'environ un facteur 10 entre une exposition uniforme et une exposition non uniforme.

Modèles de clairance pulmonaire par absorption dans le sang

La clairance par absorption dans le sang joue un rôle déterminant dans le modèle dosimétrique des voies respiratoires actuellement utilisé [26]. La connaissance des paramètres d'absorption et la compréhension des phénomènes impliqués requièrent davantage d'études car l'extrapolation d'un composé radiotoxique à l'autre n'est en général pas possible. Associé au HPA, au GSF et au CEA (figure 1), l'IRSN apportait dans cette collaboration l'expertise acquise par ailleurs pour les oxydes d'uranium rencontrés dans l'industrie nucléaire.

L'étude a confirmé que la connaissance d'une composante ultrafine (inférieure à 0,1 µm) dans la distribution granulométrique des aérosols inhalés doit être prise en compte, par comparaison avec la taille moyenne de 1 ou 5 µm généralement adoptée, pour appliquer correctement le modèle HRTM (Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection) [27]. De même, la surface spécifique est un paramètre très utile pour caractériser la dissolution des particules et leur absorption dans le sang.

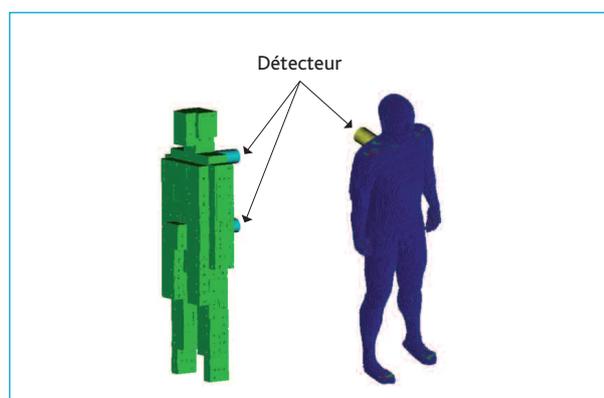


Figure 12 : Mannequin IGOR [32] (à gauche) couramment utilisé pour l'étalonnage des systèmes de mesure anthropométrique et du fantôme ZUBAL [33] (à droite) voxelisé utilisé comme standard numérique pour valider la simulation réalisée par CEDRPE [source : IRSN].

L'interprétation de ce paramètre dépend toutefois de l'aérosol considéré, comme l'a montré la comparaison des résultats obtenus pour des oxydes d'uranium et de gadolinium [28]. Il faut en tenir compte car la contribution de la toxicité chimique à l'induction de cancer est avérée pour les oxydes d'uranium.

IDEA (R&D)

L'amélioration du suivi dosimétrique des travailleurs exposés à un risque de contamination interne implique de développer des techniques de mesure avancées. Deux approches ont été considérées dans le cadre du projet IDEA (*Internal Dosimetry – Enhancements in Application*) conduit par quatre laboratoires européens : l'analyse radiotoxicologique et l'anthroporadiométrie⁽¹⁾. En évaluant des techniques de pointe, le groupe IDEA s'est donné comme critères leur apport réel pour répondre aux besoins de surveillance de la contamination interne en routine et leur applicabilité en termes de coût comparé au bénéfice attendu.

Pour ce qui concerne le premier volet du projet IDEA, les analyses radiotoxicologiques des urines sont utilisées en routine pour suivre l'évolution dans le temps des radionucléides incorporés et excrétés. Cependant, les techniques couramment utilisées comme la spectrométrie alpha sont longues à mettre en œuvre pour un certain nombre de radionucléides de haute activité spécifique. La technique ICP-MS⁽²⁾, avec une préparation adéquate des échantillons à analyser, permet d'obtenir des résultats plus rapides et d'abaisser les limites de détection tout en utilisant des échantillons de volumes relativement faibles. Le groupe IDEA s'est intéressé à l'analyse de l'uranium, du thorium et de certains actinides dont le ²³⁹Pu, ainsi qu'à l'étude de sources d'incertitudes associées aux techniques utilisées comme le bruit de fond, les conditions environnementales et le système de détection. L'IRSN a contribué à ces études pour évaluer en particulier l'application de la technique ICP-MS, aujourd'hui la plus répandue, par comparaison à d'autres méthodes d'analyse utilisées à l'ARCS (Autriche, voir figure 1) et au GSF (spectrométrie de masse de haute résolution, activation neutron, analyse de traces) [29].

La contribution originale de l'IRSN au second volet du projet IDEA consacré à l'anthroporadiométrie a été l'apport de la simulation numérique à l'amélioration de l'efficacité de l'étalonnage des mesures de spectrométrie *in vivo*.

- (1) Anthroporadiométrie ou spectrométrie *in vivo* : mesure directe des rayonnements X et gamma émis par les radionucléides retenus dans le corps entier ou dans un organe particulier (thyroïde, poumons, etc.).
- (2) *Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometer* : cette technique repose sur le couplage d'une torche à plasma générant des ions et d'un spectromètre de masse quadrupolaire pour séparer ces ions en masse.
- (3) Projet ANTHRO-Si : R&D d'un système d'anthroporadiométrie basse énergie utilisant des détecteurs au silicium (PIPS) [de Carlan et al., 1998].
- (4) Imagerie médicale par résonance magnétique.
- (5) *Unified Phantom-O2T*, développé à la suite de l'accident de Tchernobyl dans le *Research Institute for Industrial and Marine Medicine du Mendeleev All-Russia Research Institute of Metrology* (Saint-Petersbourg).
- (6) Fantôme voxelisé internationalement reconnu et disponible sur Internet (<http://noodle.med.yale.edu/zubal/index.html>), réalisé par l'équipe de G. Zubal à l'Université de Yale à partir de coupes tomodensitométriques d'un homme standard (178 cm, 70 kg).

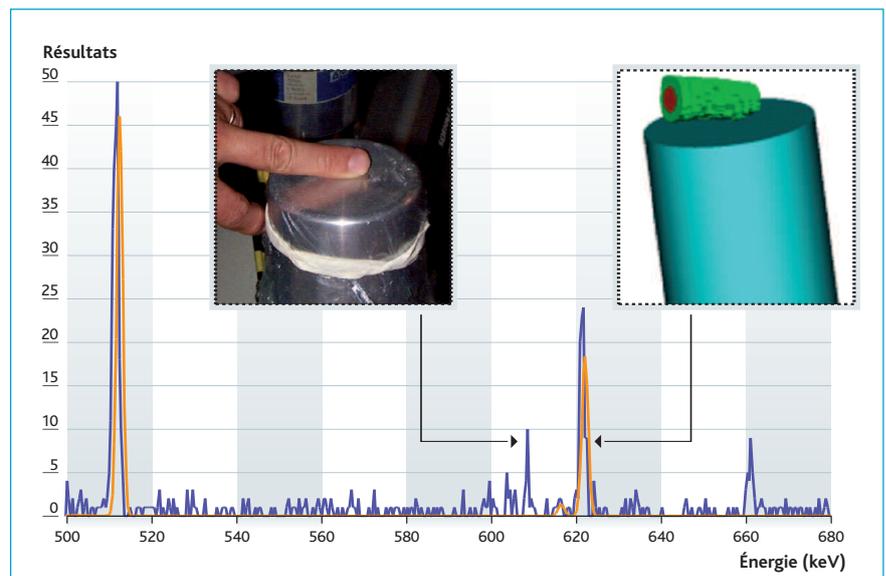


Figure 13 : Comparaison du spectre mesuré (bleu) d'un doigt contaminé par une piqûre de ¹⁰⁶Ru (en équilibre avec le ¹⁰⁶Rh) avec celui simulé (jaune) par CEDIPE [source : IRSN].

La spectrométrie *in vivo*, qui peut s'appliquer au corps entier ou à un organe, utilise principalement des détecteurs au germanium pur. Son principal avantage est de pouvoir évaluer rapidement l'activité incorporée grâce à l'efficacité élevée des cristaux de germanium, dans un domaine d'énergie très étendu. L'inconvénient principal reste l'interprétation délicate de la mesure pour convertir le résultat du comptage en activité retenue, puis incorporée. Le processus d'étalonnage repose sur l'utilisation de mannequins, ou « fantômes », en matériaux à base de polymères contenant des sources d'activités bien connues. Ces fantômes ne tiennent compte de l'anatomie de l'individu que de manière grossière. Les incertitudes qui en résultent sont d'autant plus critiques que les radionucléides incorporés les plus radiotoxiques (tels que ^{239}Pu et ^{241}Am) émettent des photons de faibles énergies (10-60 keV) caractérisés par de fortes absorption et diffusion à l'intérieur des tissus. Dans ces conditions, l'amélioration de l'étalonnage est un pré-requis pour réduire les incertitudes et les erreurs systématiques afin de fiabiliser davantage l'interprétation des résultats de la mesure anthroporadiométrique. L'IRSN a déployé des efforts importants dans deux directions : l'amélioration de la technique spectrométrique (projet ANTHRO-Si⁽³⁾) et la mise en œuvre de l'étalonnage numérique par le développement de la plate-forme logicielle CEDIPE. Cette dernière associe une interface graphique à un code de calcul Monte Carlo pour recréer de façon fidèle les conditions de la mesure et calculer les doses délivrées dans des organes ou tissus [30] [31]. L'intérêt majeur de ce logiciel est la création automatique du fichier d'entrée pour le code Monte Carlo MCNP, sous la forme d'un fantôme voxelisé spécifique, reflet exact de la personne mesurée ou du fantôme numérisé à partir d'images scanner ou IRM⁽⁴⁾. Dans le cadre du projet IDEA, l'application CEDIPE a été évaluée dans deux situations : la mesure corps entier du ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{40}K et une plaie contaminée par du ^{106}Ru . Les mesures *in vivo* d'émetteurs tels que le ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{40}K dans le corps entier se font classiquement après étalonnage à l'aide d'un mannequin de type IGOR (*figure 12*) [32][33]. Cependant, la représentativité de ce mannequin vis-à-vis d'une personne mesurée par anthroporadiométrie n'avait jamais été précisément évaluée. Une comparaison a été réalisée pour cela, à l'aide de CEDIPE en utilisant les versions voxelisées du fantôme IGOR⁽⁵⁾ et du fantôme de ZUBAL⁽⁶⁾, proche de l'anatomie d'une personne

standard. Les comparaisons systématiques réalisées dans le cadre du projet IDEA étaient en accord, ce qui valide l'approche par voxels et la simulation CEDIPE par rapport aux méthodes conventionnelles [34].

Les avantages tirés de l'application de la plate-forme CEDIPE ont été jugés au travers du cas particulier de l'expertise par l'IRSN de la contamination d'un opérateur par piqûre avec du ^{106}Ru à l'extrémité du doigt lors de la manipulation d'une pince contaminée. Cette expertise, réalisée dans une géométrie relativement simple, a permis la comparaison directe entre la spectrométrie *in vivo* du doigt contaminé mesurée par un détecteur germanium de haute pureté et le spectre simulé par CEDIPE après examen IRM de la main à l'hôpital Percy à Clamart. Ces mesures ont permis la construction d'un fantôme numérique le plus réaliste possible (*figure 13*) [35]. Des écarts inférieurs à 20 % ont été observés entre la simulation et la mesure. Cette simulation a permis également de tester plusieurs hypothèses et de fournir des informations utiles sur la distribution la plus probable de l'activité au niveau des tissus contaminés.

OMINEX et IDEAS

Des exercices d'intercomparaison sont régulièrement organisés aux niveaux européen et international pour améliorer l'évaluation des doses internes. Le troisième exercice européen d'intercomparaison dans ce domaine a mis l'accent sur l'intégration des nouveaux modèles de la CIPR et sur les choix des paramètres de référence dans les procédures de surveillance de la contamination interne et de l'évaluation des doses internes correspondantes.

Deux projets ont été cofinancés dans le cadre du 5^e PCRD pour faire suite à cette dernière intercomparaison. L'objectif général était d'optimiser l'évaluation de la contamination interne en Europe afin que les résultats dosimétriques soient *in fine* les plus représentatifs des expositions rencontrées et que la protection des travailleurs réponde à cet égard aux exigences réglementaires. Le projet OMINEX (*Optimisation of Monitoring for Internal Exposure*) visait à dresser un état des lieux des procédures de surveillance dosimétrique appliquées en Europe afin de pouvoir comparer les méthodes utilisées et les niveaux d'incertitude associés. Le projet IDEAS (*General Guidelines for the Estimation of Committed Dose from Incorporation Monitoring Data*)

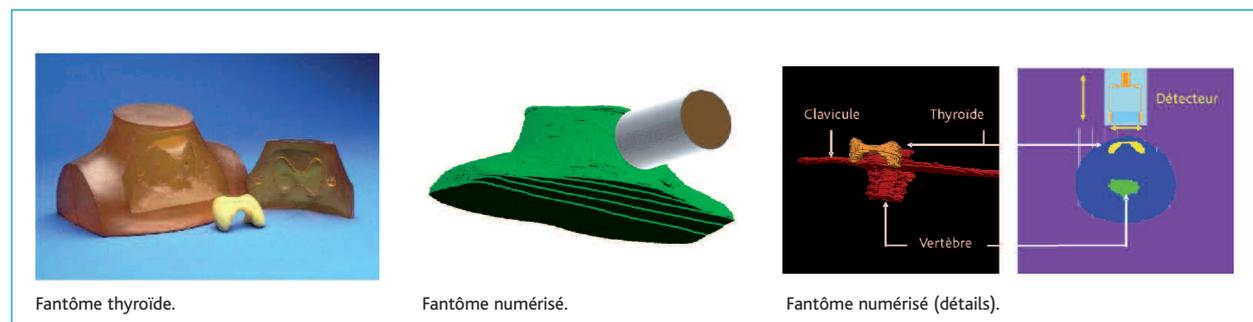


Figure 14 : Évaluation des incertitudes liées à la mesure *in vivo* de la thyroïde par simulation [source : IRSN].

3.2

visait l'harmonisation des procédures d'évaluation de dose interne à partir des résultats de surveillance, sur la base du retour d'expérience et d'exercices d'intercomparaison auxquels ont pu participer de nombreux laboratoires internationaux.

OMINEX

L'objectif du projet OMINEX était de :

- fournir des recommandations pour la mise en œuvre des programmes de surveillance des doses internes auxquelles sont exposés des travailleurs en utilisant et en optimisant les ressources disponibles ;
- examiner des orientations de recherche susceptibles de contribuer à leur optimisation.

En évaluant à la fois les procédures existantes ou à développer et les coûts qui leur sont associés, le souci du groupe OMINEX était de répondre aux attentes des responsables des services de radioprotection de l'industrie nucléaire et du milieu médical.

Le travail d'évaluation conduit dans le cadre du projet OMINEX a été rendu possible par la réalisation de l'état des lieux des programmes de surveillance dosimétrique utilisés dans l'UE [36]. Le premier constat des enquêtes réalisées est que les pratiques fondées sur la mesure de l'air ambiant aux postes de travail et sur la surveillance individuelle sont loin d'être harmonisées en Europe.

En conservant comme axe de travail l'optimisation des pratiques de surveillance dosimétrique fondée sur la comparaison entre bénéfice attendu en termes de protection et coût des procédures, OMINEX s'est intéressé aux incertitudes liées aux protocoles utilisés selon deux démarches :

- la première a été de fixer des objectifs, d'évaluer l'atteinte de ces objectifs et d'identifier des voies d'amélioration vis-à-vis des pratiques existantes. La mesure des actinides par spectrométrie alpha dans les urines visait pour cible : 25 % d'incertitude relative pour un échantillon de 1 mBq/24 h et une activité minimale détectée (MDA) de 0,1 mBq/24 h. Dans les fèces, la cible était de 10 % d'incertitude relative pour un échantillon de 100 mBq/24 h et une MDA de 1 mBq/24 h). Il s'avère que moins de la moitié des laboratoires ont atteint les objectifs fixés. Des améliorations ont été proposées en termes de volume d'échantillonnage, trace d'activité, efficacité de comptage, temps de comptage pour l'échantillon et pour le bruit de fond, etc ;
- la seconde démarche a été de développer une méthode de calcul de l'incertitude globale liée à l'évaluation de la contamination interne et de la dose résultante tenant compte de la méthode (analyse radiotoxicologique et/ou mesure *in vivo*) et des paramètres (intervalles de prélèvement, temps mesure, etc.) utilisés. Cette approche a été suivie pour évaluer les cas de contamination au tritium et au ⁶⁰Co [37].

Par ailleurs, des recommandations spécifiques ont été formulées pour des programmes de surveillance particuliers. L'IRSN s'est impliqué dans l'examen de la contamination de la thyroïde par les isotopes 125 et 131 de l'iode. Cette étude confirme qu'une mesure directe de la rétention d'iode dans la thyroïde est préférable à des mesures dans les urines, l'excrétion urinaire de l'iode décroissant rapidement après l'intoxication. L'IRSN a pu ainsi évaluer avec précision les facteurs d'incertitude de la mesure *in vivo* de la thyroïde (type, géométrie et positionnement du détecteur, bruit de fond, dimension et profondeur de la thyroïde) à l'aide de ses outils de simulation (*figure 14*) [38].

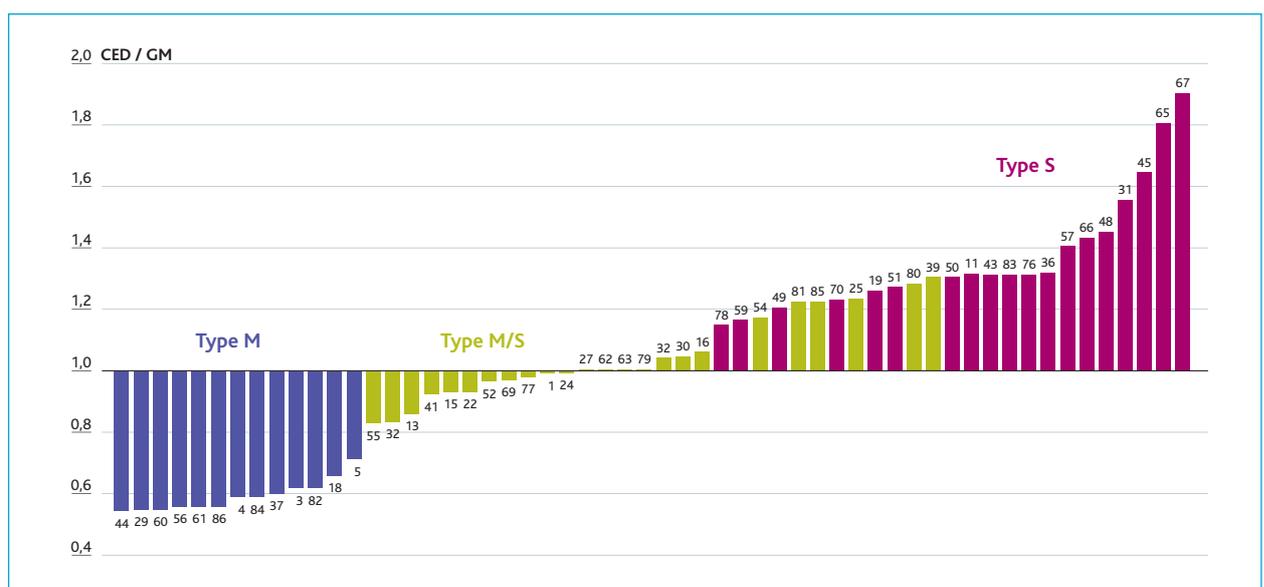


Figure 15 : Exemple de résultats obtenus, en termes de dose efficace engagée (CED), suite à l'expertise d'un cas de contamination interne par inhalation aiguë d'un aérosol de ⁶⁰Co. La figure montre la dispersion obtenue par rapport à la moyenne géométrique (GM) des valeurs de doses évaluées par les participants (ID) à l'exercice d'intercomparaison réalisé par le groupe IDEAS en collaboration avec l'AIEA. Le facteur principal influençant cette dispersion est le choix fait par chaque participant d'une hypothèse de solubilité modérée (type M), très faible (type S) ou intermédiaire (type M/S) des particules de ⁶⁰Co sur la base de l'interprétation des informations fournies par les organisateurs de l'exercice [d'après Hurtgen et al., 2005] [40].

D'autres cas d'exposition interne rencontrés dans l'industrie nucléaire ont été également examinés. Ils concernent le tritium, le ^{60}Co , l'iode, le ^{137}Cs , l'uranium, le thorium et le plutonium en tenant compte des formes chimiques rencontrées. Les avis détaillés ont été rassemblés dans le rapport final du projet [37]. Ils avaient été présentés à Paris en novembre 2003 lors du cours organisé par l'IRSN sous l'égide d'OMINEX.

IDEAS

Le projet IDEAS avait pour objectif de proposer un guide pratique afin d'harmoniser les évaluations d'activité incorporée et de dose interne à partir de cas réels de travailleurs exposés et des données de surveillance spécifiques disponibles pour chacun de ces cas. Huit institutions de sept pays européens y ont participé. Il a été aussi fait appel aux contributions de professionnels de la dosimétrie interne au niveau international pour assurer un large consensus au résultat final. Une collaboration étroite s'est mise en place à partir de 2003 entre le groupe IDEAS et le groupe de travail en dosimétrie interne (INDOS) du Comité 2 de la CIPR.

La première étape a été de compiler une base de données détaillée de cas réels de contamination interne pour s'assurer que les conseils donnés par le guide pratique sont applicables à un large spectre de situations concrètes. Un grand nombre des cas enregistrés dans la base de données a été évalué par chacun des partenaires du projet en utilisant le logiciel IMIE, développé en Ukraine par le RPI et optimisé pour les besoins du projet. La base de données complète comporte :

- une base exhaustive de références bibliographiques des cas de contamination interne décrits dans la littérature ;
 - une deuxième base compilant les données relatives aux cas analysés ;
 - et une troisième base reprenant les résultats de chaque évaluation.
- Les bases de données ont été mises en libre accès pour la communauté scientifique. L'analyse des résultats a permis de dégager des scénarios semblables et une stratégie commune d'évaluation des doses.

Une première version du guide pratique a été éditée et discutée avec les professionnels de la dosimétrie du monde entier par le biais d'un séminaire tenu sur Internet [39]. Un nouvel exercice d'intercomparaison pour le calcul de la dose interne a ensuite été organisé à l'échelle internationale (80 participants), en collaboration avec l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) (*figure 15*) [40]. La discussion des résultats au cours d'un séminaire de clôture a permis d'évaluer l'impact positif des recommandations faites dans le guide sur l'harmonisation des estimations de dose interne et de transmettre la version finale du guide à la CE.

Valorisation

L'*European Radiation Dosimetry Group* (EURADOS) poursuit trois objectifs majeurs : faire progresser la compréhension des bases scientifiques de la dosimétrie des rayonnements ionisants, promouvoir le dévelop-

pement et l'application de nouvelles méthodes en dosimétrie, et enfin assurer que les protocoles utilisés par les spécialistes européens sont compatibles et conformes aux directives internationales. Le réseau s'est étendu à 50 institutions réparties dans 24 pays européens au terme du 5^e PCRD, pendant lequel l'IRSN a présidé l'EURADOS [41]. À côté de ses activités générales de réseau comme les réunions plénières et les séminaires annuels, le soutien de conférences et le site Internet, EURADOS coordonne des programmes spécifiques avec le soutien de la Communauté européenne. L'IRSN s'est activement impliqué dans trois des groupes de travail mis en place au cours du 5^e PCRD (action concertée DOSIMETRY NETWORK).

Harmonisation des méthodes de dosimétrie individuelle en Europe

L'évolution des pratiques dans les services en charge de la dosimétrie individuelle des travailleurs représente un enjeu important du transfert des connaissances et des résultats de R&D acquis par ailleurs. Contribuer à leur harmonisation en conformité avec les directives internationales représente donc une priorité pour EURADOS, qui a mis en place un groupe de travail dédié. Les résultats des enquêtes réalisées ont pu être collectés auprès de 70 à 90 services européens de dosimétrie individuelle répartis dans 28 pays. Le rapport publié [42] présente ainsi un large inventaire des méthodes de surveillance utilisées pour la protection de l'homme exposé à des rayonnements externes, à l'incorporation de radionucléides, au radon et autres sources naturelles de rayonnement. Ce rapport examine les documents normatifs et les guides de bonnes pratiques provenant de sources différentes (ISO, IEC, AIEA, ICRP, ICRU). Il analyse le retour d'expérience du contrôle de qualité dans les services de dosimétrie individuelle. La mise en œuvre de la dosimétrie individuelle active est également examinée. En effet, son application est de plus en plus fréquente en Europe en complément des dosimètres passifs classiques pour répondre à la recommandation ALARA (*As Low As Reasonably Achievable*) en radioprotection. L'action du 5^e PCRD s'est achevée par l'organisation à Vienne du séminaire IM2005 [43].

Surveillance dosimétrique dans l'environnement

EURADOS met périodiquement en œuvre des exercices d'intercomparaison permettant d'harmoniser les protocoles utilisés et d'évaluer leur compatibilité avec les références internationales, afin que les réseaux nationaux de surveillance dosimétrique de l'environnement soient en mesure de comparer leurs résultats en cas d'accident nucléaire, par nature transfrontalier. L'IRSN a participé à l'exercice de 2002, organisé au PTB (Braunschweig). 13 pays de l'Union européenne ont participé à l'intercomparaison. Les progrès enregistrés sont significatifs quant à l'harmonisation des doses rapportées en conformité avec les directives internationales et des méthodes d'étalonnage et de caractérisation des instruments utilisés (environ 40 instruments ont pu être comparés) [44 ; 45].

Dosimétrie des équipages dans l'aviation civile

À la demande du Groupe d'experts de l'article 31 (CCE, Luxembourg), EURADOS a conduit une étude visant à analyser et synthétiser les données collectées par 13 institutions européennes différentes sur les doses mesurées et calculées à bord d'avions civils. Au total, 10 500 résultats de mesure ont été rassemblés. Ils ont été comparés avec les résultats donnés par cinq codes de calcul réputés (dont EPCARD⁽¹⁾ et SIEVERT). Les travaux de ce groupe ont été suivis en particulier par l'autorité européenne (JAA, Joint Aviation Authority). Le rapport final publié par la CCE et diffusé sur Internet (*figure 16*) conclut au bon accord observé entre les mesures réalisées, compte tenu de la diversité des instruments et méthodes utilisées, et entre les mesures et les doses calculées, en tenant compte de paramètres multiples comme le type et le blindage de l'avion, l'influence du réservoir, etc. dont l'influence est *a priori* difficile à prédire quantitativement [46].

Par ailleurs, dans le domaine particulièrement sensible de la dosimétrie interne, les résultats obtenus dans le cadre du projet BIODOS ont pu être directement exploités par le Comité 2 de la CIPR (*figure 17*), en particulier pour l'amélioration du modèle de l'appareil digestif et du modèle de transfert des radionucléides dans le lait maternel, chaque modèle faisant l'objet d'un rapport dédié [47 ; 21]. Une coopération étroite s'est établie durant le 5^e PCRD entre les groupes OMINEX et DOSMAX, décrits précédemment, et les groupes de travail EURADOS. En outre, le programme QUADOS a trouvé son prolongement dans l'action de coordination CONRAD (A Coordinated Network for Radiation Dosimetry) animée par EURADOS dans le cadre du 6^e PCRD. Les méthodes de calcul numérique dont l'importance croît dans les laboratoires de dosimétrie sont une priorité du réseau. Plusieurs actions de recherche continuent ainsi d'être soutenues par la CCE. Parallèlement, EURADOS évolue vers une structure plus autonome, assurant la présence au niveau européen d'un réseau permanent d'experts, de laboratoires de référence et de groupes de recherche qui puissent mettre en œuvre des groupes de travail de façon souple et efficace. Ceux-ci auraient pour vocation d'étudier des questions critiques de dosimétrie, d'identifier et

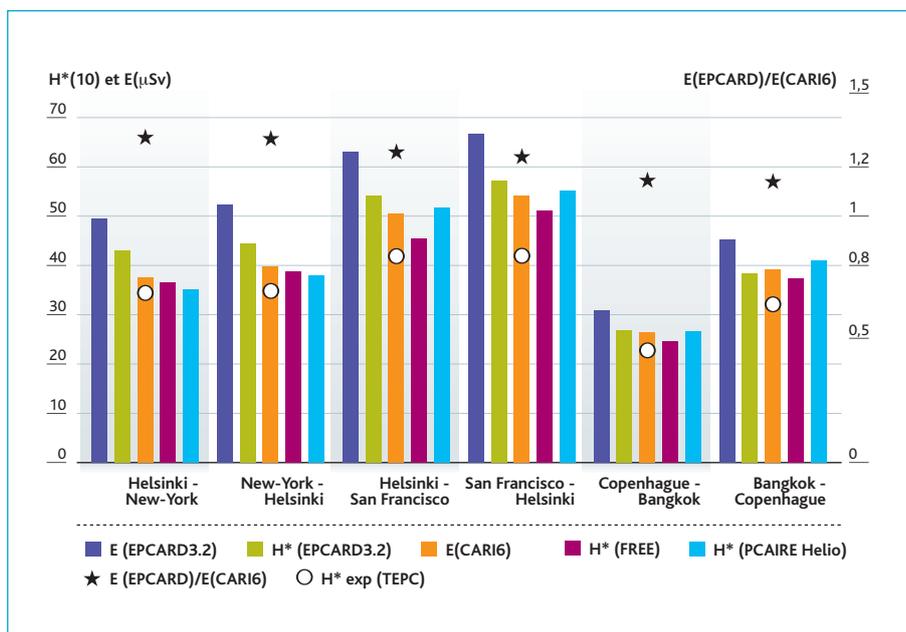


Figure 16 : Extrait du rapport Cosmic Radiation Exposure of Aircraft Crew : Compilation of Measured and Calculated Data (European Commission, Luxembourg, Radiation Protection, Issue N. 140, 2005, ISBN 92-894-8448-9) montrant à titre d'exemple la comparaison de différentes évaluations des doses auxquelles sont exposés les équipages de vols réguliers (exemples de vols à partir de la Suède et du Danemark). Les valeurs comparées ont été obtenues à partir de différents codes de calcul (CARI, EPCARD, FREE et PCAIRE). Les mesures ont été réalisées à l'aide de compteurs proportionnels équivalent-tissus (CPET) [d'après Lindborg et al., 2004][46].

promouvoir de nouveaux projets de recherche.

La pérennité du réseau repose également sur l'amélioration d'une diffusion large des informations qui le concernent. Elle est aujourd'hui assurée par trois sites Internet développés au cours du 5^e PCRD :

- www.eurados.org, site d'accueil du réseau ;
- www.eurados-db.npl.co.uk permet la saisie et la mise à jour en ligne des caractéristiques d'équipements spéciaux disponibles pour la recherche en dosimétrie (installations de haute énergie, champs mixtes neutrons-photons, simulation des conditions de criticité, rayonnements mono-énergétiques, etc.) et facilitant l'accès à ces informations aux utilisateurs intéressés [48] ;
- www.euradnews.org, site du bulletin édité conjointement avec l'European Radiation Research Society qui compte maintenant environ 800 lecteurs [49].

L'IRSN est l'un des dix acteurs majeurs du réseau par l'importance de ses équipes en dosimétrie externe et interne.

(1) European Program Package for the Calculation of Aviation Route.

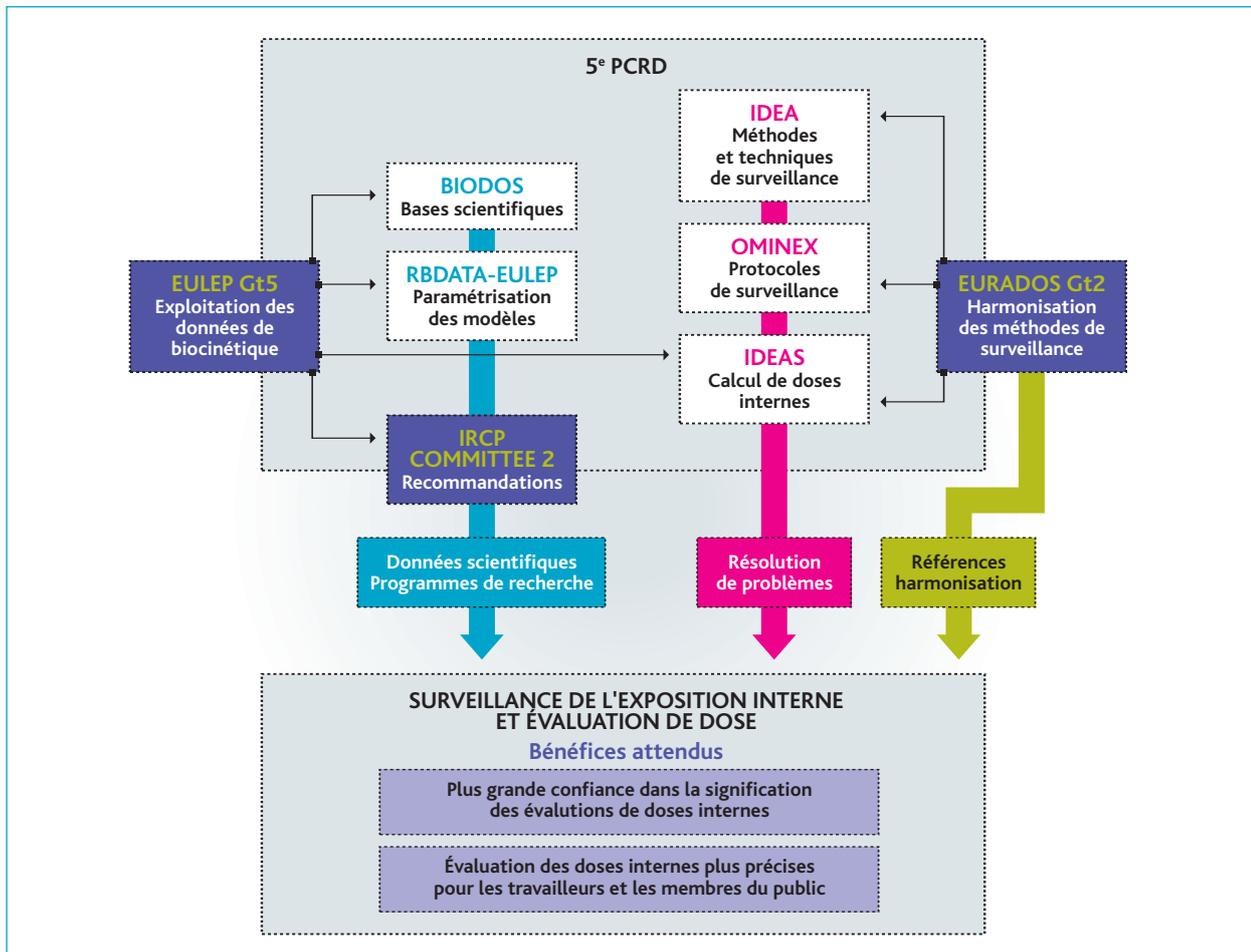


Figure 17 : Contributions des programmes menés au cours du 5^e PCRD à l'amélioration de la dosimétrie interne [source : IRSN].

■ Définitions

■ La dose efficace E [52]

Cette grandeur, qui s'exprime en sieverts, est définie par :

$$E = \sum_T W_T H_T$$

où W_T est le facteur de pondération (sans dimension) pour l'organe ou le tissu T et H_T est la dose équivalente à l'organe T, qui s'exprime également en sieverts (Sv). Cette grandeur est à son tour définie par :

$$H_T = \sum_R D_{T,R} W_R$$

où W_R est le facteur de pondération dépendant de la nature des rayonnements (1 pour les X et les γ , 20 pour les α), et où $D_{T,R}$ est la dose absorbée (mesurée en Gy) pour un tissu T et un rayonnement R.

■ La Dose absorbée $D_{T,R}$ dans un tissu T pour un rayonnement R est définie par [52] :

$$D_{T,R} = dE_R/dm_T \quad \text{Unité [Gy] ou [J.kg}^{-1}\text{]}$$

où dE_R est l'énergie cédée par le rayonnement R à l'élément de tissu T de masse dm_T entourant le point considéré.

■ La fluence neutronique Φ est définie par :

$$\Phi = dN/da \quad \text{Unité [m}^{-2}\text{]}$$

où Φ est le rapport du nombre dN de neutrons pénétrant dans une sphère à la section (aire du plan diamétral) da de cette sphère.

■ L'équivalent de dose ambiante $H^*(10)$ à 10 mm de profondeur pour des rayonnements pénétrants est donné par l'intégrale [53] :

$$H^* = \int h^* \Phi(E) \Phi_E dE \quad \text{Unité [Sv]}$$

L'équivalent de dose individuel $H_p(10)$ à 10 mm de profondeur dans la sphère ICRU pour des rayonnements pénétrants est donné par :

$$H_p = \int h p_\phi(E, \Omega) \Phi_{E,\Omega} dE d\Omega \quad \text{Unité [Sv]}$$

Dans ces formules Φ_E (resp. $\Phi_{E,\Omega}$) est la distribution de fluence en fonction de l'énergie (resp. de l'énergie et de la direction Ω) tandis que h^*_ϕ ou $h p_\phi$ sont les coefficients définis par l'ICRU⁽¹⁾, qui permettent de passer de la fluence aux grandeurs opérationnelles. Ils prennent en

compte l'efficacité du rayonnement en fonction de l'énergie et de l'angle (qui dépendent eux-mêmes du champ dans les conditions d'exposition considérées) ainsi que de la sensibilité des tissus. Ils sont obtenus par calcul à partir de données biologiques et physiques.

(1) International commission on radiation units and measurements

Références

- [1] SCHUHMACHER, H., BARTLETT, D., BOLOGNESE-MILSZTAJN, T., BOSCHUNG, M., COECK, M., CURZIO, G., D'ERRICO, F., FIECHTNER, A., KYLLÖNEN, J.-E., LACOSTE, V., LINDBORG, L., LUSZIK-BHADRA, M., REGINATTO, M., TANNER, R., VANHAVERE, F., « Evaluation of Individual Dosimetry in Mixed Neutron and Photon Radiation Fields », *Final Technical Report*, PTB-N-49, March 2006.
- [2] BOLOGNESE-MILSZTAJN, T., GINJAUME, M., VANHAVERE, F., « Active Methods & Instruments for Personal Dosimetry of External Radiation: Present Situation in Europe and Future Needs », *Current Trends in Radiation Protection*, Keynote Lecture, IRPA Conference, Madrid, 2004, EDP Science, ISBN 2-86883-725-5, 2004.
- [3] LACOSTE, V., GRESSIER, V., POCHAT, J.-L., FERNANDEZ, F., BAKALI, M., BOUASSOULE, T., « Characterization of Bonner Sphere Systems at Mono-Energetic and Thermal Neutrons Fields », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110(1-4), 529-532, 2004.
- [4] LUSZIK-BHADRA, M., REGINATTO, M., LACOSTE, V., « Measurement of Energy and Direction Distribution of Neutron and Photon Fluences in Workplace Fields », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110(1-4), 237-241, 2004.
- [4b] D'ERRICO, F., GIUSTI, V., REGINATTO, M., WIEGEL, B., « A Telescope-Design Directional Neutron Spectrometer », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110, No 1-4, 533-537, 2004.
- [5] LACOSTE, V., GRESSIER, V., MULLER, H., LEBRETON, L., « Characterization of the IRSN Graphite Moderated Americium-Beryllium Neutron Field », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110, 1-4, 135-139, 2004.
- [6] GRESSIER, V., LACOSTE, V., LEBRETON, L., MULLER, H., PELCOT, G., BAKALI, M., FERNANDEZ, F., TOMAS, M., ROBERTS, N. J., THOMAS, D. J., REGINATTO, M., WIEGEL, B., WITTSTOCK, J., « Characterization of the IRSN Canel/T400 Facility Producing Realistic Neutron Fields for Calibration and Test Purposes », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110, 1-4, 523-527, 2004.
- [7] LACOSTE, V., MULLER, H., « Neutron Spectrometry With Bonner Spheres at the Venus Research Reactor », EVIDOS Campaign n. 2, Report IRSN/DRPH/SDE 2004-56, 2004.
- [8] LACOSTE, V., REGINATTO, M., MULLER, H., ASSELINEAU, B., « Bonner Sphere Neutron Spectrometry at Nuclear Workplaces in the Framework of the EVIDOS Project », *Radiat. Prot. Dosim.*, IM2005, Wien, April 2005 (sous presse), 2005.
- [8b] LACOSTE, V., ASSELINEAU, B., MULLER, H., « Neutron Spectrometry With Bonner Spheres at Ringhals », IRSN/DRPH/SDE, Report 2005-02, 2005.
- [9] LACOSTE, V., ASSELINEAU, B., MULLER, H., « Neutron Spectrometry With Bonner Spheres at Workplaces in Nuclear Facilities at Krümmel », IRSN/DRPH/SDE – Report 2005-04, 2005.
- [10] BOTTOLIER-DEPOIS, J.-F., TROMPIER, F., CLAIRAND, I., SPURNY, F., BARTLETT, D., BECK, P., LEWIS, B., LINDBORG, L., O'SULLIVAN, D., ROOS, H., TOMMASINO, L., « Exposure of Aircraft Crew to Cosmic Radiation: On-Board Intercomparison of Various Dosimeters », *Radiat. Prot. Dosim.*, 110: 411-415, 2004.
- [11] BARTLETT, D. T., BECK, P., BOTTOLIER-DEPOIS, J.-F., LINDBORG, L., O'SULLIVAN, D., TOMMASINO, L., WISSMANN, F., D'ERRICO, F., HEINRICH, W., PELLICIONI, M., ROOS, H., SCHRAUBE, H., SILARI, M., SPURN, F., « Investigation of Radiation Doses at Aircraft Altitudes During a Complete Solar Cycle », *Proc. Second Solar Cycle and Space Weather Euroconference*, 24-29 September 2001, Vico Equense, Italy, editor: Huguette Sawaya-Lacoste, ESA SP-477, Noordwijk: ESA Publications Division, ISBN 92-9092-749-6:525-528, 2002.
- [12] SPURNY, F., DACHEV, T., « Intense Solar Flare Measurements », Letter to the Editor, *Radiat. Prot. Dosim.*, 95, 273-275, April 15, 2001.
- [13] ASSELINEAU, B., TROMPIER, F., TEXIER, C., ITIÉ, C., MEDIONI, R., MULLER, H., PELCOT, G., « Reference Dosimetry Definition for the International Intercomparison of Criticality Accident Dosimetry – SILENE 2002 », *Radiat. Prot. Dosimetry.*, 110, 459-464, 2004.
- [14] VOISIN, P., ROY, L., HONE, P. A., EDWARDS, A. A., LLOYD, D. C., STEPHAN, G., ROMM, H., GROER, P. G., BRAME, R., « Criticality Accident Dosimetry by Chromosomal Analysis », *Radiat Prot Dosimetry*, 110, 443-447, 2004.
- [15] MEDIONI, R., ASSELINEAU, B., VERREY, B., TROMPIER, F., ITIÉ, C., TEXIER, C., MULLER, H., PELCOT, G., CLAIRAND, I., JACQUET, X., POCHAT, J.-L., « Criticality Accident Dosimetry Systems: An International Intercomparison at the SILENE Reactor », *Radiat Prot Dosimetry*, 110, 429-436, 2004.
- [16] ROY, L., BUARD, V., DELBOS, M., DURAND, V., PAILLOLE, N., GRÉGOIRE, E., VOISIN, P., « International Intercomparison for Criticality Dosimetry: The Case of Biological Dosimetry », *Radiat Prot Dosimetry*, 110, 471-476, 2004.
- [17] PIHET, P., « Computing Methods in Radiation Protection Dosimetry and Related R&D Activities – EURADOS Contribution », *Proc. Computing Radiation Dosimetry*, CRD 2002, Workshop organised in Savacem, Portugal, June 22-23, 2002 by ITN-NEA, Published by OECD 2004/4311, ISBN 92-64-10823-8, 2004.
- [18] TANNER, R. J., CHARTIER, J.-L., SIEBERT, B. R. L., AGOSTEO, S., GROSSWENDT, B., GUALDRINI, G., KODELI, I., LEUTHOLD, G. P., MÉNARD, S., PRICE, R. A., TAGZIRIA, H., TERRISSOL, M., ZANKL, M., « Intercomparison on the Usage of Computational Codes in Radiation Dosimetry », *Radiat Prot Dosim.*, 110:769-780, 2004.
- [19] GUALDRINI, G., FERRARI, P. (editors), « Intercomparison on the Usage of Computational Codes in Radiation Dosimetry », *Proceedings of the QUADOS final Workshop*, July 14-16, 2003, Bologna, Italy, ENEA-Rome 2004 (ISBN 88-8286-114-7), 2004.
- [20] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, « Limits for Intake of Radionuclides by Workers », *ICRP Publication 30*, Ann. ICRP Parts 1-3, Pergamon Press, Oxford, 1979-1980.
- [21] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, « Human Alimentary Tract Model for Radiological Protection », *ICRP Publication 100* (sous presse).
- [22] BALASHAZY, I., HOFMANN, W., « Quantification of Local Deposition Patterns of Inhaled Radon Decay Products in Human Bronchial Airway Bifurcations », *Health Physics*, 78(2), 147-158, 2000.
- [23] AUBINEAU-LANIÈCE, I., PIHET, P., WINKLER-HEIL, R., HOFMANN, W., CHARLTON, D.E., « Monte Carlo Code for Microdosimetry of Inhaled Alpha Emitters », *Radiat. Prot. Dosim.*, 99, 463-468, 2002.
- [24] FAKIR, H., HOFMANN, W., CASWELL, R. S., AUBINEAU-LANIÈCE, I., « Microdosimetry of Inhomogeneous Radon Progeny Distributions in Bronchial Airways », *Radiat. Prot. Dosim.*, 113 (2), 129-139, 2005.
- [25] FAKIR, H., HOFMANN, W., AUBINEAU-LANIÈCE, I., « Microdosimetry of Radon Progeny Alpha Particles in Bronchial Airway Bifurcations », *Radiat. Prot. Dosim.*, 117 (4), 382-394, 2005.
- [26] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, *Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection*, ICRP Publication 66, Ann. ICRP, 24 (1-3) (1994).

- [27] HOFMANN, W., STURM, R., WINKLER-HEIL, R., PAWLAK, E., « Stochastic Model of Ultrafine Particle Deposition and Clearance in the Human Respiratory Tract », *Radiat. Prot. Dosimetry*, 105, 77-80, 2003.
- [28] CHAZEL, V., TOURLONIAS, E., « Effect of Particle Size and Specific Surface Area on Dissolution of Uranium Oxides; Results From WP8 of the 5th Framework Program BIODOS », IRSN/SRBE report 649, 2004.
- [29] ANDRASI, A., BOUVIER, C., BRANDL, A., DE CARLAN, L., FISCHER, H., FRANCK, D., HÖLLRIEGL, V., LI, W. B., OEH, U., RITT, J., ROTH, P., SCHLAGBAUER, M., SCHMITZER, CH., WAHL, W., ZOMBORI, P., « Improvements and Recommendations for Operating Procedures in Internal Contamination Monitoring », *IDEA Project Report FIKR CT2001 00164*, ARC Seibersdorf Research, Austria, Report ARC--G-0006, pp. 1-53, 2005.
- [30] FRANCK, D., LAVAL, L., BORISSOV, N., GUILLIERME, P., BORDY, J.-M., « Development of Voxelized Numerical Phantoms Using MCNP Monte Carlo Code: Application to In Vivo Measurement », *Radioprotection*, v. 36 (no.1) p. 77-86, 2001.
- [31] BORISSOV, N., FRANCK, D., LAVAL, L., DE CARLAN, L., « A New Graphical User Interface for Fast Construction of Computation Phantoms and MCNP Calculation: Application to Calibration of In Vivo Measurement Systems », *Health Phys*, 83: 272-280, 2002.
- [32] KOVTUN, A. N., « Metrological Parameters of the Unified Calibration Whole-Body Phantom With Gamma-Emitting Radionuclides », *Radiation Protection Dosimetry*, Vol 89, No 3-4 pp. 239-242, 2000.
- [33] ZUBAL, I. G., HARRELL, C. R., SMITH, E. O., RATTNER, Z., GINDI, G., HOFFER, P. B., « Computerized Three-Dimensional Segmented Human Anatomy », *Med. Phys*, 21, 299-302, 1994.
- [34] DE CARLAN, L., ROCH, P., BLANCHARDON, E., FRANCK, D., « New Method of Voxel Phantom Creation: Application for Whole Body Counting Calibration and Perspectives in Individual Internal Dose Assessment », *Radiat. Prot. Dosim*, vol 116, N°1-4 pp. 160-164, 2005.
- [35] DE CARLAN, L., AUBINEAU-LANIÈCE, I., BORISSOV, N., JOURDAIN, J. R., JEANBOURQUIN, D., LE GUEN, B., FRANCK, D., « Application of New Imaging and Calculation Techniques for the Activity and Dose Assessment in the Case of a Ru-106 Contaminated Wound, Workshop on Internal Dosimetry of Radionuclides - Occupational, Public and Medical Exposure », *Radiat. Prot. Dosim.* vol 105, N°1-4 pp. 219-224, 2003.
- [36] RAHOLA, T., ETHERINGTON, G., BÉRARD, P., LE GUEN, B., HURTGÉN, C., « OMINEX: Survey of Internal Dose Monitoring Programmes for Radiation Workers », *Rad. Prot. Dosim.*, 105, 347-350, 2003.
- [37] ETHERINGTON, G., COSSONNET, C., FRANCK, D., GENICOT, J.-L., HURTGÉN, C., JOURDAIN, J.-R., LE GUEN, B., RAHOLA, T., SOVIJÄRVI, J., STARDLING, G. N., ANSOBORLO, E., BÉRARD, P., « Optimisation of Monitoring for Internal Exposure (OMINEX) », *Report NRPB-060* (ISBN 0 85951 541 9), pp. 1-69, 2004.
- [38] JOURDAIN, J.-R., « Uncertainties in Thyroid Doses Assessed From Iodine-in-Thyroid Measurements », Report IRSN/DRPH/SDI/2004-006, 2004.
- [39] DOERFEL, H., ANDRASI, A., AUBINEAU-LANIÈCE, I., BAILEY, M., BERKOVSKI, V., BLANCHARDON, E., CASTELLANI, C. M., HURTGÉN, C., JOURDAIN, J.-R., LE GUEN, B., MALATOVA, I., MARSH, J., PUNCHER, M., « Guide pratique pour estimer la dose interne à partir des résultats de mesure de surveillance (projet IDEAS) », *Radioprotection*, 40 (1), 47-55, 2005.
- [40] HURTGÉN, C., ANDRASI, A., BAILEY, M. R., BIRCHALL, A., BLANCHARDON, E., BERKOVSKI, V., CASTELLANI, C. M., CRUZ-SUAREZ, R., DAVIS, K., DOERFEL, H., LEGUEN, B., MALATOVA, I., MARSH, J., ZEGER, J., « IDEAS/IAEA Intercomparison Exercise on Internal Dose Assessment », *Open Report of the Belgian Nuclear Research Centre, SCKoCEN-BLG-1018*, pp. 1-303, 2005.
- [41] PIHET, P., WERNLI, C., SCHUHMACHER, H., ZOETELIEF, J., BARTLETT, D. T., D'ERRICO, F., LINDBORG, L., OLKO, P., PARETZKE, H., RANNOU, A., SPURNY, F., THOMAS, D. J., *The European Radiation Dosimetry group: EURADOS. Proceedings of the IRPA11 Conference*, Madrid, 2004, <http://www.irpa11.com/>, 2004.
- [42] VAN DIJK, J. W. E., BOLOGNESE-MILSZTAJN, T., FANTUZZI, E., LOPEZ-PONTE, M. A., STADTMANN, H. (editors), « Harmonisation of Individual Monitoring in Europe. A report of the European Radiation Dosimetry Group EURADOS », *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 112, No 1, 2004.
- [43] VAN DIJK, *Proceedings IM2005* (sous presse), 2006.
- [44] SAEZ-VERGARA, J. C., THOMPSON, I. M. G., FUNCK, E., ANDERSEN, C. E., NEUMAIER, S., BØTTER-JENSEN, L., « Lessons Learnt From an International Intercomparison of National Network Systems Used to Provide Early Warning of a Nuclear Accident », *Radiat. Prot. Dosim.*, 103 (3): 197-210, 2003.
- [45] WISSMANN, F., SAEZ-VERGARA, J. C., « Dosimetry of Environmental Radiation, A Report on the Achievements of EURADOS WG3 », *Radiat. Prot. Dosim.*, 118: 167-175, 2006.
- [46] LINDBORG, L., MCAULAY, I., BARTLETT, T. D., BECK, P., SCHRAUBE, H., SCHNUR, K., SPURN, F. (editors), « Cosmic Radiation Exposure of Aircraft Crew: Compilation of Measured and Calculated data », *Radiation Protection Issue n° 140*, Office for Official Publications of the European Communities (Luxembourg), Report KO-63-04-690-EN-C (ISBN 92-894-8448-9), 2004.
- [47] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, « Doses to Infants from Ingestion of Radionuclides in Mother's Milk », *ICRP Publication 95*, 2005, Elsevier Science (London), 2004.
- [48] OTTO, T., DUSAUTOY, A., « EURADOS Database of Facilities and Equipment for Dosimetry Research in Europe », Presentation in the Symposium "Biological and Physical Dosimetry for Radiation Protection" jointly organised by EULEP and EURADOS, Braunschweig, Germany, March 10, 2004. *Rad. Prot. Dosim.*, 112 (4), 537-539, 2004.
- [49] PIHET, P., D'ERRICO, F., DÖRR, W., GRUENBERGER, M., SCHOFIELD, P., « The Newsletter 'European Research in Radiological Sciences' », *Radiat. Prot. Dosim.*, 112(4), 531-533, 2004.
- [50] BOTTOLIER, J.-F., BLANCHARD, P., CLAIRAND, I., DESSARPS, P., LANTOS, P., SAINT-LÔ, D., TROMPIER, F., « An Operational Approach for Aircrew Dosimetry: The SIEVERT system », IM 2005 European Workshop on Individual Monitoring of Ionising Radiation, Vienne, Autriche (2005), sous presse dans *Radiation Protection Dosimetry*, 2006.
- [51] DE CARLAN, L., FRANCK, D., BURGER, P., LEGOU, PH., MAILLARD, O., MAZUR, C., MEYER, O., PIHET, P., SOULIÉ, R., « Feasibility of Room Temperature Semiconductors to Perform Low Energy In Vivo Spectroscopy », *Radiat. Prot. Dosim.*, Vol. 79, No 1-4, pp. 485-489, 1998.
- [52] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, « 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection », *ICRP Publication 60*, Ann. ICRP. Pergamon Press, Oxford, 1991.
- [53] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS, « Determination of Dose Equivalent Resulting From External Radiation Sources », *ICRU Report 39*, Bethesda, USA, 1985.

3.3

Pascale SCANFF et
Bernard AUBERT
Unité d'expertise en
radioprotection médicale

Les expositions médicales en France : bilan et perspectives

■ La connaissance de la fréquence et de la distribution des examens radiologiques, ainsi que des doses qui leur sont associées, est devenue un élément d'information et un outil d'optimisation de l'exposition médicale de la population. Elle doit permettre de répondre à une demande croissante d'information du public sur les pratiques médicales, le volume des actes et les doses associées. Aussi l'IRSN et l'INVS ont jugé utile d'associer leurs efforts pour constituer un système d'information sur les expositions médicales aux rayonnements ionisants, dans une logique d'expertise publique, système auquel les sociétés savantes devront contribuer de façon déterminante.

Un travail préliminaire a permis d'établir un bilan des données disponibles en France tant sur le plan de la fréquence des actes que des doses associées aux divers examens médicaux qui mettent en jeu les rayonnements ionisants. À partir des données de la Caisse nationale d'assurance maladie des travailleurs salariés et des statistiques annuelles des établissements de santé effectuées par le ministère de la Santé, le nombre d'actes effectués en France en 2002 a pu être évalué entre 60 et 71 millions, dont 3,6 millions en scannographie. Les informations concernant les doses associées aux actes de radiologie ont été reprises des données françaises, lorsqu'elles existaient. La plupart d'entre elles proviennent des données européennes et britan-

niques. L'ensemble de ces données ont permis de situer la dose efficace moyenne reçue par personne en France entre 0,7 et 0,8 mSv. Cette première synthèse constitue la base sur laquelle le système d'information s'appuiera pour les actions futures. Ce système devra être pérenne afin de tenir compte des évolutions techniques et des pratiques qui peuvent influencer sur le niveau d'exposition des patients. Le travail, commencé en 2004, a donné lieu à un rapport paru en 2006 intitulé « Exposition médicale de la population française aux rayonnements ionisants – État des lieux pour la mise en place d'un système pérenne d'information sur l'exposition médicale des patients aux rayonnements ionisants ». Ce rapport est consultable sur le site Internet de l'IRSN (www.irsn.org).

La suite de ce travail devrait s'orienter suivant deux axes majeurs :

- la constitution d'un réseau d'établissements du secteur public représentatifs de la pratique française sur lequel on pourra s'appuyer pour collecter périodiquement des informations sur la nature et le nombre des actes ainsi que sur les paramètres d'examens utilisés ;
- l'exploitation des données de la Caisse nationale d'assurance maladie sur la base de la nouvelle classification des actes médicaux.

3.4

François PAQUET
Laboratoire
de radiotoxicologie
expérimentale

Le programme santé/environnement ENVIRHOM évalué par son conseil scientifique

■ Le conseil scientifique international d'ENVIRHOM s'est réuni en novembre 2005 afin de juger de la qualité des résultats acquis par la quarantaine de scientifiques de la Direction de radioprotection de l'homme et de la Direction de l'environnement et de l'intervention impliquées dans ce programme. Ce conseil, composé de neuf experts de renommée internationale et de nationalités diverses se réunissait pour la troisième fois depuis le lancement du programme.

■ L'évaluation donnée par le conseil est très positive, tant sur l'importance des questions traitées

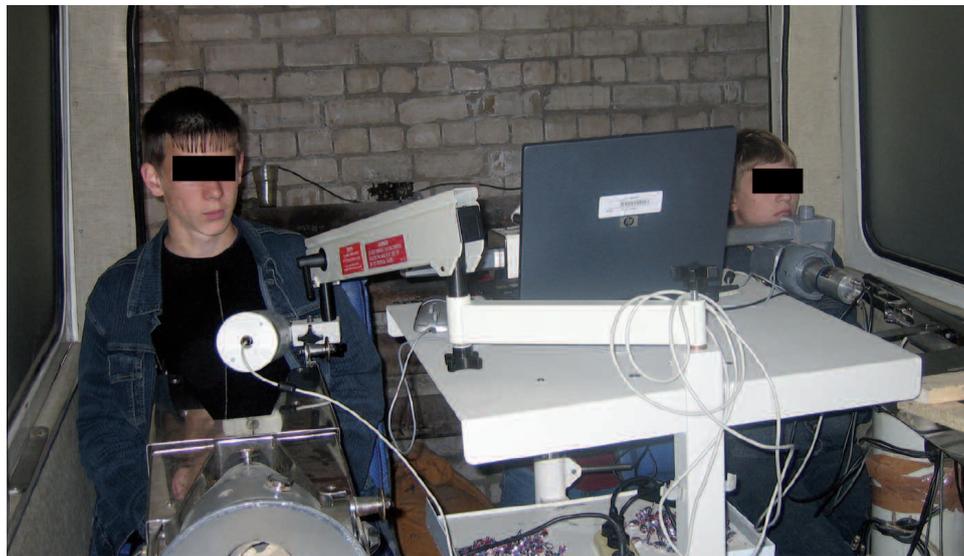
que sur le professionnalisme des équipes et sur la qualité des résultats. Il souligne l'intérêt, pour appréhender les effets biologiques induits par les radionucléides, de réaliser des études *in vivo* c'est-à-dire sur des organismes entiers, en plus des études menées sur cellules en culture. Le conseil recommande également d'intensifier les collaborations avec d'autres laboratoires de recherche à l'international.

■ Ce conseil, dont la composition va légèrement évoluer suite au décès de l'un des membres, se réunira avec une périodicité d'environ deux ans.

3.5

Jean-René JOURDAIN
Service de dosimétrie interne

Le programme ÉPICE



Mesure de la répartition du césium 137 chez un enfant vivant dans la région de Bryansk (Russie).

■ En octobre 2005, l'IRSN a lancé une étude dénommée ÉPICE (Évaluation des Pathologies Induites par les contaminations chroniques en Césium). Cette étude a pour objet de mesurer la distribution du césium chez les enfants vivant dans la région de Bryansk, région la plus contaminée de Russie, mais aussi d'établir s'il existe un lien entre le niveau de contamination par le césium et les pathologies observées chez ces enfants. Cette étude vient en réponse aux interrogations suscitées par les travaux du D^r Y. Bandashevsky, qui suggèrent que les enfants vivant sur les territoires contaminés par les rejets de la centrale nucléaire de Tchernobyl présenteraient des pathologies inhabituelles telles que cataracte, ulcère gastroduodéal et troubles du rythme cardiaque. Les travaux initiés par l'IRSN ont été menés avec la collaboration des médecins du Centre

de diagnostic clinique de Bryansk (BCDC) et des spécialistes en dosimétrie du Centre médical de recherche sur les rayonnements d'Obninsk (MRRC). À partir des données du suivi médical des habitants de l'*oblast* de Bryansk, un groupe de 49 enfants vivant sur les territoires contaminés a été constitué. Les équipes de l'IRSN, du BCDC et du MRRC ont alors réalisé pour chaque enfant des mesures de la répartition du césium 137 dans l'organisme (en particulier cœur, thyroïde et foie) ainsi qu'un bilan de santé comprenant un électrocardiogramme et des échographies de ces mêmes thyroïde, foie et cœur. Les résultats de cette étude, attendus dans le courant de l'année 2006, permettront de dire si une contamination chronique par le césium 137 peut être ou non à l'origine de pathologies non cancéreuses chez les individus exposés.

3.6

Laurence ROY
Laboratoire de
dosimétrie biologique

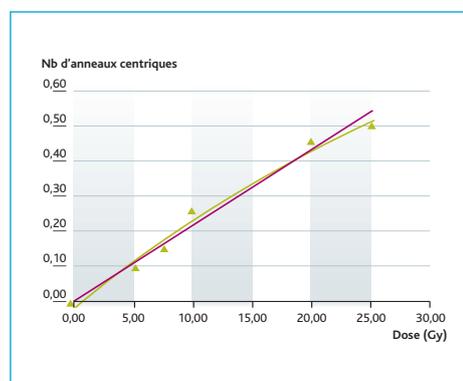
Nouvelles courbes de référence pour l'estimation par dosimétrie biologique des fortes doses d'irradiation

■ L'amélioration des méthodes de diagnostic des personnes irradiées accidentellement est une préoccupation importante au sein de l'IRSN. En dosimétrie biologique, la technique classique repose sur la numération des aberrations chromosomiques (les dicentriques) dans les lymphocytes isolés à partir d'un prélèvement sanguin. Cette technique présente cependant des limites pour les doses supérieures à 5 Gy. L'IRSN a récemment développé une nouvelle méthodologie pour réaliser des courbes de référence « dose-effet » spécifiquement adaptées aux fortes doses d'irradiation (> 5 Gy) permettant de compléter l'ensemble des courbes déjà existantes.

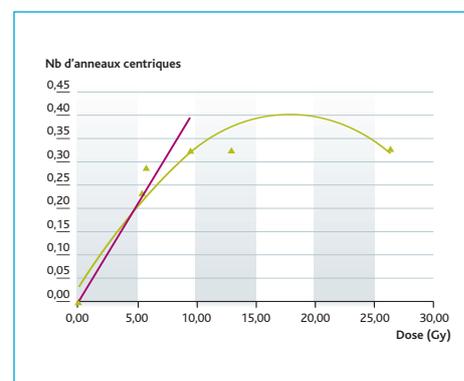
■ Cette méthodologie est spécialement adaptée aux conditions d'accident de criticité. Elle permet de prendre en compte à la fois les doses élevées d'exposition (plus de 10 Gy) et le flux mixte gamma/neutrons auquel les victimes sont exposées. Des irradiations gamma et gamma/neutrons ont été réalisées pour cela entre 5 et 25 Gy sur des échantillons sanguins.

Une méthode permettant de condenser des chromosomes prématurément à l'aide de molécules chimiques à partir de lymphocytes issus de ces échantillons a été retenue et un autre type d'aberrations chromosomiques, appelé anneaux centriques, a été utilisé. Ces derniers sont dix fois moins nombreux que les dicentriques, et leur plateau de saturation n'est atteint qu'à des doses beaucoup plus élevées. Les taux d'anneaux centriques observés chez les victimes de l'accident de criticité de Tokai-Mura (Japon) ont permis d'obtenir des doses d'exposition cohérentes avec celles déterminées par la dosimétrie physique à partir de la courbe de référence proposée.

L'IRSN dispose à présent d'un ensemble de courbes de référence adaptées aux situations accidentelles et aux activités de diverses industries. Ce travail est le fruit d'une collaboration entre l'IRSN et le Centre de protection et d'hygiène des rayonnements (CPHR) de Cuba.



Courbe dose-effet du nombre d'anneaux centriques observés dans les lymphocytes après irradiation au cobalt 60 à un débit de dose de 0,5 Gy/mn.



Courbe dose-effet du nombre d'anneaux centriques observés dans les lymphocytes après irradiation mixte neutron/gamma.

3.7

Carole MONNIN-PARIETTI
Laboratoire de métrologie et
de dosimétrie des neutrons

AMANDE, un an déjà



L'accélérateur AMANDE.

■ La dosimétrie des neutrons est une technique complexe qui doit s'adapter aux besoins. Le laboratoire de métrologie et de dosimétrie à neutrons de l'IRSN exploite et développe, en association avec le Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), des installations produisant des champs neutroniques de référence.

■ L'accélérateur AMANDE, dont l'inauguration le 20 mai 2005 a été rapportée dans l'édition 2005 du Rapport scientifique et technique, a pour but de produire des champs de neutrons monoénergétiques, pulsés ou non, afin d'étudier la variation de la réponse des instruments de mesure avec l'énergie des neutrons. Un tel outil est en effet indispensable pour qualifier aussi bien les appareils de mesures de flux neutroniques que les dispositifs qui servent à les étalonner.

■ La qualification des faisceaux de particules chargées (protons et deutons) et les premiers étalonnages pour des applications internes ont été réalisés en 2005.

■ De nouveaux détecteurs adaptés à cette installation sont actuellement en cours de développement dans le cadre de contrats de collaboration scientifique avec les instituts nationaux de métrologie britannique et allemand.

■ La phase de qualification des rayonnements neutroniques, toujours en cours, a permis en avril 2006 d'accueillir des chercheurs de l'Université autonome de Barcelone (UAB) pour valider expérimentalement les fonctions de réponse d'un spectromètre dans quatre champs monoénergétiques de 144, 565, 1 200 et 5 000 keV. Les mesures ont été réalisées conjointement par l'IRSN et l'UAB dans le cadre d'une collaboration pour le développement d'un spectromètre capable de mesurer un flux de neutrons dans une ambiance à forte composante photonique (champ mixte).

■ La campagne de mesures s'est déroulée du 24 avril au 5 mai et a nécessité une durée de faisceau de 53 heures délivrées pour l'utilisateur.

■ Les résultats des mesures effectuées auprès d'AMANDE ont été présentés au Congrès international de dosimétrie des neutrons, NEUDOS, le 10 juin 2006 et publiés dans la revue *Radiation Protection Dosimetry*.

■ Pour atteindre le statut de référence pour les champs produits, une comparaison internationale sera organisée sur AMANDE sous l'égide du Bureau international des poids et des mesures.

3.8

Alain RANNOU
Service d'études
et d'expertise
en radioprotection

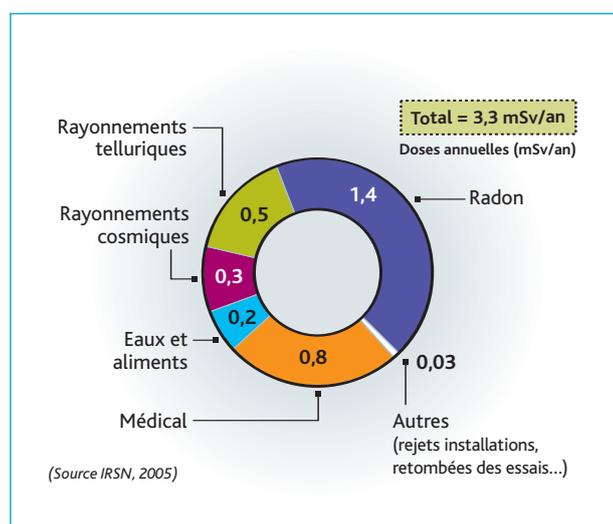
Pascale SCANFF
Unité d'expertise en
radioprotection médicale

L'exposition des Français aux rayonnements ionisants

■ La contribution des diverses sources de rayonnements ionisants à l'exposition de la population française a été réévaluée par l'IRSN au cours de l'année 2005. Le chiffre de 3,3 mSv par personne et par an a été avancé comme valeur de la dose efficace moyenne reçue en France du fait des sources de rayonnements ionisants. Cette nouvelle estimation tient compte de la dose moyenne associée aux expositions médicales, désormais estimée à 0,8 mSv par personne et par an. L'exposition au radon et l'exposition médicale représentent à elles deux les 2/3 de ces 3,3 mSv.

■ Cette valeur française est très proche de la moyenne mondiale de 3,4 mSv/an avancée par l'UNSCEAR, mais a baissé par rapport à celle estimée dans les années 1990, car les doses associées au radiodiagnostic ont diminué.

■ Rappelons qu'il existe une forte variabilité de la dose efficace individuelle moyenne annuelle dans le monde : de 1 mSv à plus de 10 mSv selon les régions et les modes de vie.



Exposition aux rayonnements ionisants de la population en France.

3.9

En quelques dates Soutenances de thèses et autres faits marquants

Du 24 au 27 octobre 2005

■ s'est tenue aux Vaulx-de-Cernay une conférence-consensus sur la prise en charge médicale en cas d'accident radiologique ou d'acte terroriste, organisée par l'IRSN avec l'EBMT (*European Bone Marrow Transplantation*) et l'Université d'Ulm.

Le 16 mars 2006

■ a eu lieu une présentation publique des avancées du programme interdisciplinaire ENVIRHOM. Ce programme a pour objectif l'étude du risque sur la santé et l'environnement associé à une exposition chronique aux radionucléides en traces. (Le conseil scientifique de ce programme avait donné en novembre 2005 un avis positif sur sa mise en œuvre à l'IRSN, voir article en page 166).

27 janvier 2006

■ **Sabine FRANÇOIS** a soutenu sa thèse sur « l'Étude de la capacité plastique des cellules souches mésenchymateuses humaines (CSM) après irradiation du tissu receveur : approche thérapeutique de l'atteinte multi-organe radio-induite » au CHU Saint Antoine à Paris.

23 mars 2006

■ **Marie-Laure HERVE** a soutenu sa thèse sur la « Dosimétrie d'accident en champs mixte (neutrons et photons) utilisant la spectrométrie par résonance paramagnétique électronique (RPE) » à l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires de Saclay.

Le premier trimestre 2006

■ a vu la mise en application des recherches de l'IRSN à de nouvelles approches thérapeutiques des brûlures radiologiques lors de l'accident du Chili (voir article en page 138). L'IRSN a été également sollicité dans la gestion médicale de l'accident d'irradiation globale de Belgique.

14 mars 2006

■ le prix « Van der Schueren » est remis au département de radiothérapie de l'Institut Gustave-Roussy et à l'unité de recherche commune IGR-IRSN, lors de l'*International Conference on Translational Research* qui s'est tenue en Suisse. Ce prix récompense les travaux entrepris depuis plusieurs années

7 juin 2006

■ **Muriel ISOIR** a soutenu sa thèse sur « l'Évaluation d'un modèle alternatif de peau dans l'étude de l'atteinte épidermique après exposition à différents agents de stress environnementaux (rayonnements ionisants et UVB) » au CHU Saint-Antoine à Paris.

20 novembre 2006

■ **Christophe FURSTOSS** a soutenu sa thèse à l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires de Saclay sur le thème « Conception et développement d'un fantôme anthropomorphe équipé de détecteurs dans le but de mesurer la dose efficace au poste de travail : étude de faisabilité ».

pour l'amélioration du traitement des cancers par radiothérapie, ainsi que les recherches menées conjointement par les deux instituts sur la prévention et le traitement des pathologies secondaires qui affectent parfois le tissu sain présent dans le champ de l'irradiation.

18 avril 2006

■ l'InVS et l'IRSN publient un rapport conjoint intitulé « Exposition médicale de la population française aux rayonnements ionisants ». Ce rapport dresse un état des lieux en vue de la mise en place d'un système pérenne d'information sur l'exposition médicale des patients aux rayonnements ionisants.

6 décembre 2006

■ **Valérie HAYDONT** a soutenu sa thèse sur le thème « la Fibrose intestinale radio-induite : des mécanismes moléculaires aux applications thérapeutiques. Rôle du TGF- β 1, du CTGF et de la voie de transduction du signal Rho/ROCK » à l'Institut Gustave-Roussy à Villejuif.

14 décembre 2006

■ **Olivier GREMY** a soutenu sa thèse sur le thème « Caractérisation et modulation pharmacologique de l'inflammation intestinale induite par les rayonnements ionisants », à l'Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines.

4 Développement des méthodes, études sur la sûreté et la sécurité des exploitations

4	Codes, qualification et incertitudes dans l'analyse de sûreté	174
4.1	Les logiciels critiques, quels enjeux pour l'évaluation ?	177
4.2	Le vieillissement sous irradiation des cuves de réacteurs nucléaires à eau sous pression	184
4.3	Expertise des méthodes d'évaluation des incertitudes du code CATHARE dans le programme international OCDE BEMUSE	195
4.4	Processus de qualification des formulaires de criticité et exemple d'utilisation dans le domaine de l'expertise de criticité	202
4.5	Influence de la représentation mathématique des connaissances imparfaites dans le traitement des incertitudes	214
	flashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflashinfoflash	
4.6	Vers une étude probabiliste de sûreté (EPS) de niveau 2 pour le palier 1 300 MWe	220
4.7	Réexamen des critères associés au combustible	220
4.8	En quelques dates / Soutenances de thèses et autres faits marquants	221

4

Codes, qualification et incertitudes dans l'analyse de sûreté

On fait appel à des études dites « de dimensionnement » dans la conception de tous les ouvrages industriels dont les réacteurs nucléaires et les installations du cycle font partie. Elles ont pour objectifs de déterminer, individuellement et dans leur ensemble, les performances en fonctionnement des systèmes qui les composent, leur robustesse dans les situations incidentelles et accidentelles et d'en évaluer la fiabilité. Ces études sont effectuées à l'aide d'outils de calcul dont la représentativité vis-à-vis des phénomènes physiques modélisés et, en conséquence, la complexité n'ont cessé de s'accroître avec l'affinement de la représentation géométrique, la sophistication des modèles mathématiques, la montée en puissance des capacités de calcul scientifique et la mise en œuvre du couplage entre codes.

Les outils de calcul ne sont pas seulement un assemblage des codes, assortis de leurs logiciels d'interface homme-machine et d'exploitation, mais aussi et surtout ils enferment tout un patrimoine d'expériences et de connaissances, consolidées dans ce que l'on appelle de façon générique les méthodes ou schémas de calcul. Ces méthodes doivent obtenir une certification formelle de qualification avant toute utilisation pour les études de conception et/ou les vérifications de sûreté, à l'issue d'un cheminement complexe comportant en général deux étapes distinctes et complémentaires, qui peuvent s'enchaîner ou s'enchevêtrer tout au long d'un processus laborieux :

- la validation par moyen de comparaison avec d'autres schémas ayant des performances similaires, s'ils existent. *A minima*, la validation des modèles mathématiques et de leur chaînage ;
- la qualification proprement dite, par comparaison des résultats du calcul avec un inventaire assez large et représentatif de données expérimentales, rendues disponibles par l'expérimentation sur maquette ou par le retour d'exploitation en fonctionnement normal ou en transitoire.



4

Les modèles de calcul comportent toujours un niveau incompressible d'incertitudes qui affecte les paramètres de conception en raison de :

- la faiblesse des modèles numériques, qui comportent toujours un certain nombre d'hypothèses et d'approximations ;
- le caractère nécessairement limité des échantillons de données expérimentales et de leur représentativité partielle par rapport aux conditions de conception ;
- la fiabilité des chaînes de mesure et le processus de reconstitution utilisé pour la génération des données expérimentales ;
- et l'incertitude inhérente au processus de qualification.

Pour pallier cet inconvénient, les concepteurs adoptent des démarches d'étude qui consistent à pénaliser les conditions de calcul par l'introduction de conservatismes plus ou moins poussés et plus ou moins maîtrisés selon l'époque, le niveau de connaissance et le risque potentiel engendré par une défaillance éventuelle. L'élément essen-

tiel et déterminant de l'analyse de sûreté est justement l'appréciation critique de ces conservatismes, non seulement par rapport aux situations de fonctionnement normal, mais surtout par rapport aux accidents de dimensionnement et, depuis peu, hors dimensionnement.

Tous les articles présentés dans cette section ont une relation plus ou moins directe et plus ou moins étroite avec les incertitudes, leur origine, leur propagation et leurs conséquences sur l'analyse de sûreté.

■ Soit parce qu'ils se proposent de mettre en valeur la pertinence et la robustesse du processus de qualification d'un schéma de calcul et de déterminer l'incertitude engendrée par son utilisation, ce qui constitue une condition essentielle de son utilisation dans l'expertise de sûreté :

- « **Processus de qualification des formulaires de criticité et exemple d'utilisation dans le domaine de l'expertise de criticité** », d'Isabelle Duhamel, Éric Létang, Gilles Daumen,

Igor Lebars, a comme objectif la prévention du risque de criticité dans les stockages et les transports de matières nucléaires (voir chapitre 4.4) ;

- « **Le vieillissement sous irradiation des cuves de réacteurs nucléaires à eau pressurisée** », de Bernard Monnot, conjugue l'analyse du retour d'expérience et le questionnement sur la modélisation et étudie, avec pertinence et justesse, le mécanisme de la fragilisation des aciers, notamment des cuves, dans la perspective de l'allongement de la durée de vie des réacteurs REP (voir chapitre 4.2) ;

- soit parce qu'ils visent à évaluer les conséquences des incertitudes dues à la variabilité des données d'entrée d'un processus et aux imprécisions touchant les structures des modèles et les paramètres utilisés pour définir la relation entre les données d'entrée et la réponse :

- « **L'évaluation des méthodes d'incertitudes du code CATHARE dans le programme international OCDE BEMUSE** », de Jérôme Joucla, répond à l'objectif majeur pour l'Institut de s'approprier les méthodes statistiques pour l'évaluation des incertitudes dans les études de sûreté (voir chapitre 4.3) ;

- « **Influence de la représentation mathématique des connaissances imparfaites dans le traitement des incertitudes** », d'Éric Chojnacki et Catherine Mercat-Rommens, met en relation l'évaluation des incertitudes, la caractérisation d'un résultat expérimental ou numérique et la prise de décision (voir chapitre 4.5) ;

- l'article de Jean Gassino et Pascal Régnier « **Les logiciels critiques, quels enjeux pour l'évaluation** » mérite une mention à part. Tout en démontrant la fiabilité et la robustesse de ces logiciels face aux défaillances matérielles, cet article ouvre un questionnement sur les conséquences non maîtrisées, en termes de fiabilité et de sûreté, des erreurs les affectant à la conception et de leur propagation (voir chapitre 4.1) ;

ces cinq articles, sans avoir la prétention à l'exhaustivité, présentent un panorama à la fois large et varié des activités menées par l'IRSN dans le domaine des études et recherches en support de l'expertise face au problème des incertitudes, leur genèse, leur propagation, et, *in fine*, leur impact sur le comportement des systèmes et/ou les actions de l'homme. Un domaine qui constitue un axe stratégique et privilégié de développement à moyen et long termes pour l'Institut.

Ils fournissent aussi une base solide de départ pour les réflexions à venir sur les systèmes évolutionnaires et/ou novateurs, notamment dans le cadre de GEN-IV et d'ITER.

Martial JOREL
Direction de la sûreté
des réacteurs

4.1

Les logiciels critiques, quels enjeux pour l'évaluation ?

Jean GASSINO,
Pascal RÉGNIER
Bureau d'analyse des
systèmes électriques
et du contrôle-commande

Le domaine des hautes technologies fait de plus en plus appel à des logiciels pour réaliser des fonctions de sûreté, et c'est le cas en particulier de l'industrie nucléaire. Ces logiciels sont dits « critiques » car leur éventuel mauvais fonctionnement peut avoir des conséquences catastrophiques, par exemple le dysfonctionnement des commandes de vol d'un avion ou l'absence d'arrêt d'urgence d'un réacteur nucléaire dans une situation accidentelle. Leur complexité pose des problèmes de validation spécifiques, qui conduisent les évaluateurs à mener des actions d'analyse et de R&D particulières.

Pour le nucléaire, il s'agit de logiciels de contrôle-commande qui agissent en temps réel sur l'installation pour la maintenir ou la ramener dans un état sûr. Ainsi, sur 24 des réacteurs de puissance d'EDF, des logiciels sont chargés de déclencher l'arrêt automatique dans la demi-seconde suivant la détection d'un événement anormal tel que l'augmentation excessive du flux neutronique ou de la température du cœur. Ces mêmes logiciels sont conçus pour gérer automatiquement les 30 premières minutes d'un incident ou d'un accident afin d'éviter aux opérateurs d'avoir à prendre des décisions dans l'urgence. Ces logiciels critiques sont un des moyens mis en œuvre au titre de la défense en profondeur pour assurer la sûreté d'un réacteur.

D'une part celui-ci est conçu et exploité de façon à ne pas avoir, en principe, à solliciter l'action d'un logiciel critique. D'autre part, d'autres systèmes et dispositions d'organisation palliatifs prennent le relais si une telle action s'avère en définitive nécessaire mais ne s'effectue pas comme prévu. Cependant les logiciels critiques appartiennent à la ligne de défense principale, et c'est la base même de la démarche de sûreté que de réaliser chaque ligne de défense du mieux possible, comme si elle était indispensable. Par ailleurs, une fonction critique s'exécute non pas sur un ordinateur unique, mais sur un système composé de plusieurs ordinateurs identiques redondants (en général quatre), incluant des dispositifs de surveillance du matériel par le logiciel et vice-versa. Ces dispositions permettent d'assurer la réalisation de la fonction malgré une ou plusieurs pannes du matériel. Elles n'ont cependant que peu d'efficacité vis-à-vis des erreurs de conception des logiciels.

Ainsi le bon fonctionnement des logiciels critiques constitue un point clé pour la sûreté nucléaire. Cet article présente le point de vue de l'évaluateur sur les moyens permettant d'obtenir et de démontrer un très haut niveau de confiance dans ces logiciels, alors que les logiciels grand public semblent voués à des dysfonctionnements chroniques et que les exemples de défaillances abondent dans cette industrie.

Limites scientifiques et techniques

Le logiciel d'un automate de sûreté lit cycliquement des entrées représentant l'état du processus physique, et calcule des sorties : commandes, ordres de protection, etc. Ce calcul présente deux caractéristiques :

- il est discontinu du fait de l'utilisation d'instructions conditionnelles du type « *if (condition) then do A else do B* ». Ainsi, une infime variation des grandeurs d'entrée peut faire basculer du traitement A vers le traitement B, qui peut être complètement différent ;
- il est complexe, car le nombre de discontinuités est souvent gigantesque. Un petit programme contenant 1 000 instructions « *if* » pourrait découper l'espace des entrées en $2^{1000} \approx 10^{300}$ régions séparées par des discontinuités. De plus, ces instructions étant en général répétées itérativement dans des boucles, le nombre de cas potentiellement différents augmente exponentiellement avec le nombre de ces itérations.

La vérification de tels programmes est donc un problème inaccessible à tout traitement systématique. En effet :

- la combinatoire des entrées (par exemple : 50 entrées codées sur 12 bits conduisent à $2^{600} \approx 10^{180}$ valeurs différentes) empêche définitivement la vérification « rouleau compresseur » par test exhaustif, même si l'on disposait d'un moyen permettant d'effectuer des millions de tests par seconde, et surtout de décider pour chacun d'eux si le résultat est correct ou non. Le test doit donc être pratiqué en liaison avec une analyse permettant de sélectionner les cas adéquats ;
- cette même combinatoire empêche le retour d'expérience de jouer un rôle crédible : l'observation pendant des millions d'années du fonctionnement de millions d'exemplaires d'un logiciel ne couvrirait qu'une infime partie de l'espace d'entrée. De plus, le fonctionnement discontinu évoqué ci-dessus fait que des conditions similaires du processus physique contrôlé peuvent en fait activer des traitements différents ;
- toutes les fonctions exécutées par un programme (calcul de la sortie 1, calcul de la sortie 2, etc.) partagent des ressources matérielles et logiques (mémoire, processeur, etc.), de sorte qu'une erreur dans une fonction peut en faire défaillir une autre même si elles n'ont apparemment aucun traitement ni aucune variable en commun. Les méthodes basées sur l'étude de la propagation des défaillances au niveau fonctionnel sont donc non sûres en matière de logiciel, puisqu'elles négligent des canaux essentiels de propagation qu'il est par ailleurs en pratique impossible de modéliser ;
- enfin, il convient de noter pour ce qui concerne l'utilisation éventuelle de méthodes statistiques que, bien que très complexe et discontinu, le calcul réalisé par un programme est parfaitement déterministe : si l'on attribue la valeur d'exactitude 1 à une exécution donnant le résultat correct et 0 dans le cas contraire, l'exactitude d'une exécution est déterminée avant qu'elle ait lieu, par l'état des entrées. Elle a par conséquent selon les cas une espérance mathématique égale soit à 0 soit à 1.

Ce comportement est fort différent de celui par exemple du lancer d'une pièce de monnaie auquel on attribue 0 pour pile et 1 pour face : la valeur d'un lancer n'est pas déterminée avant qu'il ait lieu. Chaque lancer a une espérance mathématique égale, comprise entre 0 et 1 (0,5 si la pièce est équilibrée).

Ainsi, les valeurs d'exactitude des différentes exécutions d'un programme n'ont pas du tout la même distribution, au contraire des différents lancers d'une pièce. Cela interdit d'utiliser les théorèmes statistiques (limite centrée, lois des grands nombres, etc.) pour faire des études probabilistes les concernant.

Une autre source de difficultés provient des écarts irréductibles introduits lors de la conception du logiciel entre l'expression des besoins et le programme finalement réalisé. En effet, si l'on considère par exemple la conception d'un système de protection :

- le besoin initial résulte d'études d'accidents qui décrivent chacune des fonctions principales en quelques phrases, par exemple l'arrêt du réacteur lorsque la marge à l'ébullition est trop faible ;
- ce besoin est transmis aux équipes de contrôle-commande qui l'interprètent fonctionnellement : le calcul de la marge à l'ébullition en tous points du cœur nécessite de nombreux capteurs et un traitement complexe, ainsi que des recalages périodiques en fonction de l'usure du combustible. Ce recalage impose par exemple de prévoir des moyens d'interaction entre le programme et les opérateurs. De quelques pages, la description passe à des dizaines ;
- pour faire face aux pannes matérielles, les concepteurs du système de protection introduisent des redondances, donc des échanges d'informations entre voies redondantes et des votes. Cela nécessite des traitements supplémentaires dont certains sont « visibles », comme les votes, mais d'autres sont « enfouis » : protocoles de gestion des réseaux de communication entre ces voies, pilotes des cartes de communication, prise en compte des cas d'erreur, des asynchronismes, etc. La description de la conception atteint des milliers de pages.

Ainsi l'expression initiale du besoin ne décrit qu'une infime partie des fonctions du programme final, les autres provenant des choix de conception successifs. Cela ajoute une difficulté majeure à la réalisation des tests : décider si le résultat d'un test est correct ou non est une décision sujette à erreur, puisqu'il n'existe pas de spécification complète. L'approche dite des « spécifications formelles » vise à réduire cette difficulté. Elle consiste à décrire mathématiquement le besoin, de façon à pouvoir garantir que le programme final possède les propriétés requises par ces spécifications. Malheureusement, les formalismes utilisés sont peu compréhensibles par les automatismes et informaticiens industriels, et ces spécifications sont souvent plus volumineuses que le programme final (ou alors elles ne décrivent pas des aspects importants comme les interactions avec le matériel ou les relations temporelles entre différents programmes). Le problème de leur exactitude par rapport au besoin réel reste donc entier.

Évaluation technique indépendante

Malgré ces limites scientifiques et techniques, développer un logiciel sûr est possible à condition de respecter rigoureusement les quatre conditions suivantes, qui rendent sa réalisation très différente de celle d'un logiciel courant :

- faire simple, c'est-à-dire limiter au strict nécessaire les fonctions confiées au logiciel et l'organiser selon une structure simple, telle que la répétition infinie d'une séquence « lecture des entrées -> traitement -> émission des sorties » plutôt que selon un ensemble de processus communicants ;
- organiser de manière rigoureuse un processus de développement découpé en phases conclues par des revues formelles, et faire intervenir

des personnes différentes en développement et en vérification ;

- procéder à de multiples vérifications, notamment concevoir et réaliser des campagnes de tests pertinentes d'abord sur chacun des modules du programme, puis sur des assemblages de modules, puis enfin sur le programme complet dans sa configuration définitive ;
- prévoir dès la conception des dispositions, telles que la programmation défensive (abordée plus loin), pour rendre le programme aussi tolérant que possible à d'éventuels défauts qui subsisteraient malgré les dispositions d'évitement et d'élimination des erreurs décrites aux points précédents.

L'évaluation par l'IRSN intervient en aval de la réalisation du programme et de la documentation correspondante par le concepteur. Cette évaluation n'est pas une vérification ni une validation, car ces actions ont déjà été réalisées par l'exploitant et sont de sa responsabilité. Il ne s'agit pas de certifier un programme mais d'acquiescer une confiance objectivement justifiée en la capacité du logiciel à satisfaire les besoins de sûreté explicites et implicites de la centrale au moyen d'analyses techniques et d'un dialogue avec le constructeur.

L'évaluation débute par l'examen des procédures et des plans qualité. Ceux-ci doivent être conformes à l'état de l'art et aux exigences réglementaires pour définir un cadre de travail propice au développement d'un produit correct. Ces exigences incluent des actions de vérification après chaque étape, et l'indépendance des équipes de vérification par rapport à celles de conception.

Cependant, comme on l'a vu, la plus grande partie du logiciel ne résulte pas directement des exigences initiales, mais est ajoutée lors des étapes de conception pour satisfaire des besoins résultant de décisions prises aux étapes précédentes. Le programme final n'est pas le résultat d'un processus de fabrication déterministe, ces décisions humaines étant des choix parmi les possibilités imaginées par le concepteur, sujettes à erreurs et à omissions. L'examen des procédures est donc nécessaire mais non suffisant.

L'évaluation technique doit également inclure l'examen des documents de conception, puisqu'ils ont pour objet de décrire et de justifier les choix faits à chaque étape. Mais ces documents n'indiquent que les choix qui ont été jugés importants par leur auteur, car il est impossible en pratique de décrire chaque détail du programme. L'évaluation doit par conséquent porter aussi sur le programme lui-même.

Pour illustrer la complémentarité entre ces différents points de vue, supposons qu'un programme contienne une instruction telle que le calcul du logarithme d'une variable, provoquant une erreur d'exécution si cette variable est négative ou nulle. Cette menace peut être écartée en prouvant que dans tous les cas la variable est strictement positive lorsque l'instruction en question est exécutée.

Mais cette preuve peut être impossible à apporter pour des raisons de complexité et d'indécidabilité⁽¹⁾. Dans un tel cas, le concepteur peut utiliser la « programmation défensive », c'est-à-dire par exemple tester la variable juste avant le calcul du logarithme, et, si elle est négative ou nulle, placer la sortie dans une position prédéfinie dite « sûre » (par exemple déclencher l'arrêt du réacteur). Selon le rôle de la sortie considérée (arrêt du réacteur, injection de sûreté, etc.), il peut exister ou non une position prédéfinie, sûre dans tous les états du réacteur. L'évaluateur doit donc considérer de multiples aspects (programme, documents de conception, actions de vérification faites, processus nucléaire, etc.) pour élaborer son avis.

L'indépendance de l'évaluateur est indispensable parce que le développement d'un programme est une activité humaine sujette à erreur, parce que la vérification ne peut pas être automatique ni complète puisque le besoin initial exprimé est incomplet et informel. La nécessaire vérification déjà effectuée par le constructeur est donc orientée par son bagage technique et sa culture industrielle, tout comme la conception qu'il a effectuée, ce qui rend indispensable une contre-expertise technique indépendante.

Besoin de R&D

Les problèmes de complexité, de non-continuité, d'indécidabilité et d'absence de spécification complète se traduisent par des erreurs dont quelques exemples sont présentés en **tableau 1**. La colonne de droite rappelle des évidences qui sont malheureusement souvent oubliées. Tous ces cas concernent des systèmes développés au minimum sous assurance qualité, et souvent avec de fortes exigences de sûreté, ce qui montre encore une fois que le respect des procédures ne garantit pas l'exactitude du programme final. L'évaluation technique de ce dernier est indispensable, mais ne peut guère être efficace en l'absence d'outils : il serait très présomptueux de vouloir repérer et comprendre les innombrables cas d'exécution d'un programme réaliste sans aide. De plus, la difficulté du problème s'accroît sans cesse car la taille des logiciels des systèmes de protection augmente d'un facteur 10 à chaque génération, et des technologies de plus en plus complexes comme le multitâche⁽²⁾ sont introduites.

Un effort de R&D soutenu est donc essentiel pour bénéficier des meilleures solutions pratiques issues des avancées de la recherche scientifique.

Travaux de R&D

Les travaux de recherche et développement en informatique sont légion, mais ils sont consacrés dans la plupart des cas à des aspects méthodologiques assez superficiels visant à améliorer la productivité des

Fait	Leçon tirée
Échec du premier tir d'Ariane 5, à cause d'une petite erreur du programme de la centrale inertielle. La perte totale de contrôle a obligé à détruire le lanceur en vol.	« Le diable est dans les détails ». Des détails minuscules, invisibles aux niveaux spécification et conception générale, peuvent faire échouer le système complet.
Panne du système de réservation de la SNCF. Le programme en cause fonctionnait depuis 12 ans.	Le retour d'expérience ne valide pas un logiciel.
Panne d'un réseau de téléphonie mobile, malgré l'utilisation d'équipements redondants à haute disponibilité.	La redondance du matériel ne protège pas contre les erreurs du logiciel.
Plusieurs personnes tuées par des surdoses massives délivrées par l'accélérateur médical Thérac 25.	Même si un programme n'est faux que dans quelques rares cas, ceux-ci peuvent se produire.
Un « ver », sorte de virus informatique, met hors service pendant plusieurs heures le panneau d'affichage de sûreté de la centrale de Davis-Besse.	Utiliser des technologies grand public (PC, Windows, SQL, TCP-IP...) dans des systèmes de sûreté les expose à d'innombrables attaques, même quand ils sont réputés isolés d'Internet.
Un constructeur rappelle 680 000 voitures à cause de problèmes dans le contrôle du freinage, et décide d'enlever 600 fonctions logicielles inutiles.	Ajouter des fonctions peu utiles compromet la sûreté du système, même si elles sont réputées sans rapport avec les fonctions de sûreté.

Tableau 1 : Exemples d'erreurs et leur interprétation.

équipes de programmeurs sans s'attaquer au problème de la vérification, dont les difficultés scientifiques et techniques font que le moindre progrès nécessite des travaux longs et difficiles.

Deux pistes se distinguent toutefois tant par leurs objectifs que par les résultats récemment obtenus et les perspectives ainsi ouvertes : il s'agit de l'analyse statique et de l'évaluation de la couverture des tests.

L'**analyse statique** consiste à examiner les instructions du programme sans l'exécuter, soit manuellement soit à l'aide d'un analyseur comme un outil logiciel, pour en extraire des informations valides dans un grand nombre de cas d'exécution, idéalement dans tous les cas possibles. Cette approche vise à être plus générale que celle qui consiste à réaliser des tests, qui ne fournissent d'information que pour les seules exécutions effectivement réalisées.

Ces outils ont longtemps été limités à des analyses rudimentaires telles que le comptage de lignes, le calcul du taux de commentaires ou encore la vérification de règles de programmation élémentaires comme l'utilisation systématique des parenthèses dans les formules arithmétiques, l'organisation des constructions « *if then else* » imbriquées, le nommage des variables, etc. Ces renseignements témoignent d'un certain niveau de qualité, mais ne sont pas directement corrélés à la présence d'erreurs dans le logiciel, car ils se limitent à la forme du programme sans analyser sa fonctionnalité, ou « sémantique ».

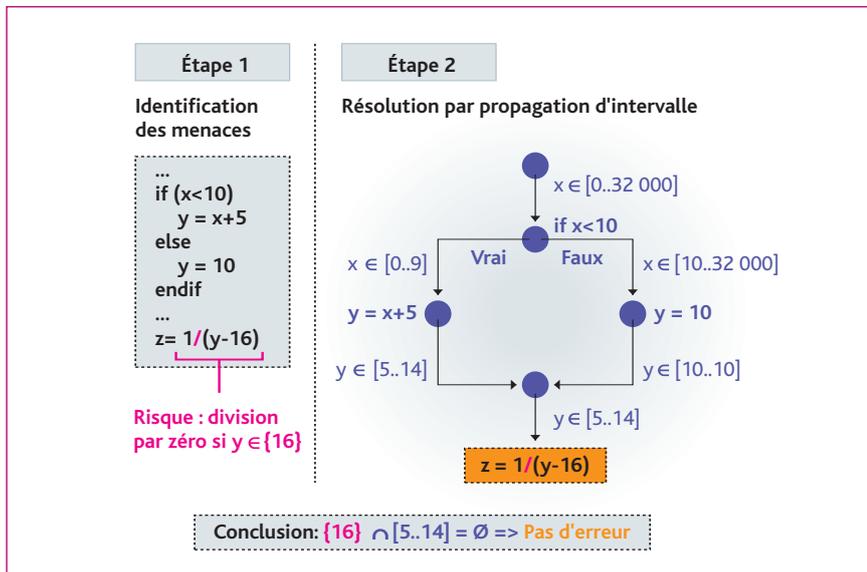


Figure 1 : Illustration de l'interprétation abstraite.

Des principes d'analyse sémantique, à très fort contenu mathématique, ont été élaborés depuis une trentaine d'années, par exemple la logique de Hoare [1] ou l'interprétation abstraite [2]. Au-delà des exemples académiques, leur application à de véritables programmes demande d'innombrables raffinements mathématiques, eux-mêmes très difficiles à programmer dans les outils d'analyse. C'est donc seulement depuis une dizaine d'années que l'analyse statique « sémantique » permet progressivement de traiter des programmes réels.

Supposons que l'on veuille vérifier que les opérations de division présentes dans un programme ne provoqueront jamais de défaillance à l'exécution pour cause de diviseur nul. L'interprétation abstraite, grossièrement illustrée par la **figure 1**, consiste à représenter la totalité des cas en ne manipulant que quelques informations, qui les enveloppent au sens de l'abstraction choisie. Dans cet exemple, l'abstraction consiste à représenter chaque variable par un intervalle contenant toutes les valeurs possibles. Au début du programme, l'intervalle est défini par les plages de variation des entrées (0 à 32 000 dans cet exemple), puis il est propagé en tenant compte de l'action de chaque instruction. Arrivé au dénominateur d'une opération de division, il suffit alors de vérifier si l'intervalle propagé contient ou non la valeur 0.

Toutefois, l'analyse ne peut en général pas conclure aussi aisément, notamment parce que les boucles posent des problèmes de complexité et de décidabilité redoutables⁽³⁾.

De façon plus pratique, l'abstraction par intervalles montrée ici n'est pas très performante : soit une variable A dans l'intervalle $[-5..5]$ et $B = 1 - A$, alors B est dans $[-4..6]$. Si plus loin une division par $A + B$ est effectuée, l'analyseur calculera l'intervalle de $A + B$, soit $[-9..11]$ et ne pourra exclure la possibilité d'une division par zéro. Or, $A + B$ est toujours égal à 1 d'après la définition de B , et dans ce cas l'analyseur a donc émis une fausse alarme⁽⁴⁾.

Des analyses plus sophistiquées, tenant compte par exemple des relations linéaires entre variables, sont nécessaires pour affiner les diagnostics dans de tels cas [3], toute la difficulté étant de trouver un compromis entre la précision de l'abstraction (enveloppe aussi proche que possible des valeurs réelles) et la complexité de son calcul (en temps et en mémoire nécessaires).

- (1) Un problème est décidable au sens de la calculabilité s'il existe une suite fixée d'opérations mécaniques qui, dans tous les cas, donne le résultat en un nombre fini d'étapes. Ainsi le problème de l'existence de solutions réelles aux équations du second degré à une inconnue à coefficients réels est décidable : quels que soient les coefficients, le calcul du discriminant permet de répondre. Par contre l'existence de solutions entières aux équations polynomiales quelconques à coefficients entiers est indécidable de ce point de vue.
- (2) Il s'agit d'exécuter plusieurs programmes en même temps sur le même calculateur, ce qui pose de difficiles problèmes de synchronisation.
- (3) Soit par exemple un petit programme (correspondant au problème dit « Conjecture de Syracuse ») qui reçoit un entier positif X , et boucle sur l'instruction suivante : « si X est impair, remplacer X par $3X + 1$, sinon remplacer X par $X/2$ ». La boucle se termine quand X atteint la valeur 1, si cela se produit. Une valeur initiale égale à 3 conduit ainsi à la séquence 3, 10, 5, 16, 8, 4, 2, 1. Ce programme atteint-t-il 1 pour toute valeur initiale de X ?
- (4) Cela ne pose pas de problème de sûreté, car l'imprécision va toujours dans le sens de la fausse alarme. Toutefois, ces situations d'incertitude doivent être revues manuellement une à une pour conclure, ce qui peut enlever tout intérêt à l'outil si elles sont trop nombreuses.

Ainsi l'analyse statique progresse constamment, au prix d'efforts constants sur la théorie et sur la programmation des outils, et malgré les limites infranchissables qui interdisent à un outil automatique de pouvoir vérifier tous les programmes : des outils comme ASTRÉE [4] ou POLYSPACE VERIFIER (de la société Polyspace Technologies) permettent de vérifier l'absence d'erreurs d'exécution standard telles que les divisions par zéro, l'accès à un tableau en dehors des bornes, etc. D'autres, comme CAVEAT [5], permettent de prouver des propriétés définies par l'utilisateur. De tels outils sont utilisés dans des projets industriels ayant de forts enjeux de sûreté, par exemple chez Airbus [6].

L'IRSN utilise pour ses évaluations les outils disponibles dans le commerce tel que POLYSPACE VERIFIER, et mène des actions de R&D visant à développer des analyseurs plus spécifiques, par exemple :

- FLUCTUAT pour évaluer l'erreur maximale de calculs en virgule flottante [3] ;
- PPC pour construire à partir du programme étudié un autre programme limité à certains aspects (par exemple le calcul d'une variable particulière) et ayant exactement la même sémantique pour ces aspects ;
- CHRONOSCOPE pour analyser les relations entre les différentes tâches exécutées en parallélisme apparent sur un même processeur : échanges d'informations, attentes d'événements internes ou externes, priorités, etc.

La mesure de la couverture des tests constitue l'autre piste de R&D prometteuse. En effet, les problèmes de complexité et de décidabilité interdisent définitivement à un outil automatique de pouvoir vérifier tous les programmes, et par conséquent l'analyse statique à elle seule ne peut pas résoudre complètement le problème : le test demeure indispensable. Puisque l'exhaustivité est impossible à cause du trop grand nombre de cas, les tests doivent être choisis « aussi bien que possible » pour couvrir les aspects les plus importants.

Dans le cas des tests « structurels » (encore appelés « boîtes blanches », parce que basés sur la connaissance de la structure du programme), de nombreux critères de couverture existent : exécuter au moins une fois chaque instruction, chaque cas des « *if..then..else* », accéder au moins une fois à chaque élément des tableaux, etc. : le concepteur des tests doit choisir la combinaison de critères la mieux adaptée à la structure du programme et au style de programmation, ce qui contribue à la difficulté de la vérification indépendante. Aucune combinaison de ces critères ne pouvant couvrir toutes les erreurs possibles, ces tests structurels doivent être complétés par des tests « fonctionnels », c'est-à-dire basés sur les exigences fonctionnelles du programme sans tenir compte de la manière dont il est réalisé. Ces exigences étant informelles, il n'existe pas de critère reconnu pour ce type de test, et l'approche pratique consiste à « couvrir au mieux la spécification », ce qui pose un gros problème d'évaluation de la suffisance des tests.

Pour combler ce vide, l'IRSN a proposé deux critères de couverture fonctionnelle applicables aux logiciels critiques, et une méthode de mesure de cette couverture utilisant l'outil GATel du CEA [7].

Les expérimentations menées montrent que la méthode passe correctement à l'échelle, et d'autre part un important constructeur a récemment proposé, dans le cadre du développement d'un système de protection de centrale nucléaire, une approche basée sur des idées similaires à l'un de nos critères. Ces faits nous confortent dans l'idée que des méthodes de sélection des tests fonctionnels offrant des garanties de couverture plus formelles que celles utilisées actuellement sont envisageables à moyen terme.

Nouveaux défis

Les méthodes de développement des logiciels évoluant rapidement, de nouveaux défis à la sûreté apparaissent. Un exemple est présenté ci-après, il s'agit des approches « COTS » (*component off the shelf*, composant sur étagère) et *proven in use* (prouvé par l'expérience).

Les COTS sont des parties de programme préexistantes, incluses avec peu ou pas de modification dans un programme en cours de développement, dans un capteur intelligent, etc. La difficulté survient quand l'intégrateur du COTS prend prétexte de son utilisation antérieure réussie pour ne pas tester suffisamment son comportement dans son nouveau contexte.

Or, quelle que soit la provenance industrielle d'une partie du programme, elle partage le microprocesseur et la mémoire avec les autres parties, et interagit donc avec elles selon des possibilités dont la multiplicité empêche de les décrire toutes dans la documentation du COTS, quand elle existe.

Puisqu'il est impossible de tester tous les cas du COTS lors de son développement, sa vérification initiale n'a pu concerner qu'une petite partie de ses comportements, et il est illusoire et dangereux d'espérer que la nouvelle utilisation activera exactement les mêmes cas. Ainsi, l'utilisation de COTS peut réduire les coûts de développement, mais ne peut pas se dispenser de tester les parties réutilisées dans leur nouveau contexte.

Pis encore, l'approche *proven in use* est dirigée par la croyance simpliste (et erronée) que l'exploitation réussie d'un programme dans un ou plusieurs contextes donnés prouve qu'il est correct dans tous les cas, et élimine le besoin de vérification.

Les méfaits de ces méthodes sont illustrés par la panne du système de réservation de la SNCF (après 12 ans de bon fonctionnement du programme erroné en cause) ou encore par l'échec d'Ariane 501 (le programme de la centrale inertielle dans son ensemble était un COTS

provenant d'Ariane 4 ; l'erreur était masquée dans l'ancien contexte, mais pas dans le nouveau). La situation est pire encore quand ces méthodes sont appliquées de façon irresponsable dans des domaines à fort enjeu de sûreté : plusieurs personnes ont été tuées à cause d'erreurs dans des programmes de l'accélérateur médical Thérac 25, programmes provenant d'autres appareils de la gamme Thérac [8].

L'exemple d'Ariane 5, où l'erreur était dans un détail de programmation invisible au niveau des exigences fonctionnelles et même dans les premiers niveaux de conception, montre que le détail des interactions à prendre en compte pour utiliser un COTS en toute sûreté est extrêmement fin et totalement incompatible avec les approches basées sur la réutilisation sans test ou sur le retour d'expérience macroscopique.

De telles méthodes, bien que fort critiquables, permettent de réduire les coûts de conception et de réalisation, c'est-à-dire ceux qui ne tiennent pas compte des défaillances. Elles ont pour cette raison un grand succès dans les applications grand public, et elles ont propagé dans toute l'industrie du logiciel la culture dite du *quick and dirty* (vite et salement). Elles sont par ailleurs difficiles à combattre, car elles sont accompagnées de « justifications » qui, bien que dépourvues de toute base théorique, sont présentées comme si elles en avaient une.

■ Conclusion

Pour émettre un avis technique sur des logiciels de sûreté, problème difficile comme on vient de le voir mais cependant incontournable, l'IRSN procède par échantillonnage sur les trois aspects suivants :

- le cadre de travail du constructeur (plan qualité, cycle de développement, etc.), vis-à-vis des exigences réglementaires et de l'état de l'art ;
- la cohérence mutuelle des documents produits, et leur conformité avec ce qui était prévu dans le cadre de travail ;
- la conformité du logiciel à cette documentation et la suffisance de la vérification effectuée par le constructeur.

Pour faire face aux défis qui s'annoncent, les équipes d'évaluation ont besoin du soutien d'actions continues de recherche et développement. Cet effort, mené en coopération avec les laboratoires académiques, permet aux évaluateurs non seulement d'obtenir des outils mais également de maintenir à jour leurs connaissances scientifiques et techniques sans lesquelles les analyses ne pourraient être pertinentes.

Réciproquement, l'évaluation au quotidien de véritables logiciels d'installations nucléaires est indispensable pour orienter les actions de recherche et développement, confronter leurs résultats aux véritables problèmes pratiques, et ainsi faire fonctionner à plein la synergie entre expertise et recherche.

Il ne faut cependant pas perdre de vue que la nature massivement combinatoire du comportement d'un programme rend toute vérification ou évaluation inefficace si rien ne vient limiter sa complexité. Or dans de nombreux secteurs industriels la concurrence conduit les fabricants à ajouter de nombreuses fonctions superflues qui font exploser la complexité alors que la pression économique les amène à adopter une conception bon marché et à supprimer des actions importantes de vérification.

Des argumentaires simplistes fondés sur les approches « composant sur étagère » et « preuve par l'expérience » sont invoqués pour justifier ces pratiques, mais les faits rappellent obstinément que si ces approches sont efficaces pour mettre rapidement et à bas coût sur le marché des produits grand public de qualité moyenne, elles ne peuvent pas offrir une quelconque garantie de sûreté. L'utilisation sûre de « produits sur étagère » réclame beaucoup plus d'effort technique.

L'industrie nucléaire fait de plus en plus appel à des solutions industrielles standard et donc n'est pas à l'abri d'une telle tentation. Une action vigilante des autorités de sûreté est donc nécessaire pour vérifier que les logiciels critiques restent à des niveaux de complexité permettant encore à la vérification par le fabricant et à l'évaluation indépendante (sur de réelles bases techniques) de garantir un niveau de sûreté acceptable.

Références

- [1] HOARE, C. A. R., « An Axiomatic Basis for Computer Programming », http://en.wikipedia.org/wiki/Communications_of_the_ACM, *Communications of the ACM*, 12 (10), 576–585, 1969.
- [2] COUSOT, P., COUSOT, R., « Static Determination of Dynamic Properties of Programs », *Proceedings of the Second International Symposium on Programming*, Dunod, 106-130, 1976.
- [3] GOUBAULT, E., PUTOT, S., « Weakly Relational Domains for Floating-Point Computation Analysis », NSAD, 2005.
- [4] COUSOT, P. & R. et al., « The ASTRÉE Analyzer », *ETAPS 05, 2005*.
- [5] RAGUIDEAU, J. et al., « CAVEAT : A Tool for Software Validation », DSN, 2002.
- [6] TRAVERSE, P. et al., « Airbus Fly-by-Wire: A Total Approach to Dependability », WCC, 2004.
- [7] GASSINO, J., RÉGNIER, P. (IRSN) ; MARRE, B., BLANC, B. (CEA), « Criteria and Associated Tool for Functional Test Coverage of Safety Critical Software », NPIC, 2004.
- [8] LEVESON, N., « An Investigation of the Therac-25 Accidents », *IEEE Computer*, Vol. 26, No. 7, 18-41, 1993.

4.2

Le vieillissement sous irradiation des cuves de réacteurs nucléaires à eau sous pression

Dans les centrales électronucléaires à eau sous pression, la chaleur est produite par la fission des noyaux lourds (uranium, plutonium) constitutifs du combustible placé dans le cœur du réacteur. Ce cœur formé par l'ensemble des assemblages de combustible est contenu dans la cuve du réacteur (*figure 1*). La cuve est un composant de grande dimension et son poids à vide atteint 300 à 400 tonnes, selon la puissance du réacteur (900 MWe, 1 300 MWe, 1 450 MWe). Elle est constituée de pièces forgées en acier faiblement allié de nuance 16 MND5 soudées entre elles et protégées de la corrosion par un revêtement mince en acier inoxydable déposé par soudage sur la surface intérieure. L'épaisseur de la partie cylindrique de la cuve atteint 200 mm.

Le cœur du réacteur est refroidi par l'eau du circuit primaire principal dont la pression est égale à 155 fois la pression atmosphérique. Cette eau entre dans la cuve à une température de l'ordre de 290 °C et en ressort à environ 325 °C en évacuant l'énergie produite par le cœur. La cuve d'un réacteur à eau sous pression (REP) est donc soumise aux conditions de pression et température du circuit primaire principal, ainsi qu'à l'irradiation neutronique engendrée par les réactions nucléaires qui se produisent dans le cœur. Cette cuve constitue une partie de la deuxième barrière de confinement des éléments radioactifs et son rôle pour la sûreté de l'installation est primordial. Son intégrité doit donc être garantie et démontrée dans toutes les situations de fonctionnement et pour toute la durée de son exploitation. À l'inverse d'autres appareils du circuit primaire, tels les générateurs de vapeur, le remplacement d'une cuve n'est pas une opération envisagée par EDF. La durée de vie de l'installation est en conséquence intrinsèquement liée à la justification de l'aptitude à l'emploi de la cuve.

Les effets de l'irradiation sur les caractéristiques mécaniques du matériau de la cuve et leur enjeu

La partie cylindrique de la cuve qui se situe au niveau du cœur est soumise à l'irradiation neutronique résultant des réactions nucléaires qui se produisent au sein de ce cœur. Ces réactions se traduisent notamment par l'émission, à l'extérieur du cœur, de neutrons dont l'énergie peut atteindre

plusieurs millions d'électrons-volts (MeV). Après avoir traversé les structures en acier inoxydable encadrant le cœur et la lame d'eau en contact avec la surface intérieure de la cuve, les neutrons qui n'ont pas été absorbés lors du parcours atteignent l'acier de la cuve. Ces neutrons entrent en collision avec les atomes de l'acier de la cuve et peuvent en modifier la position initiale en les déplaçant sous l'effet du choc, et créer ainsi des défauts ponctuels de types lacunes et/ou interstitiels. Compte tenu de la température de fonctionnement voisine de 290 °C, ces défauts ponctuels vont se recombinaison et s'annihiler rapidement dans leur grande majorité. Cependant, un certain nombre d'entre eux pourront se regrouper en configuration plus stable et subsister, créant ainsi des désordres dans le réseau cristallin de l'acier. Ces désordres constituent le dommage d'irradiation en s'accumulant au fil du temps.

Comme tout désordre dans le réseau cristallin des aciers, le dommage d'irradiation s'oppose aux mouvements des dislocations du réseau et provoque une augmentation de la dureté ainsi qu'une augmentation des caractéristiques de traction : la limite d'élasticité ($R_p 0,2$) et, dans une moindre mesure, la charge à la rupture (R_m). Le dimensionnement de l'épaisseur de la cuve qui repose sur le respect d'une contrainte admissible définie à partir des caractéristiques de traction de l'acier n'est donc pas remis en cause par le dommage d'irradiation. Par contre, l'augmentation des caractéristiques de traction s'accompagne aussi d'une fragilisation du matériau. Cette fragilisation se manifeste par une diminution de la ténacité de l'acier de cuve, c'est-à-dire que la contrainte critique sous laquelle une rupture fragile (*i.e* rupture brutale, avec faible dissipation d'énergie) peut se déclencher à une température donnée diminue avec l'importance de l'irradiation, donc avec la durée d'exploitation du réacteur. En d'autres termes, cette fragilisation conduit à une augmentation de la température de transition qui sépare le comportement fragile de l'acier du comportement ductile. L'hypothèse de la rupture de la cuve n'ayant pas été retenue à la conception des réacteurs REP pour la définition et le dimensionnement des systèmes de sauvegarde, la fragilisation due à l'irradiation ne doit en

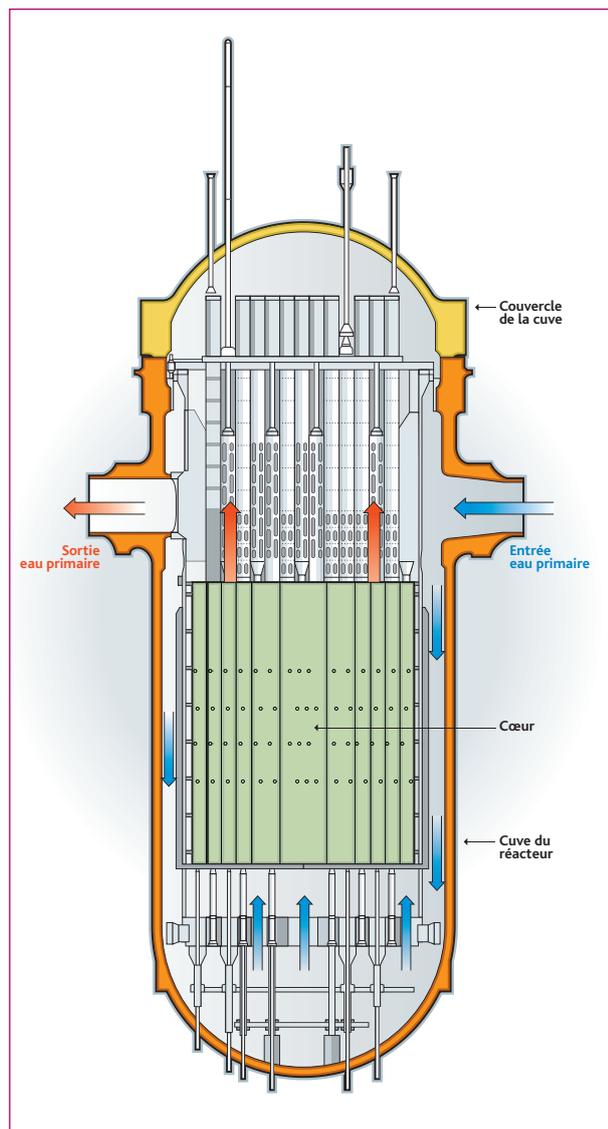


Figure 1 : Coupe de la cuve d'un réacteur de 900 MWe.

aucun cas conduire à un risque de rupture de la cuve lors d'un transitoire sollicitant. Cette fragilisation sous irradiation doit donc, pour rester acceptable, conduire, jusqu'à la fin de la vie du réacteur, à une ténacité du matériau suffisante pour permettre la justification de la résistance à la rupture brutale de la cuve en toute situation de fonctionnement, compte tenu de marges de sécurité adéquates. Le haut niveau de sûreté exigé pour la cuve n'est plus garanti si tel n'est plus le cas. Le dommage d'irradiation peut alors entraîner la mise à l'arrêt définitif du réacteur, à moins de pratiquer *in situ* une restauration totale ou partielle des caractéristiques initiales par traitement thermique. Un tel traitement, de mise en œuvre délicate, n'est cependant pas envisagé à ce jour.

Le phénomène de fragilisation sous irradiation étant connu depuis plusieurs décennies, l'irradiation et l'évolution des caractéristiques mécaniques de l'acier des cuves font l'objet, depuis l'origine, d'un programme de surveillance d'irradiation (PSI) pour chacune des cuves des réacteurs français. Des éprouvettes, disposées à l'intérieur des cuves, sont prélevées à cette fin et testées régulièrement afin de mesurer l'évolution des caractéristiques mécaniques de l'acier avec l'irradiation.

De même, le rôle fragilisant de certains éléments résiduels de l'acier comme le cuivre (Cu) et le phosphore (P) était connu dès le début des années 1970. Les teneurs de ces éléments, ainsi que celle du nickel (Ni) qui s'est avéré avoir un effet fragilisant au-delà de 1 %, ont pu être limitées dans les spécifications d'approvisionnement des matériaux pour les cuves des réacteurs français. Cependant, ces améliorations métallurgiques ont été faites progressivement et il en résulte des écarts notables de sensibilité à la fragilisation entre les différentes cuves, les premières cuves du palier 900 MWe étant en général les moins bonnes de ce point de vue. De plus, l'épaisseur de la lame d'eau qui sépare le cœur de la surface intérieure de la cuve est plus faible pour les cuves des réacteurs 900 MWe que pour celles des réacteurs de 1 300 MWe ou 1 450 MWe. L'irradiation de l'acier y est en conséquence plus importante et le bénéfice des gestions de cœur optimisées, introduites à partir de 1994 afin de diminuer l'irradiation reçue par les cuves, est d'un effet moindre pour les premières cuves mises en service.

Les mécanismes de l'action fragilisante de certains éléments constatée empiriquement dans un premier temps commencent à être approchés grâce aux techniques d'investigation par microsonde ionique et à l'amélioration des moyens de simulation numérique. Cependant, ces mécanismes ne sont pas encore pleinement maîtrisés et les outils permettant de passer de l'étude du comportement à l'échelle atomique au comportement à l'échelle macroscopique d'une cuve ne sont pas encore disponibles.

Pour toutes ces raisons, la justification de l'aptitude au service des cuves du palier 900 MWe est examinée régulièrement en tenant compte des

résultats obtenus dans le cadre du PSI, mais aussi d'éléments nouveaux résultant d'expertises, d'études et de programmes de recherche importants dont certains sont toujours en cours. Ces réexamens représentent l'aboutissement de travaux toujours très conséquents tant de la part d'EDF pour présenter la synthèse de ses travaux de justification que pour l'IRSN qui en effectue l'analyse. Le premier de ces réexamens remonte à 1987. La dernière mise à jour qui justifie explicitement une durée de vie des réacteurs à 40 ans a été instruite par l'IRSN au cours de l'année 2005 pour aboutir à une présentation devant la Section permanente nucléaire de la Commission centrale des appareils à pression les 18 octobre et 13 décembre 2005.

La justification de la tenue en service des cuves des réacteurs de 900 MWe – méthode

La justification apportée pour démontrer la tenue des cuves pendant les 40 ans de leur durée de vie prévisionnelle consiste à vérifier qu'un défaut préexistant ou hypothétique, proche de la paroi interne de la cuve, présente des coefficients de sécurité vis-à-vis d'une rupture brutale en toutes situations. Les situations envisagées incluent bien sûr l'exploitation normale de l'installation mais prennent également en compte les situations accidentelles. Les situations les plus pénalisantes vis-à-vis de cette démonstration sont notamment les chocs thermiques en pression correspondant aux accidents de petites brèches primaires, au cours desquels de l'eau froide peut arriver en contact avec la paroi interne de la cuve qui est encore chaude et toujours sous pression. La démonstration de sûreté est basée sur le calcul des marges vis-à-vis du risque de rupture fragile et ductile qui s'expriment par le coefficient de sécurité C_s défini par :

$$C_s = K_{IC}/K_{CP}$$

où K_{IC} représente la ténacité du matériau de la cuve, et K_{CP} le facteur d'intensité de contrainte qui caractérise le champ des contraintes au niveau du défaut considéré sous le chargement donné. Pour toutes les situations de fonctionnement et en tout point de la structure, il doit être vérifié que les coefficients de sécurité $C_s = K_{IC}/K_{CP}$ sont supérieurs aux valeurs minimales requises par l'administration.

Le défaut pris en compte dans cette justification est positionné dans la zone d'irradiation maximale de la cuve (point chaud) et présente des dimensions supérieures au seuil de détection de la méthode par ultrasons utilisée pour l'inspection en service des cuves.

L'évaluation de la ténacité du matériau est basée sur une courbe de référence de ténacité $K_{IC} = f(T-RT_{NDT})$ codifiée aujourd'hui dans les règles de conception et de construction des matériels mécaniques des îlots nucléaires REP (code RCCM) (*figure 2*).

Cette courbe constitue une borne inférieure des résultats expérimentaux obtenus dans le cadre du programme HSST (*Heavy Section Steel*

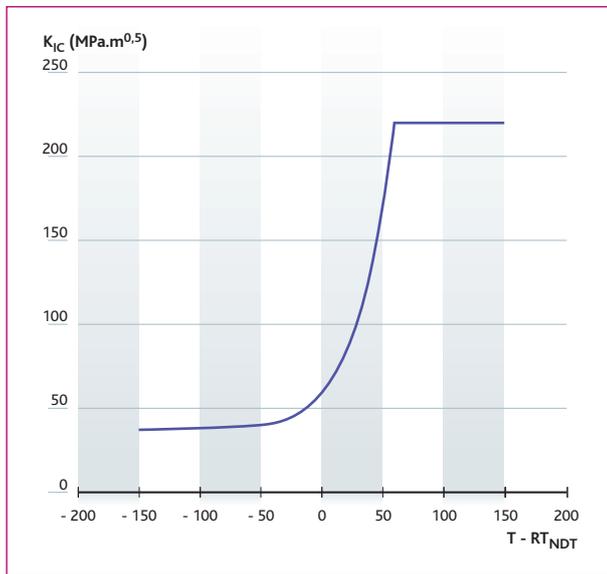


Figure 2 : Courbe de ténacité d'un acier de cuve typique.

Technology) mené aux États-Unis. La ténacité donnée par cette courbe est fonction non pas de la température de fonctionnement T au moment du transitoire considéré, mais de la position relative de la température de fonctionnement par rapport à la température de transition fragile-ductile du matériau, dite température de référence. Cette température de référence (RT_{NDT}) est la température de référence de ductilité nulle mesurée à partir d'essais mécaniques de rupture par choc (essais PELLINI + essais de résilience CHARPY V).

Pour obtenir la ténacité en fin de vie de la cuve en tenant compte de la fragilisation en cours de fonctionnement, la méthode retenue consiste à ajouter à la RT_{NDT} à l'état initial de l'acier de la cuve, le décalage de cette RT_{NDT} lié à l'irradiation :

$$RT_{NDT} \text{ en fin de vie} = RT_{NDT} \text{ en début de vie} + \Delta(RT_{NDT})$$

La RT_{NDT} initiale des viroles de cœur d'une cuve est mesurée en cours de fabrication. Le décalage de la température de transition lié à l'irradiation dans le temps, $\Delta(RT_{NDT})$, est évalué à partir de formules de prévision empiriques qui font intervenir la fluence et les teneurs des principaux éléments favorisant la fragilisation sous irradiation de l'acier de la cuve : phosphore (P) – cuivre (Cu) – nickel (Ni). La fluence (F) qui se mesure en n/cm^2 correspond à la quantité maximale de neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV reçue par unité de surface de la cuve au cours de la durée de fonctionnement considérée. L'estimation de la fragilisation sous irradiation retenue dans le cas des aciers de cuve français a été déterminée initialement à partir de résultats expérimentaux obtenus avec des éprouvettes irradiées dans des réacteurs expérimentaux. Puis, en cours d'exploitation du parc, des essais ont été réalisés sur des éprouvettes placées dans les réacteurs.

Cette estimation est donnée pour l'acier 16MND5 par la formule de fragilisation sous irradiation supérieure (formule FIS) suivante :

$$\Delta RT_{NDT} (^\circ C) = 8 + [24 + 1537 (P - 0,008) + 238 (Cu - 0,08) + 191Ni^2 Cu].[F/10^{19}]^{0,35}$$

où les teneurs des éléments de l'acier sont exprimées en pourcentage massique.

Une autre formule empirique de même type est appliquée pour le métal fondu des soudures :

$$\Delta RT_{NDT} (^\circ C) = 22 + [13 + 823 (P \geq 0,008) + 148 (Cu - 0,08) + 157Ni^2 Cu].[F/10^{19}]^{0,45}$$

La fluence maximale reçue par les cuves après 40 ans d'exploitation, évaluée à la conception à $5,5 \cdot 10^{19} n/cm^2$, sera en fait un peu plus élevée : la valeur prévue actuellement est, pour les cuves des réacteurs de 900 MWe, de $6,5 \cdot 10^{19} n/cm^2$.

Une vérification de la fragilisation réelle de l'acier de cuve est faite en comparant périodiquement la fragilisation effective mesurée sur des éprouvettes irradiées à la fragilisation prévisionnelle donnée par les formules empiriques. Ces vérifications périodiques sont faites au moyen des éprouvettes du programme de surveillance de l'irradiation (PSI).

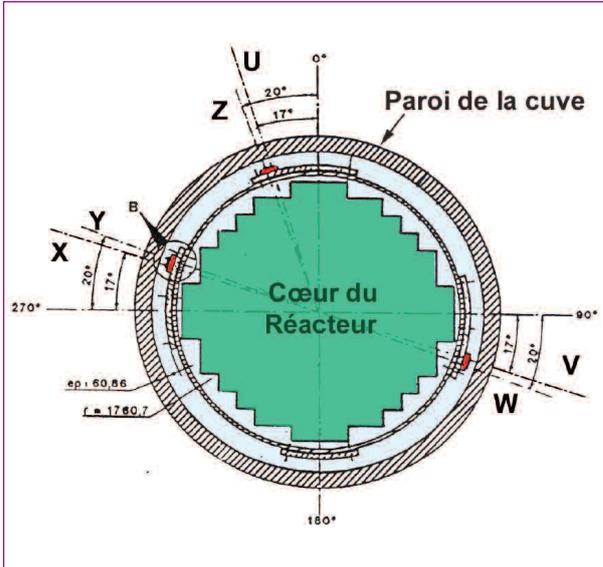
Le programme de surveillance de l'irradiation des cuves

La partie cylindrique des cuves, soumise à irradiation maximale, est constituée de viroles forgées assemblées par une soudure circulaire. Chacune des viroles fait l'objet lors de la fabrication d'une analyse chimique et d'une détermination de la RT_{NDT} à l'état initial à partir d'éprouvettes prélevées à l'extrémité inférieure de la virole. Connaissant la composition chimique de la virole et la fluence maximale d'irradiation pendant toute la vie du réacteur, la RT_{NDT} correspondant à la fin de vie de la virole est alors estimée en ajoutant à la RT_{NDT} initiale le décalage lié à l'irradiation donné par la formule empirique de prévision. Pour chaque cuve, la virole dont la RT_{NDT} en fin de vie est la plus élevée fait l'objet du prélèvement, à son extrémité inférieure, d'une série d'éprouvettes d'essais mécaniques qui seront insérées dans le réacteur avant sa mise en service, et qui seront prélevées périodiquement au cours de l'exploitation de la tranche. Ces éprouvettes constituent les éprouvettes du PSI : elles serviront à réaliser en laboratoire « chaud » des essais de résilience, de traction et de ténacité.

Ces éprouvettes sont disposées dans des capsules insérées dans le réacteur et réparties en périphérie du cœur à une distance plus proche du cœur que ne l'est la surface intérieure de la cuve.

Ces capsules sont ainsi soumises à un flux de neutrons plus important que la paroi de la cuve. Elles sont donc irradiées avec un facteur d'anticipation permettant de connaître à l'avance ce que deviendront les caractéristiques de l'acier de cuve.

4.2



CALENDRIER DE RETRAIT (source EDF)						
Capsules cuves 900 MWe CPY						
Repères des capsules	NI	U	V	Z	Y	X*
Temps de séjour en réacteur (an)	0	4	7	9	14	
Temps équivalent cuve (an)		11,2	19,5	28,1	39,1	

* Capsules de réserve en cours d'insertion en cuve.

Figure 3 : Emplacement des capsules dans un réacteur 900 MWe CPY. Fluence maximale reçue par les viroles de cœur 900 MWe situées aux azimuts 0° - 90° - 180° - 270°.

L'emplacement des différentes capsules et les périodes de prélèvement sont, ainsi que la durée équivalente de l'irradiation de la cuve pour chacune de ces différentes capsules, donnés par la figure 3. L'exploitation des éprouvettes d'essais mécaniques des différentes capsules permet, en particulier, de tracer des courbes de transition de résilience pour les différentes irradiations correspondant à chaque capsule (figure 4). La comparaison de ces courbes avec la courbe de transition à l'état initial permet de déterminer le décalage des températures de transition dû à l'irradiation (ΔT_{CV}). Ce décalage est repéré pour une valeur de résilience de 7 daJ/cm².

En adoptant l'hypothèse que $\Delta(RT_{NDT}) = \Delta T_{CV}$, le PSI permet de vérifier que la fragilisation mesurée par le décalage de température de transition de résilience ΔT_{CV} reste inférieure à la fragilisation prévisionnelle donnée par les formules empiriques.

L'essentiel des capsules des réacteurs de 900 MWe représentant 30 années d'irradiation ont aujourd'hui été extraites, ainsi que la moitié des capsules représentant 40 années. Les résultats obtenus ont été intégrés dans la dernière révision du dossier de justification.

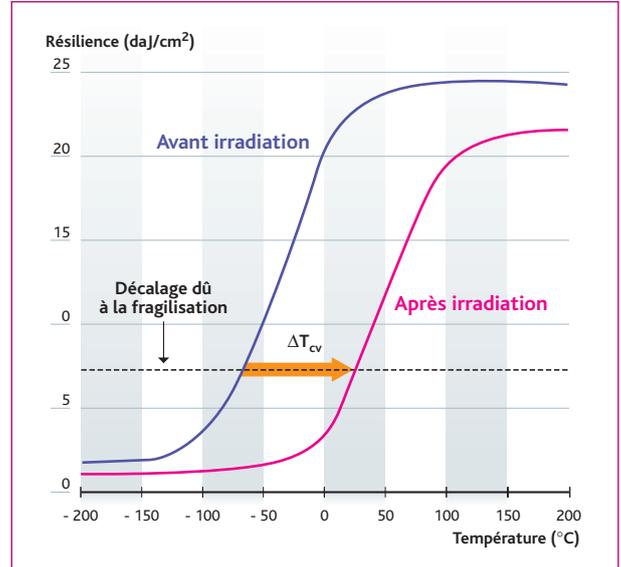


Figure 4 : Courbe de transition avant et après irradiation.

Sources d'incertitudes relatives aux hypothèses sous-jacentes à la méthode de prise en compte de la fragilisation sous irradiation

L'estimation des caractéristiques des matériaux en fin de vie des cuves repose sur une méthode indirecte qui fait intervenir trois étapes successives (figure 5) :

- la détermination de la RT_{NDT} initiale à l'aide de prélèvements réalisés à l'extrémité inférieure de la virole (en pied de virole) ;
- la prévision de la fragilisation à l'aide d'une formule empirique qui, rajoutée à la RT_{NDT} initiale, donne la RT_{NDT} après irradiation ;
- l'utilisation de la courbe de référence pour déterminer, à partir de la RT_{NDT} après irradiation, la ténacité (K_{1C}) applicable à la totalité de la zone de cœur irradiée des cuves.

Chacune de ces trois étapes présente des sources d'incertitudes et sous-tend des hypothèses dont les impacts sur le résultat final doivent être examinés soigneusement.

Représentativité de la RT_{NDT} initiale mesurée en pied de virole au quart de l'épaisseur

Les viroles de la zone de cœur des cuves sont réalisées par forgeage à partir de gros lingots obtenus en remplissant d'acier en fusion un moule appelé lingotière. Des ségrégations se forment dans le lingot du fait de la solidification progressive de l'acier à partir du fond de la lingotière, de sorte que la composition chimique de l'acier n'est pas totalement homogène entre le pied et la tête du lingot, et entre sa périphérie et son axe (figure 6). Ces différences de compositions chimiques subsistent dans la virole obtenue après les opérations de forgeage permettant d'obtenir

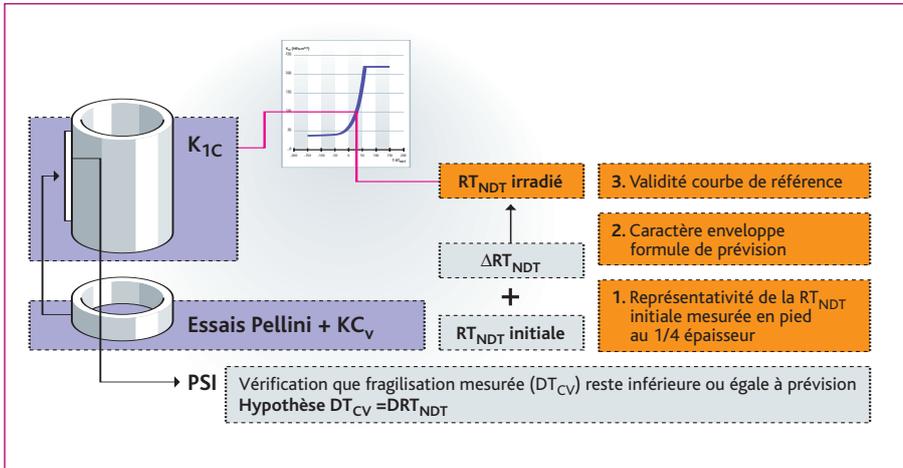


Figure 5 : Méthode d'évaluation de la fragilisation sous irradiation et hypothèses sous-jacentes.

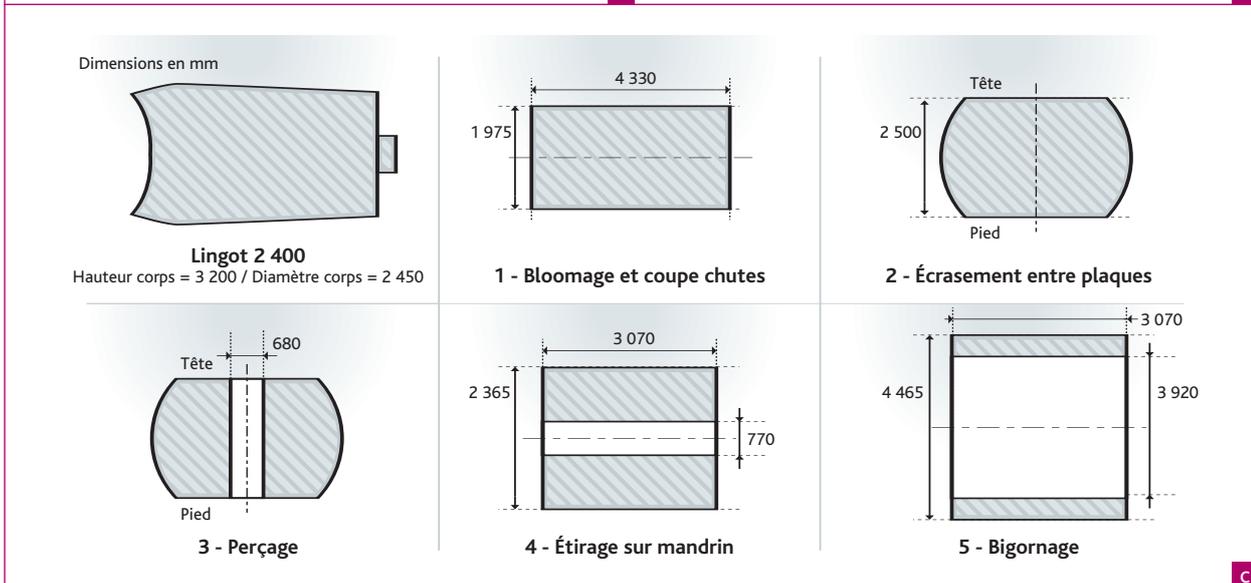
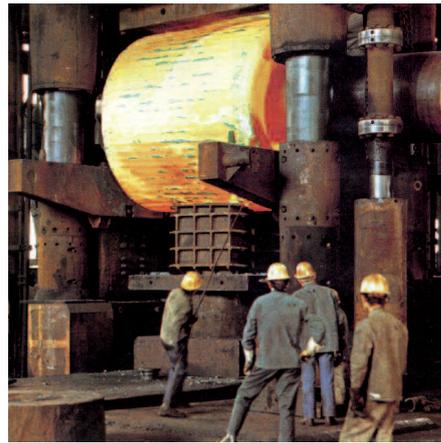
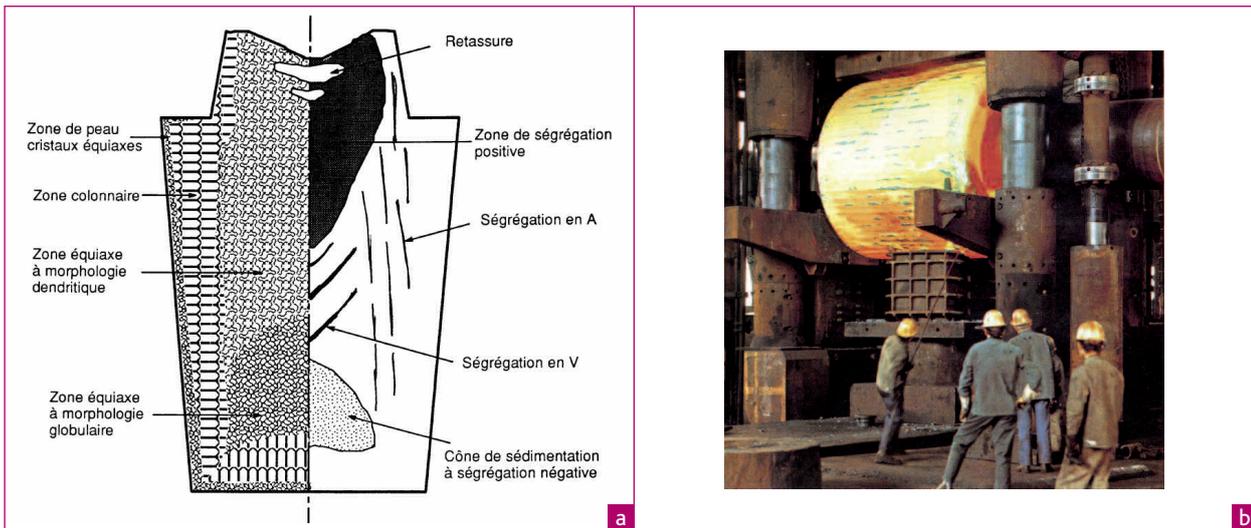


Figure 6 : a, Ségrégations dans un lingot ; b, Opération de bigornage d'une virole 900 MWe ; c, Gamme de forge moyenne virole C - 900 MWe.

4.2

la longueur et les diamètres voulus (perçage à chaud, étirement sur mandrin et bigornage). Les taux de ségrégation, c'est-à-dire les variations des compositions chimiques locales exprimées en variation relative ($\Delta C/C$ %) entre la teneur en carbone de l'acier liquide au moment de la coulée du lingot – qui reflète bien la teneur en carbone moyenne du matériau – et la teneur locale en carbone mesurée dans les différentes zones de la virole peuvent varier de -20% à $+20\%$.

La RT_{NDT} initiale étant mesurée à partir d'éprouvettes prélevées en pied de virole, près de la surface intérieure au quart de l'épaisseur dans un anneau destiné aux différents essais, la question de la représentativité des résultats ainsi obtenus se pose, puisque les compositions chimiques de la surface interne soumise à irradiation de la virole et celle de la zone de prélèvement des essais au quart de l'épaisseur en pied de virole varient légèrement (figure 7).

Des études poussées pour améliorer la connaissance des caractéristiques métallurgiques des viroles de cuves ainsi que des mesures de RT_{NDT} sur différents types de pièces forgées ont été engagées par EDF. Ainsi, des mesures faites sur une virole destinée à une cuve dont la construction a été abandonnée tendent à montrer que la RT_{NDT} varie peu dans tout le volume de cette virole (figure 8). Les résultats obtenus à différents niveaux sur cette virole indiquent en effet que la RT_{NDT} à l'état non irradié est peu sensible aux variations locales de composition chimique et que la RT_{NDT} mesurée en pied de virole peut donc être considérée comme représentative de l'ensemble du volume de la pièce.

Les viroles des cuves de réacteurs de 900 MWe ayant été fabriquées bien avant la virole expertisée, des études complémentaires visant à confirmer que ces résultats restent transposables à l'ensemble des viroles 900 MWe ont cependant été recommandées par l'IRSN. De même, la recherche de compléments d'information permettant de s'assurer que la ténacité du métal de base reste valable dans les zones affectées thermiquement par la réalisation du revêtement par soudage en acier inoxydable de la surface interne de la cuve a été recommandée.

Formules de prévision de la fragilisation – résultats du PSI
Historiquement, une seule formule de prévision de la fragilisation a été mise au point et retenue par EDF, tant pour l'acier 16MND5 que

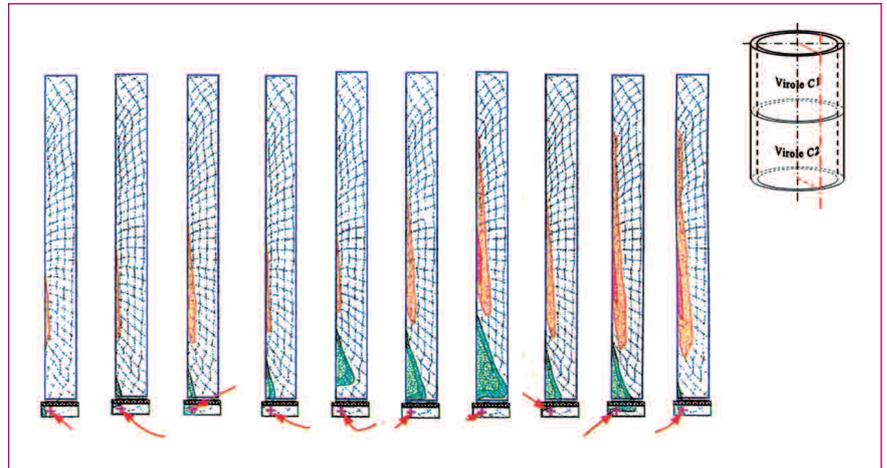


Figure 7 : Répartition possible des ségrégations dans la paroi des viroles de cuves 900 MWe en fonction des conditions de fabrication (simulations numériques) [source EDF].

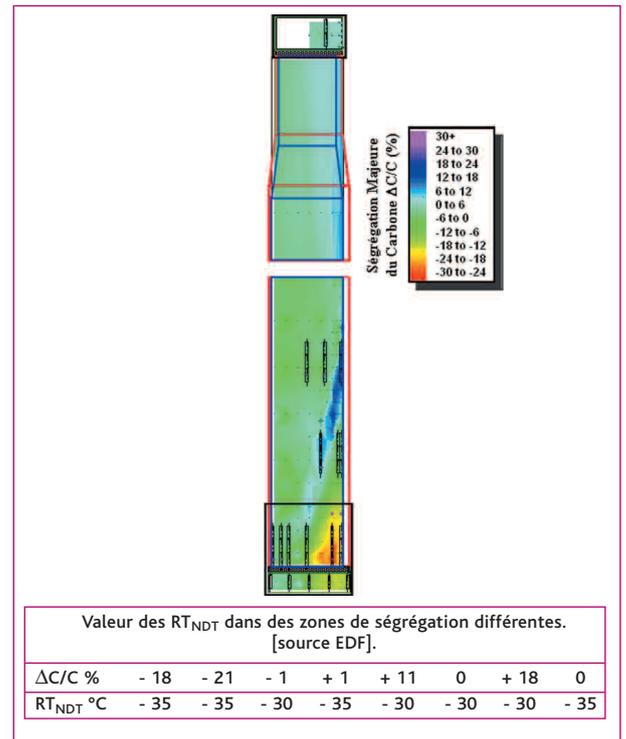


Figure 8 : Cartographie des ségrégations sur virole expertisée (simulations numériques et mesures).

pour les soudures. La définition de cette formule de prévision a été faite à partir de 29 résultats obtenus sur des échantillons irradiés en réacteur expérimental jusqu'à une fluence de $5 \cdot 10^{19}$ n/cm². Cette première population de résultats a été ensuite complétée par 21 autres couples de données permettant d'accéder à des fluences allant jusqu'à $8 \cdot 10^{19}$ n/cm². À partir du nuage de points obtenu, une corrélation moyenne a été établie, puis décalée de 2σ afin d'obtenir des fragilisa-

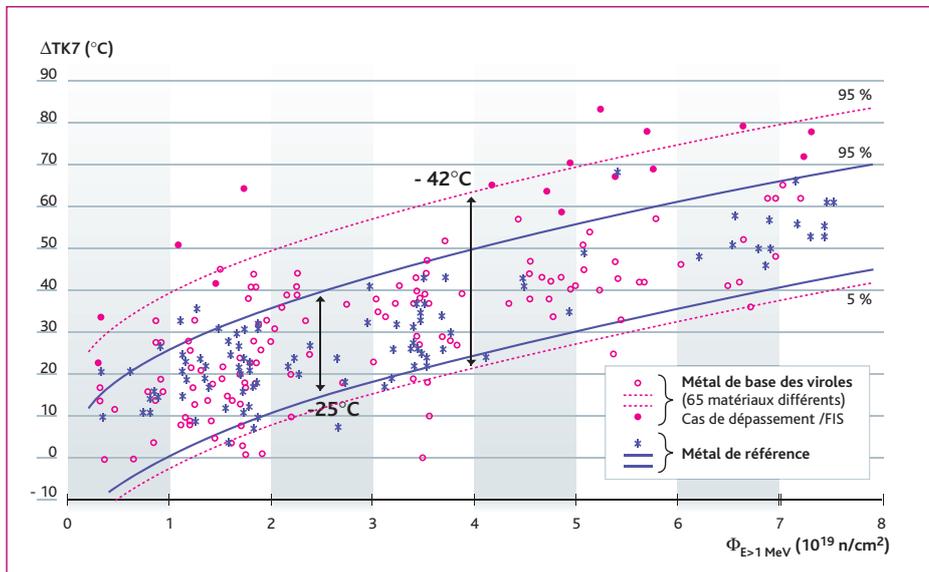


Figure 9 : Fragilisations mesurées pour l'acier 16MND5 des viroles de cuves 900MWe [source EDF].

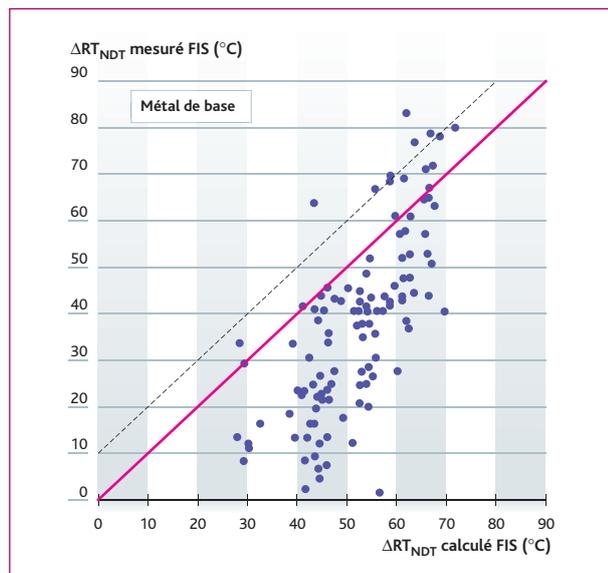
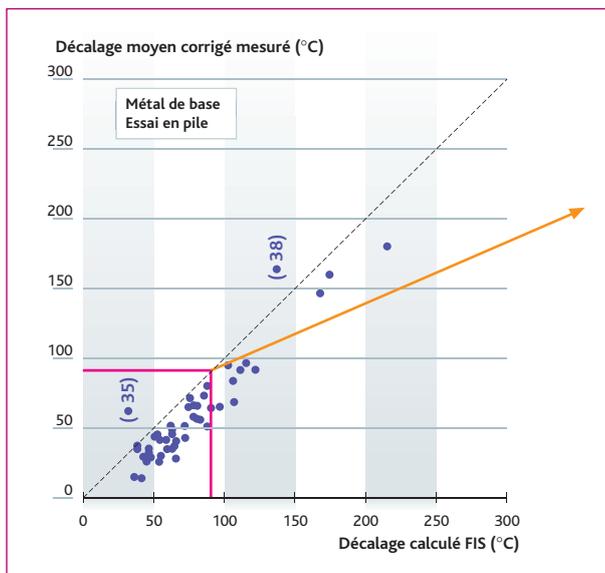


Figure 10 : Base de données ayant servi à la définition de la formule de prévision FIS (à gauche) – Résultats du PSI (à droite) [source EDF].

tions prévisionnelles enveloppes. L'expression analytique obtenue correspond à la formule FIS retenue aujourd'hui. Au fur et à mesure du retrait des capsules du PSI et de l'exploitation des éprouvettes, les résultats de fragilisation prévisionnelle ont été confrontés à ceux de la fragilisation mesurée sur les éprouvettes de résilience du PSI. La comparaison a montré des fragilisations mesurées dépassant parfois les fragilisations prévisionnelles. Le premier cas de dépassement observé (21 °C) sur la capsule U de la cuve de Chinon B2 a conduit à des investigations particulières qui ont montré que le dépassement observé n'était pas forcément lié à une fragilisation sous irradiation plus importante que prévu, mais plutôt à une température de transition

avant irradiation pouvant varier en fonction du lieu de prélèvement des éprouvettes ayant servi à sa détermination, cette variation pouvant aller jusqu'à 30 °C. Les autres cas de dépassement rencontrés depuis, sur quatre autres cuves, ont été attribués au même phénomène, et la formule a été conservée. Par contre, l'utilisation de cette formule sur les soudures conduisant à des dépassements plus nombreux dont l'importance restait difficilement explicable, une formule particulière a été développée par EDF en 1999 pour la zone fondue des soudures. Comme indiqué plus haut, l'essentiel des capsules des cuves de réacteur 900 MWe représentant 30 années d'irradiation ont été exploitées, ainsi que près de la moitié des capsules équivalant à 40 ans de

4.2

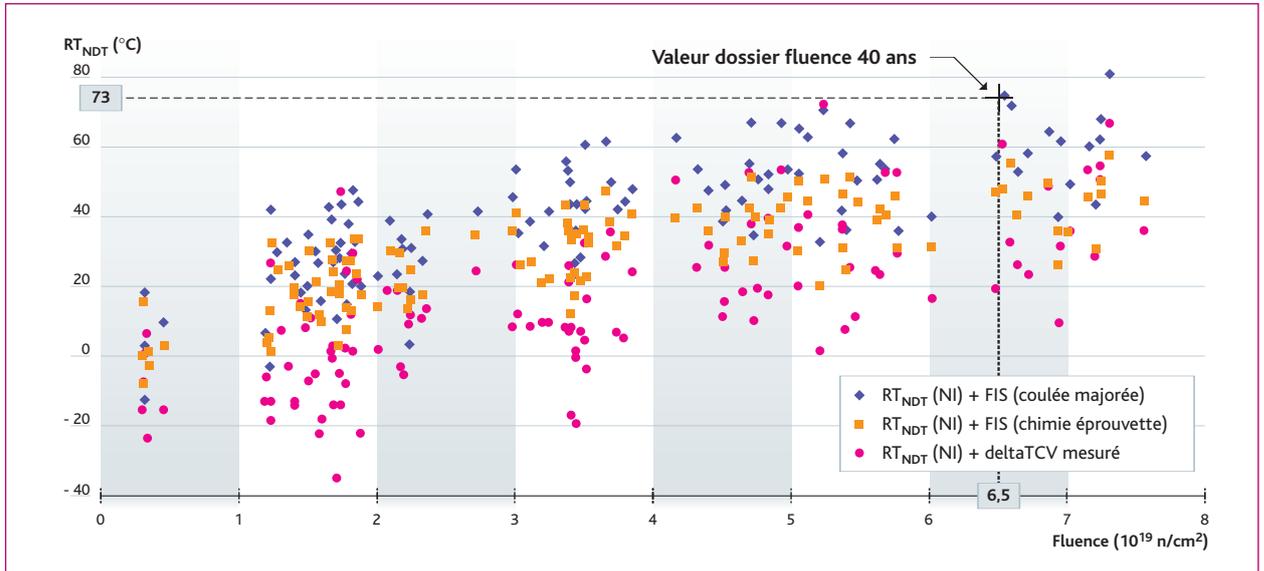


Figure 11 : Valeurs de RT_{NDT} à $6,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$ correspondant aux différentes évaluations de la fragilisation sous irradiation [source EDF].

fonctionnement. Au total, ce sont les résultats de 118 capsules qui sont aujourd'hui disponibles. L'ensemble de ces résultats montrent une dispersion importante, les fragilisations observées restant cependant inférieures à 80 °C (figure 9).

Lorsque les fragilisations mesurées sont comparées avec les fragilisations prévisionnelles, l'IRSN a constaté que les cas de dépassement correspondent principalement aux fragilisations prévisionnelles les plus grandes. Ceci semble indiquer que le caractère enveloppe de la formule prévisionnelle s'altère au fur et à mesure que la fluence augmente. En examinant les résultats des 14 capsules Y équivalant à 40 ans d'exploitation, on observe que 5 d'entre elles présentent des cas de dépassement de la fragilisation prévisionnelle donnée par la formule empirique applicable à l'acier de cuve.

Ce nombre de dépassements n'est pas cohérent avec une formule définie initialement comme étant enveloppe à 2σ , donc fiable à plus de 95 %. La comparaison des résultats du PSI avec le nuage de points ayant servi à la définition de la formule indique effectivement que les résultats globaux du PSI semblent s'écarter aujourd'hui des principes qui ont présidé à la définition de la formule prévisionnelle applicable à l'acier 16MND5 (figure 10). Cette tendance est aussi observée pour la formule applicable aux soudures, mais d'une façon moins prononcée. Toutefois les valeurs de RT_{NDT} à l'état irradié utilisées dans le dossier de justification restent enveloppées aussi bien des fragilisations estimées par les formules en vigueur que des fragilisations mesurées (figure 11).

Au-delà d'une fluence de $7 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$, les formules de prévision n'apparaissent plus comme enveloppes. Compte tenu des incertitudes présentées ci-dessus, l'IRSN a recommandé qu'il soit procédé au réexamen du caractère réellement enveloppe des formules de prévision de la fragilisation jusqu'à une fluence de $6,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$. Ce réexamen devra être réalisé avant les troisièmes visites décennales prévues pour les premières d'entre elles sur le palier de 900 MWe à partir de 2008.

Validité de la courbe de référence

La courbe de référence utilisée pour évaluer la ténacité de l'acier à toute température en fonction de sa RT_{NDT} est issue de travaux réalisés aux États-Unis à partir de pièces en acier faiblement allié de dénomination ASTM A508 Classe 3 et A533 grade B, ces deux nuances d'acier étant voisines de celle utilisée pour les cuves françaises. La validité de cette courbe pour l'acier de nuance 16MND5 a été étudiée en comparant les bases de données de ténacité américaine et française (figure 12). Ces

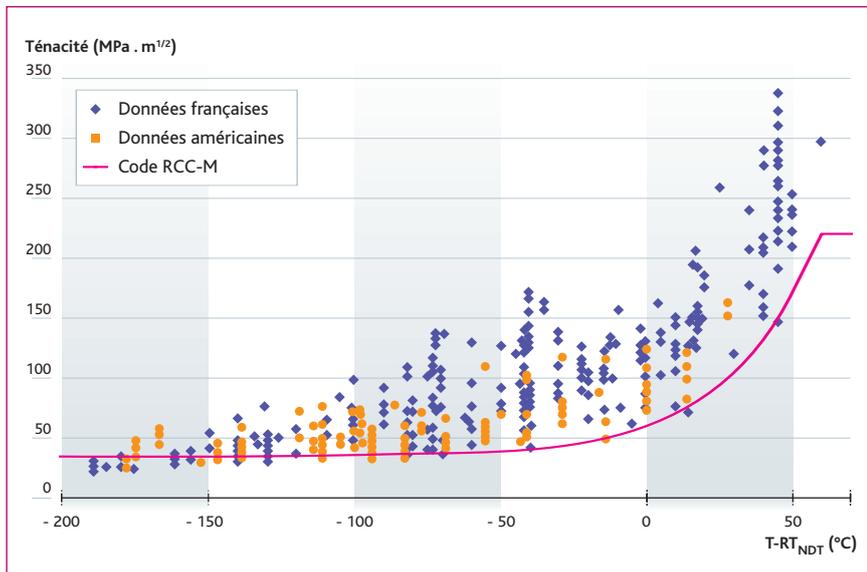


Figure 12 : Comparaison des résultats de ténacité français et américains [source EDF].

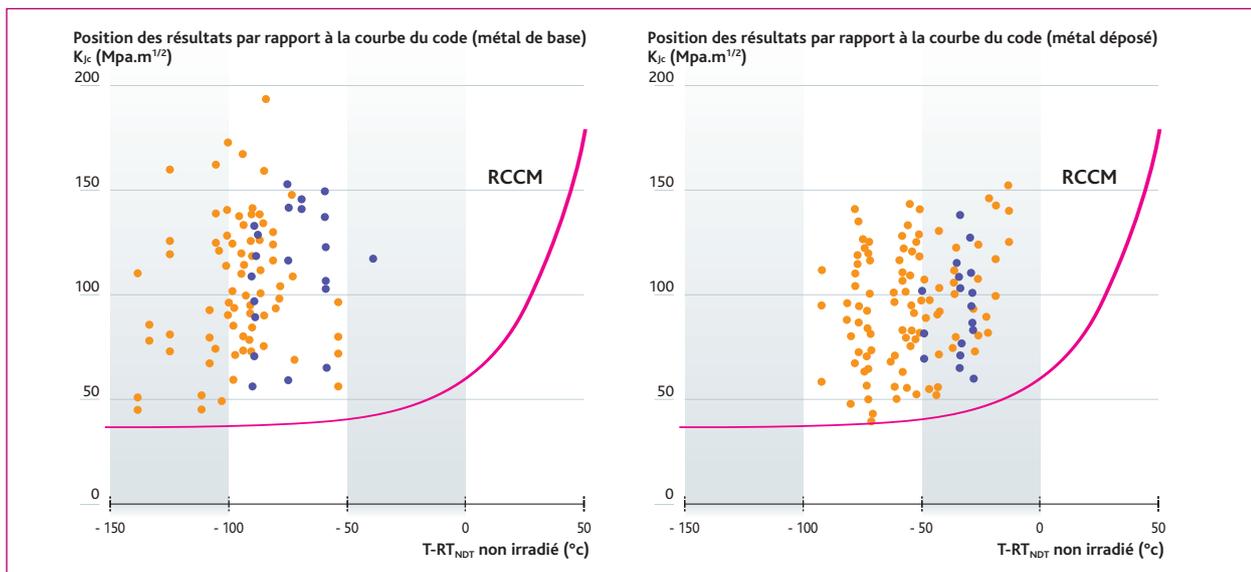


Figure 13 : Position (sur la gauche) des résultats par rapport à la courbe du code (métal de base) ; position (sur la droite) des résultats par rapport à la courbe du code (métal déposé) [source EDF].

comparaisons ont montré que cette courbe restait enveloppe des matériaux des cuves françaises, à l'exception du domaine des basses températures qui sont exclues du fonctionnement des REP et pour lesquelles l'expression analytique de la courbe reste imparfaite. Cependant, les données correspondant à des mesures de ténacité sur matériaux irradiés restaient peu nombreuses. Pour répondre à une demande faite sur ce point en 1999 par l'administration, des mesures de ténacité sur les éprouvettes de mécanique de la rupture des capsules du PSI ont été réalisées. Ces éprouvettes, bien qu'extraies, n'avaient pas été utilisées jusqu'à présent dans l'attente de l'optimisation des procédures d'essais. Plus de 200 mesures de ténacité directes ont ainsi été faites, puis positionnées en fonction de la RT_{NDT} après irradiation du matériau, par rapport à la courbe de référence. Ces résultats importants obtenus par EDF, qui sont représentés par la *figure 13*, ont confirmé que la courbe de référence

restait une courbe enveloppe pour le matériau après irradiation. De plus, ces résultats de mesures directes de ténacité peuvent être comparés à l'évaluation de la ténacité faite par la méthode indirecte en trois étapes développée ci-avant : ces comparaisons montrent que ces résultats présentent une marge par rapport à la courbe de référence.

■ Conclusions

En considérant la fluence de $6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm² actuellement prévue à 40 ans d'exploitation, la RT_{NDT} des zones les plus irradiées des cuves des réacteurs 900 MWe devrait être comprise, en fonction des cuves, entre 40 °C et 80 °C environ. Ces évaluations obtenues à l'aide des formules empiriques de fragilisation prévisionnelles montrent que la zone la plus affectée est, pour quelques cuves, la soudure de liaison entre les viroles.

Les études de mécanique de la rupture évoquées ci-avant mettent en évidence des coefficients de sécurité acceptables avec ces valeurs de RT_{NDT} , sur l'ensemble des cuves des réacteurs de 900 MWe. Ces résultats favorables, obtenus selon des hypothèses qui appa-

raissent pénalisantes (défaut positionné au point le plus irradié de la cuve la plus fragile) sont cependant soumis à des sources d'incertitudes multiples liées à la complexité des paramètres thermo-hydrauliques des transitoires étudiés ou à la complexité des phénomènes métallurgiques intervenant dans la fragilisation sous irradiation des grosses pièces forgées de cuve.

Les très importants travaux menés par EDF ont permis de réduire ces incertitudes en ce qui concerne la fragilisation des matériaux sous irradiation. Des travaux restent néanmoins à mener, en particulier dans le cas où EDF souhaiterait prolonger l'exploitation de tout ou d'une partie des tranches de 900 MWe au-delà de 40 ans. Ces travaux devraient viser, d'une part, à préciser le caractère sûr des formules de prévision de la fragilisation pour les fluences élevées, d'autre part, à évaluer certaines marges éventuellement existantes, mais non explicitées à ce jour, tant sous l'aspect neutronique (effet des gestions optimisées) que sous l'aspect de l'évaluation des effets de la fragilisation sur le comportement mécanique des cuves.

4.3

Expertise des méthodes d'évaluation des incertitudes du code CATHARE dans le programme international OCDE BEMUSE

4.3

Jérôme JOUCLA

Bureau de développement
des méthodes et de la gestion
des outils de simulation

Éric CHOJNACKI

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

L'une des missions de l'IRSN en France est d'évaluer les études de sûreté réalisées par les exploitants afin d'élaborer les rapports de sûreté. Des méthodes statistiques pour l'évaluation des incertitudes sont aujourd'hui de plus en plus utilisées dans les études de sûreté. Il est indispensable pour l'IRSN d'expertiser et d'évaluer ces méthodes qui peuvent être utilisées en vue de la démonstration de sûreté. La participation de l'IRSN au projet international BEMUSE (*Best Estimate Methods – Uncertainty and Sensitivity Evaluation*) entre dans cette mission.

Contexte du projet BEMUSE

Deux approches en sûreté nucléaire

Dans le cadre de l'évaluation de sûreté des centrales nucléaires, de nombreuses études sont menées sur les accidents susceptibles de survenir durant la vie de l'installation. Leur but est de démontrer le bon comportement de celle-ci et de dimensionner les systèmes de sûreté. Ces études mettent en œuvre de nombreux codes de calcul dans lesquels les phénomènes physiques présents lors des accidents étudiés sont modélisés de façon plus ou moins approchée. De ce fait, les résultats fournis par les modèles mathématiques sont entachés d'incertitudes. Pour prendre en compte dans les études de sûreté ces incertitudes, ainsi que celles liées à d'autres sources, comme les conditions initiales et limites, etc., deux approches ou méthodologies peuvent être suivies :

- **l'approche conservative** : avec cette approche, on maximise les conséquences du point de vue de la sûreté en choisissant des valeurs pénalisantes pour les modèles physiques incertains ainsi que pour les conditions initiales et limites. Ces conservatismes sont choisis de façon suffisamment large pour couvrir les incertitudes et être assuré de façon quasi certaine que les conséquences calculées sont largement supérieures, du point de vue de la sûreté, aux conséquences réelles que l'on aurait en cas d'accident ;
- **l'approche *best estimate* (meilleure estimation)** : elle consiste à calculer les transitoires accidentels de la manière la plus réaliste possible. Pour cela les modèles physiques utilisés sont ceux qui décrivent au mieux la réalité et traduisent l'état de l'art des connaissances.

De même, les conditions limites et initiales sont prises aux valeurs les plus réalistes, dites *best estimate*. Il est indispensable pour utiliser les résultats de ces calculs dans les études de sûreté

4.3

d'évaluer leurs incertitudes afin de pouvoir choisir au niveau des conséquences la borne la plus pénalisante de la gamme d'incertitudes.

Pour l'IRSN, l'utilisation de l'approche *best estimate* est surtout motivée par deux raisons :

- avoir une plus grande confiance dans la transposition au réacteur par une meilleure connaissance physique du résultat ;
- conforter l'approche conservatrice.

Objectifs de BEMUSE : Best Estimate Methods – Uncertainty and Sensitivity Evaluation

Le programme BEMUSE (méthodes *best estimate* – évaluation des incertitudes et analyse de sensibilité) organisé par l'OCDE (Organisation de coopération et de développement économiques) a pour objet une étude comparative des applications des méthodologies *best estimate* au cas de l'accident de perte de réfrigérant du circuit primaire par grosse brèche (APRP-GB).

Les principaux objectifs de ce programme sont :

- d'évaluer l'applicabilité, la qualité et la fiabilité des méthodes *best estimate* qui comprennent des évaluations d'incertitude dans les applications concernant la sûreté des réacteurs nucléaires ;
- de développer une compréhension commune des méthodes existantes ;
- de favoriser et faciliter leur utilisation par les autorités de sûreté et par l'industrie dans le monde entier.

Pour atteindre ces objectifs, dix organismes, instituts ou universités regroupant huit nationalités différentes participent au programme BEMUSE : IRSN et CEA (France), ENUSA et UPC (Espagne), GRS (Allemagne), JNES (Japon), KINS (Corée), NRI (République tchèque), PSI (Suisse), TAEK (Turquie) et UNIPI (Italie).

Le programme est divisé en deux phases principales :

- l'évaluation des incertitudes de l'essai LOFT L2-5 ;
- les études de sensibilité et évaluation d'incertitude pour un cas de réacteur à eau pressurisée, le réacteur ZION, qui a des caractéristiques proches des réacteurs construits en France.

La première phase du programme s'est achevée en 2006.

Description de LOFT : Loss of Fluid Test Device

LOFT est une installation d'essai américaine construite dans les années 1970 à Idaho Falls. Cette installation simulait à l'échelle 1/50 un réacteur à eau sous pression (REP) possédant quatre boucles primaires d'une puissance de 2 500 MW. Contrairement à la majorité des installations thermohydrauliques intégrales, pour lesquelles la puissance thermique beaucoup plus faible du cœur est simulée par des résistances électriques, l'installation avait la particularité de posséder un cœur nucléaire d'une puissance de 50 MW thermiques. La boucle d'essai LOFT possédait deux boucles primaires, la première – dite boucle rompue – simulant une boucle du réacteur où se serait produite une brèche et la seconde

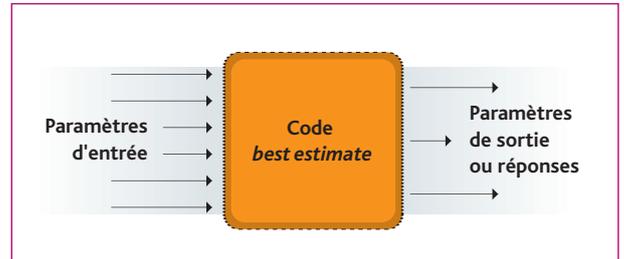


Figure 1 : Principe de la méthode propagation des incertitudes.

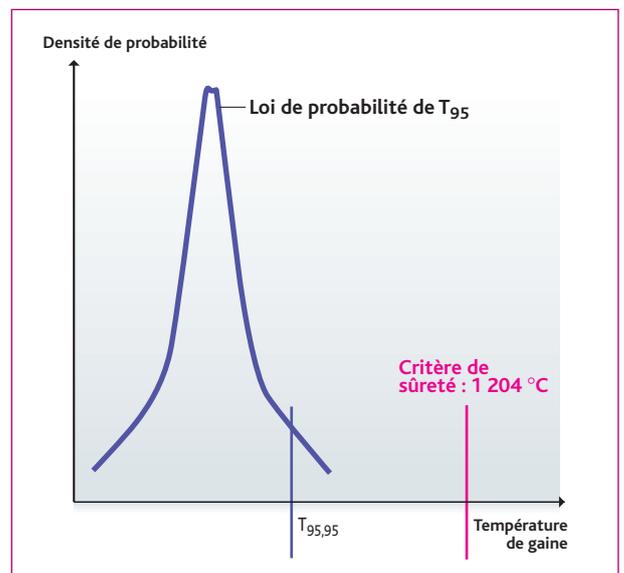


Figure 2 : Température de gaine et critère associé.

simulant les trois autres boucles intactes. Elle a, entre autres, été conçue afin de réaliser des essais d'APRP-GB. L'essai LOFT, dénommé L2.5, simulait la rupture de la tuyauterie d'une boucle primaire. Cet essai a déjà fait l'objet vers la fin des années soixante-dix d'un exercice de comparaison international organisé par l'OCDE (ISP-13 problème standard international numéro 13).

Participation de l'IRSN

Méthode de l'IRSN

La méthode *best estimate* appliquée par l'IRSN peut se décomposer en quatre étapes séquentielles dépendantes. Le statut de fin de chaque étape détermine si l'application de la méthode peut être ou non poursuivie.

- La première étape de la méthode traite de l'identification des paramètres d'entrée, qui ont une influence sur les résultats.
- La quantification des incertitudes associées à ces paramètres d'entrée, la détermination des bornes et les lois de probabilité, sont réalisées durant la deuxième étape. La méthode de quantification est basée sur la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par les calculs correspondants ou le jugement d'expert.

- La troisième étape consiste à propager ces incertitudes. Un jeu de valeurs des paramètres d'entrée est sélectionné par tirage aléatoire selon les lois de probabilité déterminées auparavant. Un calcul utilisant ce jeu de valeurs est réalisé, comme illustré sur la **figure 1**. Ce processus est ensuite reconduit n fois.
- La quatrième étape consiste à traiter statistiquement les n réponses obtenues précédemment afin d'évaluer l'incertitude finale de la réponse du code *best estimate*.

Code de calcul thermohydraulique CATHARE2 V2.5

La version V2.5 du code CATHARE (code avancé de thermohydraulique pour les accidents des réacteurs à eau) est le résultat de plus de 20 ans d'efforts de développement commun entre le CEA, l'IRSN, EDF et Areva. CATHARE [1 ; 2] est un code de thermohydraulique *best estimate* utilisé notamment pour l'analyse de sûreté des réacteurs nucléaires. Il décrit de manière réaliste et dans les conditions d'utilisation des réacteurs nucléaires des écoulements diphasiques, c'est-à-dire des écoulements avec présence simultanée de liquide et de vapeur.

Moyens de calcul

Le Service d'évaluation de la thermohydraulique, de la conduite, des cœurs et des combustibles de l'IRSN s'est doté d'un calculateur multiprocesseur composé de 72 processeurs cadencés à 3GHz. Ce calculateur permet d'utiliser des codes de calcul de plus en plus performants mais qui sollicitent également de plus en plus de ressources informatiques. Il est notamment utilisé dans les études d'incertitudes associées au code CATHARE.

Loi de probabilité de T_{95} Les méthodes statistiques

L'accident de perte de réfrigérant du circuit primaire par grosse brèche (APRP-GB), de probabilité estimée à 10^{-6} par réacteur et par an, est un accident important pour la sûreté parce qu'il enveloppe de nombreux autres accidents. C'est pour cela qu'il joue le rôle d'accident de dimensionnement pour les réacteurs actuels.

Dans les études d'un tel accident, l'exploitant doit notamment démontrer que les pics de la température de gaine (PTG) des crayons combustibles ne dépassent pas le critère de sûreté associé, soit 1 204 °C, température à partir de laquelle il y a fragilisation de la gaine du combustible. Il est communément admis que la probabilité de dépassement de ce critère de sûreté au point le plus chaud ne doit pas être supérieure à 5 % avec un niveau de confiance, noté β . La valeur retenue pour β est généralement de 95 %.

Un PTG obtenu par un calcul avec la prise en compte des incertitudes a une probabilité α avec un niveau de confiance β d'être inférieure à une valeur donnée, que nous notons $T_{\alpha, \beta}$ (ou encore « quantile α - β » de la température). L'objectif de sûreté est donc atteint si $T_{95, 95}$ est inférieure au critère, comme illustré sur la **figure 2**.

L'objectif des méthodes statistiques est de déterminer la température $T_{\alpha, \beta}$ afin de la comparer au critère de sûreté.

Après analyse, l'IRSN a retenu trois méthodes statistiques adaptées à la problématique étudiée et a décidé de les évaluer dans le cadre du programme BEMUSE : la formule de Wilks, les statistiques de rang et le Bootstrap.

Formule de Wilks

La méthode de Wilks [3 ; 4] est à l'heure actuelle la méthode la plus employée dans la thermohydraulique du secteur nucléaire [5]. Cette méthode a été utilisée dans les années quatre-vingt-dix car elle permettait de se rapprocher de l'objectif avec un nombre raisonnable de calculs. La formule de Wilks est : $1 - \alpha^N \geq \beta$; elle a été établie de la manière suivante :

- la probabilité d'avoir un résultat inférieur à une valeur donnée est α ;
- la probabilité d'avoir deux résultats indépendants inférieurs à la même valeur donnée est α^2 et ainsi de suite jusqu'à α^N ;
- la probabilité d'avoir au moins un résultat supérieur ou égal à cette valeur donnée est donc $(1 - \alpha^N)$;
- cette probabilité $(1 - \alpha^N)$ traduit le niveau de confiance noté β que le plus grand résultat soit un majorant de la valeur donnée.

Cette formule permet de déterminer le nombre minimum N de calculs, nombre nécessaire pour évaluer un majorant (valeur maximale des N calculs) de la valeur recherchée $T_{\alpha, \beta}$. Ce nombre dépend uniquement de α et du niveau de confiance souhaité β . À titre d'exemple, dans le cadre de notre problématique, 59 calculs seulement sont nécessaires pour évaluer un majorant de $T_{95, 95}$.

Statistiques de rang et Bootstrap

Il est possible d'effectuer davantage de calculs et d'obtenir plus d'informations sur le « quantile 95-95 » ($T_{95, 95}$) à l'heure actuelle que dans les années quatre-vingt-dix en raison de l'augmentation des performances informatiques.

L'IRSN a appliqué au cours du projet BEMUSE deux nouvelles méthodes innovantes par rapport à la formule de Wilks : les statistiques de rang et le Bootstrap.

Statistiques de rang

L'échantillon des réponses (dans notre cas, des PTG) est ordonné par valeurs croissantes. Le numéro de classement est nommé « rang ».

Les statistiques de rang, notées SR [6], sont basées sur des démonstrations mathématiques qui permettent à partir de la probabilité α et du niveau de confiance β de déterminer le rang associé à $T_{\alpha, \beta}$ et par conséquent de déterminer ensuite la valeur correspondante $T_{\alpha, \beta}$. Il faut noter que cette méthode permet aussi d'obtenir d'autres informations intéressantes. Elle permet notamment de vérifier l'absence « d'effet falaise » au-delà de $T_{\alpha, \beta}$.

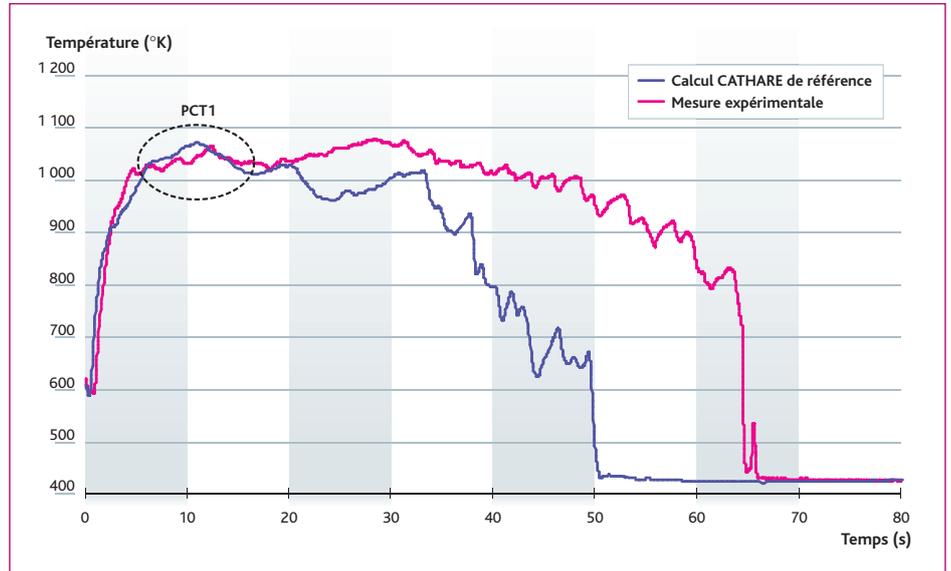


Figure 3 : Température maximale de gaine des crayons combustibles durant l'essai LOFT L2.5.

Bootstrap

Le Bootstrap, noté BS [7], est une méthode de « rééchantillonnage » très puissante qui est apparue dans les années soixante-dix, mais qui n'a été réellement exploitée que dans les années quatre-vingt-dix, sa mise en œuvre efficace nécessitant l'utilisation d'outils informatiques puissants [8]. C'est une méthode statistique qui crée un grand nombre d'échantillons par tirage aléatoire avec remise à partir de l'échantillon original. Des statistiques comme le $T_{95,95}$ sont ensuite calculées sur ces échantillons. Le tirage aléatoire avec remise fait que chacune des valeurs de l'échantillon initial (échantillon de PCT obtenu par les calculs CATHARE) peut être présente 0, 1, 2, 3 fois ou plus dans chaque « échantillon Bootstrap », et de même taille que l'échantillon initial. Il faut noter qu'aucune information nouvelle n'est créée mais que toute l'information contenue dans l'échantillon original est exploitée.

Application des méthodes statistiques pour BEMUSE

Plusieurs réponses calculées par le code CATHARE ont été étudiées dans le programme BEMUSE, notamment la température maximale de gaine des crayons combustibles et la pression du circuit primaire. Seuls les résultats concernant le premier pic de la température maximale de gaine des crayons combustibles, noté PTG1, seront présentés ici. Une illustration du PTG1 est visible sur la *figure 3*.

Les résultats

Il a été effectué 590 calculs en deux jours grâce au calculateur multiprocesseur. Le nombre 590 correspond à dix applications de la méthode de Wilks pour estimer le $T_{95,95}$. En raison du nombre « important » de calculs, les méthodes utilisant les statistiques de rang (SR) et le Bootstrap (BS) conduisent à des résultats proches (*figure 4*). La valeur de $T_{95,95}$ ainsi obtenue est de 1 188 K.

Le *tableau 1* présente les résultats des dix applications de la formule de Wilks et les compare à 1 188 K (résultat SR ou BS).

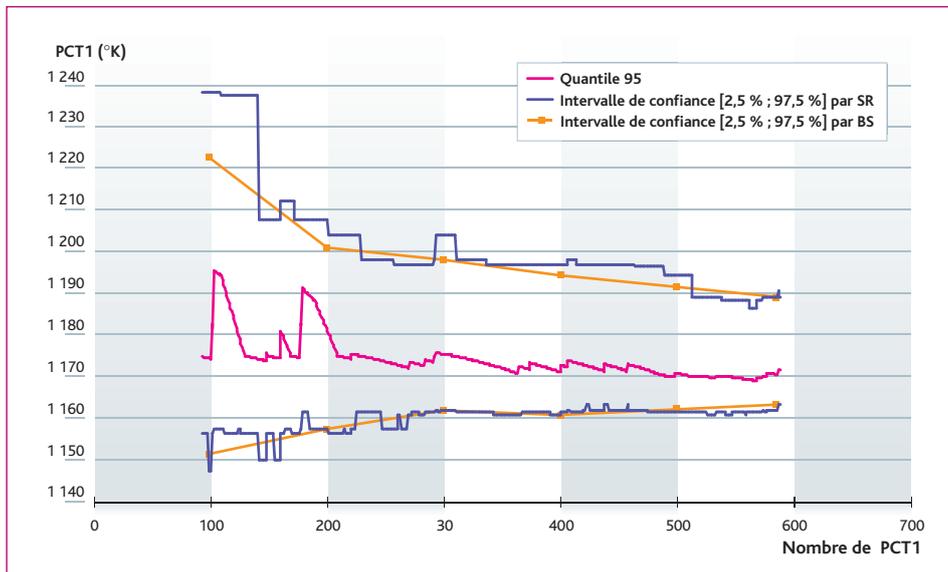


Figure 4 : Évolution des $T_{95,\beta}$ par les méthodes de « statistiques de rang » (SR) et « bootstrap » (BS).

Tableau 1

Résultats obtenus grâce à la formule de Wilks comparés à ceux obtenus par les statistiques de rang ou le Bootstrap.

Séries	W 95-95	W – [SR ou BS]
1	1 207 K	+ 19 K
2	1 238 K	+ 50 K
3	1 212 K	+ 24 K
4	1 196 K	+ 8 K
5	1 219 K	+ 31 K
6	1 164 K	- 24 K
7	1 258 K(*)	+ 70 K
8	1 196 K	+ 8 K
9	1 171 K	- 17 K
10	1 224 K	+ 36 K

* Un calcul non exploitable car aberrant.

Traitement des calculs aberrants

Il n'est pas rare que certains calculs échouent (comme dans la série n° 7 de nos résultats) et donc ne soient pas exploitables pour différentes raisons, comme une combinaison non physique d'incertitudes. Il est parfois très compliqué, voire impossible, de résoudre ce problème. Il est aisé de traiter cet inconvénient de manière conservatrice avec le Bootstrap ou les statistiques de rang. Dans notre cas, sur 590 calculs, un seul n'a pu être utilisé dans l'évaluation du PTG1. Nous avons donc considéré que ce calcul fournissait la température la plus haute des 590. Avec la méthode de Wilks, afin d'obtenir le PTG1 95-95 avec un calcul aberrant sur 59, des calculs supplémentaires sont nécessaires.

4.3

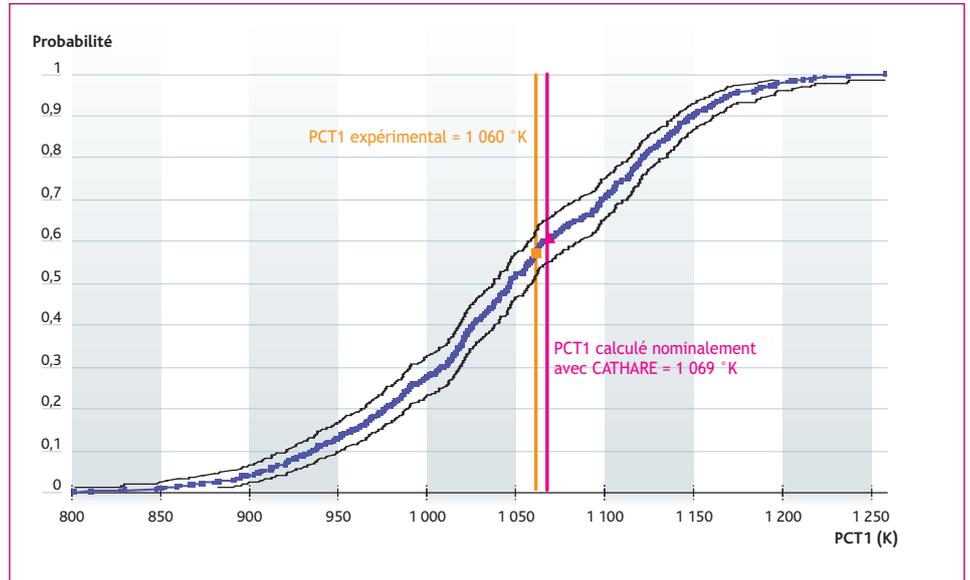


Figure 5 : Probabilité cumulée du PTG1 évalué sur 590 valeurs.

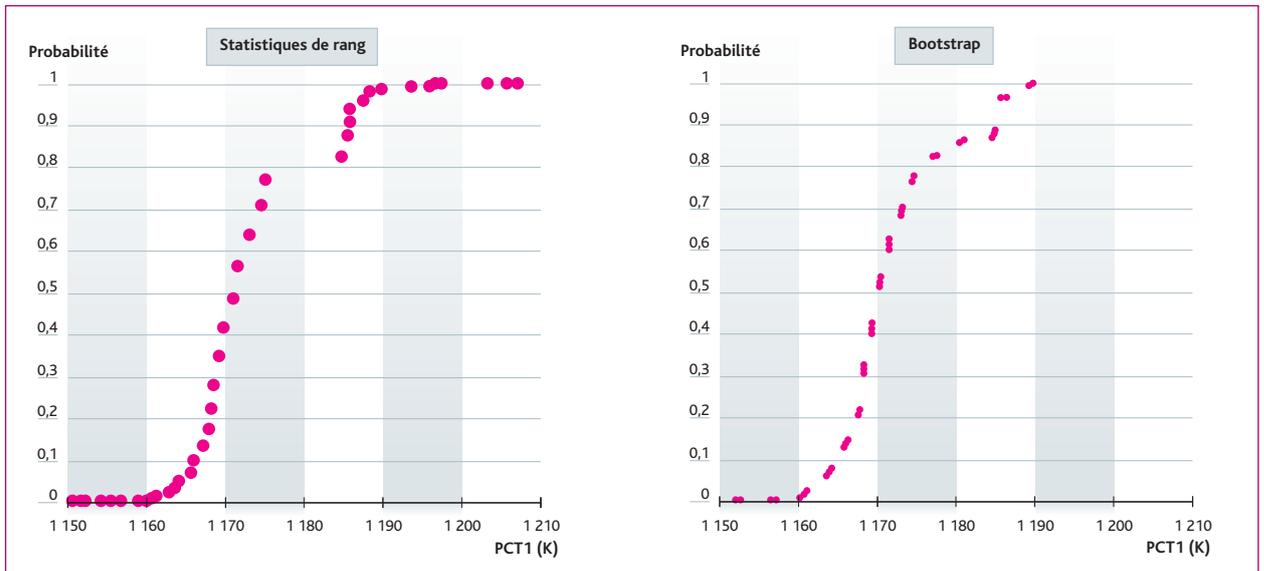


Figure 6 : Niveau de confiance β en fonction du PCT1 pour $\alpha = 95\%$ par SR et BS.

Précision et dispersion statistique

La gamme de variation des 10 PTG1 95-95 estimés à l'aide de la méthode de Wilks est de 94 K (1 164 K à 1 258 K) du fait de l'utilisation de 59 valeurs et de la dispersion du phénomène étudié. Il doit être également noté que deux séries (6 et 9) ont mené à des majorants du PTG inférieurs aux estimations plus précises obtenues avec les méthodes de SR et de BS. La méthode de Wilks ne fournit pas systématiquement des résultats plus conservatifs que SR et BS. Pour ce qui concerne ces deux dernières méthodes, l'évolution de la valeur médiane du PTG ($T_{95,50}$) est présentée sur la **figure 4** avec ses limites à [2,5 %, 97,5 %] de niveau de confiance en fonction du nombre de calculs réalisés. Au bout de 350 calculs, le PTG1 95-95 peut être considéré comme ayant convergé, car son estimation varie de 1 195 K à 1 185 K, soit une amplitude de 10 environ. Naturellement, il est possible

d'affiner les résultats à l'aide de telles méthodes en exécutant des calculs aléatoires additionnels, réduisant le domaine de variabilité de l'incertitude.

Probabilité cumulée empirique de la variable de sortie

La probabilité cumulée empirique des PTG1 ne permet qu'une approximation grossière de la fonction de distribution cumulée en raison du faible nombre de calculs utilisés par la méthode de Wilks. Avec les autres méthodes, cette probabilité du PTG1 peut être tracée avec son intervalle bilatéral d'incertitude avec un niveau de confiance atteignant 95 %, comme on le voit sur la *figure 5*.

Le niveau de confiance

Avec les méthodes SR et BS, nous pouvons tracer le niveau de confiance β en fonction du PCT1 pour, par exemple, la valeur α de 95 %. On peut voir sur la *figure 6* qu'il est possible d'estimer une valeur de PTG1 avec un niveau de confiance de 99 % – et même de 99,99 % – alors qu'avec la formule de Wilks seul un point est un majorant du $T_{95,95}$. Nous observons aussi qu'il n'y a pas ou peu d'« effet falaise », c'est-à-dire pas de grande différence entre la température associée au $T_{95,95}$ et les $T_{95,\beta>95}$.

■ Conclusion

Les informations que fournissent les statistiques de rang et le Bootstrap sur les réponses calculées par CATHARE sont beaucoup plus riches et complètes que celles fournies par la méthode de Wilks. Ces deux méthodes permettent également d'évaluer le $T_{95,\beta}$ avec un niveau de confiance β de 99 % ou plus.

Cette étude a permis à l'IRSN de mettre au point de nouvelles méthodes plus performantes que la méthode de Wilks, utilisée usuellement dans le milieu du nucléaire pour le traitement statistique des incertitudes.

À l'avenir, ces méthodes pourront être utilisées afin de réaliser des calculs indépendants pour évaluer les démonstrations de sûreté présentées par les exploitants nucléaires, tant en France qu'à l'étranger.

Compte tenu de l'évolution générale de l'utilisation des codes de calcul vers des approches *best estimate* aussi proches que possible de la réalité, l'évaluation des incertitudes est devenue l'un des points majeurs des démonstrations de sûreté.

Cette évaluation nécessite des traitements statistiques importants pour lesquels l'IRSN s'est doté d'outils novateurs permettant de faire face à cette problématique, son implication dans le projet BEMUSE en étant une illustration concrète.

Références

- [1] BESTION, D., *et al.*, « Methodology, Status and Plans for Development and Assessment of CATHARE Code », *OECD/CSNI Workshop on Transient Thermalhydraulics and Neutronics Code Req.*, Annapolis, 1996.
- [2] BESTION, D., « Le code CATHARE », *Operational Practice of Nuclear Power, Plants David*, Congrès, 2001.
- [3] WILKS, S. S., « Determination of Sample Sizes for Setting Tolerance Limits », *The Annals of Mathematical Statistics*, Vol.12, pp. 91-96, 1941.
- [4] WILKS, S. S., « Statistical Prediction With Special Reference to the Problem of Tolerance Limits », *The Annals of Mathematical Statistics*, Vol. 13, pp. 400-409, 1942.
- [5] GLAESER, H., HOFER, E., KLOOS, M., and SKOREK, T. (1998), "GRS Analyses for CSNI Uncertainty Methods Study (UMS)," in *CSNI Report NEA/CSNI/R(97)35*, Volume 1, June 1998.
- [6] DAVID & NAGARAJA, H. N., *Order Statistics*, Wiley-Interscience, 2003.
- [7] EFRON, B., TIBSHIRANI, R. J., *An Introduction to the Bootstrap*, Chapman and Hall, 1993.
- [8] DAVISON, A. C., HINKLEY, D. V., *Bootstrap Methods and their Application*, Cambridge University Press, 1997.

4.4

Processus de qualification des formulaires de criticité et exemple d'utilisation dans le domaine de l'expertise de criticité

Les installations nucléaires et les emballages de transport dans lesquels des matières fissiles sont mises en œuvre sont soumis au risque de criticité, autrement dit au risque d'amorcer une réaction de fission en chaîne auto-entretenue, que ce soit au cours d'opérations de fabrication, d'entreposage, de transport ou de traitement des combustibles.

La prévention de ce risque est obtenue en imposant des limites à certains « paramètres de contrôle » tels que la masse des matières fissiles ou les dimensions des appareillages contenant ces matières.

L'étude des conditions dans lesquelles un système contenant des matières fissiles peut devenir « critique » fait appel à des formulaires de calcul⁽¹⁾ capables de résoudre l'équation de bilan des neutrons en tenant compte d'hypothèses « enveloppes », déduites de l'analyse des conditions normales de fonctionnement ainsi que des conditions incidentelles plausibles.

Une des particularités du risque de criticité est de s'appliquer à des situations extrêmement variées, du fait de la très grande diversité des corps chimiques rencontrés, de la complexité des géométries à traiter, de la présence de nombreux isotopes fissiles, parfois associés à des poisons neutroniques, et de la quantité variable d'atomes dits modérateurs (qui ralentissent les neutrons à la suite de collisions). Cette grande diversité implique ainsi de considérer des spectres d'énergie des neutrons très variés selon les configurations étudiées.

La définition de limites sûres des paramètres de contrôle de la criticité à partir des valeurs calculées à l'aide des formulaires de criticité nécessite de connaître le degré de précision des résultats des calculs dans les domaines d'application envisagés. Cette évaluation des biais de calcul à considérer pour évaluer les marges de sûreté des situations normales et incidentelles fut dès l'origine un souci permanent des spécialistes en criticité.

Les bases du processus de qualification des schémas de calcul de criticité ont été posées très tôt. Néanmoins, le contexte actuel met en évidence l'intérêt d'affiner le processus, notamment par le fait que les exploitants ont tendance à prendre en compte des situations de plus en plus réalistes et de ce fait plus complexes. Cette démarche se justifie à la fois par le souci d'optimiser les installations et par celui d'améliorer la sûreté, par exemple en diminuant le nombre d'opérations dites à risque comme le transport de matières radioactives.

(1) Un formulaire de calcul est un ensemble de codes de calcul et de bibliothèques de données nucléaires auxquels sont associées des procédures qui effectuent de façon automatique les choix d'options adaptées à chaque type de problème rencontré.

Les objectifs de la qualification

Les travaux de qualification visent en premier lieu à établir les biais éventuels des formulaires de calcul et plus généralement la précision attachée aux valeurs calculées dans un domaine d'utilisation donné. La qualification, ou validation expérimentale, de ces schémas de calcul repose principalement sur la comparaison de résultats de calcul à des valeurs expérimentales. Les écarts observés sont ensuite analysés afin de déterminer s'ils sont imputables aux données nucléaires de base utilisées (sections efficaces, spectre de fission, etc.) ou aux approximations mises en œuvre dans les codes de calcul. Les biais ainsi déterminés sont ensuite éventuellement transposés aux configurations réelles calculées, d'où la nécessité de disposer d'un système permettant de sélectionner les expériences représentatives de la configuration calculée, de classer ces expériences et de positionner la configuration calculée par rapport à celles-ci.

En second lieu, ces travaux doivent conduire à améliorer ces mêmes schémas de calcul de manière à réduire les biais grâce aux informations déduites des résultats d'expériences intégrales, dont l'analyse améliore la compréhension des phénomènes physiques.

Mode opératoire de la qualification

La qualification des formulaires de calcul de criticité se fonde principalement sur les résultats d'expériences critiques réalisées sur des configurations aussi voisines que possible de celles à étudier.

Si des écarts sont mis en évidence, des comparaisons sont effectuées à l'aide de différents codes de calcul utilisant les mêmes données nucléaires de base, et notamment des codes dits de référence qui font intervenir un minimum d'approximations : pas d'homogénéisation des milieux, pas de discrétisations spatiale et énergétique. Cette intercomparaison a pour objectif de conclure sur la validité des procédures de calcul mises en œuvre.

Enfin, des données nucléaires issues d'origines différentes, dont celles du groupe de travail JEFF⁽¹⁾ de l'OCDE [1], sont utilisées afin d'évaluer les éventuels biais dus aux données de base. Dans ce cadre, et compte tenu de la large gamme de spectre énergétique concernée, les formulaires de criticité bénéficient en partie des études de qualification des données de base menées dans le cadre de la physique des réacteurs (thermiques ou rapides).

(1) JEFF : *Joint Evaluated Fission and Fusion*, collaboration de différents pays de l'OCDE pour l'élaboration d'une bibliothèque commune de données nucléaires. Le formulaire de criticité français de nouvelle génération CRISTAL utilise les données JEFF2.2.

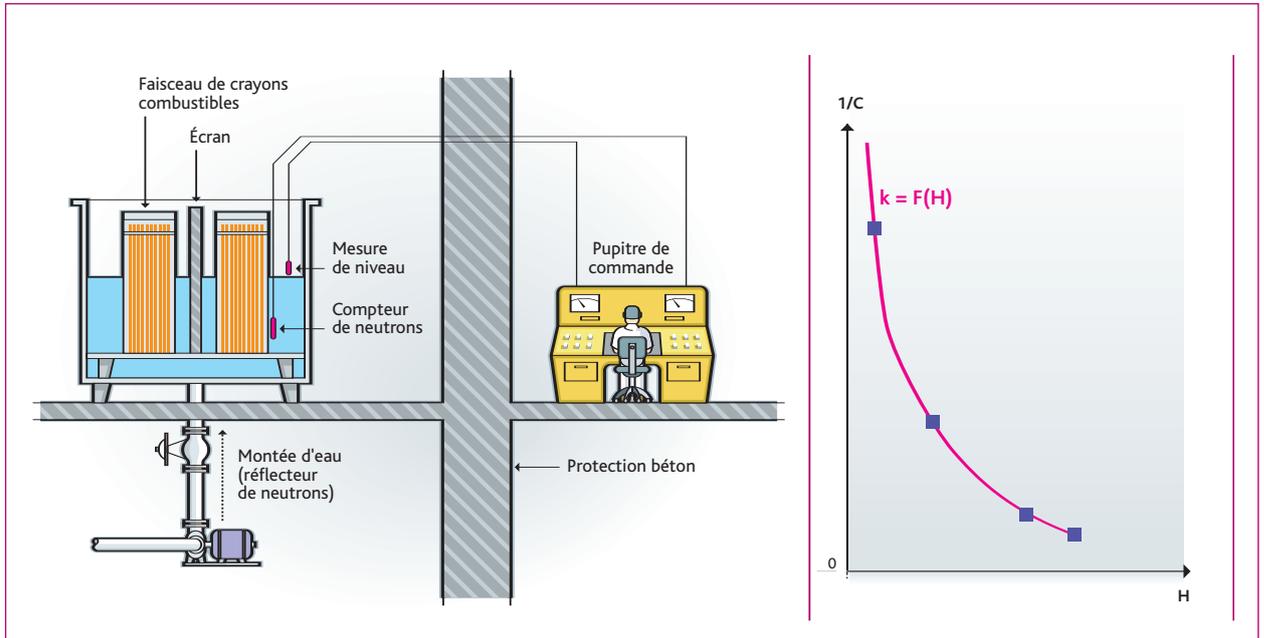


Figure 1 : Principe d'une expérience par approche sous-critique.

Les expériences critiques

Les résultats des expériences constituent des informations essentielles pour évaluer les marges à considérer dans les études de criticité. Ils peuvent directement être utilisés pour déduire des limites critiques de masse, concentrations, etc., quand ces expériences représentent des situations industrielles, d'un point de vue géométrique et de composition. C'est le cas par exemple des expériences mettant en œuvre des sphères métalliques critiques qui permettent de déterminer les masses critiques des actinides.

Cependant, les expériences critiques ne correspondent généralement pas de façon exacte aux configurations industrielles rencontrées. Dans ce cas, l'exploitation de ces résultats de qualification pour déterminer des biais à considérer, pour les situations dans lesquelles on cherche à estimer la marge minimale par rapport à un état critique, nécessite une démarche d'analyse complémentaire.

Des améliorations peuvent dans les deux cas être apportées aux schémas de calcul suite à l'analyse de la comparaison directe entre le calcul et l'expérience.

Principe d'une expérience critique

Différents programmes expérimentaux ont été élaborés et continuent d'être menés dans les pays possédant une industrie nucléaire (France, Japon, Russie, États-Unis, etc.).

Les expériences par approche sous-critique représentent la majorité des programmes. La méthode d'approche la plus fréquemment utilisée est celle de l'inverse du taux de comptage. En effet la population neutronique et le taux de comptage croissent indéfiniment en présence d'une source quand l'état critique est atteint. La valeur critique du paramètre d'approche est ainsi déterminée en reportant l'inverse du taux de comptage en fonction de ce paramètre. Elle correspond à une ordonnée nulle.

Le paramètre d'approche sous-critique dépend des configurations étudiées. Il peut représenter la hauteur d'une solution fissile placée dans une cuve, la hauteur du modérateur pour un réseau de crayons combustibles (*figure 1*), mais également la distance entre deux unités fissiles (*figure 2*).

Dans de nombreuses installations expérimentales, l'état critique est approché au plus près (à moins de 0,1 %) sans jamais être atteint, et la valeur du paramètre critique est déterminée par extrapolation. C'est la méthode couramment utilisée dans l'appareillage B du CEA à Valduc qui réalise de nombreuses expériences pour le compte de l'IRSN depuis les années soixante.

Les formulaires de calcul peuvent également être validés par certaines expériences réalisées dans des installations fonctionnant en régime juste critique à très faible puissance, comme le réacteur ÉOLE du CEA à Cadarache (*figure 3*).



Figure 2 : Dispositif MARACAS à Valduc (Machine de rapprochement pour la criticité d'assemblages solides) mettant en œuvre des boîtes de poudres d' UO_2 posées sur deux tables, une mobile et une fixe. Le paramètre d'approche critique est la distance entre les deux tables.

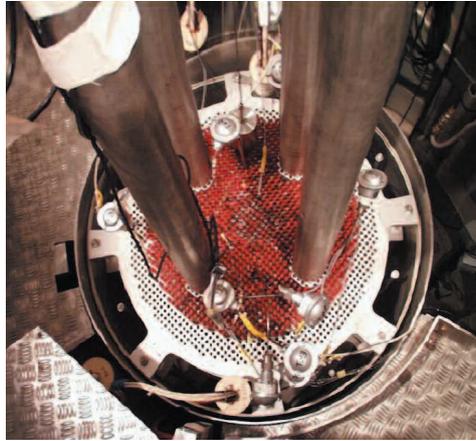


Figure 3 : Réacteur ÉOLE du CEA à Cadarache.

Enfin, il est possible de réaliser des expériences légèrement surcritiques. Dans ce cas, la valeur du paramètre d'approche est déterminée à partir de la mesure du temps de doublement. C'est la méthode adoptée dans l'installation STACY de JAEA⁽¹⁾ (Japon), avec qui l'IRSN collabore depuis de nombreuses années notamment dans le cadre de l'évaluation ou de la réévaluation d'expériences critiques pour le groupe ICSBEP⁽²⁾.

Le groupe de travail ICSBEP

Créé en 1994, ICSBEP [2] est un groupe de travail international de l'OCDE qui a pour mission d'évaluer les programmes expérimentaux de criticité réalisés dans le monde depuis le début du programme nucléaire. L'objectif est de regrouper des expériences de référence présentées selon un format standardisé, pouvant contribuer à la qualification des formulaires de criticité dans un catalogue, également appelé *handbook*.

Le travail d'évaluation, ou de réévaluation pour des expériences anciennes, consiste à analyser l'ensemble des données expérimentales. Les expériences sont décrites de façon très précise et les effets sur le k_{eff} (coefficient effectif de multiplication des neutrons) de l'ensemble des incertitudes expérimentales sont estimés. Un modèle de calcul (ou *benchmark*⁽³⁾) est également proposé. Par ailleurs, l'objectif étant de contribuer à la qualification des formulaires de criticité, des résultats de divers codes de calcul sont également présentés. De nombreux paramètres physiques sont calculés : le flux, le pourcentage de fissions et de captures par isotopes, l'énergie moyenne des neutrons induisant des fissions, etc. Ces paramètres permettent de caractériser les différentes expériences et de définir les domaines d'application des formulaires de calcul validés par celles-ci. Enfin, il est à noter que chaque document fait l'objet d'une vérification technique par un organisme différent de celui en charge de l'évaluation.

L'IRSN participe aux travaux de ce groupe en tant qu'évaluateur pour les programmes expérimentaux réalisés dans l'installation de criticité du CEA à Valduc, mais également en tant que vérificateur externe, notamment dans le cadre de la collaboration avec JAEA. Ainsi, plus de 300 expériences critiques évaluées par l'IRSN ont déjà été intégrées dans le *handbook* de l'ICSBEP, dont l'édition de septembre 2005 regroupe plus de 3 600 expériences.

(1) JAEA : Japan Atomic Energy Agency, Agence japonaise pour l'énergie atomique.

(2) International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project, Groupe international pour l'évaluation d'expériences critiques.

(3) Un *benchmark* est une configuration de référence correspondant le plus souvent à une expérience réalisée en laboratoire. Par extension, un *benchmark* peut aussi désigner une série de configurations ou le document de présentation.

Sélection des expériences pour la qualification des formulaires de criticité

L'ensemble des expériences sélectionnées pour la qualification d'un formulaire de criticité constituent la base de qualification. Il est indispensable pour déterminer les éventuels biais de calcul associés à une configuration particulière que la base de qualification retenue soit la plus représentative possible des situations rencontrées au cours du cycle du combustible.

Les calculs de criticité concernant des configurations extrêmement variées, la base de qualification doit comprendre des expériences mettant en œuvre différents types de milieux chimiques dans des configurations variées : solutions, poudres, réseaux de crayons combustibles, etc. Ainsi l'influence de différents paramètres tels que la composition isotopique, le rapport de modération, la géométrie du système, la présence de différents types de réflecteurs ou de divers poisons neutroniques doit être étudiée. Certaines expériences peuvent également être retenues pour qualifier les spécificités d'un matériau ou d'un nucléide particulier.

Par ailleurs, il est recommandé de sélectionner autant que possible pour des expériences effectuées dans des laboratoires différents chaque type de configuration afin d'éviter qu'un biais expérimental n'impacte les conclusions de la qualification. Ceci permet de s'assurer de la cohérence des différentes données expérimentales.

Enfin, la qualité du *benchmark* est un critère essentiel pour l'intégrer dans la base de qualification. Les données expérimentales fournies doivent être suffisantes pour l'exploitation et les incertitudes expérimentales jugées raisonnables. C'est pourquoi les expériences sélectionnées sont issues en priorité du *handbook* de l'ICSBEP.

La qualification des outils de calcul présente nécessairement un caractère évolutif. Celle-ci doit en effet s'adapter en permanence aux évolutions des combustibles nucléaires (augmentation de l'enrichissement de l'uranium et du taux de combustion des combustibles, MOX, combustibles expérimentaux, etc.) et des procédés mis en œuvre dans le cycle du combustible.

Des domaines d'application particuliers non couverts peuvent être mis en évidence à l'issue du processus de sélection des expériences pour la base de qualification. Ceci peut conduire à définir de nouveaux programmes expérimentaux en cohérence avec les besoins identifiés. Les derniers programmes ainsi mis en œuvre par l'IRSN pour son propre besoin en termes de qualification sont rappelés dans le paragraphe suivant.

Définition de programmes expérimentaux

La définition d'un programme expérimental pose la question de la représentativité des expériences proposées pour répondre à un besoin général jusqu'à l'exploitation des résultats en parfaite connaissance des incertitudes associées pour déterminer les biais de calcul à considérer dans les études. Les cas présentés décrivent les expériences mises en œuvre pour répondre à quelques besoins particuliers.

Qualification des actinides et des produits de fission

La prise en compte du *credit burn-up*, marge de réactivité due à l'usure du combustible au cours de l'irradiation, nécessite la qualification des actinides et des produits de fission. Deux grands program-

(1) DOE : *Department of Energy*, ministère de l'Énergie, États-Unis.

(2) AEN : Agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE.

(3) IPPE : *Institute for Physics and Power Engineering*, Institut de physique et de l'énergie, Russie.

(4) ISTC : *International Science and Technology Center*, Centre international des sciences et technologies.

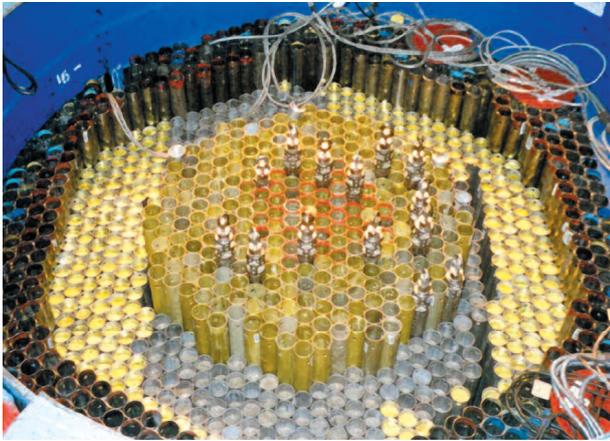


Figure 4 : Dispositif expérimental du programme russe dans l'installation BFS.

mes expérimentaux [3] ont ainsi été réalisés de 1988 à 2004 par l'IPSN puis l'IRSN dans le dispositif expérimental appareillage B du CEA à Valduc dans le cadre de collaborations avec Areva NC (ex Cogema) :

- le programme HTC (haut taux de combustion) qui mit en œuvre des crayons d'oxyde mixte composés d'uranium ayant un enrichissement de 1,57 % en ^{235}U , une teneur en plutonium de 1,1 %, dans des configurations proches de celles rencontrées lors du transport, l'entreposage ou la dissolution d'assemblages combustibles irradiés. La composition de ces crayons, spécialement fabriqués pour ce programme, est représentative d'un combustible de type REP (réacteur à eau pressurisée) dont l'enrichissement initial en ^{235}U est de 4,5 %, irradié jusqu'à un taux de combustion de 37 500 MWj/t, mais sans produits de fission ;
- le programme PF (produits de fission) qui avait pour objectif de contribuer à la qualification de six produits de fission, stables et non volatils, représentant à eux seuls plus de 50 % de l'absorption due aux produits de fission dans les combustibles irradiés (^{103}Rh , ^{133}Cs , ^{143}Nd , ^{149}Sm , ^{152}Sm et ^{155}Gd).

Les résultats de ces deux programmes ont fait l'objet d'échanges techniques avec le DOE⁽¹⁾ qui s'intéresse également à la prise en compte du *credit burn-up*, notamment pour l'appliquer au dimensionnement des emballages de transport.

Qualification des poudres MOX

De même, l'absence d'expériences représentatives de certaines configurations mettant en œuvre des milieux MOX, rencontrées par exemple dans les unités de fabrication du combustible MOX, a été mise en évidence. Celles-ci concernent des poudres d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium (MOX) faiblement modérées (l'humidité de la poudre peut varier de 1 % en conditions normales de fonctionnement à 5 % en conditions incidentelles). Un séminaire international [4 ; 5] a été organisé par l'AEN⁽²⁾ sur ce thème en 2004.

Des expériences (figure 4) ont été réalisées par l'IPPE⁽³⁾ dans le cadre collaboratif d'un projet ISTC⁽⁴⁾ auquel s'est associé l'IRSN. Elles met-

tent en œuvre un cœur constitué de tubes d'aluminium remplis de galettes de plutonium métallique, d'oxyde d'uranium et de polyéthylène dans l'installation BFS. Elles ont fait l'objet d'une publication dans le *handbook* de l'ICSBEP en septembre 2006. Une analyse est en cours pour identifier si ces expériences sont suffisantes pour répondre à l'ensemble des besoins. Une autre configuration mettant en œuvre un réseau à pas serré de crayons d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium à 27,5 % de PuO_2 dans de l'eau avait fait l'objet d'une proposition française avancée conjointement par l'IRSN et le CEA.

Qualification des matériaux de structure

Depuis plusieurs années, les calculs réalisés dans le cadre des dossiers de justification de la sous-criticité des installations nucléaires de base et des colis de transport représentent des configurations de plus en plus réalistes, modélisant notamment les matériaux de structure présents autour de la matière fissile. Ces matériaux de structure mis en œuvre entre les unités fissiles modifient sensiblement le bilan neutronique et peuvent de ce fait être déterminants pour garantir la sous-criticité des installations ou des colis de transport.

Cette démarche, qui s'accompagne souvent d'une réduction des marges de sûreté, accroît l'importance de la qualification des formulaires de calcul de criticité. Il est donc nécessaire de mettre en œuvre une démarche de qualification de ces matériaux.

Le recensement des besoins, associé à une analyse détaillée des expériences disponibles pour la qualification des matériaux, a conduit l'IRSN à dimensionner une quarantaine de configurations expérimentales. Ceci avait pour objectif de combler les lacunes mises en évidence et de contribuer à la qualification des codes de calcul pour différents matériaux utilisés dans des situations de transport, d'entreposage ou de stockage. Ces expériences, qui seront réalisées dans l'appareillage B du CEA à Valduc, concernent principalement des configurations pour lesquelles le matériau est inséré entre deux ou quatre assemblages à base d'oxyde d'uranium. Les matériaux retenus suite aux études de faisabilité et de pré-dimensionnement sont notamment l'aluminium, le béton, le fer, le nickel, la fonte, le zircaloy et l'oxyde de silicium (verre ou sable).

Détermination des biais de calcul à considérer dans la détermination des marges de sûreté

Comparaison calcul-expérience

En général, les *benchmarks* fournissent non seulement une description détaillée de la configuration expérimentale, mais également une modélisation de référence souvent simplifiée pour faciliter la modélisation et l'interprétation par les codes de calcul. Dans ce cas, le facteur de multiplication effectif k_{eff} , associé à ce modèle est déterminé. Il correspond au k_{eff} de la configuration réelle, en général égal à 1,00000 puisqu'il s'agit souvent d'expériences critiques, auquel est intégrée une modélisation statistique des effets en réactivité des approximations du *benchmark*. En effet les structures extérieures (appareils de mesure, compteurs, etc.) et les murs du local, qui ont un poids faible sur le k_{eff} , sont par exemple souvent négligés. De plus, les incertitudes expérimentales sont recensées et les effets en réactivité de chacune d'elles sont calculés. L'effet global sur le k_{eff} de l'ensemble des incertitudes expérimentales non corrélées est alors défini comme la somme quadratique des effets de chacune d'elles.

Au final, les *benchmarks* fournissent donc un k_{eff} ($k_{\text{eff}}(\text{benchmark})$) correspondant au modèle, auquel est associée une incertitude expérimentale ($\sigma_{\text{benchmark}}$).

Le *benchmark* est ensuite modélisé à l'aide des codes utilisés afin de calculer le k_{eff} correspondant ($k_{\text{eff}}(\text{calcul})$). Une incertitude statistique de calcul lui est également associée (σ_{calcul}) si celui-ci est déterminé à l'aide d'un code probabiliste.

Ainsi, les écarts entre le calcul et l'expérience peuvent alors être considérés comme significatifs s'ils sont suffisamment distincts malgré leurs incertitudes. En pratique, un biais de calcul est considéré si :

$$|k_{\text{eff}}^{(\text{calcul})} - k_{\text{eff}}^{(\text{benchmark})}| > 3 \sqrt{\sigma_{\text{calcul}}^2 + \sigma_{\text{benchmark}}^2}$$

Dans la majorité des cas, les incertitudes expérimentales données dans les *benchmarks* sont inférieures à 0,5 %. Elles peuvent atteindre 0,8 % dans de rares cas. La valeur de l'écart-type (σ_{calcul}) dans les calculs Monte Carlo est en général fixé à 0,1 %. Elle est dans tous les cas fixée à une valeur très inférieure aux incertitudes expérimentales.

Mise en évidence d'un biais de calcul sur les configurations expérimentales

Dans les faits, plusieurs expériences similaires sont souvent réalisées au cours d'un même programme expérimental, de façon à étudier l'influence d'un ou plusieurs paramètres physiques, par exemple la concentration d'une solution ou le pas d'un réseau de crayons. Si un biais est détecté pour une configuration expérimentale, il faut tout d'abord s'assurer que l'écart observé est cohérent avec les résultats obtenus pour l'ensemble des expériences d'un même programme expérimental et

qu'il ne s'agit pas en fait d'un point aberrant. Par ailleurs, s'il existe des expériences similaires effectuées dans des laboratoires différents, elles sont exploitées de façon à vérifier que les écarts mis en évidence lors de l'exploitation des expériences d'un même programme ne sont pas uniquement dus aux données expérimentales.

Finalement, après s'être assuré que les écarts observés sont uniquement imputables au formulaire de calcul (données nucléaires de base ou approximations mises en œuvre dans les codes), un traitement statistique de l'ensemble des résultats obtenus pour des expériences similaires permet de déterminer la valeur du biais de calcul.

Enfin, afin de pouvoir « extrapoler » les conclusions de la qualification aux configurations réelles, des tendances sont recherchées en fonction de différents paramètres influençant la valeur du k_{eff} , comme par exemple le spectre neutronique, la concentration d'un isotope, l'épaisseur d'un matériau, etc. D'autres approches complémentaires sont en cours d'étude pour affiner la caractérisation du biais. Elles se basent sur des études de sensibilité aux paramètres importants ou les plus sensibles aux incertitudes.

Représentativité des expériences par rapport à des situations industrielles

La finalité de la qualification est de mettre en évidence et d'interpréter des biais de calcul sur des configurations expérimentales parfaitement connues et d'utiliser ces éléments pour estimer les biais à considérer dans les marges de sûreté appliquées aux configurations réelles étudiées de plus en plus complexes.

Cependant les expériences critiques ne représentent jamais exactement les configurations industrielles rencontrées. Il est donc nécessaire de mettre en place une démarche permettant de juger de la représentativité des expériences disponibles par rapport à la configuration réelle étudiée. L'objectif sera alors de déterminer un biais « applicable » ou de mettre en évidence un besoin de nouvelles expériences.

Paramètres neutroniques

Pour cela, l'ingénieur se fonde dans un premier temps sur des paramètres dits macroscopiques comme le type de combustible mis en œuvre, la composition chimique du milieu fissile et son vecteur isotopique. Les expériences mettant en œuvre des paramètres similaires sont facilement identifiables dans la classification ICSBEP. De même, la présence d'un matériau réflecteur ou de poisons neutroniques peut être considérée comme un critère de représentativité.

Cette première étape qualitative n'étant pas toujours suffisante, des paramètres dits microscopiques, comme le spectre neutronique, le facteur de ralentissement à la coupure thermique⁽¹⁾ ou l'énergie moyenne des neutrons induisant des fissions, doivent également être considérés.

Enfin, compte tenu de l'influence des données nucléaires sur les éventuels biais de calcul, les sensibilités aux données de base des différents

isotopes présents peuvent également être utilisées pour juger de la représentativité de certaines expériences de la base de qualification par rapport à la configuration étudiée. Pour cela, il est vérifié que les coefficients de sensibilité, qui correspondent à l'effet sur le facteur de multiplication effectif k_{eff} de la variation de 1 % dans un domaine d'énergie précis d'une donnée nucléaire (section efficace de fission, de capture ou de diffusion, spectre de fission, nombre moyen de neutrons émis par fission, etc.) des principaux isotopes de la configuration calculée, sont comparables à ceux des expériences jugées représentatives. Ainsi, compte tenu du nombre de paramètres à analyser pour des configurations souvent complexes, des outils d'aide à la caractérisation sont développés depuis quelques années pour les différents formulaires de criticité, par exemple l'outil TSUNAMI du formulaire américain SCALE [6], fondé en grande partie sur la sensibilité aux données nucléaires de base. Concernant le formulaire de criticité français CRISTAL, l'outil MACSENS [7] est développé par l'IRSN.

L'outil MACSENS

Le formulaire de criticité français CRISTAL [8] a fait l'objet de nombreux développements dans le cadre d'une collaboration entre l'IRSN, le CEA et Areva NC. Les calculs de dimensionnement des appareils sont principalement fondés sur l'enchaînement des codes APOLLO 2 et MORET 4, qui constituent la voie standard du formulaire CRISTAL. Développé par l'IRSN, le code MORET 4 [9] est un code Monte Carlo de simulation du transport des neutrons qui permet le calcul du k_{eff} de géométries complexes à trois dimensions en utilisant l'approximation multigroupe de l'énergie.

L'outil MACSENS (outil Moret d'aide à la caractérisation et aux études de sensibilité) est actuellement développé par l'IRSN pour apporter des éléments techniques à l'ingénieur et lui permettre de caractériser une configuration de calcul par rapport à une base d'expériences critiques ainsi que d'obtenir une estimation d'un biais de calcul et de l'incertitude associée à ce biais. MACSENS s'appuie sur les résultats des 1 616 expériences critiques de la base de qualification actuelle de la voie standard du formulaire CRISTAL (écarts C/E, paramètres physiques, etc.), sur les données du calcul de la configuration à étudier (paramètres physiques d'entrée et de sortie du calcul), ainsi que sur l'utilisation de méthodes d'analyse de données.

La caractérisation vise à situer une configuration de calcul étudiée par rapport à une série d'expériences critiques disponibles, sur la base d'une comparaison, de paramètres physico-chimiques et dimensionnels caractéristiques du cas de calcul étudié, et de paramètres à caractère « neutronique » issus du calcul. Cette problématique est complexe compte tenu de la diversité des situations rencontrées, des expériences critiques disponibles, de la variabilité des incertitudes expérimentales et des corrélations potentielles entre certains groupes d'expériences. Ainsi, un nombre très important de paramètres plus ou moins interdépendants peuvent être analysés.

La difficulté consiste à disposer de méthodes fiables et suffisamment générales pour déterminer les paramètres les plus pertinents qui permettront d'identifier les similitudes des comportements neutroniques entre les cas étudiés et les expériences disponibles.

Un certain nombre de méthodes statistiques ont été testées et implémentées dans l'outil MACSENS pour affiner ce choix. Elles permettent de combiner les paramètres qui apparaissent comme les plus intéressants pour construire des paramètres explicatifs plus pertinents. Il s'avère nécessaire dans l'état actuel des développements que l'utilisateur réalise *a priori* un tri préalable des paramètres les plus sensibles et des expériences les plus « proches » avant de mettre en œuvre une méthode statistique de traitement des informations disponibles. Pour favoriser une visualisation aisément interprétable par l'utilisateur (*figure 5*), une représentation du résultat de la mise en œuvre de ces techniques peut être fournie par l'outil selon trois axes principaux, combinaisons linéaires orthogonales qui correspondent ainsi à trois paramètres explicatifs statistiquement définis comme les plus pertinents.

Enfin, reste à estimer le biais de calcul et l'incertitude associée à ce biais qui devraient être affectés au k_{eff} du calcul du cas étudié.

Cette estimation est fondée sur la méthode statistique SIR-KS qui permet une interpolation multidimensionnelle sur les écarts C-E (écarts entre le k_{eff} calculé avec le code MORET 4 et le k_{eff} expérimental) des *benchmarks* de la base expérimentale choisie. Cette méthode ne peut être mise en œuvre que si le nombre d'expériences retenues dans la base expérimentale choisie par l'utilisateur est suffisamment important par rapport au nombre de paramètres sensibles choisis.

L'outil MACSENS est en cours de validation et d'optimisation. Sa première version constitue d'ores et déjà un outil puissant et convivial dans l'analyse physique des nombreux paramètres issus d'un calcul de criticité. Il permet ainsi à l'ingénieur de conforter ses interprétations *a priori* en termes de qualification de la voie standard APOLLO 2-MORET 4 du formulaire CRISTAL.

Utilisation des résultats de la qualification dans le cadre d'une expertise

Au final, l'ensemble de cette démarche de qualification (*figure 6*) doit permettre pour chaque type de configuration étudiée d'identifier s'il existe des expériences représentatives du cas considéré et de déterminer un éventuel biais de calcul.

(1) Le facteur de ralentissement à la coupure thermique est défini comme étant la proportion de neutrons émis par fission (avec une énergie de l'ordre de 2 MeV) qui ont été ralentis jusqu'à une énergie inférieure à 4 eV (énergie en dessous de laquelle la probabilité de générer une fission est importante).

4.4

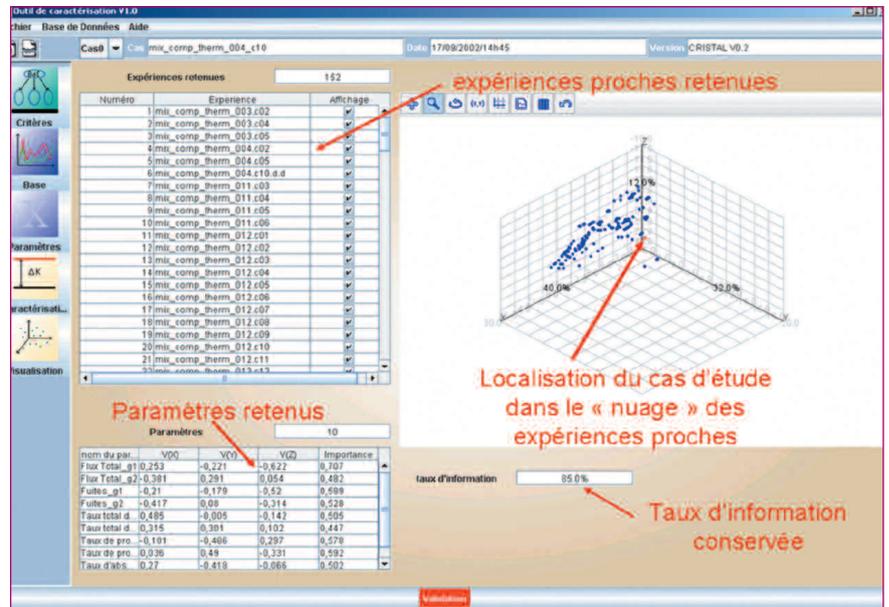


Figure 5 : Écran MACSENS permettant la visualisation de la position de la configuration étudiée dans la base réduite d'expériences.

Il n'est pas possible de déterminer de façon rigoureuse le biais de calcul si aucune expérience représentative n'est disponible. Cette absence de qualification doit alors être prise en compte en justifiant de marges importantes dans les hypothèses prises en considération dans les calculs, ou en diminuant de manière significative les limites des paramètres calculés.

Si au contraire il existe des expériences jugées représentatives de la configuration étudiée, le biais de calcul est déterminé en tenant compte des écarts observés entre le calcul et les expériences, du nombre d'expériences représentatives, de l'éloignement plus ou moins important de ces expériences par rapport à la configuration étudiée, ainsi que de l'ensemble des incertitudes expérimentales associées aux *benchmarks* retenus.

Exemple d'application

En France, la règle fondamentale de sûreté relative à la prévention des risques de criticité (RFS 1 3 c) [10] spécifie que « le dimensionnement des appareils, les valeurs de masse de matière fissile et de concentration en poison neutronique soient définis de telle sorte que les coefficients de multiplication effectifs (k_{eff}) soient inférieurs à 1 avec une marge de sécurité suffisante. Cette marge peut être modulée selon le degré de confiance accordé aux techniques de calcul, fonction de la qualification de ces techniques par comparaison aux résultats d'expériences portant sur des configurations proches de celles étudiées ».

L'expertise de l'IRSN, dans le domaine de la prévention des risques de criticité, a pour but :

- de s'assurer de la pertinence des analyses de sûreté effectuées par l'exploitant, notamment pour définir les configurations à étudier, et des moyens mis en œuvre pour garantir le dimensionnement de ces dernières ;
- de s'assurer du caractère enveloppe des études de criticité réalisées avec ces configurations ;
- d'évaluer la suffisance des marges par rapport aux configurations potentiellement critiques, en particulier au regard de la qualification des schémas de calculs utilisés.

En pratique, on considère pour justifier du dimensionnement des configurations étudiées que le facteur de multiplication effectif (k_{eff}) de ces différentes configurations, déterminé à l'aide d'un schéma de calcul de criticité, doit satisfaire à la condition suivante :

$$k_{eff} < 1 - \Delta k_{marge} - \Delta k_{biais} \text{ où :}$$

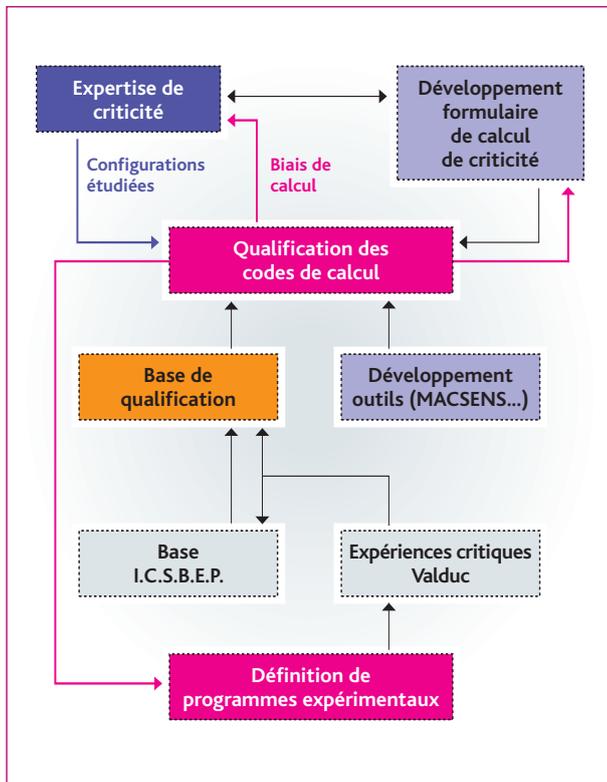


Figure 6 : Schéma général décrivant le processus de qualification des formulaires de criticité.

- k_{eff} est le coefficient de multiplication effectif moyen du système étudié calculé, intégrant les éventuelles incertitudes de calcul (méthode de type Monte Carlo) ;
- Δk_{marge} représente la marge vis-à-vis de la criticité. Il est composé d'une marge administrative incompressible à laquelle peut être éventuellement ajoutée une marge de sûreté tenant compte des hypothèses de calcul et du manque éventuel de qualification du formulaire de calcul pour la configuration étudiée calculée ;
- Δk_{biais} représente le biais de calcul déterminé par la qualification par comparaison avec des expériences représentatives de celles du système étudié calculé. Si le biais de calcul est positif, Δk_{biais} est pris égal à 0. En revanche, si le biais de calcul est négatif, Δk_{biais} correspond à la valeur absolue du biais identifié.

Ce paragraphe présente un exemple d'expertise d'un dossier basée sur une configuration de calculs de criticité pour laquelle l'IRSN a dû effectuer une analyse particulière, en l'absence d'expérience critique permettant de statuer sur la qualification du schéma de calcul. Ce dossier concernait un entreposage en puits (figure 7) de conteneurs renfermant des éléments combustibles à base d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium (dit combustibles MOX), la teneur massique en plutonium des combustibles étant au plus de 12,5 %.

Avant d'être entreposés, ces combustibles MOX font l'objet d'un recon-

ditionnement durant lequel ils sont séchés et placés dans des étuis soudés de manière étanche, eux-mêmes conditionnés dans des conteneurs étanches. Ce conditionnement vise à exclure la présence et le risque d'entrée d'eau dans les conteneurs et les étuis durant toute leur période d'entreposage.

Ce conditionnement particulier a été mis à profit par l'exploitant pour optimiser le remplissage des puits. En effet, la matière fissile étant beaucoup moins réactive lorsqu'elle n'est pas mélangée à des matériaux modérateurs (qui ralentissent les neutrons, comme l'eau), la masse de combustible par étui a été déterminée en considérant les combustibles secs dans les études de criticité. Toutefois, comme précisé ci-avant, il n'existe pas à ce jour d'expérience critique permettant de se prononcer sur la qualification des schémas de calcul pour ce type de combustibles.

Une étude de criticité a été réalisée à l'aide du formulaire de calcul de criticité CRISTAL pour justifier la sous-criticité de l'entreposage de ces combustibles. Cette étude modélise les puits de la casemate d'entreposage en tenant compte de la réflexion par les parois en béton. Tous les puits sont supposés entièrement remplis de conteneurs renfermant des éléments combustibles MOX secs. Néanmoins, une modulation interstitielle, modélisée par un brouillard d'eau de densité variable (modélisant les matériaux présents entre ces derniers et couvrant les risques d'inondation) est considérée entre les puits. L'acier des étuis et des conteneurs, un matériau qui absorbe les neutrons, est pris en compte, mais pas l'acier des puits. Cette dernière hypothèse conservatrice est habituellement retenue pour cette installation dans les configurations où la qualification des schémas de calcul n'est pas acquise, compte tenu qu'elle apporte usuellement une marge de sûreté importante (supérieure à 15 %).

Le Δk_{marge} fixé par l'exploitant dans son étude de criticité correspond à la marge administrative usuellement retenue de 5 %. Dans le dossier examiné, l'exploitant a proposé une nouvelle méthodologie basée sur la prise en compte d'une marge forfaitaire Δk_{biais} de 2 % pour prendre en compte le manque d'expérience critique dans le domaine étudié.



Figure 7 : Exemple d'installation de puits d'entreposage.

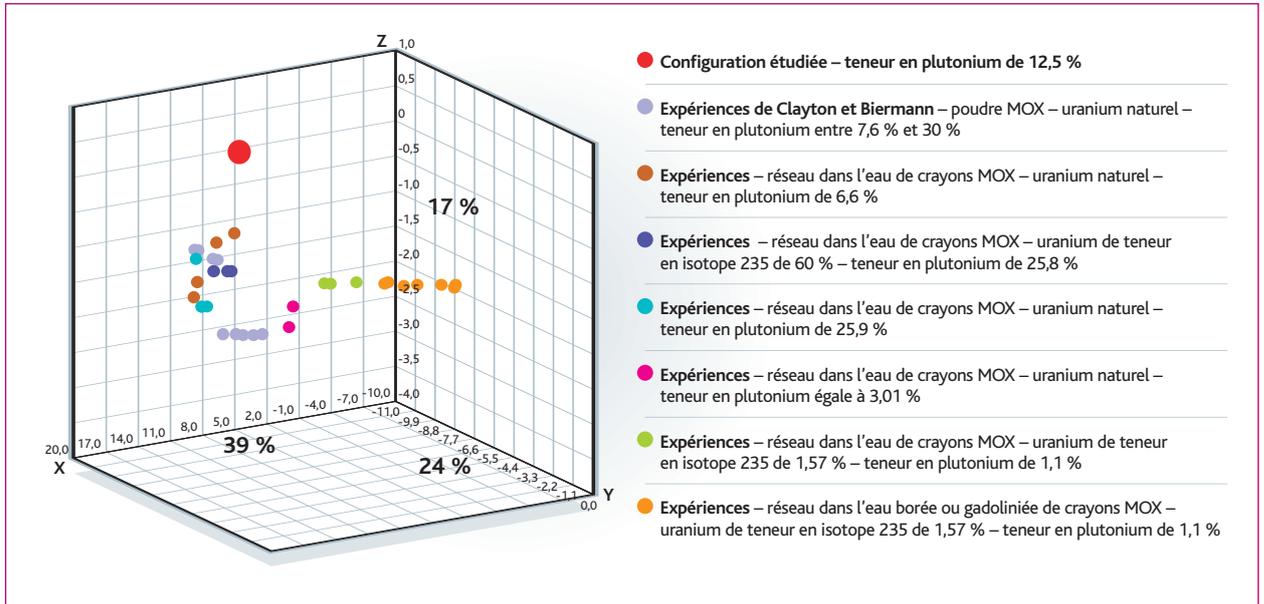


Figure 8 : Visualisation avec MACSENS de la position de la configuration étudiée dans la base réduite d'expériences critiques sélectionnées.

Ce biais correspond selon l'exploitant au biais de calcul maximal observé dans l'ensemble du dossier de qualification du schéma de calcul utilisé (CRISTAL).

Cette valeur de 2 % fixée arbitrairement ne s'appuie pas sur un raisonnement quantitatif. L'acceptation de ce biais de calcul par l'IRSN permettrait dans l'absolu à l'exploitant de faire évoluer le réalisme de sa modélisation et diminuer ainsi les marges existantes actuelles en considérant l'acier des puits. Aussi l'IRSN a évalué la pertinence du biais proposé par l'exploitant de manière à anticiper une telle évolution. Concernant la détermination du Δk_{biais} , l'IRSN a considéré, en première approche, sans utilisation d'outils spécifiques, que les expériences disponibles dans la base de qualification de CRISTAL [8] susceptibles de correspondre le mieux à la configuration étudiée par l'exploitant étaient celles réalisées par Clayton et Bierman mettant en œuvre des poudres d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium faiblement modérées. Toutefois, ces expériences ont été jugées d'une qualité médiocre [4], ce qui ne permet pas de les considérer comme des expériences de référence. Les expériences du programme MOX de l'IPPE, également exploitables en première approche, n'ont pu être utilisées compte tenu du fait que leur exploitation n'était pas achevée à l'échéance de cette expertise. Pour conforter cette première analyse, l'IRSN s'est intéressé plus spécifiquement aux caractéristiques neutroniques des configurations de calcul. Il ressort de cette analyse que les neutrons qui transitent d'un puits à l'autre sont ralentis par le brouillard d'eau interstitielle modélisé dans les calculs, bien que le combustible MOX soit supposé sec dans le modèle de calcul. En effet, le facteur de ralentissement à la coupure thermique de la configuration étudiée est de 0,72

(ce facteur est typiquement de l'ordre de 0,9 pour des milieux entièrement modérés et inférieur à 0,1 pour des milieux secs). L'utilisation de ce paramètre conduit à estimer que les expériences intuitivement sélectionnées ne peuvent pas être considérées comme suffisantes et à s'interroger sur la représentativité d'expériences critiques classées comme modérées. Toutefois, ce raisonnement réalisé à partir d'un seul paramètre est très limitatif et insuffisant.

L'IRSN a eu recours à l'outil de caractérisation MACSENS afin de prendre en compte un nombre plus représentatif de paramètres physiques comme le taux de réaction discrétisé en groupes d'énergie, les caractéristiques des matières fissiles (comme la teneur en plutonium, etc.), et d'exploiter l'ensemble des expériences critiques disponibles.

Dans une première étape, compte tenu de la valeur du facteur de ralentissement et de la forme du combustible (paramètres utilisés par MACSENS pour proposer à l'utilisateur des expériences critiques dites proches), une base réduite d'expériences critiques est choisie par l'utilisateur de MACSENS. Elle est constituée des expériences de Clayton et Bierman précitées, mettant en œuvre les poudres d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium faiblement modérées, ainsi que d'expériences dont la qualité est reconnue, mettant en œuvre des réseaux de crayons d'oxydes mixtes de plutonium et d'uranium dans de l'eau.

Dans une seconde étape, l'utilisateur a choisi 30 paramètres physiques (respectivement trois et deux taux de réaction dans le combustible et les structures, ainsi que les fuites, tous discrétisés en cinq groupes d'énergie) qui apparaissent les plus appropriés pour discriminer les 31 expériences critiques de cette base réduite. La méthode ACP implémentée dans MACSENS permet de hiérarchiser des combinaisons

linéaires de ces 30 paramètres, dont les trois combinaisons les plus significatives sont utilisées pour une visualisation 3D (*figure 8*) du positionnement de la configuration étudiée dans cette base réduite.

Il ressort de l'exploitation de cette visualisation que les trois axes représentent 80 % (somme des trois valeurs des trois axes orthogonaux) de l'information des 30 paramètres des 31 expériences retenues par l'utilisateur. Cet outil a permis de supprimer des corrélations qui peuvent exister entre les paramètres, et de synthétiser les 30 x 31 valeurs des paramètres en une visualisation 3D ergonomique représentant 80 % de l'information portées par ces valeurs. Les 20 % restants n'ont pas été visualisés, seules les trois combinaisons les plus porteuses d'information étant représentées. Il conviendrait de s'assurer que les informations non représentées ne conduisent pas à éloigner la configuration de calcul du domaine défini par les 31 expériences critiques retenues. Les outils pour réaliser ce travail restent à développer dans MACSENS. Comme le montre la *figure 8* présentée ci-contre, pour les 80 % de l'information des 30 x 31 valeurs de paramètres, la configuration de calcul n'est pas comprise dans le nuage des expériences critiques sélectionnées. Ainsi, l'estimation d'un biais de calcul par interpolation tel que proposé par MACSENS n'est pas pertinente dans l'état actuel

de développement de l'outil. Néanmoins, MACSENS a permis de mettre en évidence que les expériences neutroniquement les plus proches sont les expériences de Clayton et Bierman, jugées peu fiables, et une série d'expériences de type réseaux de crayons dans l'eau, qui semblaient à première vue, compte tenu de leurs caractéristiques, éloignées de la configuration de calcul.

Ce travail montre donc par une approche plus fine des expériences critiques qu'il n'y a pas d'expérience permettant de statuer complètement sur la qualification du schéma de calcul de criticité pour la configuration étudiée. Il n'apparaît pas possible au regard de ces résultats de déterminer un biais de calcul fiable avec les expériences, les méthodes et les outils disponibles. Ainsi, il n'est pas possible de statuer sur la pertinence et la suffisance d'un Δk_{biais} limité à 2 %.

Aussi, l'IRSN a estimé que l'évolution de la modélisation dans un sens plus réaliste ne serait pas acceptable. Pour la situation actuelle, les marges disponibles, dues aux hypothèses de calcul (acier des puits non pris en compte) ont pu être quantifiées (de l'ordre de 16 %), ce qui a permis de statuer sur la sûreté et la criticité de l'entreposage de combustible MOX, sans toutefois entériner le biais proposé par l'exploitant.

Références

- (1) "http://www.nea.fr/html/dbdata/projects/nds_jef.htm"
- (2) *International Handbook of Evaluated Criticality Benchmark Experiments*, NEA Nuclear Science Committee, NEA/NSC/DOC (95)03, "<http://icsbep.inel.gov/>", édition de septembre 2005.
- (3) BARBRY, F., « Experimental Criticality Study Programmes and Test Potential of the IPSN/Valduc Criticality Laboratory », *Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, ICNC'1999, Versailles, France, Sept. 20-23, 1999.
- (4) « Workshop on the Need for Integral Experiments With Low-Moderated MOX Fuels », *Workshop Proceedings, Paris, France, 14-15 April 2004*, OECD NEA, N° 5668, ISBN 92-64-02078-0, 2004.
- (5) « Evaluation of Proposed Integral Critical Experiments With Low-Moderated MOX Fuel », *Workshop Proceedings, Report From an Ad Hoc Expert Group of the NEA Working Party on Nuclear Criticality Safety*, OECD NEA, N° 6047, ISBN 92-64-01049-1.
- (6) BOWMAN, S. et al., « SCALE 5: Powerful New Criticality Safety Analysis Tools », "<http://www.ornl.gov/sci/scale/>" <http://www.ornl.gov/sci/scale/>, *Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, ICNC'2003, Tokai Mura, Japan, Oct. 20-24, 2003.
- (7) FERNEX, F. et al., « MACSENS: A New MORET Tool to Assist Code Bias Estimation », *Proc. NCS D Topical Meeting*, Knoxville, USA, Sep. 19-22, 2005.
- (8) "<http://www.irsn.fr/cristal/>"
- (9) JACQUET, O. et al., « MORET Version 4.B: A Multi-Group Monte-Carlo Criticality Code », *Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, ICNC'2003, Tokai Mura, Japan, Oct. 20-24, 2003.
- (10) Règle fondamentale de sûreté série U, règle n° I.3.c, lettre SIN n° 5824/84 du 18 octobre 1984.

4.5

Influence de la représentation mathématique des connaissances imparfaites dans le traitement des incertitudes

L'évaluation des incertitudes est un élément important de la caractérisation d'un résultat expérimental ou numérique. Elle permet une estimation quantitative de l'éventail des résultats réalistes, comme lorsque l'on cherche à caractériser le risque sanitaire en quantifiant le nombre de cas de cancers attribuable aux installations nucléaires du Nord-Cotentin. Cet éventail de valeurs réalistes provient des incertitudes dites « source ». Les incertitudes source correspondent à la fois à la variabilité des données d'entrée (par exemple la variabilité des rejets de radionucléides) et aux imprécisions touchant les structures des modèles et les paramètres utilisés pour définir la relation entre les données d'entrée et la réponse (par exemple le modèle reliant l'exposition et le risque). La largeur de l'éventail des valeurs réalistes, appelée également marge d'incertitude, permet de rendre compte de la qualité du résultat. Elle est donc un élément important dans la prise de décision.

Pour quantifier les marges d'incertitude associées à un résultat numérique, il convient dans un premier temps de caractériser les incertitudes source, relatives à chaque paramètre incertain (données d'entrée, coefficients paramétriques des modèles, etc.) puis d'en évaluer l'impact sur la réponse étudiée. La quantification des incertitudes nécessite donc d'élaborer des outils mathématiques permettant de modéliser fidèlement la connaissance réelle des incertitudes source et de développer des méthodes de propagation de ces incertitudes *via* le modèle jusqu'à la réponse d'intérêt.

Les méthodes d'analyse probabilistes

Une première méthode pour quantifier les incertitudes est de représenter chaque incertitude source par une variable aléatoire. Dès lors, toute réponse est également une variable aléatoire et la quantification des incertitudes revient à déterminer des intervalles de confiance. Les intervalles de confiance des valeurs réalistes de la réponse se définissent à partir de sa fonction de répartition. Cependant, cette fonction n'est pas explicitement connue : elle est seulement définie implicitement

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

Catherine MERCAT-ROMMENS
*Laboratoire d'études radioécologiques
 du milieu continental et marin*

par les incertitudes source et la relation entre les données d'entrée et la réponse. Aussi, le calcul des intervalles de confiance se fait à partir de la fonction de répartition empirique. Celle-ci est directement évaluée à partir de simulations numériques dites de Monte-Carlo. Le principe est de tirer au hasard un échantillon de valeurs numériques pour chaque incertitude source respectant leur distribution de probabilité, puis simplement d'ordonner les valeurs de la réponse de la plus petite à la plus grande en incrémentant l'ordonnée par l'inverse de la taille de l'échantillon chaque fois que l'on rencontre une occurrence de la réponse. La loi des grands nombres nous dit en effet que la fonction de répartition empirique converge vers la fonction de répartition théorique et conséquemment les intervalles de confiance obtenus convergent vers les valeurs réalistes de la réponse. Cependant il est clair que la qualité de la fonction de répartition empirique dépend de la taille de l'échantillon, des incertitudes source et de leur relation avec la réponse. Les méthodes probabilistes ont recours à la statistique d'ordre pour évaluer la précision de la fonction de répartition empirique. L'idée est de se servir des valeurs de l'échantillon observées non seulement pour construire la fonction de répartition empirique, mais également pour quantifier la précision de celle-ci. On peut montrer en effet que si on utilise directement les occurrences de l'échantillon pour construire les intervalles de confiance, alors la qualité de ceux-ci dépend uniquement de la taille de l'échantillon et ne dépend pas explicitement des incertitudes source et de leur relation avec la réponse.

Ces résultats rendent aisée la mise en œuvre des méthodes probabilistes pour évaluer précisément les marges d'incertitude et expliquent que l'on y recoure largement dans les analyses d'incertitude. Par exemple, l'OCDE organise un projet BEMUSE dont l'objectif est d'évaluer l'éventail des valeurs réalistes de la température maximum atteinte par un crayon combustible lors d'un transitoire accidentel à l'aide d'un logiciel de calcul utilisé pour les études de sûreté nucléaire. Le scénario accidentel retenu dans ce projet est la perte de refroidissement du

circuit primaire par la rupture totale d'une conduite du circuit primaire. Ce projet international, auquel participe l'IRSN, regroupe dix organismes de sûreté. Parmi ces organisations, neuf utilisent les méthodes probabilistes avec de la statistique d'ordre [1]. Un seul organisme applique une méthode basée sur l'extrapolation d'erreur qui n'utilise pas la connaissance relative aux incertitudes source.

L'emploi répandu des méthodes probabilistes ne doit cependant pas masquer la difficulté principale d'une analyse d'incertitude. Cette difficulté réside dans le fait que les méthodes probabilistes nécessitent de modéliser l'ensemble des sources d'incertitude par une distribution de probabilité unique. Autrement dit, il est nécessaire de représenter chaque incertitude source par une distribution de probabilité et de faire des hypothèses sur les possibles dépendances et corrélations existant entre les incertitudes source. Cette connaissance n'est malheureusement pas disponible dans de nombreuses applications. Il existe très peu de données et le recours à des choix arbitraires, appelés aussi jugements d'experts, sur les distributions de probabilité et sur les hypothèses de dépendance est alors nécessaire. Ces choix peuvent affecter de façon significative l'évaluation des marges d'incertitude. Ainsi, les choix faits dans l'évaluation du risque de leucémie dans l'étude Nord-Cotentin sur les formes des distributions de probabilité de plusieurs centaines de paramètres (météorologiques, radioécologiques, agronomiques, alimentaires, etc.) et sur leurs dépendances ont conduit lors de la première mise en œuvre de la méthode probabiliste à une sous-estimation des marges d'incertitude. En effet, la valeur de référence calculée précédemment par une approche déterministe s'est retrouvée en dehors de l'intervalle de confiance à 95 %. Il est alors apparu fondamental pour la crédibilité des travaux du comité d'experts du GRNC de pouvoir distinguer, dans l'analyse d'incertitude, les incertitudes provenant de la variabilité inhérente à une grandeur physique de celles relatives à des imprécisions sur les valeurs numériques utilisées pour calculer la réponse [2 ; 3] C'est pourquoi l'IRSN a décidé de

regarder quel pouvait être l'apport à l'analyse d'incertitude d'autres théories de l'incertain comme les théories du flou [4], des P-Box[5], des possibilités [6], de Dempster-Shafer [7], etc. Ces théories proposent des modèles pour représenter la connaissance imparfaite, c'est-à-dire la connaissance imprécise d'une grandeur fixe ou la non-connaissance de la distribution de probabilité d'une grandeur aléatoire. Ces théories ont principalement été développées pour répondre à des problèmes posés en intelligence artificielle. L'IRSN a engagé un travail de recherche, en collaboration avec le BRGM, l'Ineris et l'IRIT, sur leur application à l'évaluation des risques. Il est apparu au cours de ce travail que le formalisme de Dempster-Shafer fournissait un bon cadre théorique pour traiter les problèmes d'analyse d'incertitude qui se posent à l'IRSN [8 ; 9] car ce formalisme permet de représenter et de propager des incertitudes de différentes natures.

Les méthodes Dempster-Shafer

L'intérêt des méthodes basées sur la théorie de Dempster-Shafer est de fournir un cadre théorique qui permette de représenter simplement des niveaux de connaissance différents. Par exemple, il est important de pouvoir distinguer l'incertitude stochastique de l'incertitude épistémique.

- Incertitude stochastique : la connaissance disponible permet de modéliser l'incertitude d'une grandeur par une distribution de probabilité. Par exemple, si une grandeur est équidistribuée entre une valeur minimale et une valeur maximale, son incertitude est stochastique.
- Incertitude épistémique : la connaissance disponible permet seulement de caractériser une famille de distributions de probabilité pour modéliser l'incertitude. Par exemple, si une grandeur est fixe mais que sa valeur est comprise entre une valeur minimale et maximale, son incertitude est épistémique.

Ces deux types d'incertitude correspondent à des états de connaissance très différents. Dans le premier cas, la grandeur est une variable aléatoire dont on connaît la distribution de probabilité, par exemple la loi uniforme. Par contre, dans le second cas, on ne dispose pas de connaissance suffisante pour déterminer la loi de probabilité associée à la grandeur incertaine. Par exemple si la grandeur est fixe, c'est un cas extrême de variable aléatoire qui se modélise par une distribution de Dirac, mais indéterminée (on ne connaît pas précisément sa valeur), il est alors impossible de choisir la distribution de Dirac correspondante. La solution correcte en théorie des probabilités est de modéliser cette grandeur par une famille de distributions et non par une distribution unique, ce qui en pratique peut s'avérer délicat à mettre en œuvre. Une autre solution est le recours à la théorie des possibilités. Cette théorie permet de représenter une famille de distributions de probabilité par une unique distribution, appelée distribution de

possibilité, et donne ainsi un outil synthétique de représentation de la connaissance dans les cas où la connaissance disponible ne permet pas d'identifier une unique distribution de probabilité pour modéliser l'incertitude. Par exemple, une distribution de possibilité uniforme entre une valeur minimale et une valeur maximale contient toutes les distributions de probabilité qui sont définies sur cet intervalle et donc en particulier la famille des distributions de Dirac. En pratique, on utilisera donc les probabilités quand la connaissance disponible permet d'identifier une distribution particulière (en cas d'incertitude stochastique) et on utilisera une distribution de possibilité quand la connaissance disponible permet seulement de définir une famille de distributions de probabilité (en cas d'incertitude épistémique).

La théorie de Dempster-Shafer englobe à la fois la théorie des probabilités et la théorie des possibilités et permet de traiter simultanément les différents types d'incertitude : l'incertitude stochastique (incertitude donnée par une distribution de probabilité connue caractérisant la variabilité d'une grandeur) et l'incertitude épistémique (incertitude provenant d'un manque de connaissance). Il suffit dans la théorie de Dempster-Shafer de modéliser les incertitudes stochastiques par des distributions de probabilité et les incertitudes épistémiques par des distributions de possibilité.

L'utilisation de la théorie de Dempster-Shafer permet de plus d'assouplir la notion d'indépendance. La notion d'indépendance entre deux variables utilisée en théorie des probabilités est dite stochastique et signifie que la connaissance de la valeur de l'une ne modifie pas la probabilité d'occurrence d'une valeur de l'autre. Conséquemment, l'occurrence simultanée de valeurs extrêmes pour ces deux variables est très improbable. De ce fait les incertitudes tendent à s'auto-compenser les unes avec les autres lorsque l'on suppose une indépendance stochastique. À l'opposé, le principe de combinaison des incertitudes utilisé en théorie des possibilités consiste à cumuler les incertitudes des variables quand on ne connaît pas leurs dépendances. Nous appellerons par la suite ce principe l'indépendance épistémique. Par exemple, lors de l'étude Nord-Cotentin l'excès de risque de leucémie avait été subdivisé en de nombreux composants élémentaires de risque comme le risque par ingestion d'un produit alimentaire dans une tranche d'âge pour un radionucléide, et l'incertitude associée aux composants élémentaires de risque pouvait atteindre un facteur 100 voire 1 000 entre sa valeur minimale et sa valeur maximale. Le fait de remplacer les dépendances non connues par une hypothèse d'indépendance stochastique avait conduit à évaluer le facteur d'incertitude sur le risque total comme étant seulement d'un facteur 2, ce qui est très faible au regard de la connaissance réelle. Une deuxième estimation des marges d'incertitude avait alors été menée en suivant le principe d'indépendance épistémique lors de l'agrégation des composants de risque et un facteur 10 d'incertitude sur le risque avait été obtenu, ce qui est certainement plus réaliste.

Application à un exemple simple du transfert d'un radionucléide dans l'environnement

Considérons un modèle simplifié de transfert d'un radionucléide : fourrage → vache → lait → homme. L'activité ingérée D est calculée comme le produit de l'activité du fourrage A, la quantité Q du maïs d'ensilage mangée par la vache, le facteur F de transfert du maïs d'ensilage au lait et la quantité L de lait ingérée : $D = A \times Q \times F \times L$

Pour cet exemple, nous allons considérer que l'activité de l'ensilage de maïs est une variable aléatoire, connue à partir des mesures expérimentales et que l'information disponible sur les autres quantités Q, F et L est seulement partielle. Nous supposons que la connaissance relative à ces quantités est la suivante :

- la quantité Q d'ensilage de maïs sec mangée par la vache est vraisemblablement comprise entre 10 et 14 kg par jour et ne peut pas être hors de l'intervalle [4, 35] ;
- le facteur F de transfert de l'ensilage de maïs au lait ne peut pas être hors de l'intervalle [0,001, 0,005] avec 0,003 jour/litre comme valeur la plus vraisemblable ;
- la quantité L de lait ingérée ne peut pas être hors de l'intervalle [70, 280] avec 140 litres/année comme la valeur la plus vraisemblable.

L'état de connaissance ainsi défini nous permet d'identifier une distribution de probabilité pour l'activité du maïs A et seulement une famille de distributions de probabilité pour les autres quantités Q, F et L.

Nous utiliserons la méthode probabiliste standard pour évaluer l'incertitude attachée à l'activité absorbée (en faisant un choix subjectif d'une distribution de probabilité pour les quantités Q, F et L), et la méthode de Dempster-Shafer. Chacune de ces méthodes sera appliquée avec deux hypothèses d'indépendance : l'indépendance stochastique et l'indépendance épistémique.

Résumons dans la table suivante nos choix de modélisation pour les paramètres incertains :

Paramètre	Méthode probabiliste	Méthode Dempster-Shafer
A	distribution de probabilité lognormale $m=-5,76, \sigma=0,58$	distribution de probabilité lognormale $m=-5,76, \sigma=0,58$
Q	distribution de probabilité trapèze (4, 10, 14, 35)	distribution de possibilité trapèze (4, 10, 14, 35)
F	distribution de probabilité triangulaire (0,001 ; 0,003 ; 0,005)	distribution de possibilité triangulaire (0,001 ; 0,003 ; 0,005)
L	distribution de probabilité triangulaire (70, 140, 280)	distribution de possibilité triangulaire (70, 140, 280)

Bien que la représentation des variables incertaines semble identique dans la méthode probabiliste et dans la méthode Dempster-Shafer, ces deux modélisations représentent des états de connaissance différents dès lors qu'on utilise une distribution de possibilité dans la méthode Dempster-Shafer. En effet, modéliser une distribution de possibilité est en fait équivalent à modéliser une famille de distributions de probabilité. Par exemple, la distribution de possibilité « trapèze » choisie pour Q signifie que la quantité de maïs ingérée par la vache est une variable aléatoire quelconque dont on sait simplement que ses valeurs sont comprises entre 4 et 35 kg et dont la valeur la plus probable se situe entre 10 et 14 kg. De même, représenter une variable incertaine par une distribution de possibilité triangulaire est équivalent à modéliser la famille des variables aléatoires qui ont en commun leurs valeurs minimales et maximales et leur valeur la plus probable.

À partir de ces données, nous avons effectué des simulations de Monte-Carlo dans le cadre probabiliste et dans le cadre de Dempster-Shafer. Les résultats présentés correspondent à un échantillon de taille 1 000 pour chacune des méthodes. Chaque échantillon de résultats nous permet de calculer la fonction de répartition empirique de la variable aléatoire associée à la réponse. Dans ce qui suit, on s'intéressera plus particulièrement à un point particulier de la fonction de répartition : le percentile 95 % (le percentile p d'une variable aléatoire est la valeur dont la probabilité d'être dépassée est de 1-p). La précision numérique sur un percentile due à la taille limitée de l'échantillon, calculée grâce aux statistiques, est de l'ordre de 10 %.

Méthode probabiliste

Dans notre exemple, le percentile 95 % de la réponse est estimé par la valeur de l'échantillon de rang 950 quand celui-ci est classé dans l'ordre croissant de sorte que la plus petite valeur de l'échantillon est de rang 1 et la plus grande de rang 1 000. On obtient 0,076 Bq/an si l'on fait une hypothèse d'indépendance stochastique entre les paramètres. Si on suppose maintenant l'indépendance épistémique, c'est-à-dire que l'incertitude des différents paramètres peut se cumuler, alors le percentile 95 % est estimé par 0,22 Bq/an. La différence entre ces deux résultats représente l'effet de compensation ou non des différentes sources d'incertitude suivant les hypothèses d'indépendance.

Méthode de Dempster-Shafer

La méthode de Dempster-Shafer permet de simuler directement une famille de distributions de probabilité quand la connaissance disponible ne permet pas de justifier le choix d'une distribution spécifique. Dans l'exemple, nous avons considéré que les données ne permettent pas de définir précisément une distribution de probabilité pour trois paramètres. Cela a pour conséquence que la réponse n'est plus une variable aléatoire. Il n'est donc plus possible d'estimer précisément la valeur d'un percentile. Cependant la méthode de Dempster-Shafer permet d'évaluer pour chaque percentile une borne inférieure et supé-

4.5

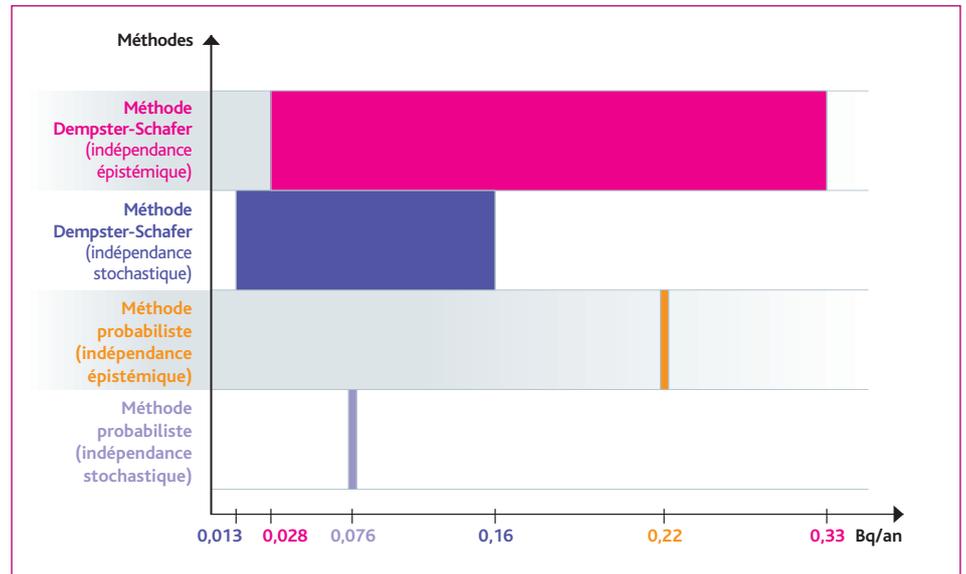


Figure 1 : Percentile 95 % de l'activité ingérée.

rieure dont l'écart représente l'effet de la non-connaissance de la loi de probabilité des incertitudes source sur les percentiles de la réponse. On définit ainsi une bande d'imprécision pour chaque percentile. Comme dans le cas de la méthode probabiliste, nous avons étudié l'effet des hypothèses d'indépendance. Avec l'hypothèse d'indépendance épistémique entre toutes les sources d'incertitude, on suppose que les incertitudes peuvent se cumuler, le percentile 95 % est donc maximal (figure 1). Si l'on prend une hypothèse d'indépendance stochastique entre les différentes sources d'incertitude, les valeurs extrêmes des différents paramètres vont s'auto-exclure et le percentile 95 % va se réduire.

Conclusions de l'exemple

La méthode de Dempster-Shafer permet de panacher les indépendances épistémiques et stochastiques pour des variables probabilistes ou possibilistes et permet ainsi d'obtenir un intervalle d'estimation de chaque percentile qui tienne compte des connaissances imprécises. Dans l'exemple, seuls les résultats correspondant au percentile 95 % ont été présentés avec uniquement deux hypothèses de dépendance : indépendance stochastique et indépendance épistémique. La valeur maximale du percentile 95 % obtenue pour l'activité ingérée en prenant en compte à la fois la connaissance imprécise des paramètres ration de maïs, facteur de transfert et ration de lait, et en supposant que toutes les incertitudes peuvent se cumuler, est de 0,33 Bq/an. Si on suppose une indépendance stochastique entre les sources d'incertitude, on obtient 0,16 Bq/an. Le fait de pouvoir justifier une distribution précise pour chaque paramètre incertain aurait ramené cette valeur maximale à 0,08 Bq/an.

■ Conclusion générale

L'inconvénient principal de l'emploi des méthodes probabilistes pour calculer les marges d'incertitude est que la connaissance disponible ne permet généralement pas de caractériser les incertitudes par une loi de probabilité ni de définir les dépendances possibles dans les applications réelles. En conséquence, l'utilisation des percentiles calculés à partir de simulations de Monte-Carlo pour évaluer les marges de sûreté reste sujette à controverse (se reporter aux différentes valeurs du percentile 95 % dans notre exemple entre 0,01 et 0,33 Bq/an).

La méthode basée sur la théorie de Dempster-Shafer est une extension des méthodes probabilistes qui permet de relâcher les contrain-

tes sur l'explicitation des distributions de probabilité et sur leurs dépendances, quand la connaissance n'est pas suffisante. Les résultats fournis par cette méthode sont par conséquent moins précis (par exemple un intervalle au lieu d'une valeur scalaire pour les percentiles) mais sont plus fiables. De plus, la méthode Dempster-Shafer permet de bien distinguer la part de l'incertitude due à la variabilité et celle due à la méconnaissance de la représentation des incertitudes source et de l'analyse des résultats. Cette information est utile pour hiérarchiser les sources d'incertitude à réduire dans le cas où l'incertitude sur le résultat empièterait sur le seuil acceptable.

Références

- [1] CHOJNACKI, E., BENOÎT, J.-P., « The Use of Monte-Carlo Simulation and Order Statistics for Uncertainty Analysis of a LBLOCA Transient (LOFT-L2-5) », *Workshop on the Evaluation of Uncertainties in Relation to Severe Accidents and Level II Probabilistic Safety Analysis*, Cadarache, France, 7-9 November 2005.
- CHOJNACKI, E., « Guide utilisateur SUNSET », note technique DPAM/SEMIC à paraître.
- [2] GRNC, 2^e mission, « Analyse de sensibilité et d'incertitude », vol. 1, vol. 2 et vol. 3, juillet 2002.
- [3] MERCAT-ROMMENS, C., CHOJNACKI, E., BAUDRIT, C., « Représentation et propagation de la connaissance imprécise : ce que les théories de l'incertain peuvent apporter aux sciences environnementales », accepté pour l'ouvrage collectif *Incertitude et Environnement*, EDISUD (coll. Écologie humaine).
- [4] KAUFMANN, A., GUPTA, M., *Introduction to Fuzzy Arithmetic: Theory and Applications*, Van Nostrand Reinhold, 1985.
- [5] FERSON, S. et al., « Construction Probability Boxes and Dempster-Shafer Structures. », Sandia National Laboratories, *Technical Report SAND2002-4015*, 2003.
- [6] DUBOIS, D., PRADE, H., *Possibility Theory: An Approach to Computerized Processing of Uncertainty*, Plenum Press, New York, 1988.
- [7] SHAFER, G., *A Mathematical Theory of Evidence*, Princeton University Press, 1976.
- [8] BAUDRIT, C., « Représentation et propagation de connaissances imprécises et incertaines : application à l'évaluation des risques liés aux sites et aux sols pollués », Thèse Université Paul-Sabatier, 2005.
- [9] MERCAT-ROMMENS, C., CHOJNACKI, E., MERLE-SZEREMETA, A., BRENOT, J., SUGIER, A., « La nécessaire prise en compte des incertitudes dans les évaluations de risque : l'exemple du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin (GRNC) », *Environnement, Risque & Santé*, vol. 1, n° 5-6, novembre-décembre 2002.

4.6

Emmanuel RAIMOND
Bureau d'évaluation
probabiliste des
accidents graves

Vers une étude probabiliste de sûreté (EPS) de niveau 2 pour le palier 1 300 MWe

■ L'IRSN a entrepris depuis plusieurs années une étude probabiliste de sûreté (EPS) « générique » de niveau 2⁽¹⁾ pour les 34 réacteurs de 900 MWe du parc électro-nucléaire français. Cette étude est aujourd'hui en voie d'achèvement. Elle sera ensuite mise à jour et améliorée en fonction des utilisations qui lui seront assignées.

■ Fort de cette première expérience, l'IRSN a décidé de réaliser dans un délai relativement court une EPS de niveau 2 applicable aux 20 réacteurs (plus récents) de 1 300 MWe (EPS2 REP 1 300), dont les résultats seront disponibles pour préparer les troisièmes visites décennales des réacteurs de ce type. Cette étude devrait être menée à bien à la fin de l'année 2009.

■ L'année 2006 a été mise à profit pour préciser le contenu des différentes composantes de cette étude : la caractérisation des chargements induits par un accident grave sur l'enceinte de confinement des radioéléments, le comportement et le relâchement des produits de fission, la tenue des matériels, l'étanchéité de la double enceinte de confinement ainsi que l'éva-

luation simplifiée des conséquences des rejets radioactifs dans l'environnement.

■ La réalisation de l'EPS2 REP 1 300 s'appuiera sur les programmes et les équipes de recherche et développement de l'IRSN dans le domaine des accidents graves et sur le code de référence ASTEC⁽²⁾. Les équipes de l'Institut en charge de ces activités participeront activement à la réalisation de cette étude.

Certaines parties du programme, telles que l'étude de la tenue mécanique de l'enveloppe interne de confinement, ont déjà été réalisées partiellement en 2006.

(1) Dans les études probabilistes de sûreté ou EPS, on distingue : les EPS de niveau 1 qui visent à évaluer la probabilité de survenue d'un accident de fusion du cœur ; les EPS de niveau 2 qui visent à quantifier les risques de rejets dans l'environnement en cas d'accident avec fusion du cœur ; les EPS de niveau 3 qui visent à quantifier les conséquences sanitaires et économiques des rejets à l'extérieur des installations. En France, seules des EPS de niveaux 1 et 2 sont réalisées et complétées éventuellement par une évaluation simplifiée des conséquences des rejets (EPS de niveau 2+).

(2) ASTEC : Accident Source Term Evaluation Code.

4.7

Sandrine BOUTIN
Bureau d'analyse des cœurs
et des combustibles

Réexamen des critères associés au combustible

■ L'IRSN a demandé que les critères associés au combustible relatifs aux fonctionnements normal et accidentel des réacteurs à eau sous pression soient réexaminés à terme par le Groupe permanent chargé des réacteurs. Cette demande de réexamen est motivée par les évolutions suivantes survenues ces dernières années :

- la mise sur le marché de nouveaux matériaux de gainage et de structure (M5, ZIRLO) ;
- l'augmentation des taux de combustion ;
- l'évolution des connaissances sur le comportement des gainages en fonctionnement normal. Au terme de cette évolution, certains des critères actuellement admis, relatifs notamment à l'usure vibratoire des gaines et à la manutention des combustibles, apparaissent inadaptés ;
- l'évolution des connaissances relatives au comportement des gaines dans les situations accidentelles d'accident de perte de réfrigérant primaire et d'insertion de réactivité.

■ Il convient de rappeler que les critères actuels, issus de la réglementation américaine adoptée lors de la mise

en œuvre des premiers réacteurs de production sous licence Westinghouse, ont été établis pour l'alliage initialement choisi – Zircaloy-4 – neuf ou faiblement irradié. En 2001, l'US-NRC a engagé une refonte majeure de la réglementation en vigueur aux États-Unis. Il était donc indispensable que l'IRSN s'engage à son tour dans un processus similaire. Compte tenu de l'intérêt de partager l'expérience acquise, l'IRSN et l'US-NRC ont décidé d'engager une coopération dans ce domaine.

■ Ce réexamen s'inscrit dans la perspective d'évolution du référentiel de sûreté de l'EPR (réacteur européen à eau sous pression) et des futures gestions du combustible envisagées par EDF au-delà de 2012.



Ballonnement et éclatement d'un crayon combustible durant un essai simulant un accident de perte de réfrigérant primaire survenant en réacteur ICL3, photographie ANL).

En quelques dates Soutenances de thèses et autres faits marquants

décembre 2005

■ L'IRSN et FRAMATOME-ANP ont signé un accord de coopération pour la rénovation et l'exploitation d'un simulateur commun. Le planning du projet prévoit que d'ici

au début de l'année 2009 trois configurations seront développées pour les paliers de 900, 1 300 et 1 400 MWe.

5 octobre 2006

■ **Céline Lapuerta** a soutenu sa thèse sur les « Échanges de masse et de chaleur entre deux phases liquides stratifiées dans un écoulement à bulles » au Centre de mathématiques et informatique (CMI) de Marseille.

16 octobre 2006

■ **Mathieu Jobelin** a soutenu sa thèse sur le thème « Méthode de projection pour le calcul d'écoulements incompressibles et dilatables » à l'université Méditerranée Aix-Marseille II.

13 décembre 2006

■ **Yann Richet** a soutenu sa thèse sur le thème « Suppression du régime transitoire initial des simulations Monte-Carlo de criticité » à l'école des Mines de Saint-Étienne.

5 Déchets radioactifs

5	La sûreté d'un stockage géologique de déchets radioactifs : se forger une compétence pour une évaluation indépendante	224
5.1	L'analyse des traceurs naturels dans les formations argileuses : un outil de compréhension et d'interprétation des transferts de fluides	227
5.2	Étude expérimentale et modélisation des interactions béton/argile au sein d'un stockage géologique de déchets radioactifs	235
5.3	Modélisation des écoulements et du transfert d'éléments radioactifs en milieu géologique. Application au site de Meuse – Haute-Marne	246
5.4	En quelques dates / Soutenances de thèses et autres faits marquants	259

La sûreté d'un stockage géologique de déchets radioactifs : se forger une compétence pour une évaluation indépendante

La loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, qui fait suite à la loi du 30 décembre 1991 sur la gestion des déchets radioactifs, prévoit notamment la poursuite des études et recherches concernant le stockage réversible en couche géologique profonde de déchets radioactifs à vie longue et de haute ou moyenne activité (MA/HA-VL). Ces études et recherches doivent être conduites pour choisir un site et concevoir un centre de stockage pour ces déchets. L'objectif assigné par la loi du 28 juin 2006 est l'instruction d'une demande d'autorisation de création d'un tel centre en 2015 et, sous réserve de cette autorisation, une mise en exploitation de ce centre en 2025.

L'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (Andra) est chargée de mener les actions correspondantes. Pour ce faire, elle exploite notamment un laboratoire souterrain sur le site de Bure (Meuse – Haute-Marne), dans l'est du Bassin parisien, où elle caractérise une couche argileuse du Callovo-Oxfordien susceptible de constituer la couche géologique hôte du stockage réversible de déchets recherché.

Afin d'être en mesure d'assurer l'expertise des dossiers de sûreté joints à l'appui des demandes d'autorisation nécessaires à la mise en œuvre d'un futur centre de stockage, l'IRSN mène des recherches sur le sujet depuis une vingtaine d'années, notamment grâce à sa plate-forme d'expérimentations de Tournemire (Aveyron) ainsi qu'en collaboration avec des organismes et universités de premier plan dans les domaines techniques concernés (géologie, géochimie, hydrogéologie, géomécanique, etc.). Les résultats de ces recherches, dont la qualité et la pertinence ont été reconnues par le conseil scientifique de l'Institut lors de son évaluation menée en 2005-2006, ont permis d'asseoir techniquement les avis qui ont été rendus sur les divers dossiers établis par l'Andra dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991. Tout particulièrement, l'avis de l'IRSN sur le « Dossier 2005 Argile » produit par l'Andra au terme de cette loi, relatif à la faisabilité d'un éventuel stockage de déchets MA/HA-VL dans la couche géologique argileuse



étudiée au moyen du laboratoire de Bure, s'est appuyé sur l'ensemble des acquis de cette recherche. Il est disponible sur le site Internet de l'Institut.

L'évaluation de la sûreté d'un centre de stockage géologique réversible de déchets MA/HA-VL nécessite d'être en mesure de pouvoir apprécier les éléments présentés par le concepteur concernant tout particulièrement :

- la caractérisation structurale de la formation géologique devant recevoir les déchets (stabilité, homogénéité, perméabilité, etc.) ainsi que des formations environnantes ;
- les schémas hydrologiques possibles sur le site du stockage, en vue notamment d'estimer les transferts possibles de radioactivité vers les exutoires ;
- la capacité de confinement de la radioactivité par le site ;
- les perturbations induites par les matériaux constitutifs des colis de déchets et du stockage (fer, béton, etc.) et leur influence sur les propriétés de confinement des composants du

stockage devant s'opposer à la dispersion de la radioactivité dans l'environnement ;

- la maîtrise de l'endommagement de la formation hôte du fait de l'implantation des ouvrages de stockage (puits d'accès, galeries de liaison, etc.) ;
- la faisabilité des scellements des galeries, après mise en place des déchets dans les alvéoles dédiées, visant à reconstituer localement le confinement assuré par la formation géologique ;
- l'incidence des conditions d'exploitation et de réversibilité sur la capacité du stockage à confiner la radioactivité.

Ainsi, pour forger sa compétence, l'IRSN mène des études et recherches sur certains aspects de ces domaines techniques, compte tenu de leur importance particulière pour la sûreté. Un premier aperçu en a été donné dans le Rapport scientifique et technique de l'année 2005 avec des études relatives à l'endommagement de la formation géologique lors du creusement des ouvrages et aux performances de confinement des différentes barrières au cours du temps.

Parmi les autres aspects qui font l'objet d'investigations par l'IRSN peut être citée l'étude des transferts de fluides dans les formations argileuses afin de connaître les temps de migration des radioéléments au travers de la roche argileuse constitutive. Ce sujet fait l'objet du premier article ci-après consacré à l'analyse des traceurs naturels dans les formations argileuses, comme outil de compréhension et d'interprétation des transferts de fluides.

Il est de même nécessaire d'étudier les perturbations du milieu argileux par les matériaux exogènes du stockage afin de vérifier l'absence d'altérations significatives des propriétés favorables de confinement chimique et hydraulique des barrières argileuses. L'intensité et l'extension des transformations minéralogiques et chimiques subies par les argiles au contact de ces matériaux constituent ainsi un champ d'étude important. Le deuxième article de ce chapitre présente l'étude expérimentale et la modélisation des interactions béton/argile au sein d'un stockage géologique de déchets radioactifs.

En outre, plus globalement, l'évaluation de la sûreté d'un stockage rend nécessaire d'évaluer le relâchement et la migration des radioéléments contenus dans les colis de déchets devant être

stockés afin de localiser les exutoires potentiels et d'estimer des temps de transfert jusqu'à ces exutoires pour différentes situations de fonctionnement du stockage. De telles études font appel à des modèles hydrogéologiques couplés à des modèles de transport de radioéléments au sein du stockage. Le dernier article est relatif à la modélisation des écoulements et du transfert d'éléments radioactifs en milieu géologique, avec application au site de Meuse – Haute-Marne.

Ces études ciblées, axées sur les points clés de la sûreté d'un stockage en formation géologique profonde, permettent d'obtenir une compréhension des phénomènes concernés, indépendamment des études et recherches menées par le concepteur du stockage. Elles permettent également d'explorer certaines situations de fonctionnement dégradé d'un stockage afin de nourrir la capacité d'expertise de l'Institut et lui donner matière à porter un avis argumenté sur les propositions du concepteur.

*Thierry CHARLES
Direction de la sûreté des usines,
des laboratoires, des transports
et des déchets*

5.1

L'analyse des traceurs naturels dans les formations argileuses : un outil de compréhension et d'interprétation des transferts de fluides

5.1

Sébastien SAVOYE,
Jean-Michel MATRAY
Laboratoire d'études des transferts
dans les sols et le sous-sol

Un des trois axes de recherches retenus par la France pour gérer le devenir des déchets radioactifs à vie longue et à haute activité porte sur la faisabilité d'un stockage à 400 ou 500 m de profondeur, au sein de formations argileuses indurées. En effet, ce type de roche présente la plupart des qualités requises pour assurer un confinement efficace des déchets, c'est-à-dire retarder au maximum le transfert des éléments radioactifs vers la biosphère. Sa faible teneur en eau, moins de 10 % en masse, et la très petite taille des pores, seulement quelques nanomètres, en font une roche très imperméable, limitant le transport des radioéléments au très lent processus de diffusion moléculaire. De plus, les minéraux argileux dont cette roche est constituée ont pour propriété de pouvoir retenir fortement à leur surface les radioéléments chargés positivement, ralentissant ainsi encore un peu plus leur migration.

L'évaluation de la sûreté d'un stockage en milieu argileux nécessite de connaître les temps caractéristiques de migration des radioéléments au travers de cette roche. Ces temps sont obtenus classiquement au laboratoire sur des échantillons de taille centimétrique *via* des expériences de diffusion ou de percolation [1 ; 2 ; 3]. Mais la question de l'effet d'échelle se pose : est-il possible de considérer que ces données acquises au laboratoire sur des échelles restreintes, tant spatialement (<1 cm) que temporellement (< 1 an) soient représentatives de ce qui se passe à l'échelle du massif, et ce pour la durée du stockage (soit plus de 100 000 ans) ?

Afin de répondre à cette question, des expériences de diffusion ont été menées directement dans les massifs argileux comme par exemple dans le laboratoire souterrain du mont Terri, en Suisse [4 ; 5 ; 6]. Bien que la profondeur de pénétration des traceurs artificiels pour ces expériences *in situ* soit plus importante que celle observée au laboratoire à petite échelle, elle reste limitée

aux premiers décimètres, même pour les traceurs les plus rapides. Cela est dû à des contraintes évidentes de durée d'expérience, au plus quelques années [7].

Aussi, d'autres méthodes ont été développées afin d'appréhender des échelles de temps et d'espace plus représentatives de celles intéressant un stockage potentiel. Elles s'appuient sur les indications données par l'eau elle-même, piégée dans la matrice rocheuse depuis des millions d'années. Ainsi, mouvements de fluides, mélanges et transferts élémentaires peuvent être tracés par des solutés « conservés », non affectés par des réactions chimiques (par exemple certains halogénures tels Cl⁻ et Br⁻), ou bien par la composition isotopique des éléments constitutifs de la molécule d'eau elle-même. Ces éléments sont appelés des traceurs naturels. Les avantages résident essentiellement dans la possibilité de s'adresser à un milieu quelconque, sans pratiquement encourir aucune limitation imputable aux dimensions ou aux durées des objets d'étude [8].

Nous nous concentrerons ici sur les isotopes stables, ²H et ¹⁸O, qui sont les traceurs « intimes » de l'eau, en rappelant tout d'abord leurs caractéristiques ainsi que les méthodes spécifiquement développées dans les roches argileuses pour la détermination de leur concentration, et enfin en décrivant deux exemples d'application de ces outils.

Les isotopes stables de l'eau : caractéristiques et méthodes de détermination de leur concentration dans les roches argileuses

Notations

La composition isotopique exprime l'abondance de l'isotope le plus rare par rapport à l'isotope dominant. Elle est notée R et est définie comme suit :

$$R_D = {}^2\text{H}/{}^1\text{H} \qquad R^{18}\text{O} = {}^{18}\text{O}/{}^{16}\text{O}$$

Comme les variations de ces rapports isotopiques enregistrées dans la nature sont faibles, de l'ordre de quelques millièmes, les rapports isotopiques sont normalisés à celui d'un standard international.

La notation δ est exprimée en ‰ et s'écrit de la manière suivante pour l'oxygène-18 :

$$\delta^{18}\text{O} = \left(\frac{R^{18}\text{O}_{\text{échantillon}}}{R^{18}\text{O}_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 1000$$

Le standard international est l'eau de mer pour l'hydrogène et l'oxygène (SMOW = *Standard Mean Ocean Water*).

Caractéristiques isotopiques de différents types d'eaux

La **figure 1** représente les grands domaines isotopiques des eaux naturelles. La composition isotopique des eaux de pluie est dépendante de la latitude, de l'altitude, de la distance à la côte, de la quantité de précipitation et de la température de l'air. L'ensemble des pluies du globe définissent une relation unique entre le $\delta^2\text{H}$ et le $\delta^{18}\text{O}$. Cette relation a été mise en évidence par Craig [9] :

$$\delta^2\text{H} = 8 \times \delta^{18}\text{O} + 10$$

Les eaux de rivières et les eaux souterraines non affectées par les processus d'évaporation ou par les interactions eau-roche se placent sur la droite mondiale des eaux météoriques.

L'évaporation entraîne un enrichissement de l'eau résiduelle en isotopes lourds pour l'hydrogène et l'oxygène, alors que les interactions eau-roche n'affectent principalement que l'oxygène, et ce seulement à haute température. Ainsi, la composition isotopique de l'eau présente dans la porosité des roches argileuses n'est pas affectée par les interactions avec les minéraux tant que la température du milieu reste faible (< 100 °C).

Méthodes d'acquisition des teneurs isotopiques des eaux des roches argileuses

Les propriétés particulières des roches argileuses (argilites), qui en font des matériaux bien adaptés au confinement de déchets (faible teneur en eau et taille de pore nanométrique [10]), rendent

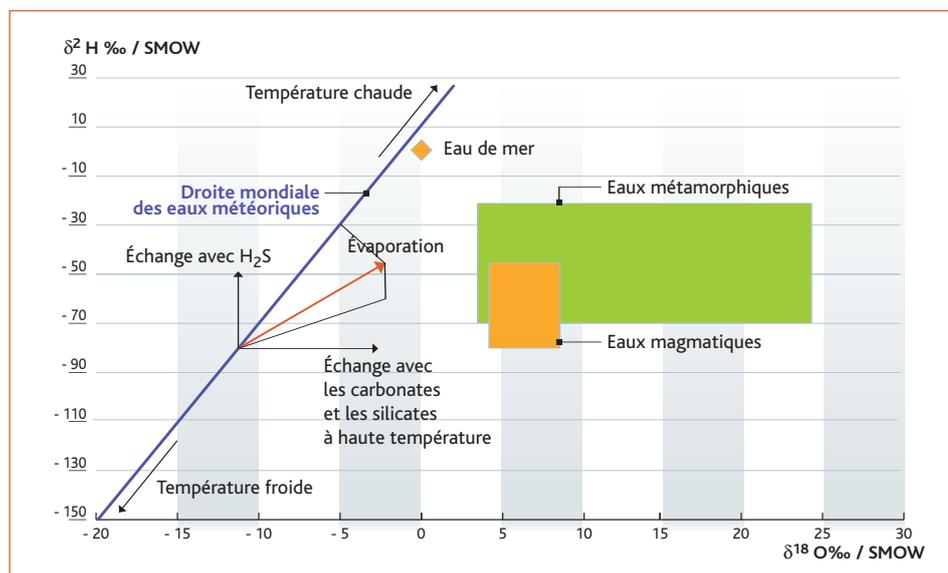


Figure 1 : Domaines isotopiques des différentes sources d'eaux : l'eau de mer, les eaux météoriques, les eaux métamorphiques et les eaux magmatiques ainsi que les processus susceptibles de modifier les signatures isotopiques (d'après Matray, 1988).

a contrario difficile l'accès à l'eau interstitielle, et donc l'acquisition de ses teneurs en isotopes stables [11]. Il est ainsi impossible d'extraire toute l'eau par simple pressage. Des méthodes indirectes ont donc été développées spécifiquement pour ces matériaux.

La première méthode utilisée repose sur le principe de distillation sous vide : l'eau est extraite, sous forme de vapeur, de l'échantillon de roche par chauffage et sous un vide statique.

Toutefois, un certain nombre de travaux, notamment ceux réalisés par Moreau-Le Golvan *et al.*, [12] sur des échantillons d'argilites provenant du site IRSN de Tournemire, mettent en évidence des artefacts expérimentaux liés, entre autres, à la taille de grain des échantillons de roche utilisés pendant l'expérience. Plus la granulométrie est fine, plus l'eau extraite est riche en oxygène-18. Selon Araguàs-Araguàs *et al.* [13], cela traduirait un accès privilégié à différents types d'eau, plus ou moins liés au solide, plus ou moins accessibles en fonction de la granulométrie utilisée lors de l'extraction. Aussi, d'autres méthodes ont été mises au point depuis, notamment les méthodes dites d'équilibration, dans lesquelles l'eau porale n'est pas extraite mais mise en équilibre avec un fluide gazeux ou liquide de composition isotopique connue. Ainsi, Rubèl *et al.* [14] ont développé la méthode d'équilibration en phase vapeur et ont pu la comparer avec la distillation sous vide, et ce sur des échantillons d'argilite provenant du laboratoire souterrain du mont Terri : ils constatent que les valeurs en $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ issues de la distillation sous vide sont systématiquement plus faibles que celles obtenues par équilibration en phase vapeur. Selon ces auteurs, cette différence serait imputable au fait que la méthode de distillation sous vide, qui n'extraît pas toute l'eau porale, tend à privilégier une eau allégée en isotopes lourds.

Plus récemment, Savoye *et al.* [15] ont adapté une méthode d'équilibration en phase liquide aux roches argileuses indurées de Tournemire. Cette méthode fondée sur un mélange de type diffusif permet en parallèle de déterminer les paramètres de transport de l'échantillon, en suivant pas à pas l'évolution des teneurs isotopiques de l'eau de test jusqu'à l'équilibre.

Altinier *et al.* [16] ont réalisé une intercomparaison de ces différentes méthodes (distillation sous vide à 50 °C et 150 °C, équilibrations en phases vapeur et liquide) sur des échantillons d'argilite de Tournemire.

5.1

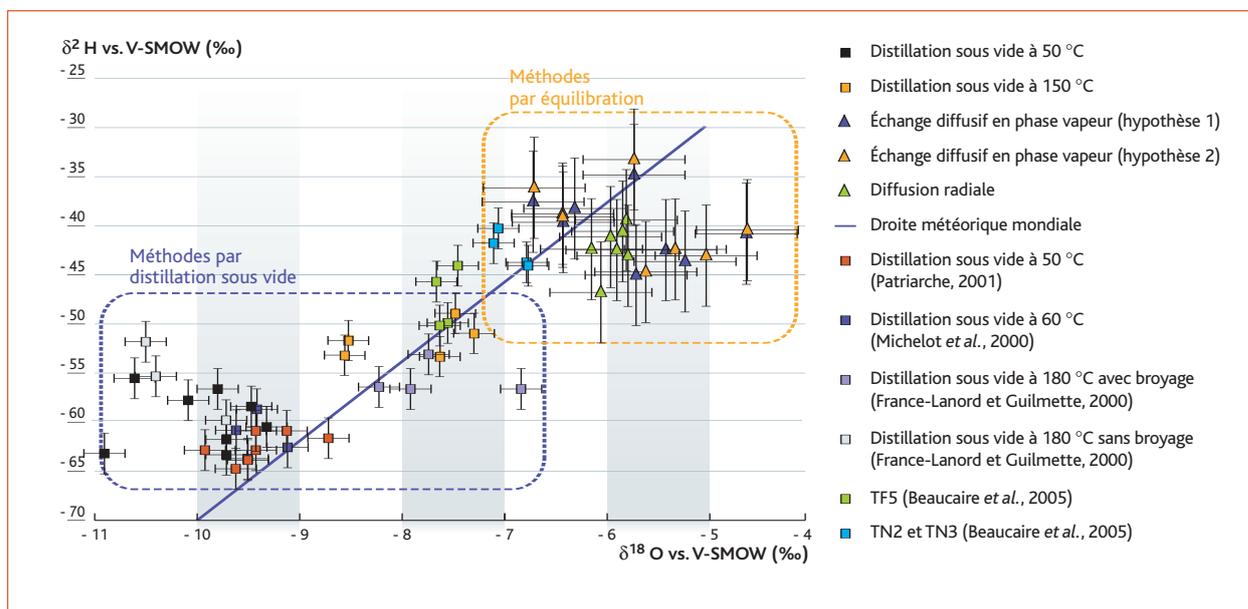


Figure 2 : Comparaison des teneurs en isotopes stables de l'eau matricielle obtenues par différentes méthodes sur le même niveau stratigraphique à Tournemire (Altinier et al., 2006).

La comparaison présentée dans la **figure 2** met en évidence deux familles de données :

- la première montre les plus faibles valeurs en $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$. Elle correspond aux échantillons traités par distillation sous vide. Il apparaît, à l'intérieur même de ce domaine, que plus la température d'extraction est grande, plus les valeurs de compositions isotopiques sont grandes, confirmant le problème de distillation incomplète aux plus faibles températures (50 °C) ;
- la seconde famille, plus enrichie en isotopes lourds, correspond aux échantillons traités par les méthodes d'équilibration. Ces deux domaines apparaissent bien distincts, ce qui montre qu'il existe encore des incertitudes quant à ces méthodes. Soit la méthode de distillation, même aux plus hautes températures, ne permet pas d'extraire toute l'eau porale, induisant ces signatures allégées en isotopes lourds, soit les méthodes d'équilibration induisent aussi d'autres artefacts dont l'origine n'est pas encore élucidée.

En tout état de cause, il semble que les méthodes d'équilibration, notamment en phase liquide, soient les mieux adaptées si l'on se réfère à l'objectif initial de ces études, à savoir déterminer les teneurs en traceurs naturels de la roche pour reconstruire les transferts de fluides. En effet, ces méthodes reposent sur un processus de diffusion analogue à celui qui a lieu de façon prédominante à l'échelle du massif argileux, mobilisant de ce fait les mêmes types d'eaux.

On note néanmoins que les nombreuses données acquises par distillation sous vide, notamment à Tournemire, restent encore exploitables en relatif, puisque le biais dont elles sont affectées est systématique et d'ampleur égale *a priori* sur toute la colonne stratigraphique.

Exemples d'application de ces outils

Le site de Tournemire : mise en évidence de transferts diffusifs

La **figure 3** présente une coupe géologique simplifiée du site du tunnel de Tournemire avec la couche argileuse d'environ 250 m d'épaisseur, encadrée par deux aquifères calcaires. Elle est traversée par un ancien tunnel ferroviaire à partir duquel ont été réalisés les forages carottés pour prélever les échan-

tillons de roche. Le profil en $\delta^2\text{H}$ obtenu par distillation sous vide à partir de ces échantillons a été également reporté, et ce sur toute la colonne stratigraphique.

Il est nécessaire pour expliquer la forme en cloche de ce profil de s'appuyer sur l'histoire hydrogéologique du massif lui-même. Il y a environ 160 à 200 millions d'années, l'ensemble des roches qui forment la série géologique (calcaires inférieurs-couche argileuse-calcaires supérieurs) se sont déposées sous la mer au Jurassique. L'eau présente dans les pores de ces roches avait donc une composition chimique (chlorure) et isotopique ($^2\text{H}/^1\text{H}$) voisine de celle de l'eau de mer. Puis ces roches ont été soumises aux circulations d'eaux continentales lors de l'émersion de la série, entraînant la pénétration d'eau de pluie dans le massif. L'infiltration de cette eau dans les calcaires s'est réalisée rapidement, en créant des conduits par dissolution (karstification), alors qu'elle a été extrêmement lente dans la roche argileuse, très peu perméable et très peu soluble. Quasi instantanément à l'échelle géologique, c'est-à-dire en quelques milliers ou dizaines de milliers d'années après l'émersion, l'eau de mer initialement présente dans les pores des couches calcaires s'est trouvée remplacée par de l'eau de pluie infiltrée, alors que cette eau de mer restait presque totalement conservée dans les pores de la couche argileuse centrale. Cette situation a créé l'apparition de gradients de teneurs élémentaires et isotopiques : au centre, dans les pores de la roche argileuse, persistait une eau de mer plus concentrée en Cl^- et en isotopes lourds (^2H , ^{18}O) que l'eau météorique présente dans la porosité des niveaux calcaires, au-dessus et en dessous. Ces gradients sont à l'origine de flux de diffusion : le chlorure et les molécules d'eau riches en deutérium et oxygène 18 ont diffusé depuis la couche argileuse vers les niveaux calcaires.

Des simulations d'évolution de profils de concentrations en chlorure et deutérium ont été réalisées selon ce scénario [17], en considérant que le processus de diffusion a débuté il y a 53 millions d'années, ce qui correspond à l'émersion définitive de la série. Les profils simulés à l'époque actuelle après calage des coefficients de diffusion sont globalement en accord avec les concentrations mesurées (**figure 3**). Cela démontre la lenteur des transferts, essentiellement régis par le phénomène de diffusion à l'échelle de la couche argileuse. On note également un bon accord entre les valeurs de coefficient de diffusion estimées dans ces simulations et celles obtenues au laboratoire, ce qui suggère finalement que l'effet d'échelle est faible.

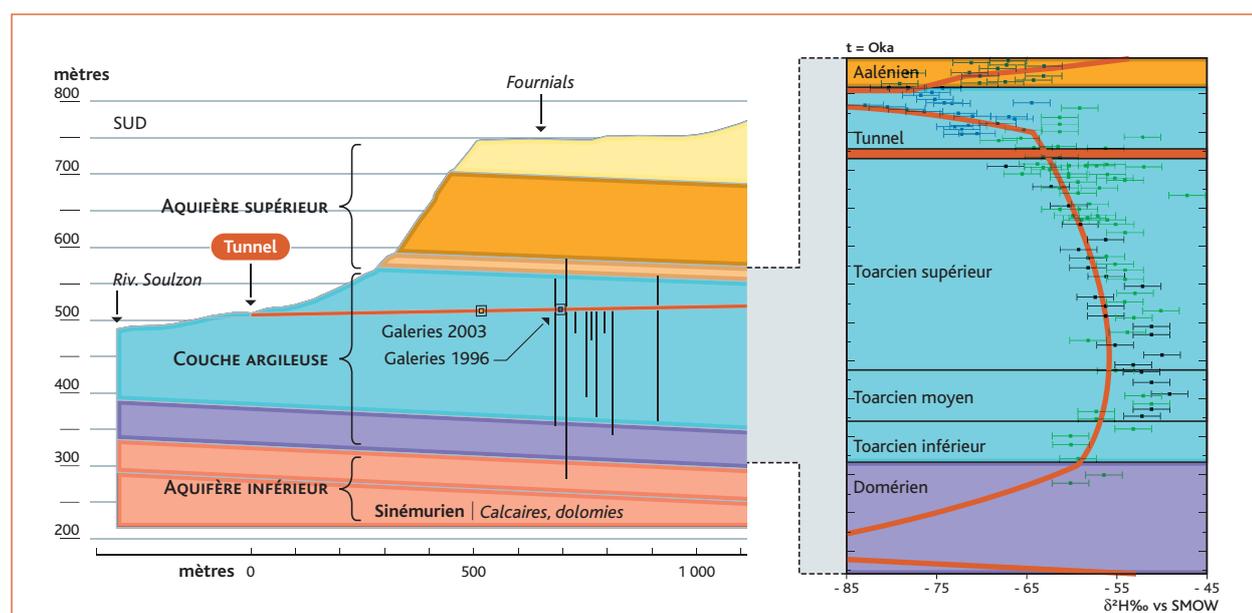


Figure 3 : Coupe géologique schématique du site de Tournemire et profil observé en $\delta^2\text{H}$ de l'eau porale ainsi que la modélisation correspondante (d'après Moreau Le Golvan et al., 1997 et Patriarche et al., 2004a et 2004b).

5.1

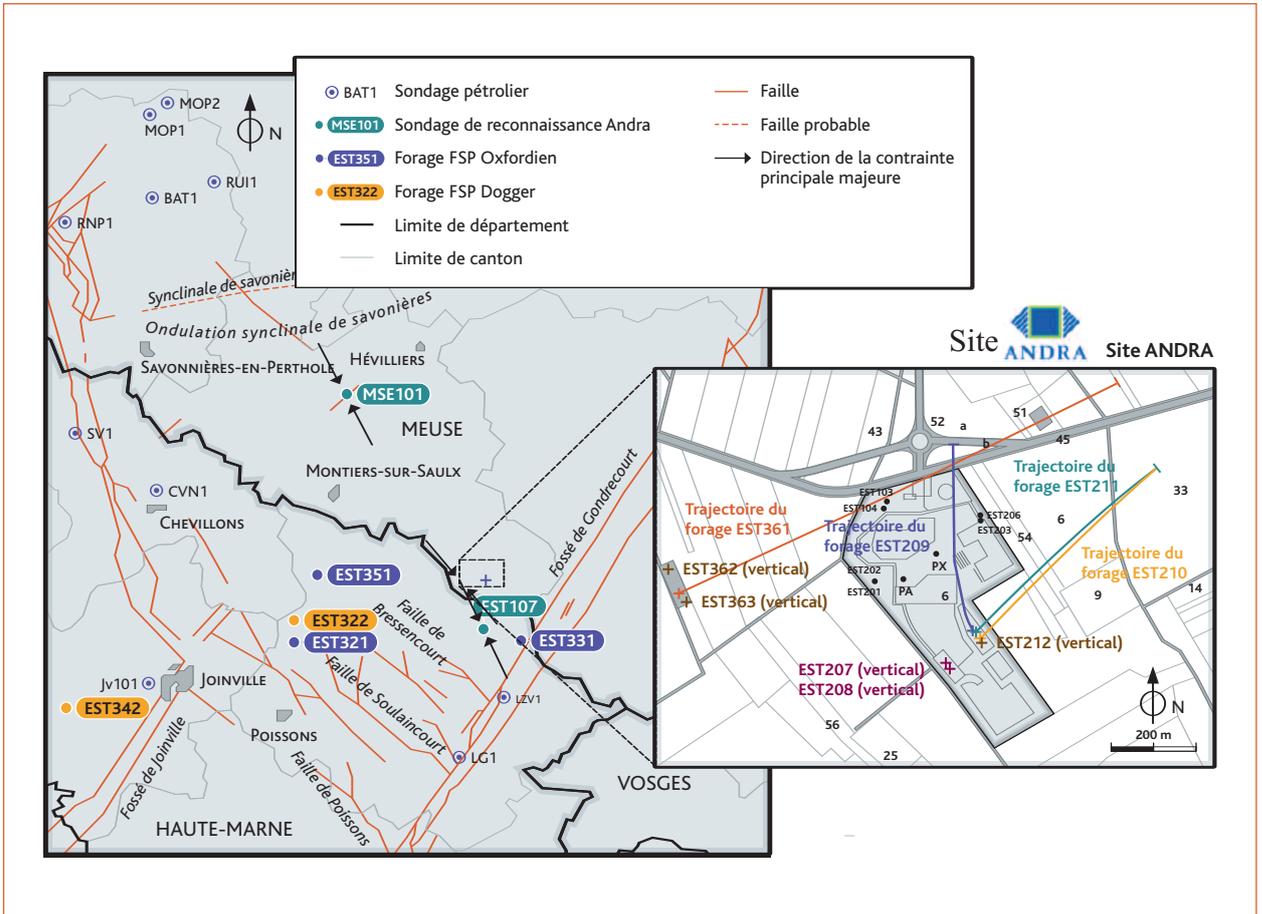


Figure 4 : Carte de localisation des forages de reconnaissance préliminaire, des forages scientifiques profonds (FSP) et des forages de reconnaissance de la fracturation (FRF) dans l'écart (Andra, 2005).

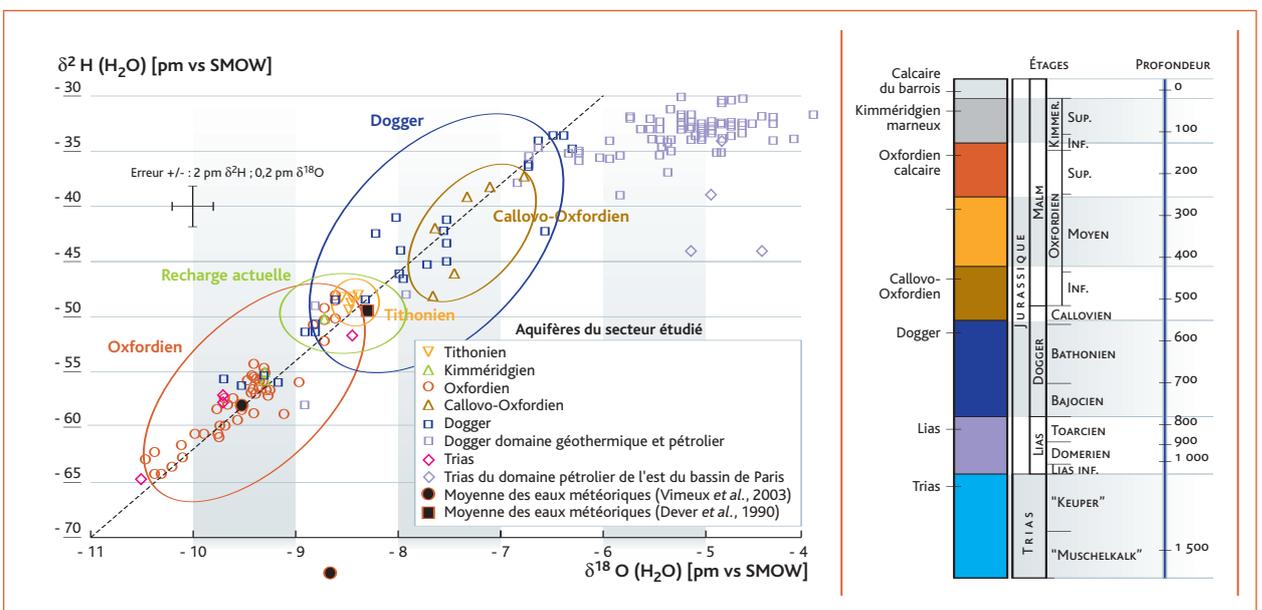


Figure 5 : Composition isotopique des eaux dans le secteur Est de la France comparées aux points représentatifs du domaine pétrolier et géothermique à l'ouest du secteur. À droite, coupe géologique simplifiée.

Le site Andra de Meuse – Haute-Marne : rôle écran de la couche argileuse ?

L'étude des isotopes stables de l'eau a été appliquée à la caractérisation des aquifères encadrant la couche argileuse du Callovo-Oxfordien dans l'Est de la France, dans le but de préciser l'origine des eaux, leur temps de résidence ainsi que les possibilités de transferts verticaux d'une part au travers du Callovo-Oxfordien, d'autre part entre l'Oxfordien sous couverture et la surface.

Le secteur considéré dans cette étude s'étend d'est en ouest de la zone d'alimentation des aquifères encadrant le semi-perméable du Callovo-Oxfordien jusqu'à environ 10 km à l'ouest du fossé de la Marne et du nord au sud de Bar-le-Duc jusqu'au fossé de la Marne. Ce secteur a fait par l'Andra l'objet de nombreux forages destinés soit à une reconnaissance préliminaire, soit à préciser les caractéristiques hydrauliques et géochimiques des aquifères encadrant le Callovo-Oxfordien (forages scientifiques profonds), soit enfin à la reconnaissance de la formation.

Les cartes d'implantation des forages réalisés par l'Andra sont données en *figure 4*. Les données acquises sur les forages de l'Andra proviennent principalement des travaux réalisés par le GdR FORPRO, par l'Andra [18], ainsi que de notes techniques IRSN réalisées dans le cadre de la convention Andra-IRSN [19]. Pour les autres forages, les données proviennent essentiellement de la banque des données du sous-sol (BSS) du BRGM et des publications disponibles. L'ensemble des données ont été intégrées dans la base BPDATA de l'IRSN, dont on a extrait des fichiers pour cette analyse.

L'ensemble des données en isotopes stables de l'eau acquises dans l'Est de la France sont reportées en *figure 5*. Les données obtenues par l'Andra sont comparées à celles publiées pour l'aquifère du Dogger pétrolier et géothermique et celui du Trias supérieur (Rhétien) obtenues plus à l'ouest du secteur étudié [20 ; 21].

Toutes les eaux du secteur concerné sont situées sur la droite locale des eaux météoriques proposée par le GdR FORPRO [22], très proche de celle de Dever *et al.*, (1990). Cela traduit ainsi leur origine météorique. On y distingue quatre groupes :

- les eaux du Tithonien ainsi que celles des aquifères du Dogger et de l'Oxfordien collectées aux aires d'affleurement sont centrées autour du niveau de la moyenne annuelle des eaux météoriques définie par Dever *et al.* [23] et représentent donc la recharge actuelle ;
- les eaux de l'aquifère de l'Oxfordien, hors zone de recharge, sont appauvries en isotopes stables lourds par rapport à la recharge actuelle, suggérant un effet paléo-climatique avec des infiltrations en période plus froide que l'actuelle. De telles périodes sont connues pour appauvrir les eaux des précipitations en isotopes stables lourds (*figure 1*). Or les périodes froides recensées au quaternaire couvrent toute la période pléistocène (1,8 Ma jusqu'à 12 ka BP). Elles ont été entrecoupées de périodes interglaciaires, par exemple avec des précipitations plus enrichies ;
- les eaux de l'aquifère du Dogger situées hors de la recharge sont plus enrichies en isotopes lourds que celles de l'Oxfordien et que celles représentatives de la recharge. Elles sont néanmoins appauvries en isotopes lourds par rapport à la paléo-eau météorique mise en évidence par Matray *et al.* [21] au centre du bassin de Paris. On peut néanmoins suggérer qu'elles possèdent une forte proportion d'eau météorique infiltrée il y a plus de 1,8 Ma ;
- les eaux du Callovo-Oxfordien déterminées à partir du forage EST212 par la méthode d'équilibre phase vapeur sont situées dans le domaine des eaux du Dogger hors aire de recharge.

Il existe une exception à ces tendances générales. Le point représentatif du forage EST322 captant les eaux du Dogger montre une composition qui se situe dans le domaine de l'aquifère de l'Oxfordien. L'origine de la composition isotopique de l'eau du forage EST322 dans le domaine des eaux de l'Oxfordien demande à être élucidée, ainsi que la faible salinité de ce fluide. La position de ce forage dans la zone de fracturation diffuse Marne/Poissons suggère des échanges rapides *via* les structures au travers du semi-perméable du Callovo-Oxfordien. Néanmoins, la direction de ce transfert n'est pas compatible avec le gradient hydraulique descendant de cette zone [24].

Il apparaît donc que les domaines des compositions isotopiques des eaux des aquifères du Dogger et de l'Oxfordien sous couverture sont parfaitement distincts, avec un net appauvrissement en isotopes stables lourds pour l'aquifère de l'Oxfordien, y compris par rapport à la recharge actuelle. Ce résultat suggère le rôle de barrière étanche de la couche argileuse du Callovo-Oxfordien dans le secteur étudié, outre des infiltrations d'eaux météoriques à des périodes différentes en période glaciaire pour l'Oxfordien et en période anté-glaciaire ou interglaciaire pour le Dogger.

■ Conclusion

L'analyse des isotopes stables de l'eau en tant que traceurs naturels constitue, semble-t-il, l'un des compléments indispensables aux études menées en laboratoire pour estimer les propriétés de confinement des formations argileuses. Elle permet, en effet, d'appré-

hender l'histoire des transferts de fluides à des échelles de temps et d'espace qui couvrent celles considérées dans un stockage. À Tournemire, l'interprétation des profils en traceurs naturels suggère l'existence de processus de transfert diffusif dans la couche argileuse, commencés il y a plus de 50 Ma, en bon accord avec les paramètres de diffusion obtenus au laboratoire. Il n'en demeure pas moins que l'obtention de tels profils comporte encore bien des incertitudes, puisque l'eau de ces roches à analyser ne répond pas forcément aux lois de la thermodynamique car elle est piégée dans des pores de quelques nanomètres. Sur le site de l'Andra, l'analyse des traceurs naturels dans les aquifères encadrant la couche argileuse confirme également des résultats par ailleurs acquis en se référant aux propriétés pétrophysiques de la roche et sur le rôle d'écran hydraulique joué par cette couche. Elle suggère également, pour certaines données, l'existence de courts-circuits au travers de la couche argileuse, au travers de la zone de fracturation diffuse Marne/Poissons.

Références

- [1] BOISSON, J.-Y., BERTRAND, L., HEITZ, J.-F., MOREAU-LE GOLVAN, Y., « *In Situ* and Laboratory Investigations of Fluid Flow Through an Argillaceous Formation at Different Scales of Space and Time, Tournemire Tunnel, Southern France », *Hydrogeol. J.* 9, 108-123, 2001.
- [2] VAN LOON, L. R., SOLER, J. M., MÜLLER, W., BRADBURY, M. H., « Anisotropic Diffusion in Layered Argillaceous Rock: A Case Study with Opalinus Clay », *Environ.Sci. Technol.*, 38, 5721-5728, 2004.
- [3] SAVOYE, S., MICHELOT, J.-L., WITTEBROODT, C., « Evaluation of the Reversibility of Iodide Uptake by Argillaceous Rocks by the Radial Diffusion Method », *Radiochim. Acta*, 94, 699-704, 2006.
- [4] PALUT, J. -M., MONTARNAL, PH., GAUTSCHI, A., TEVISSSEN, E., MOUCHE, E., « Characterisation of HTO Diffusion Properties by an *In-situ* Tracer Experiment in Opalinus Clay at Mont Terri », *J. Contam. Hydrol.*, 61, 203-218, 2003.
- [5] VAN LOON, L. R., WERSIN, P., SOLER, J. M., EIKENBERG, J., GIMMI, TH., HERNAN, P., DEWONCK, S., SAVOYE, S., « *In-situ* Diffusion of HTO, $^{22}\text{Na}^+$, Cs^+ and I^- in Opalinus Clay at the Mont Terri Underground Rock Laboratory », *Radiochim. Acta*, 92, 757-763, 2004.
- [6] SAVOYE, S., « Diffusion Experiments at Mont Terri: Overview and Results », *Proceedings of the Eurosafe Conference*, Paris, France, 6 pp., 2006.
- [7] WERSIN, P., VAN LOON, L. R., SOLER, J. M., YLLERA, A., EIKENBERG, J., GIMMI, TH., HERNAN, P., BOISSON, J.-Y., « Long-term Diffusion Experiment at Mont Terri: First Results from Field and Laboratory Data », *Appl. Clay Sci.*, 26, 123-135, 2004.
- [8] FONTES, J.-CH., « Les isotopes du milieu dans les eaux naturelles », *La Houille blanche*, 205-221, 1976.
- [9] CRAIG, H., « Isotopic Variations in Meteoric Water », *Science*, 133, 1 702-1 703, 1961.
- [10] MATRAY, J.-M., SAVOYE, S., CABRERA, J., « Desaturation and Structure Relationships Around Drifts Excavated in the Well-Compacted Tournemire's Argillite (Aveyron, France) », *Engineering Geology*, 90,1-16, 2007.
- [11] SACCHI, E., MICHELOT, J.-L., PITSCH, H., LALIEUX, PH., ARANYOSSY, J.-F., « Extraction of Water and Solutes from Argillaceous Rocks for Geochemical Characterisation: Methods, Processes and Current Understanding », *Hydrogeol. J.*, 9, 17-33, 2001.
- [12] MOREAU-LE GOLVAN, Y., MICHELOT, J.-L., BOISSON, J.-Y., « Stable Isotope Contents of Porewater in a Claystone Formation (Tournemire, France): Assessment of the Extraction Technique and Preliminary Results », *Appl. Geochem.*, 12, 739-745, 1997.
- [13] ARAGUAS-ARAGUAS, L., ROZANSKI, K., GONFIANTINI, K., LOUVAT, D., « Isotope Effects Accompanying Vacuum Extraction of Soil Water for Stable Isotope Analyses », *J. Hydrol.*, 168, 159-171, 1995.
- [14] RÜBEL, A. P., SONNTAG, C., LIPPMANN, J., PEARSON, F. J., GAUTSCHI, A., « Solute Transport in Formations of Very Low Permeability: Profiles of Stable Isotope and Dissolved Gas Contents of Pore Water in the Opalinus Clay, Mont Terri, Switzerland », *Geochim. Cosmochim. Acta*, 66, 1 311-1 321, 2002.
- [15] SAVOYE, S., MICHELOT, J.-L., WITTEBROODT, C., ALTINIER, M. V., « Contribution of the Diffusive Exchange Method to the Characterization of Pore-Water in the Consolidated Argillaceous Rocks », *J. Contam. Hydrol.*, 86, 87-104, 2006.
- [16] ALTINIER, M. V., SAVOYE, S., BEAUCAIRE, C., MASSAULT, M., MICHELOT, J.-L., WABER, H. N., TESSIER, D., « The Isotopic Composition of Argillaceous-Rock Pore Water: An Inter-Comparison Study on Tournemire Argillite (France) », *Journal of Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 209-207, 2007.
- [17] PATRIARCHE, D., MICHELOT, J.-L., LEDOUX, E., SAVOYE, S., « Diffusion as the Main Process for Mass Transport in Very Low Water Content Argillites: 1. Chloride as a Natural Tracer for Mass Transport. Diffusion Coefficient and Concentration Measurements in Interstitial Water », *Water Resour. Res.*, 40, W01516, DOI : 10.1029/2003, WR002600, 2004.
- PATRIARCHE, D., MICHELOT, J.-L., LEDOUX, E., SIMON-COINÇON, R., SAVOYE, S., « Diffusion as the Main Process for Mass Transport in Very Low Water Content Argillites: 2. Fluid Flow and Mass Transport Modeling », *Water Resour. Res.*, 40, W01517, DOI: 10.1029/2003, WR0022700, 2004.
- [18] ANDRA, Dossier 2005 *Argile : Évolution phénoménologique du stockage géologique*, 2005.
- [19] BEAUCAIRE C., GROS, J.-C., « Caractéristiques chimiques et isotopiques des fluides de l'Oxfordien », Note Technique IRSN/DPRE/SERG03-33, 2003.
- [20] MATRAY, J.-M., « Hydrochimie et géochimie isotopique des eaux de réservoir pétrolier du Trias et du Dogger dans le bassin de Paris », thèse de l'Université d'Orsay, 1988.
- [21] MATRAY, J.-M., LAMBERT, M., FONTES, J.-CH., « Stable Isotope Conservation and Origin of Saline Waters from the Middle Jurassic Aquifer of the Paris Basin, France », *Appl. Geochem.*, 9, 297-309, 1994.
- [22] FOUPRO, « Forages scientifiques profonds : état zéro du site de Meuse/Haute-Marne à partir des forages FSP réalisés en 2003 », Rapport Final 2004/08 Rf, 2004.
- [23] DEVER, L., MARLIN, C., VACHIER, P., « Teneurs en ^2H , ^{18}O , ^3H et en chlorures des pluies dans le Nord-Est de la France (Châlons-sur-Marne) : relation avec la température et l'origine des masses d'air », *Geodinamica Acta*, 4, 133-140, 1990.
- [24] IRSN, « Avis de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire sur le dossier 2005 Argile », Rapport DSU n° 106, 2005.

5.2

Étude expérimentale et modélisation des interactions béton/argile au sein d'un stockage géologique de déchets radioactifs

5.2

*Delphine PELLEGRINI
Bureau d'évaluation des barrières
de confinement des stockages
de déchets radioactifs*

*Denise STAMMOSE
Isabelle DEVOL-BROWN
Élisabeth TINSEAU*

*Laboratoire d'étude des transferts
dans les sols et le sous-sol*

*Laurent DE WINDT
École des Mines de Paris,
Centre de géosciences*

Les concepts d'ouvrages actuellement développés pour le stockage en formation géologique profonde de déchets radioactifs de haute activité et à vie longue [1] contiennent des matériaux argileux et cimentaires. Ces matériaux évoluent lorsqu'ils interagissent, du fait de leurs fortes différences de nature chimique. En effet, la chimie des eaux porales de la majorité des bétons est caractérisée par des teneurs élevées en ions alcalins et hydroxydes ($\text{pH} \geq 13$). La migration de ces eaux dans le milieu environnant correspond à la formation d'un panache alcalin, qui peut conduire à la destruction des minéraux constitutifs des argiles et modifier significativement la composition de l'eau argileuse. La présence de béton pourrait ainsi altérer les propriétés favorables de confinement chimique et hydraulique des barrières argileuses du stockage. L'évaluation de la sûreté du stockage nécessite donc d'apprécier l'importance de cette perturbation, et à cet effet d'estimer l'intensité et l'extension des transformations minéralogiques et chimiques subies par les argiles.

Cette évolution des composants du stockage est caractérisée par un couplage fort entre le transfert d'éléments chimiques en solution et les processus chimiques de dissolution/précipitation et de sorption. Un second aspect spécifique à l'estimation de l'impact du panache alcalin dans le contexte du stockage est l'échelle de temps d'intérêt, qui est de plusieurs dizaines de milliers d'années. Il convient de ce fait de recourir à la modélisation couplée chimie-transport, qui a significativement évolué ces dernières années et s'effectue à présent au moyen d'outils numériques de simulation permettant d'appréhender ces processus couplés sur le très long terme pour des objets de grande taille et de géométrie complexe. Le code HYTEC [2], développé dans le cadre du Pôle géochimie transport (voir <http://pgt.ensmp.fr/>) auquel participe l'IRSN, est celui utilisé pour la présente étude.

Une des difficultés majeures de la modélisation des interactions entre matériaux cimentaires et argileux est de déterminer les minéraux qui peuvent se former lors de ces interactions. Il existe dans la littérature une grande variabilité des minéraux secondaires observés (voir par exemple De Windt *et al.* [3] et ses références). À cet égard, la précipitation d'illite et de zéolites au détriment de la montmorillonite, minéraux qui ne présentent pas les mêmes capacités de gonflement et pourraient donc changer les propriétés hydrauliques de l'argile, n'est pas toujours mentionnée bien que les études les plus récentes semblent converger vers un schéma réactionnel qui inclut la formation de ce type de minéraux [4 ; 5].

Par ailleurs, la diffusion des anions peut être significativement ralentie au sein des matériaux argileux compactés du fait de mécanismes d'exclusion électrostatique induits par les surfaces chargées des particules argileuses [6 ; 7]. Néanmoins, ce processus d'exclusion anionique peut devenir négligeable pour de faibles densités de bentonite ou lors d'ajout de sable en mélange avec les particules de bentonite [8]. De plus, le panache alcalin est composé d'anions (OH^-), mais aussi de cations (Na^+ , K^+ , $\text{Ca}(\text{OH})^+$) et l'effet de l'exclusion anionique sur la propagation de ce panache dans son ensemble reste mal connu.

La présente étude de l'évolution dans l'espace et dans le temps de matériaux argileux soumis à un panache alcalin est axée sur ces incertitudes relatives d'une part au schéma réactionnel des interactions béton/argile et d'autre part, à la contribution de l'exclusion anionique. Les travaux expérimentaux conduits afin de préciser les évolutions minéralogiques possibles et d'apprécier l'importance de l'exclusion anionique sont présentés dans une première partie. La seconde partie, consacrée à la modélisation numérique sur le long terme de la perturbation alcaline en configuration de stockage pour le cas d'un ouvrage de scellement de galerie, comprend une analyse de la sensibilité de la perturbation calculée aux hypothèses minéralogiques et aux paramètres de transport.

Étude expérimentale

Démarche expérimentale

L'ensemble du programme expérimental a été conduit sur l'argilite du Toarcien provenant de la station expérimentale de Tournemire (SET) [9]. Il combine des expérimentations en laboratoire de surface avec l'observation d'échantillons d'argilite en contact avec des bétons prélevés dans la SET. Cette argilite du Toarcien présente des caractéristiques proches de celles du Callovo-Oxfordien [1] étudié au laboratoire souterrain de l'Andra situé à Bure (site de Meuse – Haute-Marne), en termes de minéralogie et de porosité.

Expérimentations en laboratoire

Des solutions alcalines représentatives de solutions de lixiviation de bétons sont utilisées pour les expérimentations menées en laboratoire afin d'exacerber les transformations de l'argile. Un tel choix permet en

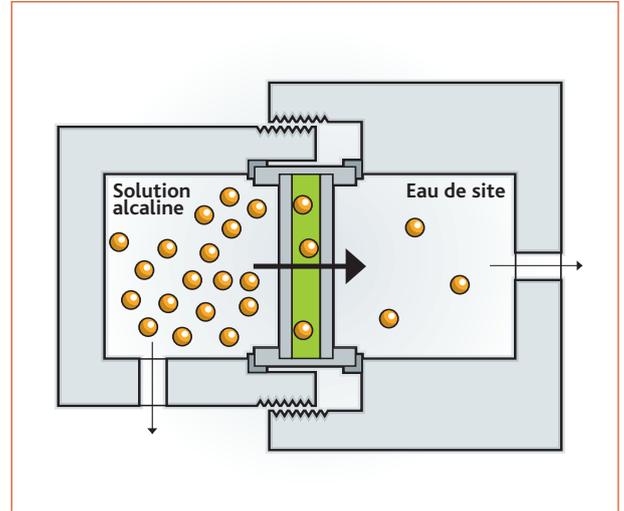


Figure 1 : Schéma d'une cellule de diffusion.

outre de mieux contrôler les conditions expérimentales, en particulier la composition de l'eau porale des bétons.

Dans les expérimentations de type *batch*, une masse donnée d'argilite est mise en agitation avec un volume connu d'une solution alcaline pour des durées de un, trois ou six mois dans une enceinte thermostatée (25 °C et 70 °C). Deux solutions de compositions différentes approchant celles des deux premières phases de dégradation de bétons ordinaires à base de ciment Portland sont retenues :

- type I : pH = 13,25 ; $[\text{Na}] = 8 \cdot 10^{-2} \text{ M}$; $[\text{K}] = 10^{-1} \text{ M}$; $[\text{Ca}] = 10^{-3} \text{ M}$
 - type II : pH = 12,5 ; $[\text{Na}] = 8 \cdot 10^{-3} \text{ M}$; $[\text{K}] = 10^{-2} \text{ M}$; $[\text{Ca}] = 3 \cdot 10^{-2} \text{ M}$
- L'argilite est introduite dans ces solutions sous forme pulvérulente ou compacte. Sous forme pulvérulente, l'argilite offre une surface réactionnelle importante mais la dissolution ou la précipitation de nouvelles phases est difficilement observable sur le solide. Au contraire, les phénomènes d'altération sont moins prononcés sous forme compacte, mais la mise en évidence de phases néoformées est facilitée. En fin d'expérience, les phases solides et liquides sont séparées. Les solutions sont filtrées et analysées par pH-métrie, spectrométrie d'absorption atomique (cations) et chromatographie ionique (anions). La composition chimique et minéralogique des solides pulvérulents est déterminée par torche à plasma couplée à la spectrométrie de masse (ICP-MS) et par diffractométrie de rayons X (DRX). Les échantillons compacts sont uniquement observés et analysés par microscopie électronique à balayage couplée à la spectrométrie de dispersion d'énergie (MEB/EDS). Les quantités d'argilite altérée sont en effet trop faibles dans ce cas pour que des méthodes telles que la DRX puissent être appliquées.

L'étude de la diffusion des espèces de la solution alcaline (Na , Ca , K , OH) est réalisée par des expériences de *through diffusion* (figure 1), sur des disques d'argilite de 5 mm d'épaisseur. Afin d'examiner l'influence

possible d'états de fissuration de l'argilite sur la diffusion, trois types de disques d'argilite sont sélectionnés : argilite saine (sans fissure apparente), argilite présentant une fissure traversante (quasiment jointive) et argilite présentant une fissure remplie de calcite. L'expérience de diffusion, triplée pour chaque type de disque, comprend quatre étapes :

- le disque d'argilite est placé entre deux compartiments contenant une solution synthétique de composition proche de celle de l'eau interstitielle de l'argilite. Quand le système a atteint l'équilibre, une quantité connue d'eau tritiée (HTO) est introduite dans le compartiment amont. La solution du compartiment aval est renouvelée régulièrement et analysée par scintillation liquide afin d'établir la courbe de diffusion de HTO et d'en déduire le coefficient de diffusion effectif de cette espèce dans l'argilite avant perturbation alcaline ;
- la solution du compartiment amont est ensuite remplacée par une solution alcaline de type I. La diffusion des espèces chimiques de la solution alcaline est suivie par l'analyse par pH-métrie et chromatographie liquide de prélèvements réguliers dans le compartiment aval. Le suivi est arrêté quand la composition de la solution du compartiment aval est voisine de celle du compartiment amont (environ une année). Un premier groupe de trois cellules de chacun des types de disque est alors démonté pour observation et caractérisation des disques par MEB/EDS ;
- de l'eau tritiée est introduite dans le compartiment amont du second groupe de cellules. Le suivi de sa diffusion est réalisé comme dans la première étape. La comparaison des deux courbes de diffusion de HTO obtenues avant et après diffusion de la solution alcaline renseigne sur une éventuelle modification de l'argilite ;
- la diffusion de la solution alcaline de type II est étudiée avec le troisième groupe de cellules (étape actuellement en cours).

Échantillonnage dans la station expérimentale de Tournemire

La station expérimentale de Tournemire présente plusieurs ouvrages traversant l'argilite du Toarcien : un ancien tunnel ferroviaire, des galeries et des forages. Certains de ces ouvrages ont été bétonnés et offrent la possibilité d'étudier les transformations subies *in situ* par l'argilite. L'âge des ouvrages varie de 15 à 125 ans, ce qui permet l'étude de la perturbation de l'argilite au contact de bétons pendant une durée supérieure à celle classiquement accessible en laboratoire. Cette station présente en outre des zones de circulation d'eau provenant de l'aquifère supérieur (contexte « humide ») et des zones exemptes de l'influence de cet aquifère (contexte « sec » où l'argilite est partiellement désaturée en eau). Trois séries d'échantillons ont été prélevées : au niveau de l'ancien tunnel ferroviaire (durée de contact de 125 ans), en contextes sec et humide, et dans un forage vertical descendant bétonné (15 ans) en contexte humide. Ces échantillons ont été observés et caractérisés par MEB/EDS et par DRX.

Résultats

Transformations minéralogiques

Les expérimentations en *batch* montrent que quelles que soient la température (entre 25 et 70 °C) et la composition initiale de la solution alcaline (type I ou II), cette dernière est modifiée après le contact avec l'argilite : diminution du pH d'autant plus importante que la durée du contact est longue, diminution des concentrations en potassium et en sodium plus ou moins marquée, mise en solution puis consommation de calcium, de silice et de magnésium. Aucune influence significative de la composition de la solution alcaline et de la température sur les processus réactionnels n'est toutefois relevée, les phases dissoutes et précipitées observées étant sensiblement les mêmes. En revanche, l'analyse des solutions suggère que les réactions sont amplifiées pour les conditions les plus agressives (70 °C et/ou solution de type I). Il convient de préciser qu'une durée d'interaction inférieure à trois mois induit des changements de composition de solution mais ne suffit pas pour générer des néoformations détectables de minéraux. À cet égard, l'intensité des transformations minéralogiques reste le plus souvent trop faible pour être quantifiée par DRX, même pour les durées d'interactions plus longues abordées dans la présente étude (3 mois à 125 ans).

Tableau 1

		Bilan des phases dissoutes et précipitées observées (DRX et MEB/EDS ; uniquement MEB/EDS pour les expériences de diffusion)			
		Batch	Diffusion	In situ, 15 ans	In situ, 125 ans
Dissolution	Dolomite	X	–	X	X
	Quartz	–	–	X	–
Précipitation	Calcite	X	X	X	X
	Quartz	–	rare	–	–
	Argiles interstratifiées	X	–	X	suspectée
	Zéolites	non systématique	non systématique	non systématique	–
	Feldspaths	non systématique	non systématique	X	X

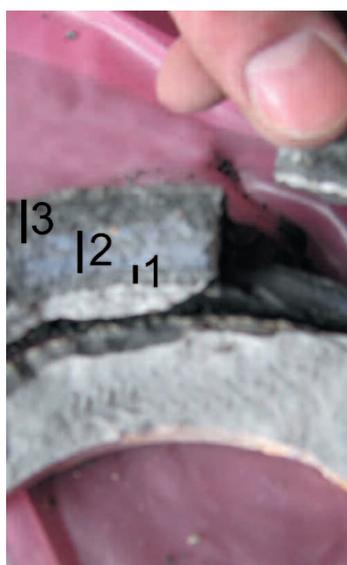


Figure 2 : Interface argilite/béton prélevée in situ après une durée de contact de 15 ans en contexte humide, avec trois zones d'altération distinctes de l'argilite (Tinseau et al., 2006) [18].

Les échantillons solides issus d'expériences *in batch*, en cellule de diffusion et de la SET en contexte humide montrent des transformations globalement similaires, résumées dans le **tableau 1**⁽¹⁾. En revanche, les échantillons prélevés *in situ* en contexte sec n'indiquent aucune altération due à une perturbation alcaline, même après 125 ans de contact.

La plupart de ces échantillons solides témoignent d'une dissolution plus ou moins marquée de dolomite. Aucune dissolution significative de phases aluminosilicatées n'est mise en évidence par DRX et MEB, à l'exception de celle du quartz dans le cas du forage bétonné. La diminution des quantités de silice et d'aluminium présentes dans les phases solides, accompagnée d'une augmentation de la concentration de la solution en ces éléments, traduit pourtant la dissolution d'une ou plusieurs phases aluminosilicatées pour l'ensemble des échantillons étudiés. La nature de cette ou de ces phases n'est pas mise en évidence par DRX, du fait de la sensibilité limitée de cette technique.

La calcite précipite systématiquement. La néoformation d'argiles interstratifiées est également détectée pour tous les échantillons, à l'exception de ceux issus des expériences de diffusion. Toutefois, il se pourrait que ce type de néoformation se produise au sein des disques d'argilite, or ceux-ci n'ont été observés qu'en surface externe compte tenu de leur trop faible épaisseur. La néoformation de zéolites ou de feldspaths (potassique notamment) apparaît de façon discrète (non massive) dans certains échantillons seulement, sans qu'une relation manifeste entre les conditions expérimentales et la précipitation non systématique d'une de ces phases puisse être établie. En outre, plusieurs auteurs [10 ; 4] rapportent la précipitation de silicates de calcium hydratés (CSH ou CASH), non détectée dans la présente étude. Ceci peut s'expliquer par la composition des solutions alcalines retenues (l'absence systématique de silicium) dans le cas des expériences en laboratoire et/ou par les limites des techniques analytiques mises en œuvre. En effet, ces phases peu ou pas cristallisées sont difficilement décelables par DRX et sont déstabilisées sous le faisceau d'électrons du MEB.

Une autre observation d'intérêt concerne les fronts d'altération bien marqués sur une épaisseur totale de 2,5 cm que présente l'argilite prélevée au contact du forage bétonné (**figure 2**). La première zone au contact du béton, est constituée d'une intense précipitation de calcite. La deuxième zone (-1 cm d'épaisseur) contient également de la calcite précipitée en moindre quantité, ainsi que des argiles néoformées. Enfin, dans la dernière zone (-1 cm), des néoformations de calcite et de feldspaths sont systématiquement mises en évidence et des zéolites sont observées sur quelques échantillons. La quantité de quartz décroît de la zone 3 à la zone 1 alors qu'à l'inverse, la quantité d'argiles interstratifiées tend à augmenter avec la distance au béton. Cette figure d'altération en zones contenant des transformations minéralogiques différentes conforte le type d'altération « par front » obtenu en modélisation sur le très long terme (voir à partir de la page 240).

(1) Les modifications liées à l'oxydation de l'argilite (dissolution de pyrite, précipitation de gypse, d'oxyhydroxydes de fer, etc.) ne sont pas détaillées dans la présente étude axée sur l'influence de la perturbation alcaline.

(2) Dp = De/porosité.

Ces fronts d'altération ne sont en revanche pas visibles sur les prélèvements de 125 ans, ce qui pourrait s'expliquer par plusieurs hypothèses, comme une moindre agressivité du béton de revêtement du tunnel, des fronts plus ténus, etc.

Ainsi, cette étude expérimentale confirme l'intérêt de combiner plusieurs approches (échantillons altérés en *batch*, en cellules de diffusion et *in situ*) afin d'obtenir des informations complémentaires et de réduire les imprécisions liées aux difficultés expérimentales et analytiques spécifiques à chaque approche. Les évolutions minéralogiques constatées, qu'il s'agisse des expériences en laboratoire ou d'échantillons prélevés dans la SET, sont globalement cohérentes avec celles citées dans la littérature [4 ; 5]. Néanmoins, l'observation non systématique et actuellement mal comprise de néoformations à cinétique lente comme les minéraux argileux, les zéolites et les feldspaths ne permet pas de dégager un schéma réactionnel unique. Une caractérisation plus fine des minéraux néoformés, complétée par une modélisation de l'ensemble des résultats acquis, permettra de mieux apprécier les mécanismes en jeu et leur dépendance aux différentes conditions expérimentales ou prévalant *in situ*. En particulier, la microscopie électronique à transmission (MET) est envisagée afin de préciser l'importance du processus d'illitisation des argiles interstratifiées. Il reste donc difficile en l'état actuel des connaissances d'extrapoler les résultats de ces expériences, réalisées à petites échelles d'espace et de temps, à la configuration réelle d'un stockage pour des périodes de temps proche de plusieurs dizaines de milliers d'années. Par conséquent, il convient de tenir compte des incertitudes résiduelles dans les modélisations de la perturbation alcaline sur le long terme.

Exclusion anionique

Les coefficients de diffusion effectifs (D_e) de HTO obtenus par la résolution analytique de la loi de Fick sont respectivement de $2,6 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'argilite saine, de $2,8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'argilite à fissure quasiment jointive, et de $2,2 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'argilite à fissure remplie de calcite. Ces valeurs correspondant à la moyenne des mesures sur deux échantillons sont cohérentes avec celles obtenues par ailleurs (1,3 à $3,6 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [11]). Aucune influence significative de l'état de fissuration initial de l'argilite n'est notée, les écarts restant dans le domaine de l'incertitude de mesure, de l'ordre de 10 %. À cet égard, le gonflement limité de l'argilite, compte tenu notamment de la présence d'un ciment carbonaté, semble cependant suffisant pour rendre totalement jointive la fissure traversante, comme constaté après le démontage de la cellule. De la même manière, l'état initial de fissuration de l'argilite ne semble pas influencer sur la diffusion des espèces chimiques Na^+ et K^+ de la solution alcaline (courbes de diffusion superposées).

Les coefficients de diffusion effectifs (D_e) des cations Na^+ et K^+ pour l'argilite saine (non fissurée) en condition alcaline ($\text{pH} = 13,25$) ont été déduits des coefficients de diffusion porale (D_p)⁽²⁾ estimés par ajustement des courbes de diffusion à la loi de Fick en utilisant une valeur moyenne de porosité totale (10 %) issue de mesures réalisées sur

d'autres échantillons d'argilite de Tournemire [12]. En effet, le nombre de points de mesure constituant la courbe de percée aux temps courts s'est avéré insuffisant pour déduire de manière fiable la porosité offerte à la diffusion dans chacun des échantillons étudiés. Les valeurs de coefficient D_e obtenues sont présentées dans le **tableau 2** avec celles de HTO déterminées avant et après diffusion du panache alcalin.

Les coefficients D_e des cations Na^+ et K^+ sont plus faibles que celui de HTO déterminé en début d'expérience, mais sont identiques à celui de HTO obtenu en fin d'expérience. En effet, un écart est observé entre les courbes de diffusion de HTO avant et après diffusion du panache alcalin, ce qui traduit probablement une évolution du disque d'argilite due à une réduction de la porosité consécutive à la précipitation de phases solides. Cette évolution n'a toutefois pas été quantifiée et n'est donc pas prise en compte dans l'estimation du coefficient de diffusion effectif présenté dans le **tableau 2**.

Pour ce qui concerne l'anion OH^- , le coefficient de diffusion ($6,9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) estimé en considérant une porosité de 10 % est plus faible que celui de HTO en début d'expérience (facteur 3,7) et en fin d'expérience (facteur 2,7). Ces différences, qui ne peuvent s'expliquer uniquement par l'imprécision sur la valeur de la porosité totale et le colmatage partiel de la porosité, indiquent une apparente expression du phénomène d'exclusion anionique sur la propagation de l'ion hydroxyle dans ce type de milieu argileux. De ce fait une nouvelle estimation du coefficient de diffusion est nécessaire pour rendre compte des répulsions électrostatiques qui empêchent l'ion hydroxyle d'accéder à une partie de la porosité totale et permettre la comparaison avec les résultats publiés dans la littérature, en considérant une valeur de porosité réduite (porosité anionique de 3 %, [12]). L'écart entre la valeur résultante ($2,1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) et celle déterminée pour HTO en début d'expérience (facteur 12) est alors du même ordre de grandeur que celui observé en condition alcaline ($\text{pH} = 12,5$) pour les ions chlorures sur l'argilite du Callovo-Oxfordien [7]. Néanmoins une quantification plus précise de l'influence du phénomène d'exclusion anionique nécessiterait de disposer dans le cas de la présente étude de mesures de porosité avant et après altération de l'argilite.

Tableau 2

Coefficients de diffusion effectifs ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) de l'eau tritiée et des différentes espèces de la solution alcaline de type I pour l'argilite saine (non fissurée).

HTO avant altération ⁽¹⁾	HTO après altération ⁽²⁾	Na^+	K^+	OH^-
$2,6 \cdot 10^{-11}$	$1,9 \cdot 10^{-11}$	$1,9 \cdot 10^{-11}$	$1,9 \cdot 10^{-11}$	$6,9 \cdot 10^{-12}$

(1) Moyenne calculée à partir de deux courbes de diffusion.
(2) Calculée d'après une seule courbe de diffusion.
NB : pas de valeur pour le calcium en raison d'un biais expérimental.

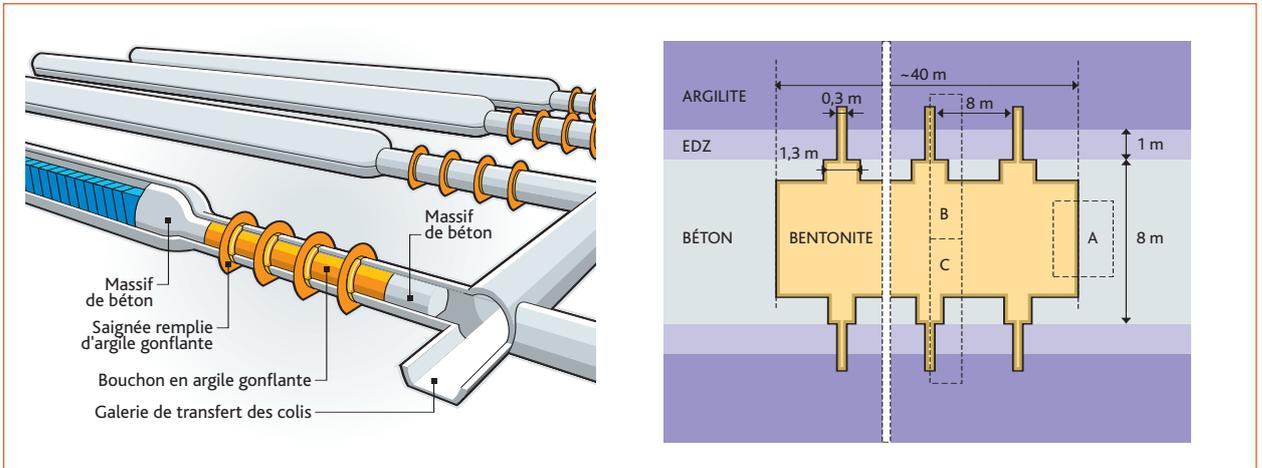


Figure 3 : Représentation d'un scellement de galerie. Cas des galeries d'accès aux alvéoles de stockage de déchets B (Andra, 2005) et schéma du système et des zones simulées (dimensions non respectées). Zone A : noyau de scellement en bentonite en contact avec un massif de béton. Zones B et C : système d'ancrage respectivement sans et avec radier.

Modélisation sur le long terme : cas d'un scellement de galerie

Caractéristiques du système simulé et démarche de modélisation

Configuration d'un ouvrage de scellement

Le scellement de galerie retenu par l'Andra [1] et schématisé par la **figure 3** est constitué d'argile gonflante (bentonite) de très faible perméabilité en vue de former une barrière hydraulique qui s'oppose à la circulation d'eau dans et autour de la galerie. Cet ouvrage comporte un noyau et de minces saignées (0,3 m d'épaisseur et 1,5 à 3 m de profondeur) ancrées dans la roche hôte et destinées à interrompre la zone de roche fracturée par l'excavation de la galerie (EDZ). Il est doté de massifs d'appui en béton de part et d'autre du noyau de bentonite pour le confinement mécanique de ce dernier. Le soutènement de galerie d'environ 0,5 m d'épaisseur et le radier en béton d'environ 1 m laissés en place entre les saignées sont déposés au droit de celles-ci sur 1,3 m et remplacés par de la bentonite. On désignera ci-après par « clé d'ancrage » l'ensemble constitué d'une saignée et de l'épaulement en bentonite situé entre deux tronçons de revêtement en béton. Trois zones de l'ouvrage de scellement ont été sélectionnées pour la présente étude (**figure 3**) afin d'évaluer l'influence :

- d'un massif d'appui en béton sur le noyau de bentonite (zone A) ;
- du soutènement en béton (zone B) ;
- d'un radier sur une clé d'ancrage (zone C).

L'évolution du système est simulée en géométrie 3D-cylindrique, ce qui permet de reproduire correctement la géométrie et le rapport de masse des composants du stockage, ainsi que la dilution radiale du panache alcalin. Par simplicité, les résultats de simulation seront représentés suivant une coupe longitudinale en 1D pour la configuration simple béton/bentonite et en 2D pour les configurations plus

complexes béton/bentonite/argilite d'une clé d'ancrage. Le maillage utilisé pour traiter chacune des trois zones est raffiné aux interfaces béton/argile. Un exemple correspondant à la zone de la clé d'ancrage à proximité du radier (zone C) est donné en **figure 5** (voir p. 244).

Caractéristiques géochimiques initiales et schéma réactionnel

Le cortège minéralogique retenu pour représenter la roche hôte (argilite) dans les simulations est composé d'illite (22 % en masse), d'interstratifiés illite/smectite (28 %), de quartz (30 %), de calcite (17,5 %) et de dolomite (2,5 %). Les smectites sont modélisées par la montmorillonite calcique. L'eau interstitielle simulée de l'argilite a un pH de 7,7 avec les ions majeurs sodium, chlorures et sulfates. La bentonite (de type MX80) est modélisée par un assemblage de montmorillonite sodique (83 %), de quartz (15,5 %) et de calcite (1,5 %). Son hydrochimie est proche de celle de l'argilite (pH proche de la neutralité, de type Na-Cl-SO₄). Un mélange de bentonite et de sable pourrait être sélectionné pour la réalisation d'un scellement (voir Propriétés de transport ci-après). Le sable est dans ce cas assimilé à du quartz. Le béton est représenté dans les simulations par un ciment ordinaire de type CEM-I (Portland). La présence de granulats n'est pas prise en compte. La minéralogie simplifiée retenue permet de rendre compte des grands états d'évolution du ciment et des phénomènes de régulation du pH. Les phases constitutives sont la portlandite (20 %), un silicate de calcium hydraté (CSH) de rapport Ca/Si de 1,7 (CSH1.7 ; 70 %) et l'ettringite (10 %). Les eaux cimentaires sont de type K-Na-OH pour un pH de 13,2.

Le **tableau 3** résume les deux hypothèses minéralogiques relatives aux phases secondaires pouvant se former au cours des interactions béton/argile utilisées dans les simulations. Cette approche vise à couvrir les incertitudes existantes, en l'état actuel des connaissances, sur les processus réactionnels et, partiellement, sur leur possible contrôle cinétique [13] afin d'en apprécier l'influence sur la propagation

du panache alcalin et la dégradation des matériaux. Les phases cimentaires, les carbonates et les hydroxydes sont de cinétiques de dissolution ou de précipitation rapides aux échelles de temps considérées. Les minéraux argileux sont également supposés se dissoudre en équilibre avec la solution en raison des surfaces réactives élevées en présence, des forts gradients chimiques et du lent processus diffusif des solutés. Les incertitudes sur les cinétiques de dissolution de ces minéraux ne sont donc pas traitées dans les présents calculs. La première hypothèse (*hypothèse 1*) considère les minéraux les plus communément cités dans la littérature expérimentale et/ou de cinétique de précipitation rapide (par rapport aux échelles de temps considérées pour un stockage). La seconde (*hypothèse 2*) introduit d'autres minéraux secondaires potentiels, cités de façon moins systématique en particulier à basse température (environ 20 °C) et caractérisés par une cinétique de formation plus lente. Les néoformations d'illite et de feldspath potassique sont deux réactions concurrentes qu'il est délicat de discriminer par la modélisation. La première réaction, plus fréquemment rapportée dans la littérature, a été privilégiée. Les processus d'échange ionique et/ou de complexation de surface, rapides et ubiquistes dans les matériaux argileux, sont introduits dans ces deux hypothèses.

Tableau 3

Hypothèses minéralogiques	
Hypothèse 1	Brucite, CSH de plus faibles rapports Ca/Si et monosulfoaluminat
Hypothèse 2	Hypothèse 1 + chlorites, illite et montmorillonite secondaires, saponites, sépiolite et zéolites

NB : carbonates, hydroxydes et phases siliceuses primaires (quartz par simplification ici) peuvent également précipiter à l'équilibre dans les deux hypothèses.

La base de données thermodynamiques EQ3/6 [14] a été sélectionnée et enrichie avec des données expérimentales de la littérature pour les phases cimentaires. Les processus d'échanges ioniques et de complexation de surface des matériaux argileux sont modélisés sur la base des données publiées dans De Windt [3] et Wersin [15].

Propriétés de transport

Le transfert de solutés est considéré comme essentiellement diffusif (très faibles gradients de pression et très faible perméabilité des matériaux en présence) dans un système saturé en eau. Les valeurs des paramètres de diffusion utilisées pour les simulations sont reportées dans le **tableau 4**. La zone de roche hôte représentée autour de l'ouvrage de scellement est supposée impactée par l'excavation de la galerie. Elle comprend un domaine fortement fracturé (EDZ-I) et un domaine modérément endommagé (EDZ-II). Les valeurs de paramètres attribuées à l'EDZ-II sont typiques de celles d'argilites indurées, alors que le coefficient de diffusion porale pour l'EDZ-I est pris égal à celui de l'eau pure ($10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), pour une porosité moyenne de 35 %, en l'absence de données expérimentales.

Tableau 4

	Paramètres hydrodynamiques (diffusion)			
	Option I ^(a)		Option II ^(b)	
	Porosité	Coefficient de diffusion effectif ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Porosité	Coefficient de diffusion effectif ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
Argilite	0,05	$5,0 \cdot 10^{-12}$	0,15	$1,5 \cdot 10^{-11}$
EDZ-I	0,35	$3,5 \cdot 10^{-10}$	0,35	$3,5 \cdot 10^{-10}$
Béton	0,20	$2,0 \cdot 10^{-11}$	0,20	$2,0 \cdot 10^{-11}$
Bentonite	0,05	$4,0 \cdot 10^{-12}$	–	–
Bentonite-sable	–	–	0,36	$2,0 \cdot 10^{-10}$

(a) Paramètres typiques de la diffusion d'espèces anioniques.
(b) Paramètres typiques de la diffusion d'espèces neutres ou cationiques.

Comme mentionné en introduction du présent article, il existe une incertitude relative à l'influence de l'exclusion anionique sur la propagation du panache alcalin dans les matériaux argileux. Deux jeux de valeurs des paramètres (**tableau 4**) sont utilisés pour le scellement en argile gonflante compactée, afin de tenir compte de l'incertitude sur la contribution de ce phénomène dans l'ouvrage de scellement en bentonite et dans la roche hôte, voire plus globalement pour évaluer la sensibilité de l'extension des perturbations alcalines aux valeurs des coefficients de diffusion : le premier jeu correspond à de la bentonite pure, alors que le second est caractéristique d'un mélange de bentonite et de sable. Ces valeurs sont caractéristiques de la diffusion d'anions pour le premier jeu, et d'espèces neutres ou cationiques insensibles au processus d'exclusion anionique avec des valeurs plus élevées de coefficient de diffusion effectif pour le second jeu.

Deux jeux de valeurs sont également proposés pour l'argilite avec cependant une influence de l'exclusion anionique moins marquée que pour la bentonite, la zone fracturée (EDZ-I) ne présentant même aucune différenciation. Les valeurs associées à chacune des options s'appliquent à l'ensemble des espèces au sein d'une simulation donnée car le code HYTEC ne permet pas d'assigner des coefficients de diffusion spécifiques à chaque espèce.

Enfin, bien que des valeurs très basses de coefficient de diffusion puissent être obtenues dans des bétons, la mise en place industrielle de composants de grandes dimensions et l'altération de ceux-ci au cours du temps pourrait induire un réseau de fissures connectées et faciliter les transferts diffusifs en leur sein. Aussi les valeurs retenues dans ce matériau ont été fixées de façon arbitraire en tenant compte de cette évolution probable.

5.2

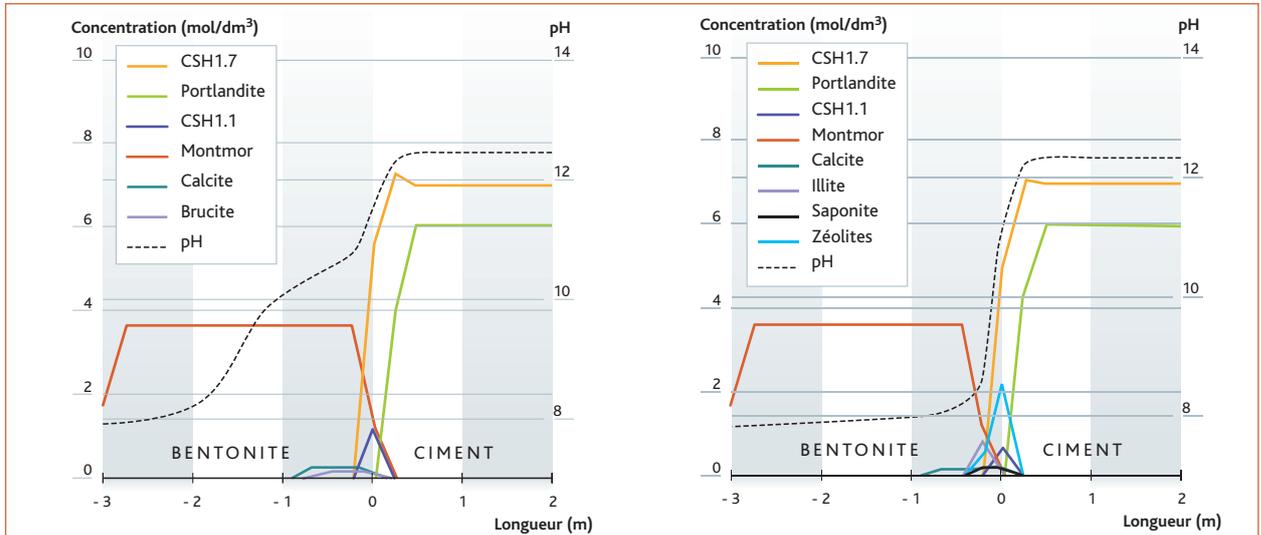


Figure 4 : Massif en béton/noyau de scellement en bentonite (zone A). Évolution de la minéralogie et du pH après 10 000 ans pour les hypothèses minéralogiques 1 (gauche) et 2 (droite) ; coupe longitudinale suivant l'axe de la galerie ; coefficients de diffusion « sans exclusion anionique » (option II).

Par ailleurs, des travaux expérimentaux et l'observation d'analogues naturels des interactions béton/argile [16 ; 10] indiquent un colmatage de la porosité dû à la précipitation de minéraux secondaires. L'influence de ce colmatage sur le transport des solutés reste toutefois difficile à appréhender dans le cas d'ouvrages de stockage. Sur le long terme, les simulations montrent qu'il pourrait fortement ralentir la propagation du panache alcalin et la migration des radionucléides dans la zone d'argile impactée et ainsi favoriser leur confinement [17 ; 3]. Cet effet favorable doit cependant être nuancé du fait de la faible épaisseur de la zone colmatée, dont la pérennité est sujette à caution compte tenu des rejeux mécaniques probables. La rétroaction de la chimie sur le transfert diffusif n'est donc pas prise en compte dans les présentes simulations.

Intensité et extension de la perturbation alcaline

Sensibilité aux hypothèses minéralogiques

Les transformations minéralogiques et les profils de pH calculés pour les hypothèses 1 et 2 après 10 000 ans d'interaction entre le matériau cimentaire et la bentonite (zone A) sont illustrés par la **figure 4**. Le pH dans le béton diminue de 13,2 à 12,3 du fait de la diffusion des ions alcalins et des hydroxyles initialement présents dans l'eau cimentaire. La dissolution progressive de la portlandite, puis celle des CSH1.7 alimente le panache alcalin produit par le béton sur le long terme. Les réactions de précipitation-dissolution de minéraux à l'interface entre les deux composants tamponnent plus ou moins fortement ce panache, selon l'hypothèse minéralogique considérée. On observe en particulier, dans le cas de l'**hypothèse 1**, la précipitation de CSH (CSH1.1 et CSH1.7), de calcite et de phases magnésiennes au détriment de la montmorillonite qui est dissoute. Un panache alcalin atténué (pH environ 10) se propage au-delà de la zone fortement reminéralisée tout en étant progressivement tamponné par les processus d'échange de protons surfaciques. L'**hypothèse 2** conduit à une dissolution de la montmorillonite sur une distance plus grande et, en complément des minéraux précipités, à la formation de zéolites, de saponites et d'illite, en partie du fait du flux d'ions potassium relâchés par le ciment. Les transformations minéralogiques sont plus intenses que dans le cas de l'**hypothèse 1** et engendrent une régulation plus prononcée du pH.

L'extension de la perturbation augmente proportionnellement à la racine carrée du temps (processus diffusif) et les simulations indiquent après 100 000 ans d'interactions des transformations minéralogiques d'ordre pluridécimétrique et un panache alcalin d'ordre plurimétrique. À noter que des

calculs préliminaires, non rapportés dans le présent article, ont montré que la longueur exacte des massifs d'appui en béton n'est pas un paramètre critique au regard des interactions béton/argile, dans la mesure où celle-ci est plurimétrique.

Ces résultats indiquent une influence significative des incertitudes relatives au schéma réactionnel sur les conséquences possibles des interactions béton/argile, en particulier en termes de nature des minéraux néoformés et d'extension du panache alcalin. La reminéralisation localisée de la bentonite (pour les deux hypothèses minéralogiques) ainsi que l'élévation de pH sur une plus grande distance (*hypothèse 1*) sont des modifications dont il convient de tenir compte dans l'évaluation des performances de confinement chimique d'un composant en bentonite, par exemple les bouchons d'alvéoles. L'incidence potentielle sur les propriétés de confinement hydraulique est quant à elle davantage liée aux transformations minéralogiques qu'à celles de l'eau porale. L'*hypothèse 2*, qui conduit aux modifications minéralogiques les plus importantes, est par conséquent retenue pour les calculs présentés dans la suite de cet article, qui sont axés sur l'ouvrage de scellement dont la fonction est principalement hydraulique.

Sensibilité aux hypothèses de transport

L'influence du processus d'exclusion anionique dans la bentonite sur les interactions entre ce matériau et le béton s'observe sur la *figure 5*, qui présente les distributions de pH calculées pour la configuration de la clé d'ancrage avec un radier (zone C) après 100 000 ans d'interactions en hypothèse minéralogique 2, avec le coefficient de diffusion de l'option I ou de l'option II (resp. « anionique » ou « neutre-cationique »). L'extension du panache alcalin correspond globalement à celle des transformations minéralogiques dans le cas de l'hypothèse 2. Le panache alcalin diffuse essentiellement dans l'EDZ (sans exclusion anionique) pour un scellement en bentonite pure (option I) et est significativement freiné dans la bentonite. En particulier, l'épaulement de la clé d'ancrage conserve son pH initial sur une partie de sa longueur et la saignée n'est que peu impactée. En revanche, pour un mélange bentonite-sable (option II), l'évolution du pH est quasiment homogène autour du revêtement en béton et concerne toute la longueur de l'épaulement.

L'évolution minéralogique de la clé d'ancrage (zone C) calculée avec les paramètres de diffusion de l'option II après 100 000 ans d'interactions est illustrée sur la *figure 6*, en termes d'illitisation partielle et de formation de zéolite calcique (minéraux non gonflants susceptibles de diminuer la capacité de confinement hydraulique du système) au détriment de la montmorillonite. L'EDZ-I est la zone la plus altérée en raison de son coefficient de diffusion élevé et de sa plus faible proportion en minéraux (contenu minéralogique par dm^3 de milieu poreux). Cette réactivité de l'EDZ tamponne le panache alcalin et amenuise de ce fait la dégradation du scellement en bentonite pendant une première phase d'évolution. Elle contribue néanmoins à l'illitisation de la saignée en libérant des ions potassium par dissolution partielle de l'illite initialement présente dans l'EDZ-I. Ces ions migrent ensuite vers la saignée. Ce processus global indirect de dissolution-reprécipitation de l'illite, spécifique à la configuration étudiée, demande toutefois à être vérifié par d'autres calculs. Par ailleurs, l'interaction directe entre les composants produit un front d'altération autour du revêtement en béton. En particulier, des zéolites (calcique pour l'essentiel, sodique dans une moindre mesure) et des saponites se forment sur toute la longueur de l'épaulement, qui ne contient plus de montmorillonite après 100 000 ans. Dans le cas du soutènement en béton sans radier (zone B, calculs non illustrés), la source alcaline constituée par la portlandite du soutènement est significativement atténuée après une durée de l'ordre de 20 000 ans (moindre quantité initiale de béton). Le même type de transformations se développe, mais de façon limitée : l'épaulement et la saignée ne seraient que partiellement altérés. Il convient en outre de préciser que la prise en compte de granulats dans la composition du béton conduirait à une source alcaline moindre et par conséquent à une atténuation plus rapide de celle-ci. Cet effet devrait être plus particulièrement marqué, pour les durées de simulations retenues, dans le cas de composants de petites dimensions (soutènement sans radier).

5.2

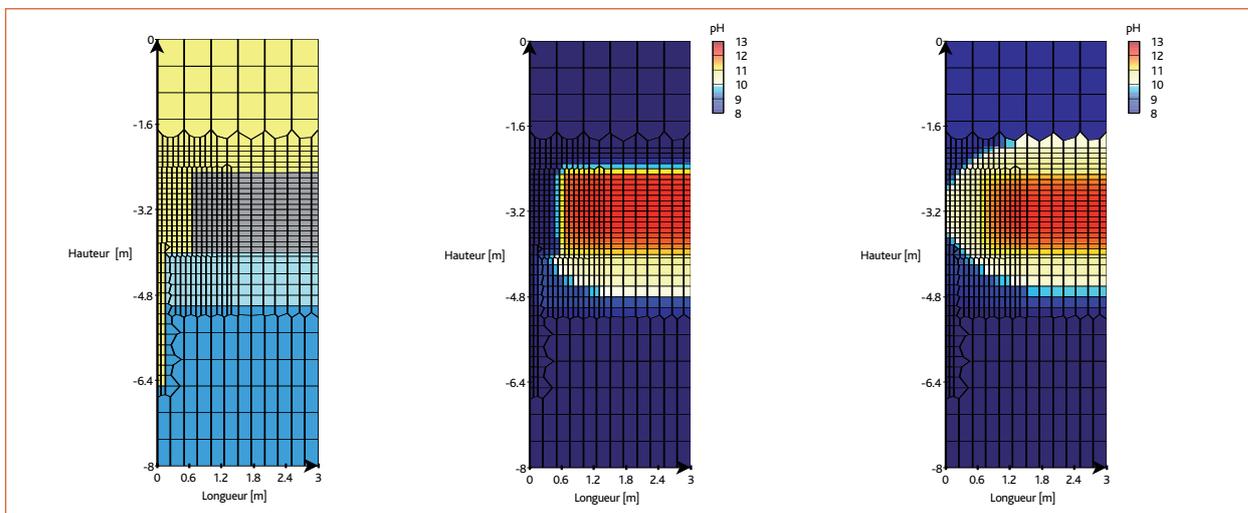


Figure 5 : Système d'ancrage avec radier (zone C). Maillage (gauche) : bleu foncé = argilite ; bleu clair = EDZ-I ; jaune = scellement en bentonite (noyau, base et saignée de clé d'ancrage) ; gris = soutènement et radier en béton. Distribution du pH après 100 000 ans pour les coefficients de diffusion de l'option I (milieu) et de l'option II (droite) ; hypothèse minéralogique 2.

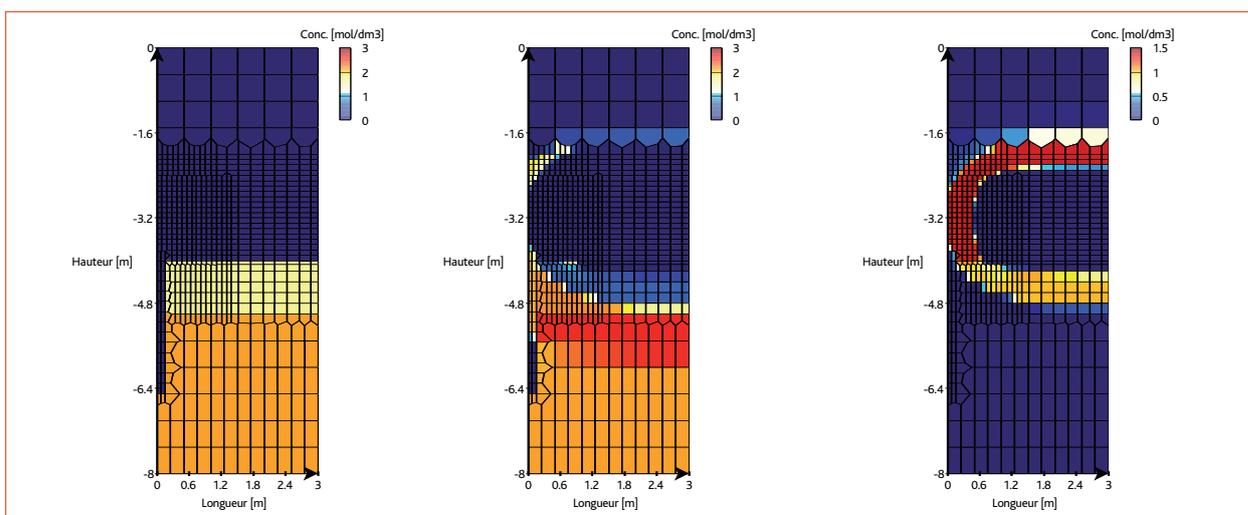


Figure 6 : Système d'ancrage avec radier (zone C). Évolution minéralogique calculée avec l'hypothèse minéralogique 2 et les coefficients de diffusion de l'option II : concentration en illite initiale (gauche), après 100 000 ans (milieu) et concentration en zéolite calcique après 100 000 ans (droite).

■ Conclusion

La présente étude expérimentale de l'évolution d'une argile soumise à une perturbation alcaline, qui combine plusieurs approches et différentes échelles de temps et d'espace, met en évidence des transformations minéralogiques rapportées de façon plus ou moins régulière dans la littérature. L'observation de prélèvements d'argilite en contact avec un matériau cimentaire réalisés dans la station expérimentale de Tournemire confirme la néoformation de minéraux obtenus jusqu'à présent à partir d'expérimentations de plus courtes durées en laboratoire. Elle conforte également la formation de fronts d'altération par ailleurs déduite de simulations sur le long terme.

Néanmoins, ces modifications d'importance au regard des conséquences potentielles sur les propriétés de confinement des argiles ne sont pas observées de façon systématique dans l'ensemble des échantillons étudiés, sans que les paramètres expérimentaux responsables de leur absence aient pu être identifiés. Par conséquent, le schéma réactionnel des interactions béton/argile comporte encore des incertitudes. De la même manière, bien que les expériences effectuées en cellule de diffusion indiquent une apparente influence de l'exclusion anionique sur la diffusion des ions hydroxydes dans l'argilite, la contribution effective de ce phénomène à la migration d'un panache alcalin dans son ensemble reste difficile à cerner. L'estimation de l'intensité et de l'extension de l'altération

des composants argileux d'un stockage en présence de matériaux cimentaires montre une influence significative sur le long terme de ces incertitudes. L'absence de néoformation de certains minéraux conduit notamment à la propagation d'un panache alcalin partiellement tamponné au-delà d'une zone d'argilite reminéralisée au contact du béton. Cette zone reminéralisée, qui reste de faible extension par rapport à la dimension des ouvrages, est obtenue quel que soit le cortège de néoformations considéré mais pourrait présenter des capacités de confinement différentes compte tenu de la disparité des propriétés de rétention chimique et de gonflement des minéraux précipités. Pour le cas de l'ouvrage de scellement simulé dans la présente étude, l'altération possible à proximité du radier en béton de l'épaulement d'une clé d'ancrage sur toute sa largeur, voire de la base de la saignée, pourrait induire une perte de capacité de confinement hydraulique. Néanmoins, l'extension calculée des transformations minéralogiques dépend fortement des valeurs de coefficient de diffusion retenues et diminue notablement lorsque le phénomène d'exclusion anionique est pris en compte. L'épaulement de la clé d'ancrage ne serait ainsi que partiellement altéré dans l'hypothèse d'une influence de l'exclusion anionique sur la propagation du panache alcalin. Les simulations effectuées soulignent

également l'importance de la configuration (agencement) et des dimensions (quantités) des composants cimentaires et argileux en interaction sur l'impact du panache alcalin.

Des travaux expérimentaux et de modélisation complémentaires, notamment en termes de moyens analytiques mis en œuvre et d'interprétation combinée de l'ensemble des résultats acquis sont actuellement en cours afin de mieux appréhender l'occurrence des transformations minéralogiques et l'influence de l'exclusion anionique dans le contexte d'une perturbation alcaline. Une évaluation plus approfondie des modifications potentielles des capacités de confinement chimique et hydraulique des argiles altérées est par ailleurs nécessaire, sur la base de données expérimentales, pour mieux apprécier les conséquences de la perturbation alcaline sur les performances de confinement des ouvrages. Pour cela, il conviendra de tenir compte du rôle possible de la phase transitoire de resaturation des composants du stockage et de l'existence entre ceux-ci d'interfaces imparfaites, sur la migration du panache alcalin, et par conséquent sur l'extension de la perturbation qu'il engendre.

Références

- [1] ANDRA, *Dossier 2005 Argile – Tome – Architecture et gestion du stockage géologique*, Collection « Les rapports », ANDRA (France), 2005.
- [2] VAN DER LEE, J., DE WINDT, L., LAGNEAU, V., GOBLET, P., « Module-Oriented Modeling of Reactive Transport with HYTEC », *Comput. Geosc.*, 29, 265-275, 2003.
- [3] DE WINDT, L., PELLEGRINI, D., VAN DER LEE, J., « Coupled Modeling of Cement/Claystone Interactions and Radionuclide Migration », *J. Cont. Hydr.*, 68, 165-182, 2004.
- [4] EUROPEAN COMMISSION, « Ecoclay II: Effects of Cement on Clay Barrier Performance – Phase II. Final report. Contract FIKW-CT-2000-00028. Final report. », 2005.
- [5] GAUCHER, E., BLANC, P., « Cement/Clay Interactions – A Review: Experiments, Natural Analogues and Modeling », *Waste Management*, 26, 776-788, 2006.
- [6] GARCIA-GUTIERREZ, M., CORMENZANA, J., MISSANA, T., MINGARRO, M., « Diffusion Coefficients and Accessible Porosity for HTO and ³⁶Cl in Compacted FEBEX Bentonite », *Applied Clay Science*, 26, 65-73, 2004.
- [7] MELKIOR, T., MOURZAGH, D., YAHIAOUI, S., THOBY, D., ALBERTO, J. C., BROUARD, C., MICHAU, N., « Diffusion of an Alkaline Fluid Through Clayey Barriers and its Effect on the Diffusion Properties of Some Chemical Species », *Applied Clay Science*, 26, 99-107, 2004.
- [8] NAKAYAMA, S., SAKAMOTO, Y., YAMAGUCHI, T., AKAI, M., TANAKA, T., SATO, T., IIDA, Y., « Dissolution of Montmorillonite in Compacted Bentonite by Highly Alkaline Aqueous Solutions and Diffusivity of Hydroxide Ions », *Applied Clay Science*, 27, 53-65, 2004.
- [9] CABRERA NUNEZ, J., BEUCAIRE, C., BRUNO, G., DE WINDT, L., GENTY, A., RAMABASOA, N., REJEB, A., SABOYE, S., VOLANT, P., « Le projet Tournemire : synthèse des programmes de recherches 1995-1999 », *Rapport IPSN/DPRE/SERGD N° 01/19*, 2001..
- [10] ADLER, M., « Interaction of Claystone and Hyperalkaline Solutions at 30 °C: A Combined Experimental and Modeling Study », Ph.D. thesis, Bern University (CH), 2001.
- [11] BOISSON, J.-Y., BERTRAND, L., HEITZ, J.-F., MOREAU-LE GOLVAN, Y., « *In situ* and Laboratory Investigations of Fluid Flow Through an Argillaceous Formation at Different Scales of Space and Time, Tournemire Tunnel, Southern France », *Hydrogeology J.*, 9, 108-123, 2001.
- [12] SAVOYE, S., MICHELOT, J.-L., ALTINIER, M.-V., WITTEBROODT, C., « Contribution of the Diffusive Exchange Method to the Characterization of Pore Water in Consolidated Argillaceous Rock », *J. Cont. Hydr.*, 86, 87-104, 2006.
- [13] SAVAGE, D., NOY, D., MIHARA, M., « Modelling the Interaction of Bentonite with Hyperalkaline Fluids », *Appl. Geoch.*, 17, 207-223, 2002.
- [14] WOLERY, T., « EQ3/6, a Software Package for Geochemical Modelling of Aqueous Systems: Package Overview and Installation Guide », *Report UCRL-MA-710662 PT I*, Lawrence Livermore National Laboratory (USA), 1992.
- [15] WERSIN, P., CURTI, E., APPELO, C., « Modelling Bentonite-Water Interactions at High Solid/Liquid Ratios: Swelling and Diffuse Double Layer Effects », *Applied Clay Science*, 26, 249-257, 2004.
- [16] LICHTNER, P. C., PABALAN, R. P., STEEFEL, C. I., « Model Calculation of Porosity Reduction Resulting from Cement-Tuff Diffusive Interaction », *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 506, 709, 1998.
- [17] SOLER, J. M., « Reactive Transport Modeling of the Interaction Between a High-pH Plume and a Fractured Marl: The Case of Wellenberg », *Appl. Geochem.*, 18, 1 555-1 571, 2003.
- [18] TINSEAU, E., BARTIER, D., HASSOUTA, L., DEVOL-BROWN, I., STAMMOSE, D., « Mineralogical Characterization of the Tournemire Argilite after *In Situ* Interaction with Concretes », *Waste Management*, 26, 789-800, 2006.

5.3

Modélisation des écoulements et du transfert d'éléments radioactifs en milieu géologique. Application au site de Meuse – Haute-Marne

L'IRSN a évalué les éléments relatifs à la faisabilité d'un stockage de déchets de haute activité et à vie longue dans la formation géologique profonde du site de Meuse – Haute-Marne, présentés par l'Andra⁽¹⁾ dans le « Dossier 2005 Argile » [1]. L'IRSN a notamment analysé les hypothèses et les modèles utilisés par l'Andra afin d'estimer le relâchement et la migration des radionucléides contenus par les colis. Cette analyse a été effectuée sur la base de modélisations propres permettant de simuler le transfert des radionucléides depuis le site de stockage jusqu'aux exutoires de la surface. L'IRSN a réalisé en particulier un modèle des écoulements souterrains calé sur les paramètres hydrodynamiques mesurés *in situ*, et qui permet de localiser des exutoires potentiels des radionucléides et d'estimer le temps de transfert jusqu'à ces exutoires. Ce modèle hydrogéologique est couplé à un modèle de transport des radionucléides permettant d'évaluer les débits d'activité aux exutoires.

L'article présente :

- les données de base et la construction des modèles d'écoulement et de transport ;
- les hypothèses de calage du modèle des écoulements souterrains ;
- les résultats de la simulation du transport des radionucléides.

Données et construction des modèles

Le site actuellement retenu par l'Andra pour évaluer la faisabilité d'un stockage dans la formation argileuse du Callovo-Oxfordien, étudiée au moyen du laboratoire de Bure, se situe à la frontière des départements de la Meuse et de la Haute-Marne (*figure 1*).

Les simulations des écoulements souterrains et du transport de radionucléides ont été réalisées sur la base de trois modèles distincts cohérents entre eux.

Modèle de transport de radionucléides dans la couche hôte

Les écoulements souterrains au sein de la couche hôte, homogène à l'échelle du laboratoire, sont majoritairement diffusifs, le gradient hydraulique vertical ascendant (0,2 m/m) ainsi que la perméa-

(1) Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs.

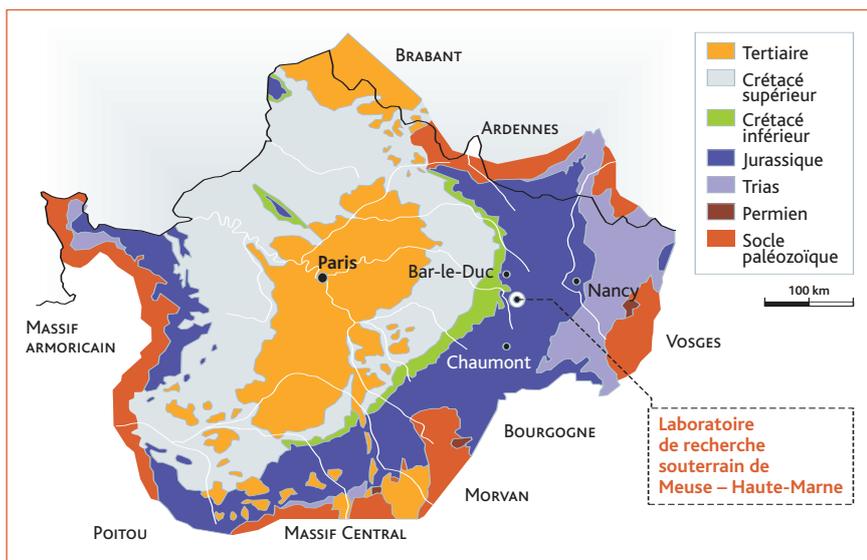


Figure 1 : Carte géologique simplifiée du bassin de Paris et localisation du site Meuse – Haute-Marne (d'après Andra, Dossier 2005 Argile – Document de synthèse, modifié).

bilité moyenne étant trop faibles pour constituer un moteur dominant des écoulements au sein de la formation.

La modélisation du transfert des radionucléides à travers la couche hôte a été réalisée à l'aide du code MÉLODIE⁽²⁾ [2], développé par l'IRSN en collaboration avec l'École des Mines de Paris et l'Université de Pau. Il s'agit d'un programme de simulation numérique dédié à la modélisation du transfert des radionucléides en formation géologique, depuis les colis de déchets jusqu'aux exutoires de la biosphère.

Un modèle numérique du stockage lui-même a également été réalisé avec le code MÉLODIE. Il représente les ouvrages du stockage dans la couche géologique hôte du Callovo-Oxfordien, dans le cas de combustibles usés de type CU1 (figure 2), et permet d'estimer les débits molaires au travers des principales voies de transfert représentées (formation hôte du Callovo-Oxfordien et puits d'accès). Dans le projet de stockage présenté par l'Andra, chaque grande catégorie de colis (déchets C, déchets B et combustibles usés) est stockée dans une zone dédiée. Chacune de ces zones est indépendante

(2) Le modèle mathématique est fondé sur l'hypothèse d'un milieu poreux équivalent continu. Les processus physiques modélisés sont : écoulement d'eau selon la loi de Darcy, transport convectif/diffusif des radionucléides à travers des milieux aux propriétés hétérogènes et anisotropes tenant compte de la décroissance radioactive et de la filiation, et retard du transport dû à la sorption des radionucléides. L'IRSN a par ailleurs développé dans le code MÉLODIE une méthode de parallélisation fondée sur la « décomposition de domaine » pour permettre l'utilisation du code sur des maillages de grande taille.

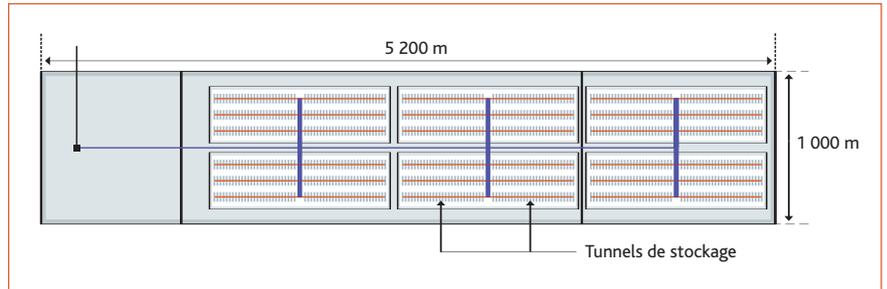


Figure 2 : Schéma du modèle numérique de la zone de stockage CU1 connectée aux puits d'accès (coupe horizontale dans l'axe de tunnels).

des autres. Pour cette simulation, seule la zone de stockage des combustibles usés (UOX) est modélisée. La raison de ce choix est que l'inventaire radiologique de ces combustibles est pénalisant par rapport aux autres colis, compte tenu de l'activité de ces combustibles en iode-129 et du mode de relâchement des radionucléides par les assemblages. Cet inventaire a par ailleurs été maximisé en supposant un arrêt du retraitement des combustibles usés à partir de 2010.

Architecture du modèle de stockage

Le modèle numérique du stockage des combustibles usés reprend les hypothèses de l'Andra [3] : en matière d'inventaires radiologiques, de cinétiques des relâchements d'activité, de propriétés chimiques et hydrauliques des différents composants et de la formation hôte. Il reprend également les dimensions et les principes généraux d'architecture du stockage définis par l'Andra [4] : tunnels de stockage borgnes, regroupement des tunnels en modules, scellements dans les galeries de liaison entre la zone de stockage et les puits d'accès, etc. Chaque tunnel contient trois ou quatre conteneurs de combustibles usés. Le stockage est situé au milieu de la couche géologique du Callovo-Oxfordien, sur un seul niveau afin de garder une épaisseur d'argilite d'environ 65 m de part et d'autre. Le creusement des ouvrages entraîne l'endommagement mécanique de la roche autour des excavations : cette zone est appelée EDZ (*Excavation Damaged Zone*). L'EDZ, dont l'extension radiale est proportionnelle au diamètre d'excavation et dépend du champ de contraintes dans la couche géologique, constitue un milieu plus perméable et diffusif que la roche dite « saine », du fait notamment de l'endommagement mécanique. Cette zone, potentiellement favorable aux écoulements d'eau, est interrompue localement par des scellements afin d'éviter ces écoulements et de maintenir un régime de transport des radionucléides globalement diffusif. Dans le même objectif, une barrière ouvragée argileuse est disposée en anneaux autour des colis dans le tunnel de stockage. Le bouchon en argile gonflante placé en bout de tunnel de stockage afin de le fermer ainsi que le massif en béton servant d'appui mécanique à l'argile gonflante ne sont pas représentés. Les tunnels de stockage sont reliés entre eux par des galeries de manutention et sont regroupés en modules de stockage. Les scellements en argile sont placés de manière régulière dans les galeries de manutention et de liaison entre les modules. Enfin, la galerie de liaison est connectée à la surface par un puits d'accès. La zone de stockage modélisée représente ainsi une surface de 5,2 km² dans la formation du Callovo-Oxfordien, dont l'épaisseur constante est de 130 m. L'ensemble des maillages représentant le stockage des combustibles usés compte 6,75 millions de tétraèdres, 1,25 million de nœuds de calculs et 9 domaines de calcul.

Scénarios d'évolution du stockage

Les scénarios d'évolution du stockage ont été définis afin d'estimer les capacités de confinement du stockage pour différentes hypothèses de fonctionnement des composants et des conditions d'environnement. Deux scénarios ont ainsi été traités. Un scénario dit de référence (SEN⁽¹⁾) considère un

- (1) SEN : scénario d'évolution normale. SEA : scénario d'évolution altérée.
- (2) L'ancrage est composé d'un épaulement en bentonite remplaçant localement autour du scellement le revêtement en béton et d'une clé d'ancrage en bentonite permettant de couper hydrauliquement l'EDZ.
- (3) Sorption : fixation réversible des radionucléides sur les phases solides (roche).
- (4) Temps de transfert pour les anions = 1 300 000 ans et pour les cations 100 000 ans.
- (5) Partie de l'inventaire relâchée immédiatement dès l'arrivée de l'eau après la corrosion du conteneur.
- (6) Auparavant appelé Centre d'informatique géologique (CIG).
- (7) Couche géologique contenant de l'eau en quantités exploitables (nappe d'eau souterraine).
- (8) Couche géologique de faible perméabilité (aptitude d'un milieu à se laisser traverser par un fluide), où le captage de quantités d'eau appréciables n'est pas possible, mais à travers laquelle des transferts d'eau significatifs, par « drainage », sont possibles en provenance d'aquifères adjacents.

fonctionnement des composants dont les performances sont celles attendues en situation d'évolution « normale ». Le second scénario, dit « altéré » (SEA), a pour objet d'évaluer l'influence d'un défaut du concept permettant d'interrompre la zone endommagée sur le transfert des radionucléides. Le scénario « altéré » est donc fondé sur une incertitude d'ordre technologique concernant la mise en place des scellements et bouchons en bentonite, et des performances globales qui en résultent. Ce scénario est schématisé par des scellements sans ancrage⁽²⁾ dans la couche hôte. Pour ces deux scénarios, les niveaux de performances associés aux composants traduisent soit un état des connaissances sur l'évolution du stockage dont le degré de confiance est élevé (dans ce cas, les phénomènes associés sont paramétrés avec des valeurs *best estimate*), soit présentent encore des incertitudes nécessitant de retenir des valeurs de paramètres dites « conservatives » (paramètres des remblais et terme source).

Radionucléides pris en compte dans le modèle de relâchement du combustible usé

Les radionucléides retenus pour les simulations sont ¹²⁹I, ⁷⁹Se et ³⁶Cl. La raison de ce choix est que ces radionucléides ne sont pas sorbés⁽³⁾ dans les matériaux argileux, que leur période est suffisamment longue devant les temps de transfert au travers du Callovo-Oxfordien⁽⁴⁾ et que leurs inventaires dans les colis sont importants. Le ⁷⁹Se est toutefois un radionucléide peu soluble. Le modèle de relâchement des colis pour ces radionucléides est composé d'une fraction labile⁽⁵⁾ instantanément relâchée (environ 10 % de l'inventaire) et d'une partie relâchée au fur et à mesure de la dissolution de la pastille d'oxyde d'uranium et de la corrosion des parties métalliques au contact de l'eau.

Modèle hydrogéologique

Une modélisation préalable des écoulements souterrains incluant les diverses couches encadrant la formation hôte a été réalisée afin de simuler le transfert de radionucléides au-delà de la formation hôte du Callovo-Oxfordien. Cette étude est le résultat d'un travail de collaboration de sept ans entre l'IRSN et le Centre de géosciences⁽⁶⁾ de l'école des Mines de Paris. Le code de calcul utilisé, NEWSAM, a été développé à l'école des Mines et a intégré, au fur et à mesure de l'évolution des connaissances du site, les modifications nécessaires afin de répondre aux besoins et aux questions posées par l'évaluation de sûreté à long terme. NEWSAM est un programme de simulation des écoulements souterrains dans des systèmes hydrogéologiques sédimentaires (schématisés par des empilements de couches horizontales), où alternent des aquifères⁽⁷⁾ et des semi-perméables⁽⁸⁾.

Extension du modèle et paramètres hydrodynamiques utilisés

Cette modélisation hydrogéologique a été réalisée à l'aide d'un modèle multicouche 3D. Son objectif principal est de simuler le comportement des écoulements dans l'ensemble du bassin sédimentaire de Paris. Les propriétés hydrauliques⁽⁹⁾ introduites dans le modèle sont essentiellement issues d'une base de données hydrodynamiques du bassin Parisien établie par l'IRSN et l'école des Mines pour le projet Everest⁽¹⁰⁾. Cette base a ensuite été complétée par les données disponibles dans la bibliographie (données Andra [5], banque de données sous-sol du BRGM, etc.) ainsi que par la base de données Bpdata⁽¹¹⁾ [6], constituée depuis 1998 par l'IRSN. Enfin, ces paramètres hydrodynamiques ont été réévalués lors de la phase de calage du modèle, consistant à faire coïncider au mieux les charges hydrauliques calculées avec celles mesurées en forage. Pour cela, chaque couche du modèle est paramétrée en accord avec les mesures ponctuelles existantes et les données de la littérature ou avec la nature litho-stratigraphique de ces formations. Dans ce modèle, la variation de l'écoulement au cours du temps en fonction des évolutions géomorphologiques possibles n'est pas prise en compte.

Incertaines concernant la fracturation

La zone de transposition se situe à l'écart des grandes failles régionales. Toutefois, des incertitudes subsistent quant à la représentation et au rôle hydraulique des structures tectoniques identifiées ou

(9) Paramètres physiques définissant quantitativement le comportement d'un milieu ou d'un corps conducteur vis-à-vis du fluide.

(10) *Evaluation of Elements Responsible for the Effective Engaged Dose Rates Associated With the Final Storage of Radioactive Waste.* Projet du 4^e PCRD de la Commission européenne dont l'IRSN était le coordinateur.

(11) Données provenant de forages de pétrole ou de gaz, puits géothermiques et d'alimentation en eau potable, sources, forages de reconnaissance de l'Andra, thèses ainsi que d'analyses d'échantillons d'eaux (compositions chimique et isotopique).

5.3

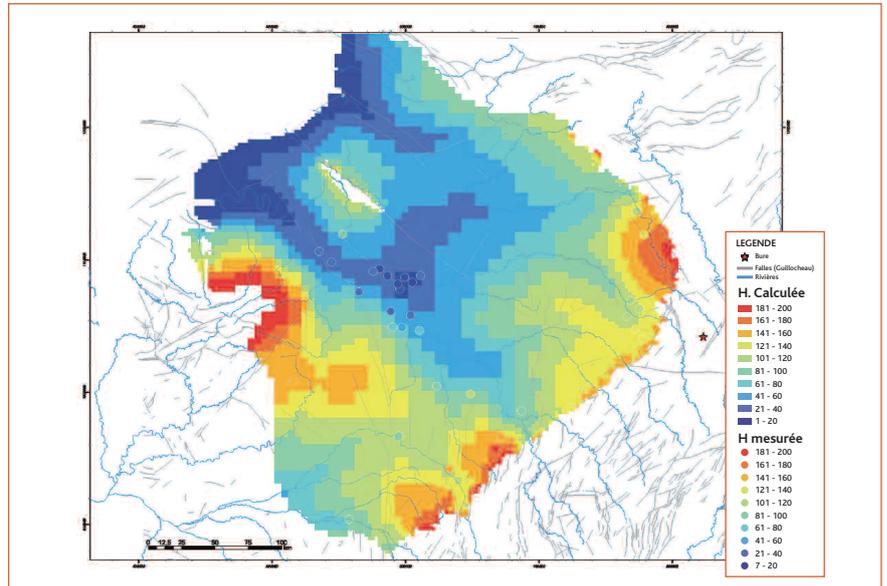


Figure 4 : Charges calculées et mesurées dans l'Albi (échelle du bassin de Paris).

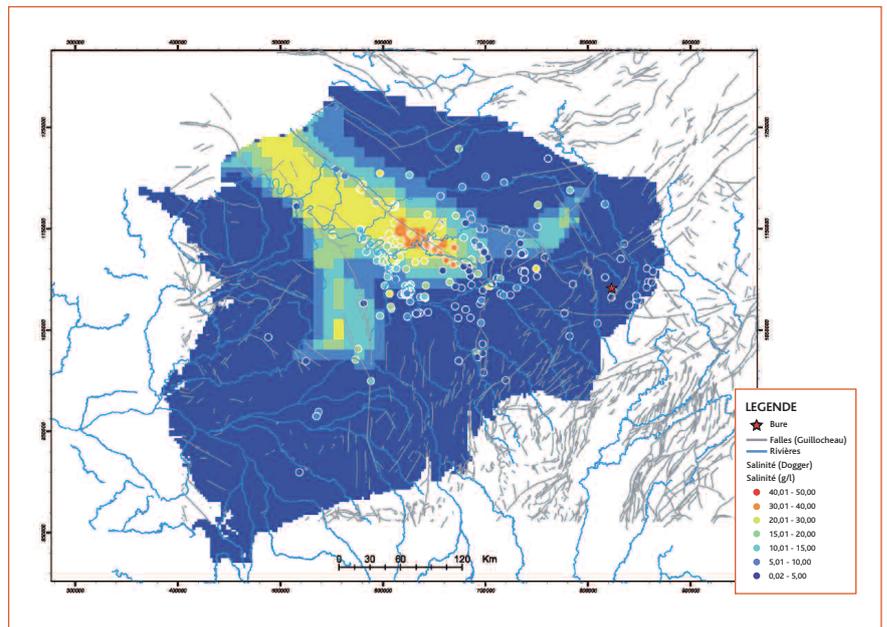


Figure 5 : Salinités calculées et mesurées dans le Dogger (échelle du bassin de Paris).

- (1) Cartes topographiques numérisées.
- (2) Dans le modèle, ces structures sont soit les grandes failles régionales, soit les failles « locales », d'extension plus réduite.

dont l'existence est soupçonnée sur le site. Or la prise en compte de la fracturation est une question clé de l'évaluation de sûreté dans la mesure où ces structures peuvent conduire localement à une chenalisation des écoulements au travers des différents horizons sédimentaires et, le cas échéant, influencer la localisation des exutoires, les temps de transfert et la dilution des radionucléides. Les discontinuités régionales prises en compte dans le modèle ont été identifiées à partir d'une carte des principales failles du bassin de Paris [7]. Une cartographie détaillée du secteur du laboratoire de Bure a également été réalisée par l'Andra afin de mieux connaître la tectonique du site de Meuse – Haute-Marne. L'IRSN a de même effectué sa propre étude en réalisant une carte des différentes échelles de

fracturation à partir des données issues de modèles numériques de terrain (MNT⁽¹⁾), des profils de reconnaissance par sismique 2D, des forages et d'une analyse tectonique de terrain.

Modèle de transport de la couche hôte à la biosphère

Le modèle de transport dans les couches géologiques sédimentaires sus-jacentes au Callovo-Oxfordien sur le site de Meuse – Haute-Marne intègre les éléments du modèle hydrogéologique présenté dans le chapitre précédent. Réalisé avec le code MÉLODIE, il permet d'estimer les temps de transfert et les concentrations des radionucléides du toit de la formation hôte aux exutoires de surface.

L'extension du modèle a été réduite pour ces calculs par rapport au modèle hydrogéologique qui s'étend sur tout le bassin de Paris. Il est centré sur le site de Meuse – Haute-Marne (partie sud-est du bassin) et permet d'obtenir des résultats plus détaillés dans ce secteur. Les deux modèles restent cohérents entre eux, le maillage du modèle MÉLODIE étant directement extrait de celui du modèle NEWSAM. La *figure 3* (maillages des modèles d'écoulement et de transport) présente ces deux maillages pour la couche hôte aux deux échelles de modélisation.

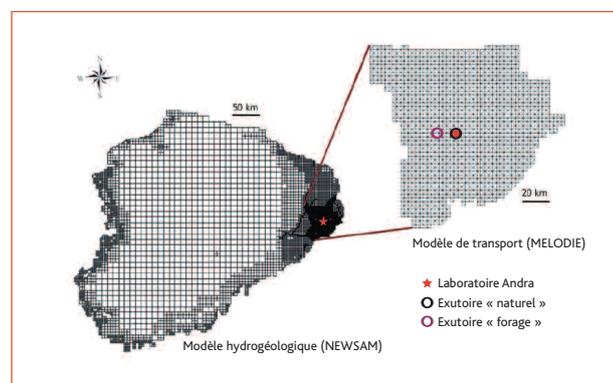


Figure 3 : Maillage des modèles d'écoulement et de transport.

Pour la modélisation du transport, les conditions aux limites hydrauliques appliquées en bordure du modèle et les paramètres hydrodynamiques appliqués en chaque maille sont issus des résultats du calage du modèle hydrogéologique. Ce modèle est discrétisé horizontalement avec des mailles de 1 km de côté, le maillage s'étendant sur environ 90 km d'est en ouest et du nord au sud.

Cette extension vise à intégrer les exutoires potentiels (failles, rivières) des eaux souterraines, ainsi que les principales zones de recharge des aquifères, les portions affleurantes des différentes formations à l'est et au sud du site. Les épaisseurs des différentes couches géologiques de ce modèle ont été fixées à partir de données issues des forages réalisés par l'Andra [5]. Verticalement, le modèle est constitué de 23 couches (*tableau 1*).

Tableau 1

Discrétisation verticale du modèle de transport.			
	COUCHE		TYPE
Extension du modèle de transport	1	PORTLANDIEN	Aquifère
	2 à 6	KIMMERIDGIEN (5 couches)	Alternance d'aquifères et de semi-perméables
	7 à 23	OXFORDIEN (17 couches)	Alternance d'aquifères et de semi-perméables
Modèle couche hôte	CALLOVO-OXFORDIEN		Semi-perméable
Extension du modèle hydrogéologique	DOGGER	BATHONIEN	Aquifère
		M.A.O.	Semi-perméable
		BAJOCIEN	Aquifère
	LIAS		Semi-perméable
	RHETIEN		Aquifère
	KEUPER		Semi-perméable
	MUSCHELKALK		Aquifère
	BUNTSANDSTEIN		Aquifère

Calage des écoulements du modèle hydrogéologique

Globalement, le calage du modèle hydrogéologique permet une représentation correcte des diverses mesures de charges hydrauliques (*figure 4*) et géochimiques (notamment la salinité des eaux, comme indiqué *figure 5*) relevées sur tout le bassin parisien [5].

Toutefois, les mesures de charges hydrauliques permettant de caler le modèle au niveau du site de Meuse – Haute-Marne sont peu nombreuses au regard de l'échelle considérée. Ainsi, plusieurs modèles d'écoulement permettent de reproduire correctement les mesures avec des précisions de calage comparables en termes d'erreur moyenne entre charges mesurées et simulées dans les forages du secteur de Meuse – Haute-Marne. Aussi, une analyse complémentaire est nécessaire pour discriminer les modèles proposés. Parmi les divers modèles, certains font jouer un rôle hydraulique aux structures tectoniques⁽²⁾ et d'autres ne le font pas (voir Modèle hydrogéologique). Ainsi, lorsqu'aucune structure n'a pas de rôle hydraulique au niveau du site de Meuse – Haute-Marne, le calage des charges (piézométrie) dans l'Oxfordien et le Dogger nécessite de limiter les échanges hydrauliques entre ces deux aquifères au travers de la formation du Callovo-Oxfordien. Cette contrainte impose de prendre en compte une augmentation sensible des perméabilités en regard de la formation du Dogger au voisinage du site de Meuse – Haute-Marne. Si cette hypothèse permet d'obtenir des piézométries cohérentes avec les mesures, les paramètres hydrodynamiques utilisés ne sont pas vraisemblables, les faibles valeurs de perméabilité mesurées par l'Andra [5] dans ce secteur n'étant pas en accord avec les valeurs introduites dans le modèle.

5.3

Tableau 2

Calage en charge obtenu avec les hypothèses du cas 1 dans le Dogger.						
CAS 1	Charge Oxfordien (m NGF)			Charge Dogger (m NGF)		
	Mesurée	Calculée	Écart	Mesurée	Calculée	Écart
MSE101	256	256	0	286	286	0
EST103	304	309	5			
HTM102	317	313	- 4	289	289	0
EST311/312	264	263	- 1	292	292	0
EST321/322	268	267	- 1	272	272	0
EST331	320	321	1			
EST342	196	196	0	251	250	- 1
EST351	273	275	2			
Écart moyen			1,75 m			0,2 m

Tableau 3

Calage en charge obtenu avec les hypothèses du cas 2 dans le Dogger						
CAS 2	Charge Oxfordien (m NGF)			Charge Dogger (m NGF)		
	Mesurée	Calculée	Écart	Mesurée	Calculée	Écart
MSE101	256	256	0	286	286	0
EST103	304	309	5			
HTM102	317	315	- 2	289	294	5
EST311/312	264	263	- 1	292	292	0
EST321/322	268	267	- 1	272	274	2
EST331	320	321	1			
EST342	196	196	0	251	246	- 5
EST351	273	275	2			
Écart moyen			1,5 m			2,4 m

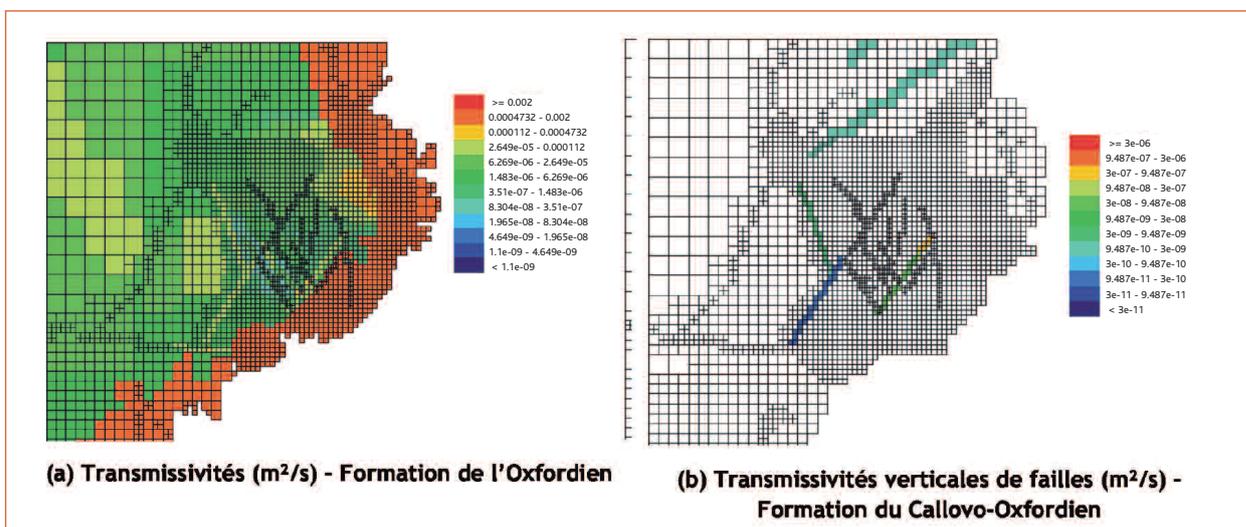


Figure 6 : Paramètres de l'Oxfordien et du Callovo-Oxfordien – Modèle avec failles (zoom sur le site de MHM).

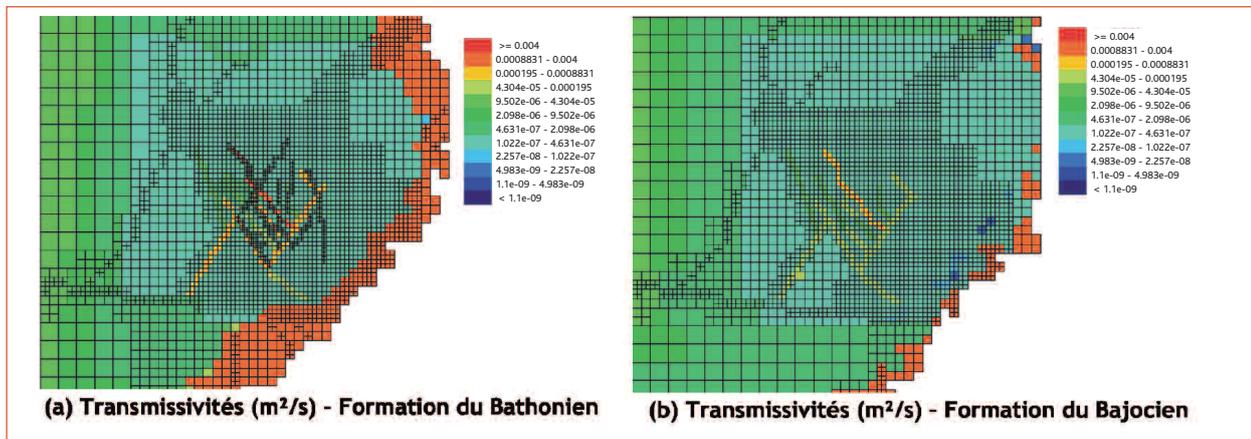


Figure 7 : Paramètres du Dogger – Modèle avec failles, cas n° 1 (zoom sur le site de MHM).

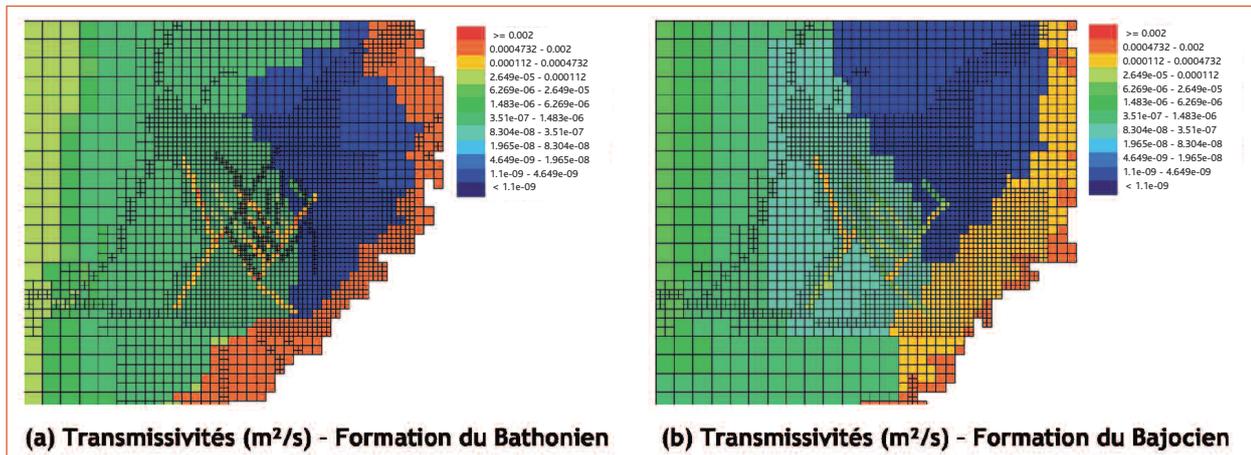


Figure 8 : Paramètres du Dogger – Modèle avec failles, cas n° 2 (zoom sur le site de MHM).

Cette hypothèse n'étant pas satisfaisante, une approche différente a été adoptée visant à affecter un rôle hydraulique aux structures reconnues ou supputées dans le secteur étudié. Selon cette approche, plusieurs schémas hydrauliques peuvent encore être proposés. En particulier, deux modèles, utilisant des hypothèses différentes mais géologiquement plausibles et permettant d'obtenir un calage satisfaisant, sont discutés ci-après. Les transmissivités de failles appliquées dans l'Oxfordien et le Callovo-Oxfordien (figure 6) sont identiques dans les deux modèles. C'est au niveau de l'aquifère sous-jacent du Dogger en revanche que les deux modèles diffèrent. Dans le cas n° 1, une perméabilité de matrice très faible est imposée dans la formation (figure 7). À cette perméabilité globale sont associés un réseau de failles locales à transmissivité de fracture élevée, notamment une faille orientée NO-SE située dans l'axe d'une rivière, la Saulx, et des transferts hydrauliques relativement importants au travers des grands accidents structuraux du secteur. Il est à noter qu'aucune faille n'a été reconnue dans l'axe de la Saulx, mais les observations de surface et géophysiques *in situ* sont peu nombreuses dans ce secteur. La présence d'une telle structure

n'est pas exclue, notamment du fait de l'observation d'importantes anomalies du réseau de drainage, et de l'orientation NO de la rivière, proche de celle de la contrainte tectonique horizontale maximale actuelle, qui tend à maintenir ouvertes, et donc à rendre conductrices, les structures de cette orientation. Dans le cas n° 2, les transmissivités de failles sont imposées différemment, avec notamment une transmissivité moindre au niveau de la Saulx dans le Dogger. Le calage du modèle nécessite alors l'élargissement de la zone plus transmissive se trouvant à proximité des affleurements du Bajocien (Dogger inférieur) et l'attribution, à la partie est du secteur, d'une zone de faible perméabilité, pour tout le Dogger (figure 8). La modification de la zone d'affleurement du Bajocien est, pour l'IRSN, compatible avec les observations de terrain qui montrent que cette formation est plus karstifiée⁽¹⁾ à l'affleurement que celle du Bathonien.

(1) Les formations calcaires sont souvent soumises à un phénomène de karstification lorsqu'elles affleurent. Il s'agit d'une altération des calcaires lorsqu'ils sont en contact avec l'air, les rendant ainsi beaucoup plus perméables.

Ces modèles prenant explicitement en compte la présence de failles conductrices reproduisent les charges mesurées dans l'Oxfordien et le Dogger de manière satisfaisante, tout en privilégiant dans les couches géologiques des paramètres cohérents avec ceux issus des investigations de terrain. Les **tableaux 2 et 3** présentent le calage ainsi obtenu pour le cas n° 1 et le cas n° 2. Au niveau du site de Meuse – Haute-Marne, l'écart moyen est inférieur à 2 m dans l'Oxfordien, et ce pour les deux modèles (**figure 9**). Dans le Dogger, l'écart entre les valeurs calculées et mesurées est de 0,2 m pour le premier modèle et de 2,4 m pour le second (**figure 10**). Le premier modèle, *a priori* plus pénalisant (cas n° 1 où les failles sont plus transmissives), a été retenu pour simuler le transport des radionucléides du toit de la formation hôte du Callovo-Oxfordien jusqu'aux exutoires de la biosphère.

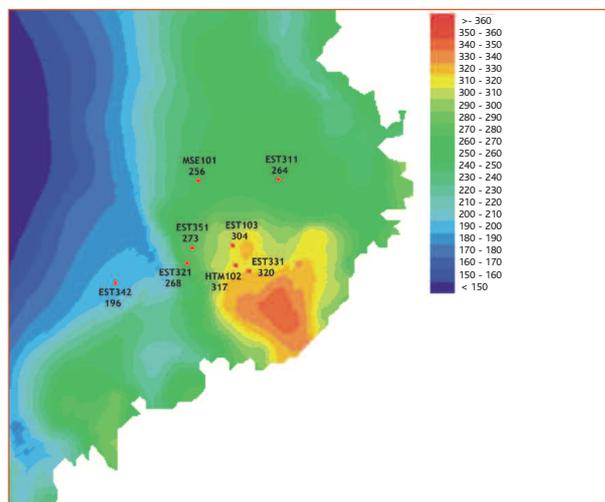


Figure 9 : Charges calculées et mesurées au niveau du site de MHM – Oxfordien (modèle avec failles).

Résultats des simulations du transport de radionucléides

Transfert des radionucléides au travers de la couche hôte et des ouvrages

Étant donné que les valeurs des vitesses d'écoulement dans la couche hôte sont extrêmement faibles (0,4 µm/an) du fait de la très faible perméabilité du Callovo-Oxfordien, entre $5 \cdot 10^{-13}$ et $5 \cdot 10^{-14}$ m/s, la diffusion est le régime de transfert dominant des radionucléides au travers de la couche hôte homogène. Dans les ouvrages, les vitesses d'écoulement varient d'un à deux ordres de grandeur suivant les performances des scellements. Dans l'hypothèse défavorable d'un défaut de scellement, les valeurs des vitesses dans les tunnels restent néanmoins faibles (de l'ordre de 5 mm/an). Ces faibles vitesses sont notamment dues à l'apport d'eau limité dû à la faible perméabilité du Callovo-Oxfordien et à l'architecture borgne des tunnels de stockage. Au niveau des tunnels de stockage, du fait du caractère diffusif du transfert des radionucléides et de l'importante surface d'échange entre la roche et un tunnel, un pourcentage important de la masse relâchée par les colis (80 à 90 % pour l' ^{129}I) est transféré des tunnels vers

la roche. Cette masse diffuse alors vers le toit ou le mur du Callovo-Oxfordien dans le sens des gradients de concentration. De plus, la majeure partie de la masse initialement relâchée vers les galeries est transférée vers la roche. En effet, les longueurs importantes des galeries de liaison contribuent à diminuer les gradients hydrauliques entre les tunnels de stockage et le puits, et à favoriser la diffusion des panaches d'activité vers la couche d'argile au travers des surfaces d'échange entre les galeries et la formation hôte. Ces caractéristiques du stockage permettent donc de limiter les flux de radionucléides qui transitent vers le puits d'accès. La **figure 11** présente le débit molaire d' ^{129}I au sortir d'un puits et du Callovo-Oxfordien (toit et mur⁽¹⁾). Pour ces calculs, le gradient ascendant est de 0,2 m/m.

Les débits molaires calculés au toit et au mur du Callovo-Oxfordien (permettant d'estimer les transferts au travers de la couche hôte) et au sortir du puits (permettant d'estimer les transferts au travers des

(1) Le mur correspond à la limite inférieure de la formation, le toit à sa limite supérieure.

Tableau 4

Synthèse des résultats pour le puits et le Callovo-Oxfordien						
Sortie	Valeur du débit molaire maximal (mol/an)		Temps d'obtention du débit molaire maximal (an)		Pourcentage d'activité sortant au toit du Callovo-Oxfordien (COX) et au puits par rapport à l'activité totale relâchée (%)	
	Puits	COX sain	Puits	COX sain	Puits	COX sain
^{129}I (SEN)	$1,02 \times 10^{-4}$	$9,24 \times 10^{-2}$	520 000	240 000	0,07	77,6
^{36}Cl (SEN)		$6,19 \times 10^{-4}$		180 000		32,1
^{79}Se (SEN)		$1,39 \times 10^{-6}$		1 000 000		0,04
^{129}I (SEA)	$2,09 \times 10^{-3}$	$9,13 \times 10^{-2}$	260 000	240 000	2,1	75

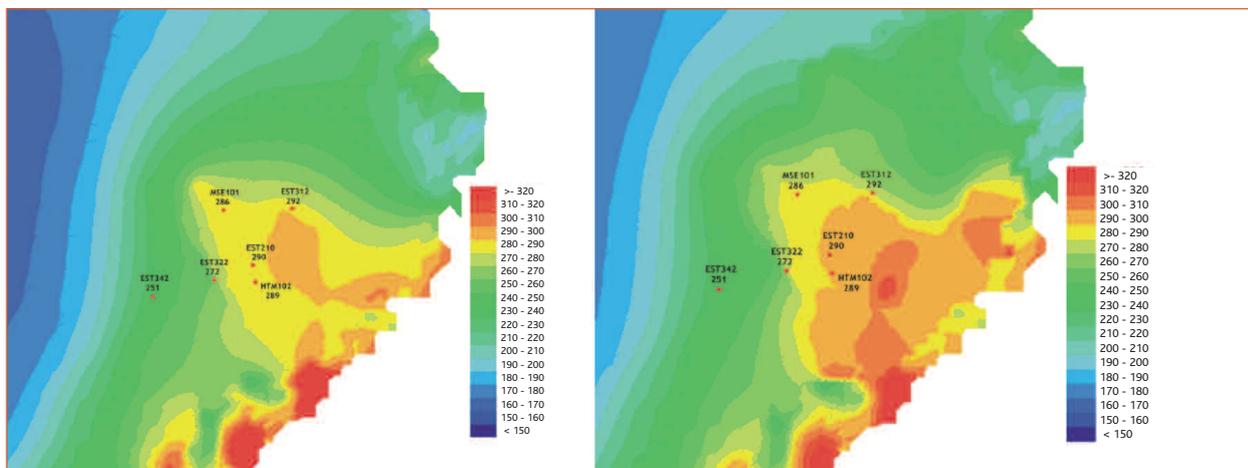


Figure 10 : Charges calculées et mesurées au niveau du site de MHM – Dogger (modèle avec failles).

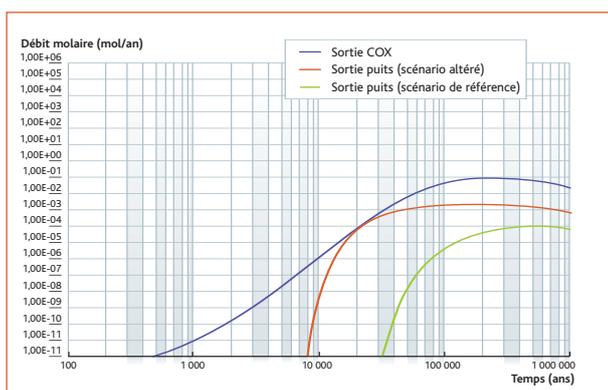


Figure 11 : Débit molaire d'¹²⁹I au sortir d'un puits et du Callovo-Oxfordien (toit et mur).

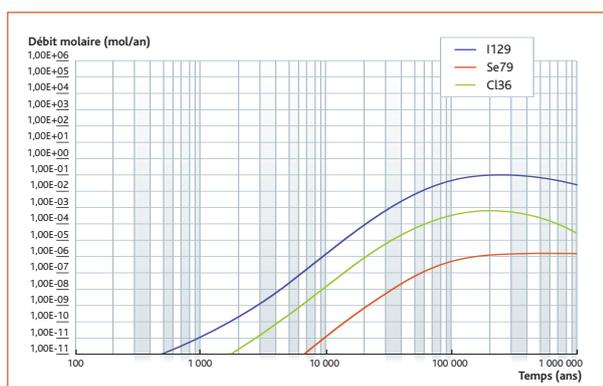


Figure 12 : Débits molaires d'¹²⁹I, de ⁷⁹Se et de ³⁶Cl au sortir du Callovo-Oxfordien (toit et mur).

ouvrages) montrent que la formation hôte est la principale voie de transfert des radionucléides quel que soit le scénario envisagé sur les performances des scellements (figure 12 et tableau 4). Au bout d'un million d'années de simulation, pour ¹²⁹I, 78 % de la masse relâchée par les colis est sortie par le toit et le mur du Callovo-Oxfordien alors que seulement 0,07 % de cette masse est sortie par le puits, et que le pourcentage d'activité restante dans la couche hôte correspond à plus de 20 % de la masse injectée initialement.

La figure 12 montre les résultats de simulations du transfert de trois radionucléides (¹²⁹I, ⁷⁹Se et ³⁶Cl) au sortir du Callovo-Oxfordien. Au toit et au mur de la formation, ¹²⁹I est le radionucléide pour lequel les débits molaires sont les plus importants (0,1 mol/an) avec un écart d'environ deux ordres de grandeur du ³⁶Cl et cinq ordres de grandeur du ⁷⁹Se. Le maximum de débit molaire estimé pour le ³⁶Cl est obtenu plus tôt que pour ¹²⁹I, la période du ³⁶Cl étant du même ordre de grandeur que le temps de transfert au travers du Callovo-Oxfordien. Le relâchement du ⁷⁹Se est contrôlé par la faible solubilité dans l'argile, comme l'indique la forme de la courbe de flux avec un palier caractéristique d'un contrôle par précipitation autour des colis.

Les courbes de flux de ¹²⁹I et de ³⁶Cl sont quant à elles caractéristiques d'un régime de transfert diffusif fortement influencé par l'épaisseur de la couche hôte au regard des temps de dégradation des colis.

Pour le SEA, les débits molaires en sortie du puits augmentent d'un facteur 20 par rapport au scénario de référence lorsque les scellements ne sont pas ancrés. De plus, à 20 000 ans, les débits molaires en sortie du puits sont équivalents aux débits molaires en sortie de la roche saine du fait de l'augmentation de la vitesse d'écoulement dans les galeries limitant l'influence de la diffusion vers le Callovo-Oxfordien. Un régime quasi stationnaire s'établit ensuite avec des débits molaires maximaux au sortir du puits inférieurs de plus d'un ordre de grandeur aux débits molaires maximaux en sortie de la roche saine. Pour ce scénario également, le pourcentage de masse relâchée à la sortie de la roche hôte reste très supérieur à celui de la masse relâchée par le puits (75 % contre 2 %). Toutefois, au regard du rapport entre la surface du puits et l'emprise du stockage au toit du Callovo-Oxfordien (qui est de l'ordre de 50 000), il apparaît que le rapport des débits maximaux entre les deux voies de transfert est plus faible, que ce soit pour le SEN (égal à 1 000) ou pour le SEA (égal à 50, figure 12).

5.3

Ce qui traduit le fait que même si une part majoritaire de l'activité diffuse au travers de la roche saine, les galeries et le puits sont dans tous les cas des drains importants de l'activité sortant des colis.

Transfert des radionucléides du Callovo-Oxfordien jusqu'aux exutoires de la biosphère

Le modèle hydrogéologique retenu pour servir de base aux simulations du transport des radionucléides du toit de la formation hôte vers la surface au travers des aquifères de l'Oxfordien et du Portlandien (cas n° 1 présenté ci-dessus) postule, entre autres, la présence de failles conductrices dans l'Oxfordien et une perméabilité de matrice faible de la formation du Dogger. Par ailleurs, compte tenu des incertitudes portant sur la valeur du coefficient de diffusion (D_p) dans les aquifères, une étude de sensibilité sur ce paramètre est réalisée afin d'en estimer l'influence. Les valeurs choisies sont égales à 10^{-9} , 10^{-10} et 10^{-12} m²/s. La source de soluté radioactif entrant dans les formations sus-jacentes au Callovo-Oxfordien est le débit molaire de ¹²⁹I calculé au toit de la couche hôte du Callovo-Oxfordien au droit du stockage. Lors du transfert, le panache radioactif est soumis à des phénomènes de dilution et de dispersion dus à l'eau circulant dans les aquifères de l'Oxfordien. La diffusion dans les niveaux semi-perméables de l'Oxfordien et du Kimméridgien contribue également à étaler le panache au fur et à mesure de son développement. Les trajectoires et les temps de transfert associés dépendent donc de l'influence relative de ces différents phénomènes, liée en particulier à la présence d'hétérogénéités structurales. Le transfert de ¹²⁹I au travers des formations sus-jacentes au Callovo-Oxfordien met en évidence un exutoire « naturel » situé à la surface (Portlandien), et un second exutoire « artificiel » situé dans l'Oxfordien dans une zone de forte transmissivité, à 5 km à l'ouest du site de stockage, où pourrait être positionné un forage d'alimentation en eau

(figures 3 et 13). Pour l'exutoire « naturel » situé dans l'aquifère du Portlandien à l'aplomb du stockage, le maximum de débit molaire est obtenu, suivant les valeurs de coefficient de diffusion choisies, entre 350 000 et 550 000 ans après les premiers relâchements hors des colis de déchets (tableau 5).

Le transfert des radionucléides vers cet exutoire est contrôlé par la diffusion au travers des semi-perméables et par le phénomène de diffusion/dispersion au travers des aquifères. Comme le montrent les résultats de la figure 14 (débits molaires aux exutoires des encaissements supérieurs), les débits molaires augmentent proportionnellement aux valeurs des coefficients de diffusion des couches géologiques.

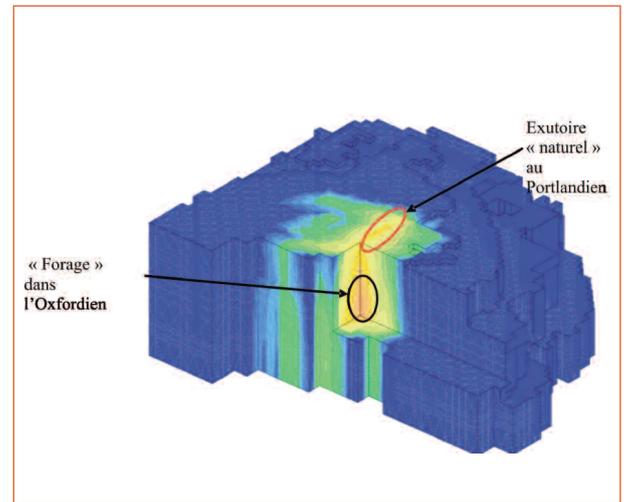


Figure 13 : Isoleviers de concentration à 500 000 ans et localisation des exutoires.

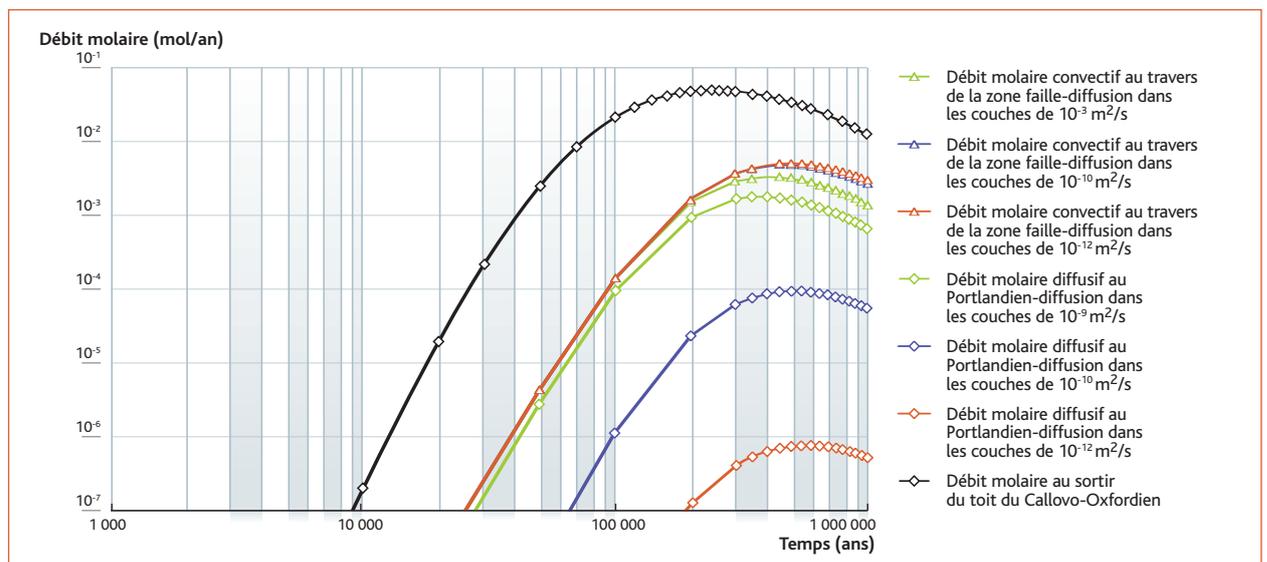


Figure 14 : Débits molaires d'¹²⁹I, de ⁷⁹Se et de ³⁶Cl au sortir du Callovo-Oxfordien (toit et mur).

Tableau 5

Synthèse des résultats aux exutoires « naturel » et « forage » pour ¹²⁹ I						
	Valeur du débit molaire maximal (mol/an)		Temps d'obtention du débit molaire maximal (années)		Pourcentage d'activité sortie à 1 Ma au toit du COX par rapport à l'activité totale relâchée (%)	
	Exutoire « naturel »	Exutoire « artificiel »	Exutoire « naturel »	Exutoire « artificiel »	Exutoire « naturel »	Exutoire « artificiel »
Dp = 10 ⁻⁹ m ² /s	3,28 x 10 ⁻³	1,80 x 10 ⁻³	350 000	400 000	3,9	7,3
Dp = 10 ⁻¹⁰ m ² /s	9,57 x 10 ⁻⁵	4,83 x 10 ⁻³	500 000	500 000	0,2	11,2
Dp = 10 ⁻¹² m ² /s	7,88 x 10 ⁻⁷	4,93 x 10 ⁻³	550 000	500 000	0,002	11,8

Pour ce qui concerne l'exutoire dit « artificiel », le maximum de débit molaire de ¹²⁹I est obtenu entre 400 000 et 500 000 ans (tableau 5).

Le régime de transfert vers cette zone étant dominé par la convection au travers des aquifères de l'Oxfordien et de la zone de faille, l'activité est diluée de manière importante lors du transfert de ¹²⁹I : un facteur 400 entre les concentrations maximales au toit du Callovo-Oxfordien et les concentrations maximales au niveau du forage. Néanmoins l'activité totale relâchée à cet exutoire reste plus importante, environ 10 % de la masse relâchée au toit du Callovo-Oxfordien, que celle relâchée à l'exutoire « naturel », qui varie entre 0,002 et 3,9 % (tableau 5).

L'analyse de sensibilité réalisée montre que cet exutoire dépend peu des coefficients de diffusion caractérisant les couches géologiques traversées. Les valeurs de débit molaire (figure 14) restent du même ordre de grandeur quelle que soit la valeur de diffusion, mais on peut noter que les débits molaires, dans le cas d'un coefficient de diffusion de 10⁻⁹ m²/s, sont plus faibles du fait de l'augmentation des débits molaires obtenus à l'exutoire « naturel ». On note que, dans ce cas, les deux exutoires sont d'importance similaire, ce qui a pour conséquence de donner un poids non négligeable aux paramètres de diffusion dans les encaissants.

■ Conclusion et perspectives

Hormis le colis, dont l'influence sur le relâchement des radionucléides ne fait pas l'objet de la présente étude, les débits molaires obtenus au travers du stockage sont contrôlés par les deux éléments essentiels du concept de stockage que sont la formation hôte et les dispositifs de scellement destinés à empêcher les mouvements d'eau. L'influence respective de ces deux éléments mérite toutefois d'être examinée à la lumière des enseignements que l'on peut tirer des modélisations précédentes.

Lorsque les scellements sont défectueux, on observe l'établissement d'un régime de transfert pour lequel l'influence de la convec-

tion est plus marquée dans les galeries et le puits, ce qui a une influence sur la répartition des transferts entre les tunnels de stockage (jusqu'au puits) et la formation hôte. Mais les transferts au travers de la formation restent dominants quel que soit le scénario étudié, du fait notamment des surfaces d'échange importantes entre les ouvrages et la couche géologique qui favorisent la diffusion des radionucléides vers les argilites. L'architecture borgne des modules de tunnels de stockage contribue également à maintenir un régime diffusif au voisinage des tunnels.

De ce fait, la formation hôte continue de jouer un rôle de « pompe » pour le panache de radionucléides, même dans l'hypothèse d'un écoulement convectif dans le stockage, sous réserve que ses propriétés chimiques et hydrauliques soient préservées dans l'environnement du stockage. Les propriétés de confinement de la formation hôte et l'architecture du stockage sont donc des facteurs essentiels pour la sûreté de l'installation. Ces résultats confirment les enseignements de l'exercice BENIPA [8], qui avait permis de hiérarchiser l'importance des différentes barrières en bentonite destinées à maintenir ou à rétablir un régime d'écoulement diffusif dans les ouvrages et de préciser le rôle et l'importance des argiles à Opalinus en fonction des différents scénarios d'évolution étudiés.

La définition des exutoires nécessite de caractériser les régimes d'écoulements souterrains ainsi que les discontinuités conductrices potentielles, qu'il s'agisse d'un forage d'alimentation en eau dans une zone perméable ou d'un exutoire « naturel ». La simulation du transport des radionucléides au travers des formations perméables et semi-perméables nécessite également de quantifier le phénomène de transfert par diffusion. Ce phénomène est reconnu comme dominant au travers de la formation homogène du Callovo-Oxfordien et a donné lieu à des études visant à le préciser.

Néanmoins les modélisations précédentes montrent qu'un tel phénomène doit également être l'objet d'une caractérisation plus précise dans les encaissants hydrauliques afin de discriminer

l'importance d'exutoires plus diffus dans des zones à l'écart des discontinuités hydrauliques. À défaut, les incertitudes résultant d'un manque de connaissance sur ce point doivent être prises en compte par une analyse de sensibilité.

Enfin, les résultats obtenus pour les différentes simulations d'écoulement ont mis en évidence, au niveau du site de Meuse – Haute-Marne, le fait que le calage des charges hydrauliques dans les formations encaissantes pouvait être obtenu avec différents schémas d'écoulements profonds, faisant jouer ou non un rôle hydrau-

lique aux structures identifiées ou soupçonnées dans le secteur d'étude. La modélisation du transport de radionucléides relâchés par un éventuel stockage doit à ce stade faire l'objet d'une étude de sensibilité afin d'évaluer l'influence de ces différentes représentations d'écoulements souterrains sur les temps de transfert et concentrations des panaches de radionucléides aux exutoires. Des études hydrogéologiques de terrain supplémentaires seront nécessaires s'il est entrepris de réduire le nombre de modèles d'écoulement envisageables sur ce site représentatif.

Références

- [1] ANDRA, « Évaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse – Document de synthèse », Dossier Argile 2005.
- [2] BOURGEOIS, M., « MÉLODIE – Modèle d'évaluation à long terme des déchets irradiants enterrés – Notice théorique 2002 », IRSN/DPRE/SERGD/02-13, 2002.
- [3] ANDRA, *Tome d'évaluation de sûreté du stockage géologique*, Dossier Argile 2005.
- [4] ANDRA, *Tome d'architecture et de gestion du stockage géologique*, Dossier Argile 2005.
- [5] IRSN, Rapport DSU n° 106, 2005.
- [6] GROS, J.-C., BODILIS, S., « BPDATA (Base de données géologiques, hydrogéologiques et hydrochimiques sur le bassin de Paris », IRSN – DEI/SARG, version 2.6.
- [7] GUILLOCHEAU *et al.*, « Évolution géodynamique du bassin de Paris : apport d'une base de données stratigraphiques 3D », *Bulletin d'information des géologues du bassin de Paris*, volume 36, n° 4, décembre 1999.
- [8] PELLEGRINI, D., BESNUS, F., CERTES, C., DELERUYELLE, F., SERRES, C., « Lessons Learnt from IRSN Modelling Performed for the 5th EC PCRD BENIPA », Eurosafe 2003.

5.4

En quelques dates Soutenances de thèses et autres faits marquants

12 et 13 décembre 2005

■ L'IRSN a donné au groupe permanent d'experts chargé des déchets son avis sur le « Dossier 2005 Argile ».

Ce dossier, préparé par l'Andra en application de la loi du 30 décembre 1991 sur la gestion des déchets radioactifs, est relatif à la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse.

Novembre 2006

■ Le conseil scientifique de l'IRSN a émis un rapport dans lequel il donne un avis globalement positif sur « la compétence et les outils de l'IRSN pour l'expertise du stockage des déchets en couche géologique profonde ».

12 juin 2006

■ Maria-Victoria Altinier a soutenu sa thèse sur « l'étude de la composition isotopique des eaux porales des argilites de Tournemire (Aveyron, France) : inter-comparaison des méthodes de mesure et relations avec les paramètres pétrophysiques » à l'Université d'Orsay, Paris X.

Situation des auteurs dans l'organigramme de l'IRSN

Article page	1 Radioactivité et environnement
25	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de l'environnement et de l'intervention.
27	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service des situations d'urgence et d'organisation de crise (SESUC) ; Bureau de modélisation des transferts atmosphériques (BMTA).
35	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service 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 du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de modélisation environnementale (LME).
43	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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 du milieu continental et marin (LERCM).
49	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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 du milieu continental et marin (LERCM). ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de modélisation environnementale (LME).
53	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service 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 du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE) ; Laboratoire de modélisation environnementale (LME). ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service du comportement des radionucléides dans les écosystèmes (SECRE).
64	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de l'environnement et de l'intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS). ■ 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 du milieu continental et marin (LERCM).

Article page	
65	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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).
66	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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	2 Recherche sur les accidents
71	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM)
73	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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).
79	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur les accidents (SERA) ; Laboratoire d'expérimentation des feux (LEF). ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Cellule projet expérimentation(CPEX).
85	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de modélisation de l'incendie, du corium et du confinement (SEMIC). ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service études et modélisation de l'incendie, du corium et du confinement (SEMIC) ; Laboratoire d'études du corium et du transfert des radioéléments (LETR). ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA) ; Laboratoire d'études et d'interprétation des essais de dégradation du cœur (LEIDC).

Article page	
85	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur les accidents (SEREA) ; Laboratoire d'expérimentation et de mesure des relâchements accidentels (LEMRA).
97	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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) ■ 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).
105	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des systèmes et de la protection contre les risques (SESPRI) ; Bureau d'évaluation des agressions et des démarches de sûreté (BEADS). ■ Direction de l'évaluation scientifique et technique et de la qualité (DESTQ).
111	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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).
117	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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 d'études et de modélisation en aérodispersion et confinement (LEMAC).
124	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de modélisation de l'incendie, du corium et du confinement (SEMIC).
124	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'instrumentation et d'ingénierie expérimentale (S2IE).
125	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA) ; Laboratoire d'études et d'interprétation des essais de dégradation du cœur (LEIDC).
125	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de modélisation du combustible en situations accidentelles (SEMCA).

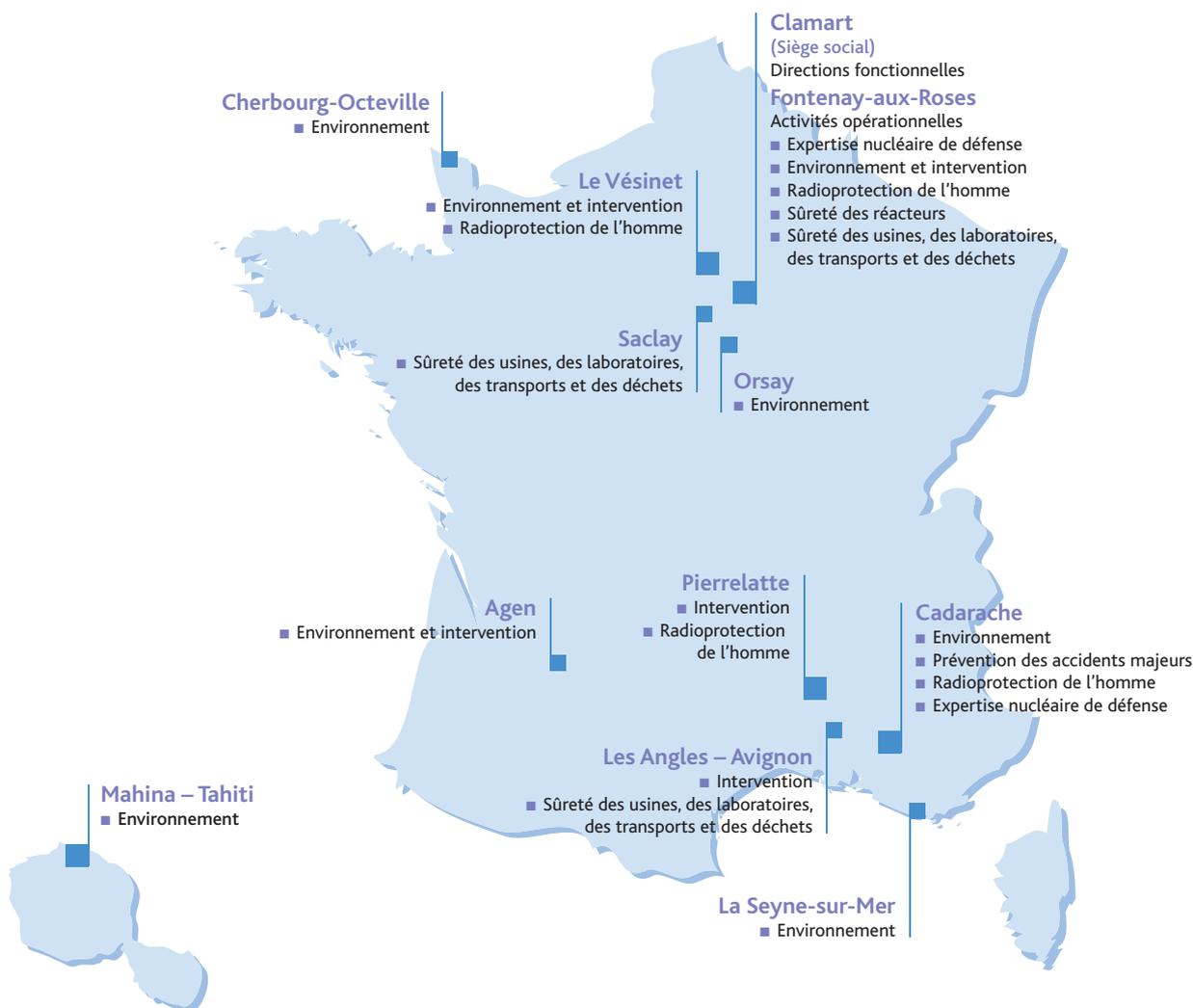
Article page	
126	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de recherches expérimentales sur les accidents (SERA) ; Laboratoire d'essais analytiques (LEA).
128	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation des accidents graves et des rejets radioactifs (SAGR) ; Bureau de physique des accidents graves (BPHAG).
Article page	3 L'homme et les rayonnements ionisants
133	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH).
135	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de dosimétrie biologique (LDB). ■ 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 radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de thérapie cellulaire et de radioprotection accidentelle (LTCRA). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de radiopathologie (LRPAT). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de thérapie cellulaire et de radioprotection accidentelle (LTCRA).
147	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH). Service de dosimétrie interne (SDI) ; Laboratoire d'évaluation de la dose interne (LEDI). ■ Laboratoire National Henri Becquerel, CEA Saclay. ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH). Service de dosimétrie interne (SDI) ; Laboratoire d'évaluation de la dose interne (LEDI). ■ Direction de la stratégie, du développement et des relations extérieures (DSDRE) ; Division programmes de recherche (DPR). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE) ; Laboratoire de dosimétrie des rayonnements ionisants (LDRI).

Article page	
147	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie interne (SDI). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE) ; Laboratoire de métrologie et dosimétrie des neutrons (LMDN). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de radiotoxicologie expérimentale (LRTOX). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de dosimétrie biologique (LDB).
166	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service d'études et d'expertise en radioprotection (SER) ; Unité d'expertise en radioprotection médicale (UEM). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service d'études et d'expertise en radioprotection (SER) ; Unité d'expertise en radioprotection médicale (UEM).
166	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de radiotoxicologie expérimentale(LRTOX).
167	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie interne (SDI).
168	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de radiobiologie et d'épidémiologie (SRBE) ; Laboratoire de dosimétrie biologique (LDB).
169	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service de dosimétrie externe (SDE) ; Laboratoire de métrologie et de dosimétrie des neutrons (LMDN).
170	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service d'études et d'expertise en radioprotection (SER). ■ Direction de la radioprotection de l'homme (DRPH) ; Service d'études et d'expertise en radioprotection (SER) ; Unité d'expertise en radioprotection médicale (UEM).

Article page	4 Développement des méthodes, études sur la sûreté des exploitations
176	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR).
177	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'analyse des matériels et des structures (SAMS) ; Bureau d'analyse des systèmes électriques et du contrôle-commande (BASEC). ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'analyse des matériels et des structures (SAMS) ; Bureau d'analyse des systèmes électriques et du contrôle-commande (BASEC).
185	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'analyse des matériels et des structures (SAMS) ; Bureau d'analyse des matériels mécaniques (BAMM).
195	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs (DSR) ; Service d'évaluation de la thermohydraulique, de la conduite, des coeurs et des combustibles (ST3C) ; Bureau de développement des méthodes et de la gestion des outils de simulation (BMGS). ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de 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).
203	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'expertise, d'études et de recherches en criticité (SEC) ; Laboratoire d'études, de recherche, de développement et de qualification des codes (LERD). ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'expertise, d'études et de recherches en criticité (SEC) ; Laboratoire d'études, de recherche, de développement et de qualification des codes (LERD). ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'expertise, d'études et de recherches en criticité (SEC) ; Bureau d'évaluation des risques de criticité dans les laboratoires et usines (BEC). ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service d'expertise, d'études et de recherches en criticité (SEC) ; Bureau d'évaluation des risques de criticité dans les laboratoires et usines (BEC).
215	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la prévention des accidents majeurs (DPAM) ; Service d'études et de 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 environnement et intervention (DEI) ; Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement (SESURE) ; Laboratoire d'études radioécologiques du milieu continental et marin (LERCM).

Article page	
220	<ul style="list-style-type: none"> ■ 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).
220	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des réacteurs(DSR) ; Service d'évaluation de la thermohydraulique, de la conduite, des coeurs et des combustibles (ST3C) ; Bureau d'analyse des coeurs et des combustibles (BA2C).
Article page	5 Déchets radioactifs
226	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU).
227	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction environnement et intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS). ■ Direction environnement et intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS).
235	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets(DSU) ; Service de sûreté des déchets radioactifs (SSD) ; Bureau d'évaluation des barrières de confinement des stockages de déchets radioactifs (BECS). ■ Direction environnement et intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS). ■ Direction environnement et intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS). ■ Direction environnement et intervention (DEI) ; Service d'analyse des risques liés à la géosphère (SARG) ; Laboratoire d'étude des transferts dans les sols et le sous-sol (LETS). ■ Équipe Hydrodynamique et Réactions, Centre de Géosciences, École des Mines de Paris.
247	<ul style="list-style-type: none"> ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service de sûreté des déchets radioactifs (SSD) ; Bureau d'évaluation des barrières de confinement des stockages de déchets radioactifs (BECS). ■ Direction de la sûreté des usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU) ; Service de sûreté des déchets radioactifs (SSD) ; Bureau d'évaluation des barrières de confinement des stockages de déchets radioactifs (BECS).

Les implantations de l'IRSN



Clamart
Siège social
77-83, av. du Général-de-Gaulle
92140 Clamart
Tél : + 33 (0)1 58 35 88 88

Agen
B.P. 27
47002 Agen
Tél : + 33 (0)5 53 48 01 60

Cadarache
B.P. 3
13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex
Tél : + 33 (0)4 42 19 91 00

Cherbourg-Octeville
Rue Max-Paul Fouchet
B.P. 10
50130 Cherbourg-Octeville
Tél : + 33 (0)2 33 01 41 00

Fontenay-aux-Roses
B.P. 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex
Tél : + 33 (0)1 58 35 88 88

La Seyne-sur-Mer
Centre Ifremer de Méditerranée
B.P. 330
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 – Les Angles
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
B.P. 166
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 de l'évaluation scientifique et technique et de la qualité

Comité de pilotage

DESTQ : Joseph Lewi, puis Jean-Luc Pasquier, Michel Colin

DSDRE : Teresa Bolognese

DSR : Giovanni Bruna

DEI : Denis Boulaud

DSU : Patrick Cousinou

DCOM : M-L de Heaulme, A-M Girardin

DEND : Dominique Franquard

DRPH : Jean Brenot

DPAM : Bernard Goudal

Rédaction

IRSN

Coordination de la réalisation

Direction de la communication, CPRP

Conception graphique et coordination

TroisCube

Traduction

Art International

Impression

Idéale Prod / JPA, imprimerie certifiée Imprim Vert

Crédits photos

IRSN ■ IRSN/Seignette-Lafontan ■ CEA

Illustrations

Stéphane Jungers

© Communication IRSN

N° ISSN en cours



IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Siège social

77-83, avenue du Général-de-Gaulle
92140 Clamart
RCS Nanterre B440 546 018

Téléphone

+33 (0)1 58 35 88 88

Courrier

B.P. 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

Site internet

www.irsn.org