

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Faire avancer la sûreté nucléaire

AKTIS

L'actualité de la recherche à l'IRSN

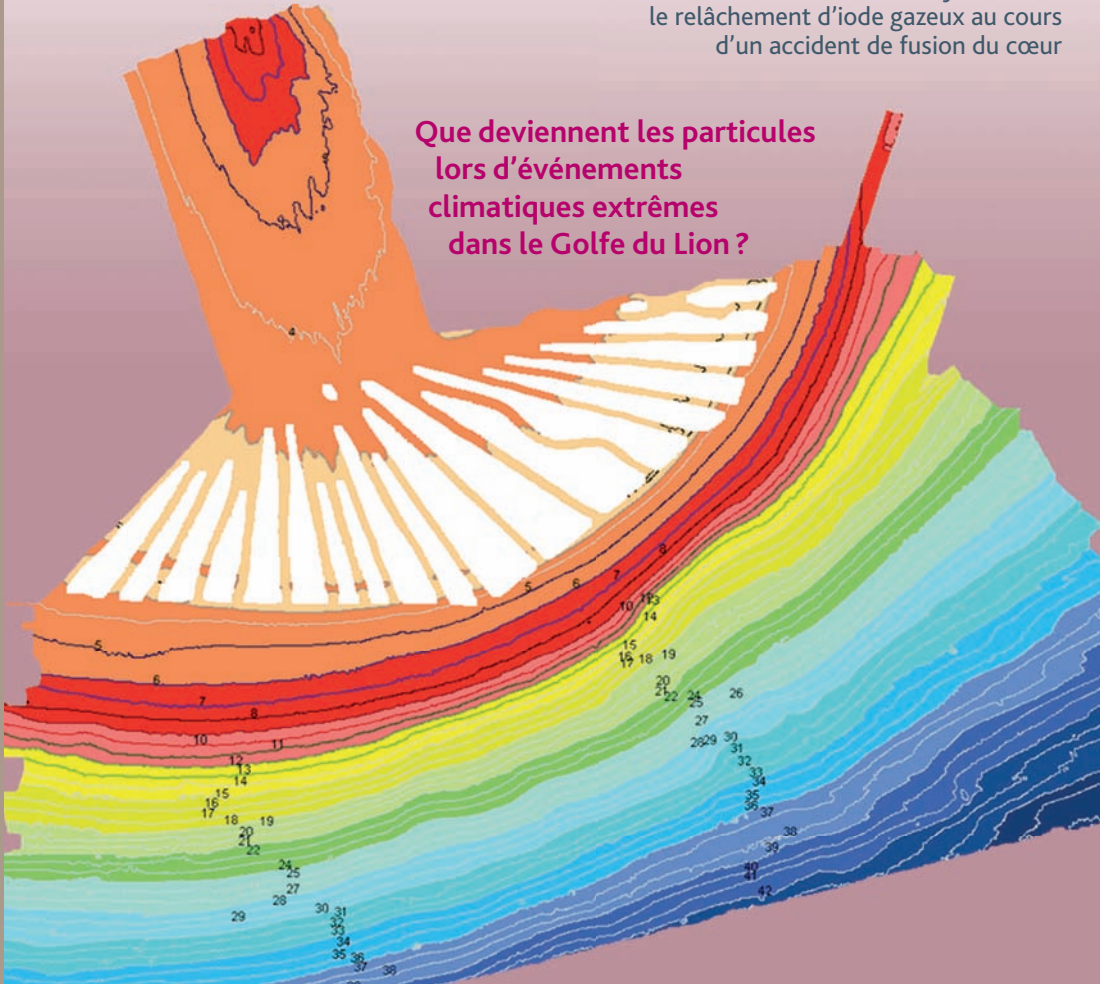
Des calixarènes pour la décontamination surfacique
et l'analyse radiotoxologique des urines

Comportement des produits de fission
dans le combustible Triso

Modélisation de la lixiviation
du béton à l'aide
d'un réseau de neurones

Influence du molybdène sur
le relâchement d'iode gazeux au cours
d'un accident de fusion du cœur

Que deviennent les particules
lors d'événements
climatiques extrêmes
dans le Golfe du Lion ?



ÉDITORIAL

Une nécessaire amplification des recherches

Six mois après le séisme et le tsunami japonais qui ont eu des conséquences si désastreuses sur la centrale de Fukushima-Dai-Ichi, la sûreté nucléaire est au cœur de réflexions approfondies partout dans le monde. En France, le gouvernement s'est très vite engagé auprès de la population à confronter les centrales françaises à des « évaluations complémentaires de sûreté », afin de vérifier leur robustesse face à une conjonction d'aléas de grande ampleur. Une action qui implique fortement les compétences d'expertise de l'IRSN. Quant à la compréhension détaillée des événements, elle est incontournable. Elle nécessitera certes plusieurs années afin de collecter les données, les analyser avec minutie et enfin en tirer des conclusions scientifiquement fondées. Mais d'ores et déjà, des pistes se dessinent à l'IRSN pour approfondir les connaissances, tant dans le domaine des phénomènes physiques que des sciences de la terre, de la santé de l'homme ou des sciences sociales. Objectifs : réduire la sensibilité des installations aux risques, qu'ils soient naturels ou du fait de l'homme, limiter les conséquences d'un accident sur les populations et l'environnement, si malgré tout il survenait, et mieux connaître les effets sanitaires causés par une exposition de longue durée à de faibles niveaux de radioactivité. En collaboration avec ses partenaires scientifiques et industriels en France et dans le monde, l'IRSN se prépare à intensifier ses recherches dans ces domaines.



© IRSN

Michel Schwarz,
Directeur scientifique

Aktis est la lettre d'information scientifique de l'IRSN. Elle présente les principaux résultats de recherches menées par l'Institut dans les domaines de la radioprotection, de la sûreté et de la sécurité nucléaires. Trimestrielle et gratuite, elle existe aussi en version électronique sur abonnement.

Aktis est une publication trimestrielle de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire. Éditeur IRSN – standard : +33 (0)1 58 35 88 88 – www.irsn.fr – Directeur de la publication : Jacques Repussard – Directeur de la rédaction : Matthieu Schuler – Rédactrice en chef : Sandrine Marano Comité de lecture : Michel Schwarz, Sylvie Supévil – Comité éditorial : Jean-Luc Chambon, Aleth Delattre, Alain Dubouchet, Dominique Franquard, Jean-Michel Frison, Christine Goudebranché, Pascale Monti, Emmanuelle Mur, Michel Schwarz, Sylvie Supévil – Rédaction : Aphanis/Stéphane Fay et Umaps/Gayané Adourian – Conception et réalisation : Aphanis/Alfredo R. Fiale – Impression : Idéale Prod, sur papier recyclé – ISSN : 2110-588X – Droits de reproduction sous réserve d'accord de notre part et de mention de la source. Conformément à la loi N° 2004-801 du 6 août 2004 relative à la protection des personnes physiques à l'égard des traitements de données à caractère personnel et modifiant la loi N° 78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés, tout utilisateur ayant déposé des informations directement ou indirectement nominatives, peut demander la communication de ces informations et les faire rectifier le cas échéant.

Couverture : Vue bathymétrique (mesure des profondeurs) de l'embouchure du Rhône, réalisée les 2-3-4 mai 2008 avant la crue de la Durance de 2008 (28 mai au 6 juin) pour l'IRSN par la société Semantic, dans la zone de 0 à 45 m.

Crédit : © IRSN/Semantic

SOMMAIRE

Édito

Par Michel Schwarz

Applications de la recherche

Pages 3 et 4

Des calixarènes pour la décontamination surfacique

Des calixarènes pour l'analyse radiotoxicologique des urines

Avancées de la recherche

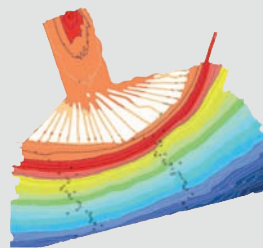
Page 5

Comportement des produits de fission dans le combustible Triso

FOCUS

Pages 6 à 8

Que deviennent les particules lors d'événements climatiques extrêmes dans le Golfe du Lion ?



Formation par la recherche

Pages 9 et 10

Modélisation de la lixiviation du béton à l'aide d'un réseau de neurones

Influence du molybdène sur le relâchement d'iode gazeux au cours d'un accident de fusion du cœur

La vie de la recherche

Page 11

Glossaire^{GLO}

Page 11

Chiffre

Page 11

DES CALIXARÈNES POUR LA DÉCONTAMINATION SURFACIQUE

L'utilisation d'une nanoémulsion contenant un calixarène se révèle efficace pour le traitement d'urgence d'une contamination cutanée superficielle par l'uranium.

La contamination par voie cutanée est l'un des deux principaux modes de contamination des travailleurs de l'industrie nucléaire (après l'inhalation). Grâce à un travail de thèse, l'IRSN a mis au point pour la première fois un traitement local d'urgence de la contamination cutanée superficielle par l'uranium à l'aide de l'utilisation d'un chélateur^{GL0} de la famille des calixarènes⁽¹⁾ introduit dans une nanoémulsion de type huile dans l'eau. Il piège le radioélément au niveau de la zone cutanée contaminée et réduit ainsi son transfert vers le sang.

[Nanoémulsion]

Les calixarènes sont de bons chélateurs mais, à température ambiante, ils sont à l'état solide. Il faut donc les mettre en solution pour les utiliser à des fins de décontamination. Étant aussi hydrophobes, ils doivent être solubilisés dans l'huile ; des expériences *in-vitro* montrent que cette option seule est peu efficace : seul 7 % de l'uranium contenu dans une solution aqueuse est piégé par les calixarènes sous cette forme. D'où l'idée d'utiliser une nanoémulsion de calixarène huile dans l'eau (75 % d'eau, 20 % d'huile de paraffine, 5 % de tensioactif⁽²⁾, 1 % de calixarène). La caractérisation physico-chimique de la nanoémulsion a mis en évidence la présence de molécules de calixarène, à la surface des gouttelettes huileuses dispersées dans l'émulsion, disponibles pour piéger l'uranium.

[83 % d'uranium retenu après 5 minutes]

Des expériences *in-vitro* ont été réalisées sur une solution aqueuse contaminée par du nitrate d'uranyle, l'un des composés de l'uranium qui diffuse le plus rapidement et le plus fortement à travers la peau. Cette solution, ajoutée à l'émulsion, permet une extraction de 83 % de l'uranium après 5 minutes de contact sans agiter la solution (90 % en remuant). L'efficacité remarquable de la nanoémulsion est due à la grande surface de contact de l'interface huile/eau où se trouve le calixarène.

Des expériences *ex-vivo* ont été réalisées sur des explants de peau d'oreille de porc. Les accidents de contamination cutanée pouvant se produire aussi bien sur une peau intacte que

sur une blessure, l'étude a été menée sur des biopsies de peau lésée par excoriation. La diffusion de l'uranium à travers cette peau lésée diminue de 98 % lorsque la nanoémulsion est appliquée immédiatement après la contamination. L'efficacité de la nanoémulsion reste importante même si son application est retardée de 5 à 30 minutes.



Mise en place d'un explant de peau de cochon sur une cellule de Franz pour tester la nano-émulsion de calixarène. L'émulsion reste efficace jusqu'à un rapport d'une mole de calixarènes pour 32 moles d'uranium, avec une concentration idéale de calixarène dans la nanoémulsion de 4 mg/g.

Un brevet a été déposé en 2009 par l'IRSN, mais ces nanoémulsions de calixarènes ne peuvent pas encore être utilisées en clinique. Il reste à démontrer que les formes galéniques utilisées ne passeront pas la barrière cutanée en cas de blessure, garantissant ainsi leur innocuité *in-vivo*.

Contact : François Rebière
(Laboratoire de radiochimie - LRC)
francois.rebierre@irsn.fr

⁽¹⁾ du 1,3,5-OCH₃-2,4,6-OCH₂COOH-p-tertbutylcalix[6]arène.

⁽²⁾ Le tensioactif est une molécule permettant de solubiliser deux phases non miscibles, ici l'huile et l'eau.

+++ Publication : Développement d'une forme pharmaceutique véhiculant un calixarène destinée au traitement d'une peau saine ou lésée. Thèse soutenue par Aurélie Spagnol le 16 novembre 2009.

+++ Publication : Spagnol A., Bouvier-Capely C., Adam M., Phan G., Rebière F. et Fattal E. : « Quick and efficient extraction of uranium from a contaminated solution by a calixarene nanoemulsion », *International Journal of Pharmaceutics*, 398, 179-184 (2010).

DES CALIXARÈNES POUR L'ANALYSE RADIOTOXICOLOGIQUE DES URINES

Un nouveau protocole utilisant des colonnes chromatographiques chargées en calixarène permet d'extraire efficacement et rapidement les actinides des urines afin de mesurer leur éventuelle contamination.

L'absence de contamination interne des travailleurs du nucléaire est notamment surveillée à l'aide d'analyses radiotoxicologiques des urines et des fèces. Ces analyses étant longues et complexes, l'IRSN a mis au point un protocole deux à dix fois plus rapide (et donc d'autant moins coûteux) en utilisant des chélateurs de la famille des calixarènes^{GLO}, qui possèdent de grandes affinités avec les actinides^{GLO}.

[Nouveau protocole]

Le principe de ce protocole simple est fondé sur une technique brevetée par l'IRSN (Uralix®) qui permet de lier les calixarènes à un polymère organique ; ceux-ci sont introduits dans des colonnes chromatographiques. L'urine est d'abord minéralisée afin d'éliminer la matière organique (ce qui évite l'interaction entre actinide et matière organique), puis elle est mise en solution à un pH adapté à l'actinide à analyser. Elle est ensuite introduite dans les colonnes contenant les calixarènes. Ces derniers piègent alors les actinides contenus dans l'urine. Il suffit ensuite de les récupérer avec une solution acide avant de les mesurer par spectrométrie alpha ou par ICP-MS^{GLO}.

[Capture acide et sélective]

Chaque actinide est extrait sélectivement de l'échantillon d'urine minéralisée, en choisissant un type de calixarène et en fixant le pH qui optimise l'efficacité de l'extraction. Ainsi, le plutonium est retenu sur une colonne contenant un calixarène portant des fonctions hydroxamiques (c'est-à-dire un groupement -CO-NH-OH) lorsque le pH de l'échantillon d'urine a été fixé à 2,8. Il est ensuite élué^{GLO} de la colonne à l'aide d'acide chlorhydrique. Pour l'américium et l'uranium, on utilise un calixarène possédant des fonctions carboxyliques (c'est-à-dire un groupement -C(O)OH) et le pH de l'échantillon d'urine est fixé à 5. L'américium est ensuite récupéré grâce à une solution d'EDTA^{GLO} à un pH de 3,2 et l'uranium grâce à de l'acide chlorhydrique. Pour le thorium, l'un ou l'autre type de calixarène peuvent être utilisés, à un pH proche de 3. Un échantillon d'urine contenant du plutonium, de

l'américium et de l'uranium peut ainsi successivement passer dans une première colonne pour récupérer le plutonium, puis dans une seconde colonne pour récupérer l'américium et l'uranium.



© IRSN/Noak/Le bar Le Floral

La manipulatrice introduit l'échantillon d'urine contaminée par des actinides dans la colonne de calixarènes.

Cette technique permet d'extraire 70 à 90 % des actinides présents dans l'urine, et de les séparer. Afin de déterminer précisément ce rendement pour chaque échantillon, il est introduit dans l'échantillon d'urine une quantité connue d'un isotope de chaque actinide à analyser (traceur), isotope non présent initialement dans l'échantillon d'urine. La mesure du traceur permet ainsi d'évaluer l'efficacité du protocole.

Des évolutions sont actuellement à l'étude en vue de commercialiser la technique.

Contact : François Rebière
(Laboratoire de radiochimie - LRC)
francois.rebiere@irsn.fr

+++ Publication : Mekki S., Bouvier-Capely C., Jalouali R. et Rebière F. : « The extraction of thorium by calix[6]arene columns for urine analysis », *Radiation Protection Dosimetry*, (2011) 144(1-4) : 330-334.

+++ Publication : Bouvier-Capely C., Manoury A., Legrand A., Bonthonneau J.-P., Cuenot F. et Rebière F. : « The use of calixarene molecules for actinides analysis in urine and drinking water: an alternative to current procedures », *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, (2009) 282:611-615.

Combustible

COMPORTEMENT DES PRODUITS DE FISSION DANS LE COMBUSTIBLE TRISO

Le comportement des produits de fission dans le combustible nucléaire détermine notamment la quantité de radionucléides rejetés en cas d'accident dans un réacteur. L'IRSN a étudié les différences entre le combustible Triso et le combustible des centrales à eau sous pression.

Le réacteur à très haute température est l'une des options envisagées pour la 4^{ème} génération de réacteurs nucléaires. Son combustible est constitué de particules Triso, formées d'un noyau de dioxyde d'uranium (UO₂) de diamètre submillimétrique, enrobé de différentes couches carbonées qui ont pour fonction essentielle de confiner les gaz relâchés du noyau.

[La tenue des particules Triso]

Les particules Triso sont soumises à des températures et des flux neutroniques bien plus élevés que les combustibles des réacteurs à eau sous pression (Rep) utilisés en France, ce qui implique un comportement particulier des produits de fission. Au sein du projet européen Raphael⁽¹⁾, l'IRSN a mené un travail de recherche pour comprendre le comportement des produits de fission et la dégradation induite des propriétés de confinement et de la tenue des particules Triso.

[Des effets physico-chimiques déterminants]

Le comportement des produits de fission a d'abord été analysé expérimentalement sur des particules Triso irradiées⁽²⁾ à des taux de combustion très élevés (100 GWj/t^{GLO}). Parmi les différences avec le combustible des Rep, le relâchement des gaz de fission et du césium hors du noyau d'UO₂⁽³⁾ est beaucoup plus important. De plus, les produits de fission ruthénium et molybdène sont majoritairement présents dans des inclusions métalliques à l'intérieur du noyau alors que, dans un combustible Rep et pour des conditions équivalentes, le molybdène est partiellement oxydé hors des inclusions métalliques. Les modèles physiques détaillés⁽⁴⁾ développés à l'IRSN permettent de comprendre ces observations. Le fort relâchement de gaz de fission s'explique par les effets conjugués de l'irradiation et de la température : elles induisent une augmentation très importante de la diffusion atomique qui fait migrer

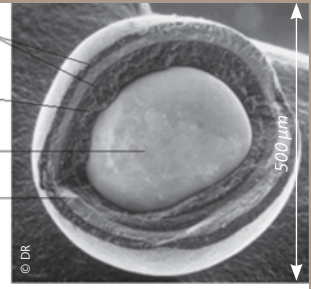
Couches de pyro-carbone dense

Couche de pyro-carbone poreux

Noyau combustible

Couche de SiC

Vue en coupe d'une particule Triso - Dans les particules Triso (Tristructural-Isotropic), les couches de confinement (2 couches de pyrocarbone dense + 1 couche de carbure de silicium) sont séparées du noyau combustible par une couche poreuse de pyrocarbone (le buffer) qui recueille les gaz relâchés par le noyau. Outre le comportement des produits de fission, ce combustible se distingue par la formation d'oxydes de carbone qui contribuent à la pression interne dans la particule.



les gaz vers les joints des grains du combustible favorisant le relâchement vers l'extérieur du noyau. La formation d'oxydes de carbone à partir des couches carbonées diminue fortement le potentiel oxygène^{GLO} du noyau d'UO₂ jusqu'à des valeurs inférieures à -450kJ/mol, très en deçà de celles des combustibles Rep à taux de combustion équivalent. Dans ces conditions, les espèces stables thermodynamiquement sont le césium sous forme gazeuse (qui, comme les gaz de fission, migre jusqu'à l'extérieur du noyau) et le ruthénium et le molybdène sous forme métallique. Ceci est en accord avec les observations expérimentales d'inclusions dans le noyau d'UO₂. Ces recherches se poursuivent pour étudier le comportement d'autres produits de fission (baryum, palladium et argent) dans les combustibles Triso.

Contact : Roland Dubourg

(Laboratoire d'étude du corium et du transfert des radioéléments – LETR)
roland.dubourg@irsn.fr

- ⁽¹⁾ Le projet Raphael - Reactor for process heat, hydrogen and electricity generation - est un projet européen du 6^{ème} PCRD sur les réacteurs à gaz à très haute température (VHTR, Very High Temperature Reactors).
- ⁽²⁾ Irradiation dans le réacteur à haut flux de Petten à une température maximale maintenue constante de 1523 K.
- ⁽³⁾ Ils sont relâchés du noyau d'UO₂ mais restent confinés à l'intérieur de la particule.
- ⁽⁴⁾ Les modèles du logiciel MFPR (Module For Fission Product Release) pour le combustible Rep et la base thermodynamique Mephista (Multiphase Equilibria in Fuels via Standard Thermodynamic Analysis).



Nuclear Research consultancy Group (NRG), Pays-Bas, dans le cadre du projet européen Raphael.

+++ Publication : Barrachin M., Dubourg R., de Groot S., Kissane M.P. et Baker K. : « Fission-product behaviour in irradiated TRISO-coated particles: Results of the HFR-Eu1bis experiment and their interpretation », *Journal of Nuclear Materials* 415, (2011) 104-116.



QUE DEVIENNENT LES PARTICULES LORS D'ÉVÉNEMENTS CLIMATIQUES EXTRÊMES DANS LE GOLFE DU LION ?

Le colloque de restitution finale du programme Extrema a eu lieu les 4 et 5 mai 2011 à Cadarache (Bouches du Rhône). Démarré en 2007 sur un appel à projets de l'Agence nationale de la recherche (ANR) et soutenu par deux pôles de compétitivité, ce programme avait pour but d'étudier les processus climatiques extrêmes qui génèrent des flux de sédiments ainsi que leur impact sur la redistribution de polluants au sein des différents compartiments de la géosphère. Principalement axé sur la quantification et sur la modélisation, ce travail devrait permettre d'évaluer la vulnérabilité de l'environnement aux aléas climatiques au cours des vingt à trente prochaines années.

Le programme Extrema s'est déroulé entre janvier 2007 et juin 2011. Objectif : évaluer les conséquences des événements météo-climatiques extrêmes, comme les crues et les tempêtes, sur la redistribution des sédiments et des polluants stockés dans les différents compartiments de l'environnement. En effet, ces événements libèrent une très forte énergie capable de déplacer des masses importantes de sédiments sur des échelles de temps relativement brèves. Complétant d'autres programmes en cours ou antérieurs, le programme Extrema a étudié le devenir des éléments traces potentiellement contaminants, tels que les polluants radioactifs artificiels (comme le césium-137) et certains contaminants métalliques stables reconnus pour leur forte toxicité chimique (Cu, Pb, Cd et Hg). Tous les compartiments de l'environnement – atmosphère, fleuves, milieu marin côtier, milieu marin profond – ont fait l'objet d'une analyse approfondie. Cette étude de grande envergure sur le Golfe du Lion a pu être réalisée grâce à l'implication de nombreux organismes de recherche.



Le projet Extrema était ciblé sur la zone englobant le Rhône aval et la Têt, le plateau continental du Golfe du Lion et jusqu'aux canyons du milieu marin profond. La carte représente les points d'analyse et de prélèvement de l'ensemble du projet.

transferts de matière charriée par l'eau depuis la zone côtière jusqu'à la pente située au bord du plateau continental, et, *in fine*, de faire des simulations sur plusieurs années.

[Un programme d'acquisition de données]

La mission des chercheurs reposait sur deux grands axes. Le premier consistait en l'observation des flux d'eau, de matière et de polluants afin de les quantifier et d'identifier les principaux événements contribuant à ces flux. Pour cela, de nombreuses données ont été collectées au sein des différents compartiments de l'environnement, en particulier lors des épisodes météo-climatiques de grande amplitude, à l'aide de stations de prélèvements et de mesures positionnées en des points stratégiques dans le Golfe du Lion. Ces données ont également servi le second axe de recherche, à savoir la modélisation. Elles ont permis de développer ou de valider des modèles représentant les

[Des fleuves à la mer]

Les observations indiquent que les fleuves côtiers du sud de la France ont actuellement tendance à apporter moins de sédiments à la mer Méditerranéenne qu'auparavant ; elles ont aussi mis en évidence que ces apports sédimentaires, vecteurs de contaminants, varient beaucoup d'une année sur l'autre. Durant les années humides et « riches » en crues, les petits fleuves côtiers peuvent apporter à la mer la même quantité de sédiments que le Rhône. Pendant les années sèches, leur contribution aux apports totaux peut tomber en dessous de 1 %. Le Rhône a quant à lui été plus spécifiquement observé entre 2006 et 2010 : les flux de

radionucléides artificiels ou naturels transportés par le fleuve ont été mesurés tous les mois par la Station observatoire du Rhône à Arles (Sora). Le but ? Enregistrer les variations au cours d'une année et d'une année à l'autre, et préciser l'impact des événements extrêmes sur les flux de matières et de contaminants associés.

[90 % des flux de matière exportés en quelques jours par an]

Les observations ont permis d'évaluer les quantités de radioactivité transportées vers le milieu marin en phase particulaire, c'est-à-dire issue des sédiments, sachant que les déplacements de sédiments sont bien entendu fortement dépendants des crues. Les relevés ont montré qu'entre 2006 et 2010, les crues du Rhône sont responsables de près de 50 % des transports annuels de particules radioactives. Certaines crues, peu nombreuses sur la période d'étude, peuvent engendrer jusqu'à 90 % du flux de matière en seulement quelques jours.

L'influence des « crues semi anthropiques » consécutives à des lâchers de barrages, jusqu'alors méconnue, a en outre été mise en évidence. Ces épisodes se caractérisent par de fortes quantités de matière en suspension dans l'eau qui sont transférées ensuite au milieu marin. Les résultats ont pointé les limites des modèles empiriques de flux de matière qui sont établis essentiellement sur l'hydrologie ainsi que la nécessité de prendre en compte l'impact des activités humaines sur le fleuve.

Dans le compartiment atmosphérique, le programme Extrema a aussi montré que les nuages de particules, qu'il s'agisse de poussières sahariennes marquées par les essais nucléaires réalisés à l'échelle planétaire ou d'aérosols issus d'incendies de forêt en Europe de l'est, maintiennent la présence de traces de radionucléides dans l'air (voir *Aktis* n° 5).

[Remobilisés par la crue]

En ce qui concerne les Éléments traces métalliques (ETM) comme le cuivre, zinc ou encore le plomb, les chercheurs ont mesuré les variations de teneur ou concentration lors d'une crue.

Dans le cas de la Têt, l'un des fleuves côtiers, les ETM sont présents en forte concentration dans les matières en suspension au début de la crue, c'est-à-dire au moment du lessivage des sols soumis aux activités humaines. Ensuite, leur concentration diminue rapidement avec l'augmentation du débit du fleuve et l'érosion des sols plus profonds où la concentration en ETM est moindre. Ce résultat confirme que les mesures réalisées pendant les

crues permettent de déterminer « le bruit de fond géochimique », cette valeur de référence d'une zone géographique incontournable pour démontrer l'existence d'une pollution d'origine humaine.

© IRSN



Trois vues de la Station observatoire du Rhône à Arles (Sora), en période de crue en décembre 2003 ($10\,050\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$) et en novembre 2002 ($8\,010\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$) et en période de calme hydrologique. Les prélèvements d'eau sont réalisés à 50 cm sous la surface de l'eau, quel que soit le débit du fleuve, grâce à une pompe immergée et un flotteur (triangle blanc juste en amont de la bouée de signalisation rouge et blanche) relié à la station par un bras articulé. La station relève en continu 3 m^3 d'eau par heure afin d'alimenter un circuit ouvert d'alimentation et les différents points des collectes des échantillons.

[Depuis le début de l'ère industrielle]

En milieu marin, il était important de connaître l'état des stocks sédimentaires et l'histoire de leur évolution sur les cinquante dernières années, pour comprendre les événements actuels et asseoir la modélisation. L'histoire des apports à la mer de métaux utilisés dans l'industrie (comme le mercure) a été reconstituée à l'aide de carottes sédimentaires prélevées dans le pro-delta^{GL} du Rhône. Ainsi, la concentration en mercure dans les particules déposées dans cette zone a augmenté depuis le début de l'ère industrielle (moitié du XIX^{ème} siècle) pour arriver à un pic dans les années 1960, égalant à 15 fois les concentrations pré-industrielles. Puis, elle a diminué, en suivant l'évolution de la consommation de charbon en



Collecte d'échantillons d'eau à 40 m de profondeur lors de la campagne océanographique Extrema 1 (8 au 24 mars 2008).



8 FOCUS (SUITE)

France. Aujourd'hui elle est encore 4 fois supérieure aux concentrations pré-industrielles. Des observations similaires ont été faites à 3 000 m de profondeur au large, au bord du plateau continental du Golfe du Lion.

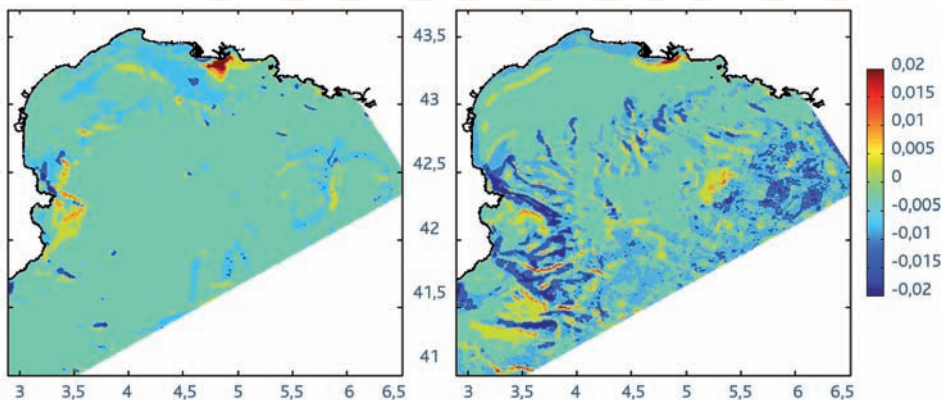
[De l'influence des installations nucléaires]

Les chercheurs ont aussi analysé le devenir des radionucléides dans le delta du Rhône. En étudiant les sédiments accumulés dans les berges du fleuve, ils ont retrouvé la trace et la chronologie des rejets de l'industrie nucléaire rhodanienne à partir du milieu du XX^{ème} siècle. L'historique des rejets de l'installation nucléaire de Marcoule dans le Rhône étant par ailleurs connu, cette analyse sédimentaire a permis d'une part,

de déterminer les taux de sédimentation dans ces milieux, et d'autre part, de comprendre les variations observées des taux de sédimentation et des teneurs en radionucléides d'un point à un autre du delta. Ces variations s'expliquent par les transformations naturelles du fleuve. Ainsi, en bordure de mer, les berges deltaïques ne comportent pas de radionucléides parce qu'elles se sont formées avant l'implantation de l'industrie nucléaire. En revanche, les berges situées plus en amont construites depuis moins de cinquante ans, peuvent contenir des radionucléides artificiels. Les teneurs varient essentiellement avec l'histoire de l'approfondissement du chenal, du déplacement des sédiments par les crues et des rejets des installations nucléaires du Rhône.

De manière générale, le changement climatique amplifie la saisonnalité, occasionnant des sécheresses plus marquées ou des incendies plus fréquents mais aussi des crues plus intenses... Le programme Extrema a contribué à quantifier et à modéliser quelques-unes des conséquences de ce changement désormais avéré.

Contact : Frédérique Eyrolle
(Laboratoire d'étude radioécologique en milieu continental et marin - LERCM)
federique.eyrolle@irsn.fr



Modélisation hydrosédimentaire du Golfe du Lion à l'aide du modèle Symphonie (LA Toulouse) qui illustre l'impact sur le remaniement sédimentaire des variations interannuelles des événements météorologiques importants. Les valeurs positives (en mètres) indiquent les zones de dépôts, les valeurs négatives indiquent les zones d'érosion. À gauche, le bilan de l'hiver 2003-2004, qui a été marqué par des crues et des tempêtes intenses : l'érosion domine sur le plateau (ouest du Rhône et sud-ouest à la sortie du Golfe du Lion) et les dépôts sur la pente continentale (sortie sud-ouest du Golfe). À droite, le bilan de l'hiver 2004-2005, marqué par des épisodes de vent continental fort (Mistral et Tramontane) qui induisent la densification des eaux côtières. Ceci se traduit par des érosions importantes dans les canyons, voies préférentielles de plongée d'eau dense.



Centre de formation et de recherche sur l'environnement marin (Cefrem) ; Centre européen de recherche et d'enseignement des géosciences de l'environnement (Cerege) ; Ifremer/Laboratoire environnement ressources Provence Azur Corse (LER-PAC) ; Ifremer/Laboratoire environnement profond (EEP/LEP) ; Pôle d'océanographie côtière de l'Observatoire Midi-Pyrénées. Laboratoire d'aérodologie (LA, Toulouse).

+++ Publication : Eyrolle F. et al. : « 2009, Extrema contrat ANR-06-VULN-005, Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier - Rapport final », Rapport DEI/Sesure 2011-24.

Confinement - Déchets radioactifs

MODÉLISATION DE LA LIXIVIATION DU BÉTON À L'AIDE D'UN RÉSEAU DE NEURONES

La prise en compte de la variabilité des propriétés physiques du béton dans la modélisation de la lixiviation permet de mieux appréhender la durabilité d'une structure réalisée avec ce matériau.

Au sein d'une structure construite en béton, les propriétés physiques du matériau varient selon les gâchées ou les conditions de mise en oeuvre. La prise en compte de cette « variabilité » peut améliorer les évaluations de sûreté d'installations nucléaires. À cette fin, Thomas de Larrard a réalisé au cours de sa thèse une caractérisation expérimentale et une modélisation probabiliste de la lixiviation du béton, c'est-à-dire de la dissolution du calcium présent dans ce matériau par une eau peu calcaire.

[Bases de données et modèles]

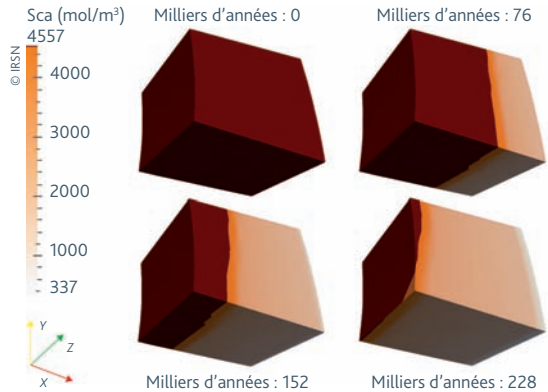
Dans un premier temps, il a constitué une base de données sur la variabilité des propriétés mécaniques et physiques du béton à partir de prélèvements réalisés sur 40 gâchées issues de deux chantiers⁽¹⁾ réels. Dans un deuxième temps, il a développé un modèle numérique simplifié des processus physico-chimiques de la lixiviation prenant en compte la diffusion et la réactivité chimique des espèces calciques, ainsi que les caractéristiques physiques du béton. Ce modèle s'est révélé très sensible à deux propriétés du béton : la porosité et la tortuosité. Cette dernière, qui ne se mesure pas expérimentalement, caractérise l'influence de la présence des graviers dans le béton, qui ne se dissolvent pas.

[Réseau de neurones]

L'identification du coefficient de tortuosité à partir du modèle mathématique est difficile car elle conduit à un problème inverse complexe. D'où l'utilisation d'un réseau de neurones artificiels^{GLQ}, qui établit des liens entre des paramètres d'entrée connus (caractéristiques du béton, cinétiques de lixiviation, etc.) et en sortie la tortuosité. Son apprentissage a été réalisé via l'analyse de 500 simulations effectuées avec le modèle de lixiviation sur des jeux de paramètres élaborés suivant une méthode de Monte-Carlo. Le réseau de neurones a ainsi permis d'identifier les valeurs du coefficient de tortuosité des 40 gâchées réelles et d'en déduire la variabilité.

[Applications]

Ces travaux ont été utilisés pour évaluer la durée nécessaire à la lixiviation complète du béton qui recouvrirait la paroi d'un tunnel où seraient stockés



Exemple de pénétration du front de dégradation dans le revêtement d'un tunnel, avec des champs variables pour la porosité et le coefficient de tortuosité. L'espérance mathématique (ou moyenne statistique) de la durée de la lixiviation d'un revêtement en béton peut être inférieure de 11 % à une valeur de référence, l'écart pouvant même atteindre 32 % dans certains cas (selon la structure de la corrélation spatiale prise en compte, donnée encore mal maîtrisée).

en profondeur des déchets radioactifs. Lorsqu'elle est calculée en tenant compte de la variabilité des caractéristiques du béton issue de la base de données, l'espérance mathématique (ou moyenne statistique) de cette durée peut être inférieure de 11 % à une valeur de référence calculée de façon déterministe avec des caractéristiques moyennes et uniformes du béton.

Une amélioration de ces travaux consisterait, outre à considérer un plus grand nombre de formulations de béton, à les coupler avec des calculs mécaniques pour évaluer le comportement mécanique à long terme de la structure dégradée.

Contact : Frédéric Deleruyelle

(Bureau d'expertise et de recherche pour la sûreté des installations de stockage de déchets radioactifs - Beris)
frederic.deleruyelle@irsn.fr

⁽¹⁾ Tunnel de l'A86 dans l'ouest parisien, et un viaduc aux alentours de Compiègne.



LMT-Cachan - ENS Cachan/CNRS/UPMC/
PRES UniverSud Paris. Projet ANR Appllet.

+++ Publication : Variabilité des propriétés du béton : caractérisation expérimentale et modélisation probabiliste de la lixiviation. Thèse soutenue par Thomas de Larrard, le 27 septembre 2010 à Cachan.

Accidents de fusion du cœur - Physique/chimie

INFLUENCE DU MOLYBDÈNE SUR LE RELÂCHEMENT D'IODE GAZEUX AU COURS D'UN ACCIDENT DE FUSION DU CŒUR

Une thèse a montré expérimentalement le rôle important que joue le molybdène dans la quantité d'iode relâché dans l'enceinte de confinement sous forme de gaz en cas de fusion du cœur d'un réacteur nucléaire à eau sous pression.

Lors d'un accident de fusion du cœur, les quantités d'iode susceptibles d'être relâchées dans l'environnement constituent une donnée clé pour évaluer les risques sanitaires. Or le programme expérimental Phébus PF mené par l'IRSN a montré que les concentrations en iode gazeux mesurées à court terme dans l'enceinte de confinement étaient sous-estimées par les modèles existants. Pour corriger cet écart, l'IRSN s'est intéressé aux processus chimiques qui ont lieu entre le cœur et la brèche dans le circuit de refroidissement qui, dans cette hypothèse, a conduit à la fusion du cœur.

[Cinétiques de réaction plus rapides]

La principale idée avancée pour expliquer l'écart est que, dans le circuit de refroidissement du réacteur, les temps de séjour des produits de fission et les gradients thermiques élevés⁽¹⁾ remettent en cause les modèles actuels basés sur une hypothèse d'équilibre thermo-chimique. S'ils prédisent l'iode majoritairement associé au césium sous forme d'aérosols solides, des espèces différentes peuvent se former hors équilibre. Durant sa thèse, Marion Lacoue-Negre a analysé plus particulièrement le rôle du molybdène⁽²⁾, qui peut former avec le césium des composés stables sous atmosphère oxydante puisque les cinétiques de réaction sont plus rapides. Ainsi, le césium ayant réagi avec le molybdène ne pourrait plus réagir avec l'iode et la quantité d'iode gazeux rejeté augmenterait.

[Piège à césium]

Des expériences ont été conçues et réalisées dans un dispositif représentant les conditions du circuit de refroidissement du réacteur. Les résultats obtenus confirment tout d'abord que le molybdène accroît nettement la quantité d'iode présente sous forme gazeuse à la sortie du dispositif. Ainsi, lors des essais réalisés avec un excès

de molybdène par rapport au césium (rapport molaire compris entre 3 et 5) représentatif des quantités en présence lors d'un accident, plus de 30 % de l'iode injecté dans le dispositif est mesuré à l'état gazeux en sortie. L'analyse par microspectrométrie Raman, l'une des originalités de ce travail, a permis ensuite d'identifier des dépôts de polymolybdates de césium. Leur formation a pu être reproduite simplement à l'aide de calculs de thermodynamique chimique⁽³⁾ fondés sur le diagramme de phase $\text{MoO}_3\text{-Cs}_2\text{MoO}_4$. Ces observations confirment que le molybdène, en s'alliant au césium, réduit la disponibilité de ce dernier pour l'iode. La fraction d'iode volatile augmente alors en conséquence.

Ce travail expérimental se poursuit avec l'étude de l'influence du bore (présent en quantité signifi-

cative dans les réacteurs à eau légère) dans les mêmes conditions (voir *Aktis* n° 5). L'ensemble des résultats concourt à améliorer la modélisation de ces phénomènes et alimente le programme Chip⁽⁴⁾ qui leur est dédié.

Contact : Hervé Mutelle

(Laboratoire d'expérimentation environnement et chimie - L2EC)
herve.mutelle@irsn.fr

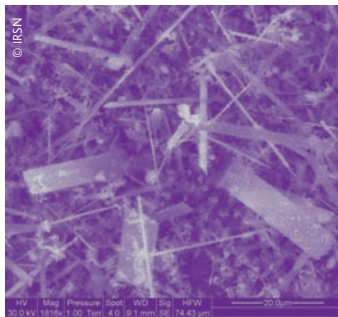


Image en microscopie électronique des dépôts et des aérosols recueillis dans le dispositif expérimental à 700 °C.

⁽¹⁾ En cas de fusion du cœur, les températures le long du circuit de refroidissement varient entre 1 600 °C à la sortie du cœur et 150 °C après la traversée des générateurs de vapeur, dans la

branche qui retourne vers le cœur.

⁽²⁾ Le molybdène est à l'instar de l'iode et du césium l'un des produits de fission de l'uranium.

⁽³⁾ Les calculs ont pour partie été réalisés avec la base de données Mephisto qui est développée par l'IRSN pour décrire la thermodynamique du combustible nucléaire.

⁽⁴⁾ Chip : Chimie de l'iode dans le circuit primaire.



Laboratoire de spectrométrie infra-rouge et Raman (Lasir) de l'université de Lille 1.

+++ Publication : Chimie de l'iode dans le circuit primaire d'un réacteur nucléaire en situation d'accident grave - Étude de mélanges CsI/MoO_3 sous vapeur d'eau. Thèse soutenue par Marion Lacoue-Negre le 6 décembre 2010 à l'Université des Sciences et technologies de Lille.

PRIX

© Abaca Press/Guilbaume Mirand



Une doctorante de l'IRSN lauréate d'une bourse L'Oréal France - Unesco - Académie des sciences

Andrea Bachrata a reçu le 10 octobre 2011 une Bourse L'Oréal France - Unesco - Académie des sciences « Pour les Femmes & la Science », décernée chaque année à dix jeunes femmes scientifiques pour la qualité et le potentiel de leurs recherches.

Andrea effectue sa thèse sur *La modélisation du renoyage d'un cœur du réacteur fortement dégradé* (voir *Aktis* n° 5, article « Refroidissement de débris de cœur par injection d'eau ») au Laboratoire d'étude et de simulation des accidents majeurs (Lesam) situé sur le centre de Cadarache (Bouches-du-Rhône).

Les bourses sont décernées par un jury de scientifiques présidé par Alain Carpentier, Président de l'Académie des sciences. D'une valeur de 10 000 euros chacune, elles sont financées par la Fondation d'Entreprise L'Oréal, soutenues par la Commission française pour l'Unesco, l'Académie des sciences, et parrainées par le ministère de l'Enseignement supérieur et de la recherche.

PUBLICATION

Variabilité des dépôts atmosphériques et des transferts des radioéléments artificiels dans les sols

L'IRSN publie ce mémoire présenté par Laurent Pourcelot pour son Habilitation à diriger des recherches, soutenue le 25 janvier 2008. Il présente des résultats et perspectives de recherche concernant le comportement des radioéléments artificiels dans la géosphère et la biosphère.

Ces travaux contribuent à mieux comprendre les conséquences, en France, des contaminations résiduelles de l'accident de Tchernobyl, et permettront à l'IRSN de participer, au niveau international, à l'analyse des conséquences de celui de Fukushima au Japon.

COLLABORATION

Rapport d'étape de l'Académie des sciences

L'Académie des sciences a publié fin juin 2011 sur son site Internet les premières conclusions et le rapport d'étape de son groupe de travail « Solidarité Japon » sur les risques sismiques et la sûreté des centrales électronucléaires.

Créé pour répondre à l'appel lancé par le Scientific Council of Japan au lendemain de la catastrophe qui a frappé le Japon le 11 mars 2011, ce groupe a pour mission d'analyser en continu la situation et d'en tirer les leçons scientifiques. L'IRSN a été longuement auditionné en tant qu'expert, et a contribué de façon importante à la constitution de ce rapport.

ACTINIDES

Série d'éléments chimiques radioactifs du tableau périodique se situant entre l'actinium (89) et le lawrencium (103), en particulier : uranium, plutonium, américium, thorium.

CALIXARÈNE

Macromolécule cyclique issue de la réaction d'un phénol et d'un aldéhyde.

CHÉLATEUR

Substance qui peut fixer des ions métalliques en constituant avec eux un composé soluble et stable.

EDTA

Acronyme de : Éthylène diamine tétracétique.

ÉLUER

Détacher un constituant d'une colonne de chromatographie.

GWj/t

Abréviation de : Gigawatts.jour/tonne, une unité du taux de combustion.

ICP-MS

Acronyme de : Inductively coupled plasma mass spectrometry (spectrométrie de masse couplée à un plasma inductif).

POTENTIEL D'OXYGÈNE

Pression d'oxygène, à température donnée, en équilibre avec un composé oxyde solide. Il représente la capacité du combustible à oxyder les éléments qui interagissent avec lui.

PRO-DELTA

Partie d'un delta située sous le niveau de la mer, immédiatement à l'aval des barres d'embouchures, échappant à l'action des vagues ou des marées.

RÉSEAU DE NEURONES ARTIFICIELS

Un réseau de neurones artificiels s'inspire du fonctionnement du cerveau et des neurones biologiques. C'est un réseau de processeurs élémentaires fonctionnant en parallèle et interconnectés. Chaque processeur élémentaire (neurone artificiel) calcule une sortie unique sur la base des informations qu'il reçoit. Le réseau de neurones peut se modifier lui-même en fonction des résultats de ses actions, ce qui permet l'apprentissage et la résolution de problèmes complexes sans algorithme, donc sans programmation classique.

192

C'est le nombre d'articles publiés en 2010 par les 120 équivalents temps plein chercheurs statutaires et les 102 doctorants et post-doctorants de l'IRSN dans des revues à comité de lecture.

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) est un organisme public d'expertise et de recherche pour la sûreté et la sécurité nucléaires et la radioprotection. Il intervient comme expert en appui aux autorités publiques. Il exerce également des missions de service public qui lui sont confiées par la réglementation. Il contribue notamment à la surveillance radiologique du territoire national et des travailleurs, à la gestion des situations d'urgence et à l'information du public. Il met son expertise à la disposition de partenaires et de clients français ou étrangers.

Pour consulter la version numérique d'*Aktis*,
accéder aux publications scientifiques
et aux informations complémentaires
en ligne, et pour s'abonner,
rendez-vous sur le site Internet de l'IRSN :
www.irsn.fr, rubrique La Recherche.

Siège social

31 avenue de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses, France
RCS Nanterre B 440 546 018

Téléphone

+33 (0)1 58 35 88 88

Courrier

B.P.17 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex, France

Site Internet

<http://www.irsn.fr>

IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE